

UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE
U. F. R. Sciences Exactes et Naturelles

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de Reims Champagne-Ardenne
Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement par

Damien WEIDMANN

Le 26/04/2002

Titre :

RADIOMETRIE HETERODYNE INFRAROUGE
PAR DIODE LASER ACCORDABLE

JURY

Claude Alibert	Professeur, Université de Montpellier 2, France	Rapporteur, Président
Daniel Courtois	Professeur, Université de Reims, France	Directeur de Thèse
Pierre H. Flamant	Directeur de Recherche CNRS, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France	Rapporteur
Arlan W. Mantz	Professeur, Connecticut College, New London, Etats Unis	Examineur
Yuriy Selivanov	Docteur, Institut Lebedev, Moscou, Russie	Examineur
Claude Thiébeaux	Professeur, Université de Reims, France	Examineur

UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE
U. F. R. Sciences Exactes et Naturelles

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de Reims Champagne-Ardenne
Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement par

Damien WEIDMANN

Le 26/04/2002

Titre :

RADIOMETRIE HETERODYNE INFRAROUGE
PAR DIODE LASER ACCORDABLE

JURY

Claude Alibert	Professeur, Université de Montpellier 2, France	Rapporteur, Président
Daniel Courtois	Professeur, Université de Reims, France	Directeur de Thèse
Pierre H. Flamant	Directeur de Recherche CNRS, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France	Rapporteur
Arlan W. Mantz	Professeur, Connecticut College, New London, Etats Unis	Examineur
Yuriy Selivanov	Docteur, Institut Lebedev, Moscou, Russie	Examineur
Claude Thiébeaux	Professeur, Université de Reims, France	Examineur

Je remercie particulièrement les rapporteurs, mais aussi les autres membres du jury, d'être venus, parfois de très loin, examiner ce travail de thèse.

Je remercie les personnels du Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique, et de tous les laboratoires de l'U.F.R. Sciences Exactes de Reims, qui m'ont accueilli et apporté leur concours.

Je remercie l'atelier général du département de physique pour nos fructueuses collaborations.

Je remercie mes anciens collègues de l'Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Equilibres (LP3) de Marseille qui m'ont tant appris.

Je remercie Brigitte, néophyte zélée, qui a relu moult fois ce manuscrit, et mes vibronnants acolytes de toutes ces années.

SOMMAIRE

CONVENTIONS ET CONSTANTES	9
---------------------------------	---

INTRODUCTION GENERALE.....	11
----------------------------	----

1^{ère} PARTIE : PRELIMINAIRES EXPERIMENTAUX	15
---	-----------

1. Introduction	15
------------------------------	-----------

2. Montage de base : absorption directe	15
--	-----------

2.1. Rôle du montage.....	15
---------------------------	----

2.1.1. Spectroscopie d'absorption.....	15
--	----

2.1.2. Caractérisation des diodes laser.....	20
--	----

2.2. Eléments du montage.....	21
-------------------------------	----

2.2.1. Sources laser.....	21
---------------------------	----

2.2.2. Spectromètre à réseau.....	23
-----------------------------------	----

2.2.3. Etalon Fabry – Pérot.....	23
----------------------------------	----

2.2.4. Cuve à gaz : dioxyde de soufre.....	29
--	----

2.2.5. Détection – acquisition	30
--------------------------------------	----

2.2.6. Exemple d'enregistrement expérimental	32
--	----

3. Cryostat diode laser à azote liquide	32
--	-----------

3.1. Réalisation	32
------------------------	----

3.1.1. Enceinte	32
-----------------------	----

3.1.2. Support de diode.....	33
------------------------------	----

3.1.3. Apport de froid	33
------------------------------	----

3.2. Comportement en température	35
--	----

3.2.1. Mesure de température	35
------------------------------------	----

3.2.2. Comportement en température	36
--	----

3.2.3. Régulation.....	38
------------------------	----

3.2.4. Rampe de température	39
-----------------------------------	----

4. Conclusion	40
----------------------------	-----------

5. Références	41
----------------------------	-----------

Symboles utilisés dans la 1^{ère} partie	43
---	-----------

2^{ème} PARTIE : LASER A SEMI-CONDUCTEURS.....	45
---	-----------

1. Introduction	45
------------------------------	-----------

1.1. Bref historique	45
----------------------------	----

2. Physique de la diode laser	46
--	-----------

2.1. Rappels sur les semi-conducteurs.....	46
--	----

2.1.1. Relations impulsion - énergie	46
--	----

2.1.2. Concentrations d'électrons et de trous.....	47
--	----

2.1.3. Pseudo-équilibre des concentrations de porteurs.....	47
---	----

2.1.4. Génération - recombinaison à l'équilibre thermodynamique.....	48
--	----

2.1.5. Injection électron - trou	49
--	----

2.1.6. Jonctions.....	49
-----------------------	----

2.2. Photons dans les semi-conducteurs	50
--	----

2.2.1. Emission et absorption bande à bande.....	51
--	----

2.2.2. Taux d'absorption et d'émission	52
--	----

2.2.3. Taux de transition globaux	54
---	----

2.2.4. Coefficient de gain en pseudo-équilibre	54
--	----

2.3. Diode laser à homojonction.....	55
--------------------------------------	----

2.3.1. Courbe de gain du milieu amplificateur	55
---	----

2.3.2. Dépendance de la courbe de gain avec les paramètres d'accord	57
---	----

2.4. Le résonateur optique	59
----------------------------------	----

2.4.1.	Faces clivées	59
2.4.2.	Conditions d'oscillation laser	59
2.4.3.	Dépendance des modes de la cavité avec les paramètres d'accord.....	61
2.4.4.	Intrication des phénomènes d'accord	61
2.4.5.	Comparaison des deux types d'accord.....	62
2.5.	Diode laser à hétérostructure	65
2.5.1.	Diode à sels de plomb.....	65
2.5.2.	Techniques de croissance	66
2.5.3.	Confinement de porteurs	67
2.5.4.	Confinement de photons.....	68
2.5.5.	Fabrication et aspect du composant.....	70
2.5.6.	Propriétés de l'émission.....	71
3.	limites des diodes laser	72
3.1.	Bruits	72
3.1.1.	Equations d'évolution.....	72
3.1.2.	Fréquence de relaxation.....	73
3.1.3.	Sources de Langevin.....	74
3.1.4.	Bruit d'intensité	75
3.1.5.	Bruit de phase	75
3.1.6.	Bruits multimodaux	76
3.2.	Le retour optique	78
3.3.	Vieillessement	80
4.	Evolutions – perspectives	80
4.1.	cavité externe.....	81
4.2.	Diode à réseau de Bragg intégré.....	81
4.3.	Laser à cascade quantique	82
4.4.	Autres pistes	84
5.	Conclusion.....	84
6.	Références	85
	Symboles utilisés dans la 2^{ème} partie	89

3^{ème}	PARTIE : BRÛLEUR & FLAMMES	93
1.	Introduction	93
2.	Les flammes.....	93
2.1.	Types de flamme	93
2.1.1.	Flammes à diffusion	93
2.1.2.	Flammes aérées	94
2.2.	Aspects cinétiques	94
2.2.1.	Allumage	94
2.2.2.	Propagation.....	95
2.2.3.	Stabilisation	96
2.2.4.	Forme.....	97
2.3.	Paramètres Physiques	98
2.3.1.	Equations de conservation	98
2.3.2.	Profils	99
2.3.3.	Epaisseur de front	100
2.3.4.	Vitesse de front.....	101
2.3.5.	Flammes plates basse pression	101
3.	Réalisation.....	102
3.1.	Tube brûleur	102
3.1.1.	Choix combustible/comburant.....	102
3.1.2.	Flux laminaire.....	102
3.1.3.	Bouche.....	103
3.2.	Enceinte basse pression	103
3.2.1.	Éléments de caractérisation	103
3.2.2.	Refroidissement.....	104
3.2.3.	Maintien en pression dynamique	104
3.3.	Aspect global.....	105
4.	Caractérisation	107

4.1.	Mesure de température par thermocouple	107
4.1.1.	Type utilisé	107
4.1.2.	Incertitude sur la mesure.....	107
4.1.3.	Correction de mesure.....	108
4.1.4.	Profils de température.....	108
4.2.	Emission thermique des produits.....	109
4.2.1.	Spectromètre à réseau.....	109
4.2.2.	Caméra infrarouge	111
4.3.	Spectroscopie d'absorption des produits de combustion.....	114
4.3.1.	Description de l'expérience	114
4.3.2.	Mesure optique de température	115
4.3.3.	Mesure de concentration.....	118
5.	Conclusion	121
6.	Références	123
	Symboles utilisés dans la 3^{ème} partie	125

4^{ème}	PARTIE : RADIOMETRIE HETERODYNE	127
1.	Introduction	127
2.	Théorie hétérodyne.....	127
2.1.	Présentation historique	127
2.1.1.	Les pionniers	127
2.1.2.	La détection hétérodyne optique.....	128
2.1.3.	Les applications	128
2.2.	Principe.....	129
2.2.1.	Battement de deux ondes planes.....	129
2.2.2.	Battement d'une onde plane et d'une onde polychromatique	130
2.3.	Le mélange optique	131
2.3.1.	Cadre classique	131
2.3.2.	Cadre quantique	136
2.4.	Spectromètre hétérodyne idéal	138
2.4.1.	Signal de battement	138
2.4.2.	Analyse du photo-courant.....	140
2.4.3.	Rapport signal sur bruit	144
2.4.4.	Cas du radiomètre idéal	146
2.4.5.	Comparaison à la détection directe.....	147
2.5.	Facteurs de dégradation	149
2.5.1.	Facteurs de dégradation optiques.....	149
2.5.2.	Facteurs de dégradation lors de la détection	151
2.5.3.	Facteurs de dégradation liés aux lasers à semi-conducteurs	154
2.5.4.	Autres facteurs	156
3.	Réalisation du radiomètre hétérodyne.....	157
3.1.	Description du banc d'expérimentation	157
3.1.1.	Voie oscillateur local	157
3.1.2.	Voie source	158
3.1.3.	Module détection directe	160
3.1.4.	Détection - amplification - acquisition	162
3.1.5.	Aspect global	167
3.2.	Spectres obtenus	168
3.2.1.	Transmission.....	168
3.2.2.	Emission	172
3.3.	Modèle d'émission	177
3.3.1.	Equation de transferts radiatifs	177
3.3.2.	Géométrie et photométrie	178
3.3.3.	Exemple et comparaison.....	179
3.3.4.	Pistes pour l'amélioration de l'instrument.....	182
3.3.5.	Discussion sur une méthode d'inversion quantitative.....	183
4.	Conclusion	183
5.	Références	185
	Symboles utilisés dans la 4^{ème} partie	191

CONCLUSION GENERALE.....	193
ANNEXE	195
1. Calculs intermédiaires.....	195
2. Exemple d'enregistrement de caractérisation de diode laser	196

CONVENTIONS ET CONSTANTES

.	Séparateur décimal
·	Produit
⊗	Produit de convolution
$\delta(x)$	Distribution delta de Dirac
i	Nombre complexe tel que $i^2 = -1$
$\langle \rangle$	Moyenne temporelle
\tilde{X}	Transformée de Fourier de X
\bar{X}	Moyenne statistique de X
X^*	Complexe conjugué de X
$ X $	Module de X
$J_n(x)$	Fonction J de Bessel d'ordre n appliquée à x
∇	Opérateur NABLA

k_B	Constante de Boltzmann	$1.380658(12) \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
h	Constante de Planck	$6.6260755(40) \cdot 10^{-34} \text{ J s}$
\hbar	$h/2\pi$	$1.05457266(63) \cdot 10^{-34} \text{ J s}$
e	Charge élémentaire	$1.60217733(19) \cdot 10^{-19} \text{ C}$
ϵ_0	Permittivité du vide	$8.854187817 \dots \cdot 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$
R	Constante des gaz parfaits	$8.314510(70) \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$
c	Vitesse de la lumière dans le vide	$299792458 \text{ m s}^{-1}$
z_0	Impédance du vide	$376.730313 \dots \Omega$

INTRODUCTION GENERALE

Les travaux exposés dans ce manuscrit furent menés au Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique, laboratoire sis au sein de l'Université de Reims Champagne-Ardenne.

Ces travaux s'inscrivent dans la continuité des travaux du laboratoire précédemment effectués sur des instruments hétérodynes dans le moyen infrarouge. Rappelons en ici brièvement l'historique. En 1984, Courtois et al. [1] réalisent un premier spectromètre laser hétérodyne et enregistrent des spectres atmosphériques d'ozone. Ce spectromètre fonctionnait avec un laser CO₂ comme oscillateur local et sur le principe d'un récepteur super-hétérodyne [2]. Plus tard, sur cet instrument, l'analyse radiofréquence super-hétérodyne fut remplacée par un analyseur acousto-optique suite aux travaux de Kalité [3] et Faye [4].

L'étape suivante a été alors de tirer partie de la nouvelle génération de lasers de fréquence continûment accordable dans l'infrarouge moyen : les lasers à semi-conducteurs en sels de plomb. Nous verrons les caractéristiques de ce type de lasers mais précisons dès maintenant que comparés aux lasers à gaz ces composants sont de bien piètres lasers. Un premier travail fut alors de comparer les performances d'un spectromètre laser hétérodyne lorsque l'oscillateur local, d'un laser à gaz devient un laser à semi-conducteurs. Cette étude fut menée par Parvite [5], un instrument bénéficiant de l'accordabilité des lasers à semi-conducteurs fut ainsi réalisé et permit l'enregistrement de spectres atmosphériques d'ozone.

Entre temps, des expérimentations de radiométrie sur l'ammoniac furent initiées [6] à l'aide d'un radiomètre hétérodyne large bande ayant un laser CO₂ à guide d'onde comme oscillateur local.

Les présents travaux sont une nouvelle étape dans la mise en œuvre de la radiométrie hétérodyne infrarouge. Il s'agit de concevoir et réaliser un instrument utilisant des diodes laser à hétérojonction comme oscillateur local accordable. Cet instrument sera alors utilisé pour collecter et analyser le rayonnement infrarouge émis par des espèces moléculaires portées à haute température par une réaction de combustion. L'instrument devra fournir les spectres haute résolution de ces espèces, ce qui permettrait de remonter à des informations quantitatives sur les concentrations moléculaires et/ou la température. Un tel instrument est alors non intrusif, il permet la télédétection passive. Il trouverait naturellement ses applications dans les diagnostics ou la détection de combustion et serait des plus adaptés à caractériser des sources ignées très distantes du point de collecte du rayonnement, ce que ne permettent pas des techniques actives d'analyse comme la diffusion Raman anti-Stokes cohérente, la fluorescence induite par laser ou les réseaux induits par laser.

Le manuscrit est articulé en quatre parties. La première constitue un préliminaire sur les notions et les techniques impliquées dans la spectroscopie d'absorption directe par diode laser

accordable. En effet, notre caractérisation des lasers à semi-conducteurs repose sur cette méthode expérimentale, et, afin d'éviter toutes digressions ultérieures, cette première partie expose en préambule les clefs pour la compréhension des illustrations expérimentales de la deuxième partie.

Les notions sous-jacentes à l'étude expérimentale des diodes laser étant décrites, nous passerons, en une deuxième longue partie, à la présentation détaillée des lasers à semi-conducteurs. Dans ce travail, la diode laser tient le rôle d'oscillateur local. Ce dernier, avec le détecteur optique, détermine principalement les performances du récepteur hétérodyne. Or, un laser à semi-conducteurs, a fortiori en sels de plomb, reste exotique et difficile à maîtriser. Le comportement de ce type de laser se répercutera directement sur les caractéristiques du radiomètre hétérodyne ; c'est pourquoi, une connaissance intime du composant nous a semblé indispensable.

La troisième partie décrira notre source optique. Nous voulons dédier notre instrument prototype à la collection du rayonnement infrarouge issu d'un gaz de molécules chaud dans des conditions proches de celles du diagnostic de combustion in situ. Il nous faut donc une source de laboratoire particulière. La conception et l'étude de cette source, propice à l'étude systématique, sera l'objet de la troisième partie. Les notions de physique des flammes et de combustion, à l'origine de nos choix de conception, seront détaillées, puis la source sera caractérisée aux vues de l'application à laquelle nous la destinons.

Nous poursuivrons alors, en une quatrième et dernière partie, sur la radiométrie hétérodyne. Nous verrons en détail la physique de la détection hétérodyne et les nombreux problèmes qui en font une technique expérimentale de spectrométrie ardue à maîtriser, notamment lorsqu'un laser à semi-conducteurs est employé comme oscillateur local. Dans cette partie sera décrite la globalité de notre instrument. Viendront ensuite les résultats typiques que nous obtenons et leur discussion. En définitive nous concluons en de possibles voies d'amélioration du radiomètre hétérodyne infrarouge.

-
- 1 D. Courtois, C. Thiébaux et A. Delahaigue, Heterodyne spectrometer for the 10 μm region, *International Journal of Infrared & Millimeter Waves*, **5**, 2, 185-195, 1984
 - 2 C. Thiébaux, Spectrométrie laser hétérodyne, Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, 1987
 - 3 S. Kalité, Interfaçage d'un spectromètre acousto-optique avec une expérience de détection hétérodyne dans la région de 10 μm , Thèse de doctorat, université de Reims Champagne-Ardenne, 1996
 - 4 M. E. Faye, Analyse radiofréquence acousto-optique, application à la spectrométrie hétérodyne, Thèse de doctorat, université de Reims Champagne-Ardenne, 1999
 - 5 B. Parvitte, Réalisation d'un récepteur hétérodyne accordable dans la fenêtre atmosphérique à 10 μm , Thèse de doctorat, université de Reims Champagne-Ardenne, 1997
 - 6 D. Courtois, A. Delahaigue et C. Thiébeaux, Detection of thermal emission from atmospheric gases by laser heterodyne radiometry, *Infrared Physics*, **34**, 4, 407-413, 1993

PRELIMINAIRES EXPERIMENTAUX

1. Introduction

Avant de se pencher sur la physique des lasers à semi-conducteurs, dans cette partie, nous allons présenter les éléments essentiels de nos différents montages optiques expérimentaux. Cette description se fera sur la base d'une configuration en spectromètre d'absorption directe à diode laser accordable, montage le plus simple, destiné à évoluer. Typiquement un tel spectromètre est intensivement utilisé pour diverses applications : spectroscopie moléculaire [1] (détermination de profil, d'intensité, de position des transitions ou tout autre paramètre moléculaire), diagnostic de réactions chimiques [2] (nous verrons le cas de la combustion), mesures in situ de concentrations de polluants [3, 4]. Ici, nous l'utiliserons pour caractériser l'efficacité d'un laser à semi-conducteurs.

Cette présentation préalable nous a semblé indispensable dans la mesure où, sans cela, les divers résultats et illustrations expérimentaux des parties suivantes ne peuvent être explicites, et ne pas avoir exposé ces éléments nous aurait contraints à nous écarter de notre sujet dans les parties qui vont suivre.

2. Montage de base : absorption directe

2.1. Rôle du montage

Le rôle essentiel de ce montage est, en ce qui nous concerne, de permettre une caractérisation fine de l'émission de notre source, à savoir la diode laser. Comme nous le verrons dans la partie consacrée à ces composants, ces lasers sont continûment accordables en fréquence. Cependant, bien souvent, les fabricants ou fournisseurs, proposent des spécifications des plus grossières concernant leurs composants. Les qualités d'émission annoncées sont sujettes à caution, et les gammes spectrales couvertes en fonction des paramètres d'accord (courant et température) ne sont qu'approximations.

A la réception d'une diode laser, la première étape est de connaître finement ses spécifications. Ce test liminaire est réalisé ici par le biais de la spectroscopie d'absorption.

2.1.1. Spectroscopie d'absorption

Cette spectroscopie repose sur les processus physiques suivants :
Soit un corps possédant des niveaux d'énergie discrets, c'est le cas des milieux très dilués tels que les gaz de molécules. Soit un rayonnement (supposé monochromatique) traversant un

milieu où ce corps est présent. Lorsque l'énergie des photons traversant le milieu correspond à l'énergie séparant deux niveaux d'énergie de, par exemple, la molécule, il y a alors interaction très forte entre le rayonnement et la matière ; la molécule capte l'énergie du photon et passe à un niveau d'énergie supérieur, dans un état excité (sous réserve que la transition soit permise). Un photon a ainsi été absorbé. Au sortir du milieu, pour certaines fréquences optiques caractéristiques des niveaux d'énergie de la molécule sondée, on observe une diminution de l'intensité lumineuse transmise.

Pour la spectroscopie dans le domaine spectral du moyen infrarouge, les photons interagissent avec les états ro-vibrationnels des molécules.

Loi de Beer Lambert

La description macroscopique de ces phénomènes repose sur la loi de Beer Lambert. Elle provient de la résolution de l'équation de transfert avec les hypothèses simplificatrices d'un milieu non diffusant, de température homogène. Pour un milieu de longueur L (cuve à gaz), contenant un gaz de n molécules par unité de volume, à la température T, et à la pression P, éclairé par un rayonnement d'intensité $I_0(\sigma)$ (supposé monochromatique), l'intensité lumineuse transmise s'écrit :

$$I(\sigma) = I_0(\sigma) \cdot \exp[-K(\sigma, T, P) \cdot n \cdot L], \tag{2.1.1}$$

où $K(\sigma, T, P)$ est le coefficient d'absorption, caractéristique du composé traversé par le rayonnement.

Ceci est la situation la plus simple. La figure 2.1.1 représente un cas plus général où le rayonnement incident traverse plusieurs milieux contenant plusieurs types de gaz.

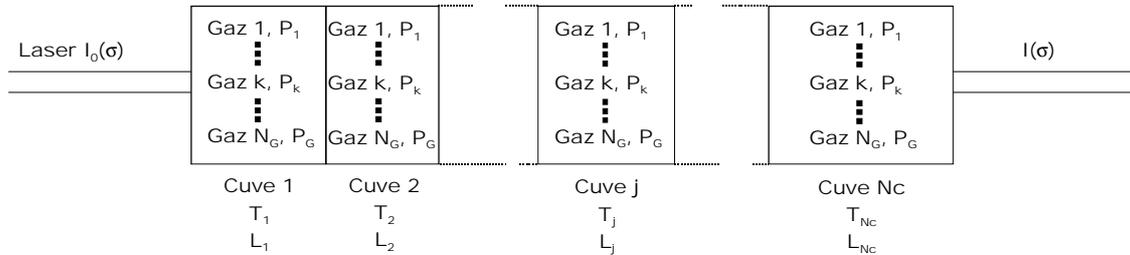


Figure 2.1.1 : représentation schématique d'un rayonnement traversant plusieurs cuves contenant différents gaz.

Les N_c différentes cuves sont indexées par la lettre j . La cuve j est de longueur L_j , et est à une température T_j . Les différents gaz sont indexés par l'indice k , le gaz k est à la pression partielle P_k . Dans cette configuration la loi de Beer Lambert se réécrit :

$$I(\sigma) = I_0(\sigma) \cdot \exp\left[-\sum_j^{N_c} K_{jki}(\sigma) \cdot L_j\right] \tag{2.1.2}$$

avec
$$K_{jki}(\sigma) = \sum_k^{N_G} \sum_i^{N_R} S_{jki}(T_j) \cdot \phi_{jki}(\sigma - \sigma_{jki}, T_j, P_{jk}, P_{jk'}) \cdot \frac{P_{jk}}{R \cdot T_j} \tag{2.1.3}$$

L'indice i se rapporte à l'ensemble des transitions pertinentes, pour un gaz k , dans l'intervalle spectral étudié. N_R est le nombre total de ces transitions, σ_{jki} est la fréquence centrale de la transition i . R est la constante des gaz parfaits.

Intensité d'une transition

$S_{jki}(T_j)$ est l'intensité intégrée de la transition i pour le gaz k contenu dans la cuve j , autrement dit c'est l'intégrale de la section efficace d'absorption sur tout le domaine spectral. Connaissant l'intensité à une température de référence, elle ne dépend plus que de la statistique d'occupation des niveaux d'énergie de la molécule, elle ne dépend donc que de la température. Dans le cas de températures proches de l'ambiante, cette dépendance s'exprime par :

$$S_{jki}(T_j) = S_{jki}(T_0) \frac{Q_k(T_0)}{Q_k(T_j)} \exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot E''_{jki}}{k_B} \left(\frac{1}{T_j} - \frac{1}{T_0}\right)\right] \frac{1 - \exp\left(-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki}}{k_B \cdot T_j}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki}}{k_B \cdot T_0}\right)}, \quad (2.1.4)$$

où T_0 est une température de référence pour laquelle l'intensité de la transition est connue, Q_k est la fonction de partition ro-vibrationnelle, E''_{jki} est l'énergie du niveau bas de la transition. h , k_B , sont respectivement les constantes de Planck et de Boltzmann, c est la vitesse de la lumière.

Fonctions de partition

La fonction de partition n'est autre que la constante qui permet de normaliser à 1 la probabilité d'occupation d'un état ro-vibrationnel. D'une manière générale cette fonction s'exprime par :

$$Q_k(T_j) = \sum_{m=\text{états}} g_m \cdot \exp\left(\frac{-E_m}{k_B \cdot T_j}\right), \quad (2.1.5)$$

où la somme s'effectue sur tous les états de rotation vibration de la molécule, E_m est l'énergie et g_m la dégénérescence d'un état m .

Dans l'approximation harmonique (faible amplitude de vibration) du rotateur rigide, cette fonction de partition peut se découpler comme suit :

$$Q_k(T_j) = Q_k^{\text{ROT}}(T_j) \cdot Q_k^{\text{VIB}}(T_j), \quad (2.1.6)$$

c'est à dire en produit d'une fonction de partition rotationnelle et d'une fonction de partition vibrationnelle. La fonction de partition vibrationnelle s'exprime alors en un produit sur tous les modes de vibration ω_n de la molécule :

$$Q_k^{\text{VIB}}(T_j) \approx \prod_n \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar \omega_n}{k_B \cdot T_j}\right) \right]^{-1}. \quad (2.1.7)$$

Pour la fonction de partition rotationnelle, il n'existe pas de forme générale simple, puisque celle-ci dépend de la symétrie de la molécule considérée. Dans ce travail, nous nous sommes particulièrement intéressés au dioxyde de soufre : SO_2 . Cette molécule appartient au

groupe de symétrie C_{2v} , c'est une toupie asymétrique. Cependant, pour cette molécule, les constantes rotationnelles B et C sont assez proches, l'approximation semi-classique du rotateur rigide donne alors [5] :

$$Q^{\text{ROT}}(T_j) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{A \cdot B \cdot C} \left(\frac{k_B \cdot T_j}{h \cdot c} \right)^3}, \quad (2.1.8)$$

où A, B et C sont les constantes rotationnelles de la molécule ; pour le SO_2 [6] $A = 2.0273542 \text{ cm}^{-1}$, $B = 0.3441739 \text{ cm}^{-1}$, $C = 0.2935265 \text{ cm}^{-1}$.

Forme de raie

La forme de raie, liée à l'excitation de la molécule par absorption de photon, n'est pas un Dirac centré sur la fréquence correspondant à l'énergie entre les deux niveaux mis en jeu dans le processus. Plusieurs phénomènes physiques conduisent à un élargissement de la raie. Primo, le temps de vie fini du niveau excité implique une largeur de raie non nulle, ceci est la largeur naturelle et est souvent négligeable. Secundo, les molécules constituant un gaz à température non nulle s'agitent. Il en résulte un élargissement lié à l'effet Doppler. Tertio, si la densité du gaz de molécules est grande, le libre parcours moyen décroît, il en résulte un élargissement de la raie par effet collisionnel, cette largeur étant inversement proportionnelle au temps de vol des molécules.

La forme de raie décrit ces phénomènes, c'est la fonction ϕ_{jki} de l'équation (2.1.3), dont l'intégrale est normalisée à 1. Dans le cas d'un régime Doppler (effet collisionnel négligeable) cette forme s'écrit :

$$\phi_{jki}^{\text{D}}(\sigma - \sigma_{jki}, T_j) = \frac{1}{\alpha_{jki}^{\text{D}}} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp \left[- \left(\frac{\sigma - \sigma_{jki}}{\alpha_{jki}^{\text{D}}} \right)^2 \cdot \ln 2 \right], \quad (2.1.9)$$

où la demi-largeur à mi-hauteur est :

$$\alpha_{jki}^{\text{D}} = \sigma_{jki} \sqrt{\frac{2k_B \cdot T_j \cdot \ln 2}{m_j \cdot c^2}}, \quad (2.1.10)$$

où m_j est la masse de la molécule.

Dans le cas où l'élargissement est dû à un effet collisionnel la forme de raie est décrite par la Lorentzienne :

$$\phi_{jki}^{\text{L}}(\sigma - \sigma_{jki}, T_j, P_{jk}, P_{jk'}) = \frac{1}{\pi} \frac{\alpha_{jk}^{\text{L}}}{(\sigma - \sigma_{jki})^2 + (\alpha_{jk}^{\text{L}})^2}, \quad (2.1.11)$$

où la demi-largeur à mi-hauteur est définie par :

$$\alpha_{jk}^{\text{L}} = \sum_{k'}^{N_G} \gamma_{jk'/jk'} \frac{P_{jk'}}{P_0} \left(\frac{T_0}{T_j} \right)^{\beta_{jk'/jk'}}. \quad (2.1.12)$$

Dans cette dernière expression, $\gamma_{jk/jk'}$ est le coefficient d'élargissement par collisions du gaz k par le gaz k' à la température de référence T_0 , et $\beta_{jk/jk'}$ le coefficient de dépendance en température de l'élargissement. $P_{jk'}$ est la pression partielle de gaz k', $P_0 = 1 \text{ atm}$, et $T_0 = 296 \text{ K}$.

Enfin, dans le cas où aucun élargissement n'est négligeable devant l'autre, il faut les prendre en compte tous les deux. La forme de raie est alors la convolution de la forme de raie Doppler et de la forme de raie Lorentz. Le profil est alors dit de Voigt. Son expression intégrale est :

$$\phi_{jki}^V(\sigma - \sigma_{jki}, T_j, P_{jk}, P_{jk'}) = \frac{k_0 \cdot y}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{y^2 + (x-t)^2} dt, \quad (2.1.13)$$

avec
$$k_0 = \frac{1}{\alpha_{jki}^D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}, \quad y = \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^D} \sqrt{\ln 2} \quad \text{et} \quad x = \frac{\sigma - \sigma_{jki}}{\alpha_{jki}^D} \sqrt{\ln 2}. \quad (2.1.14)$$

Cependant, comme cette expression intégrale est lourde à calculer, on utilise souvent l'expression approchée semi-numérique de Olivero et Longbothum [7] donnée par :

$$\phi_{jki}^V = \phi_C^V \left\{ \left(1 - \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} \right) e^{-2.772 \cdot U^2} + \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} \frac{1}{1 + 4U^2} + 0.016 \left(1 - \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} \right) \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} \left[e^{-0.4 \cdot U^{2.25}} - \frac{10}{10 + U^{2.25}} \right] \right\} \quad (2.1.15)$$

avec
$$U = \frac{\sigma - \sigma_{jki}}{2\alpha_{jki}^V}, \quad \text{et} \quad \phi_C^V = \left\{ 2\alpha_{jki}^V \left[1.065 + 0.447 \frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} + 0.058 \left(\frac{\alpha_{jk}^L}{\alpha_{jki}^V} \right)^2 \right] \right\}^{-1}. \quad (2.1.16)$$

Enfin α_{jki}^V est la largeur de Voigt donnée par :

$$\alpha_{jki}^V = 0.5 \cdot \left(1.0692 \cdot \alpha_{jk}^L + \sqrt{0.86639(\alpha_{jk}^L)^2 + 4 \cdot (\alpha_{jki}^D)^2} \right). \quad (2.1.17)$$

Nous venons de définir les formes de raie idéales que fournirait un spectromètre parfait. Cependant, tout spectromètre possède une fonction appareil susceptible de déformer le spectre des molécules étudiées. Pour une transition donnée, la forme de raie expérimentale ϕ_{jki}^{EXP} est alors la convolution de la fonction appareil du spectromètre $f_{\text{app}}(\sigma)$ et de la forme de raie de la transition :

$$\phi_{jki}^{\text{EXP}}(\sigma - \sigma_{jki}) = f_{\text{app}}(\sigma) \otimes \phi_{jki}(\sigma - \sigma_{jki}). \quad (2.1.18)$$

Selon les conditions expérimentales cette fonction appareil peut être négligée. Dans notre cas, étant données les pressions des gaz sondés, le profil adéquat est celui de Voigt. De plus, la fonction appareil d'un spectromètre à diode laser accordable est le spectre d'émission de la diode, qui comme nous le verrons, possède une largeur à mi-hauteur de l'ordre de la dizaine de MHz. Cette largeur est très inférieure à celle de Voigt, la fonction appareil d'un tel

spectromètre peut alors être assimilée à un dirac. Il s'ensuit que le spectre expérimental est une image fidèle du spectre de la molécule.

Ainsi, nous disposons de tous les éléments pour exploiter, ou simuler les spectres d'absorption.

Compilations spectroscopiques

Cependant, dans les modèles développés ci-dessus interviennent de nombreux paramètres moléculaires. Pour de nombreuses molécules d'intérêt atmosphérique, des banques de données de paramètres moléculaires ont été, et sont toujours, abondamment alimentées. Il en existe plusieurs : HITRAN, JPL, GEISA... Nous avons utilisé Hitran96 [8] et Hitemp96, une extension de Hitran96 pour les hautes températures. Dans ces compilations, sont tabulés, pour une transition :

- la fréquence centrale : σ_{jki}
- l'intensité intégrée à $T_0 = 296 \text{ K}$: $S_{jki}(T_0)$
- le carré du moment de transition
- le coefficient d'élargissement collisionnel par l'air : $\gamma_{jk/j\text{-air}}$
- le coefficient d'auto-élargissement collisionnel : $\gamma_{jk/jk}$
- l'énergie du niveau de départ de la transition : E''_{jki}
- le coefficient de dépendance en température de l'élargissement collisionnel par l'air : $\beta_{jk/j\text{-air}}$
- enfin, les différents nombres quantiques de rotation – vibration impliqués dans la transition.

D'autre part le programme Hawks, permettant de gérer la banque de données Hitran, calcule l'intensité intégrée des transitions pour des températures entre 70 et 3000 K selon l'expression (2.1.4). Pour ne pas alourdir les calculs numériques, les fonctions de partitions sont calculées par le biais d'une approximation polynomiale :

$$Q_k(T_j) = a_k + b_k \cdot T_j + c_k \cdot T_j^2 + d_k \cdot T_j^3, \quad (2.1.19)$$

les coefficients a_k , b_k , c_k , et d_k , étant également tabulés par tranches de température et par molécule.

A partir de tous ces éléments, nous avons réalisé un programme de calcul de spectres moléculaires synthétiques en langage C.

2.1.2. Caractérisation des diodes laser

Caractériser une diode laser revient à définir finement les spécifications de celle-ci. A savoir, quelle est la gamme spectrale susceptible d'être couverte, et par suite quels composés moléculaires pourront être étudiés ; quelle est la puissance émise par le composant, est-elle

suffisante pour utiliser la diode comme oscillateur local d'un spectromètre hétérodyne ; quelles sont les particularités de l'émission et le bruit associé, l'émission est-elle multimode ou pas, quelle est la largeur spectrale des modes émis. Pour répondre à toutes ces questions concernant les diodes laser, nous avons utilisé un montage optique permettant de faire de la spectroscopie d'absorption haute résolution, il est représenté sur la figure (2.1.1). Les divers éléments sont présentés en détail dans la section suivante.

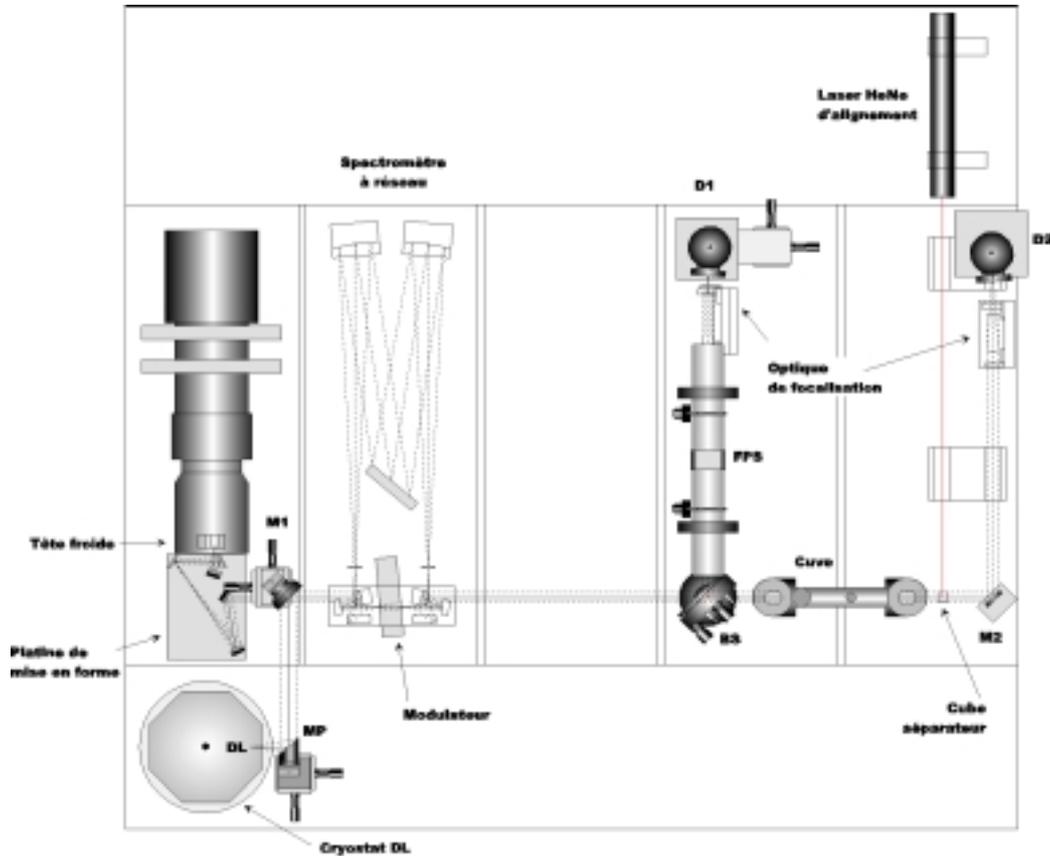


Figure 2.1.1 : Montage de base pour la caractérisation des diodes laser.

2.2. Éléments du montage

Globalement le montage optique est composé de deux types de sources laser, d'un spectromètre à réseaux, d'un interféromètre Fabry – Pérot sphérique et d'une cuve à gaz.

2.2.1. Sources laser

Les sources sont des diodes laser émettant dans le moyen infrarouge. Ces composants fonctionnent à basse température, entre 20 et 100 K. Sur le montage nous disposons de deux têtes froides différentes.

La première est une tête froide commerciale Mutek (tête froide indiquée sur la figure 2.1.1). Le refroidissement est assuré par un circuit fermé d'hélium, ce dernier subissant un cycle thermodynamique de Gifford – McMahon. Le piston assurant la détente du gaz est situé derrière la tête froide, des tuyaux assurent le circuit jusqu'à un compresseur extérieur. La tête

froide est maintenue sous vide par un pompage continu assuré par une pompe turbomoléculaire. Quatre diodes laser peuvent être logées dans la tête froide. La limite basse de température est de 20 K. Les diodes étant très sensibles aux variations de température, un système de régulation assure une stabilité de 1 mK au niveau du support des diodes.

Une platine de mise en forme du faisceau laser est placée devant le hublot de sortie de la tête. Cette platine, composée exclusivement de miroirs (optique achromatique), peut être translaturée pour collimater le faisceau de la diode utilisée. Le faisceau parallèle est alors redirigé vers un deuxième module du banc optique, sous réserve que le miroir M1 ait été ôté.

Nous avons très peu utilisé cette source. Ce système est relativement lourd, rapidement obsolète (du fait d'un fonctionnement continu) et donc coûteux. De plus, malgré les précautions mécaniques mises en œuvre pour découpler la tête froide, la présence d'un piston sur le banc optique est plutôt néfaste !

Les premières diodes laser infrarouges avaient des températures de fonctionnement autour de 30 K. Une seconde génération de diodes dites à hétérojonction, fonctionne à des températures plus hautes : 80 –100 K, soit des températures supérieures à celle de l'azote liquide. C'est pourquoi nous avons développé un cryostat destiné à recevoir ce type de diode.

La réalisation et la caractérisation de ce système seront abondamment développées ultérieurement. Sur notre banc optique, ce cryostat se place devant la platine de mise en forme (cf. fig. 2.1.1), le faisceau est collecté par un miroir parabolique (MP) 90° hors d'axe ouvert à F/2 et de focale 50 mm. Le faisceau parallèle est alors renvoyé dans le deuxième module via le miroir plan M1.

Ce second module est composé d'un spectromètre à réseau.

Commande en courant

Quelle que soit la source laser utilisée, une commande en courant alimente le composant. La diode laser est accordable en courant, toute instabilité de la source de courant se répercute sur la fréquence d'émission du composant. Nous disposons de plusieurs alimentations. Pour les diodes laser ayant un faible courant de seuil, l'alimentation LDX 3620 de chez ILX Lightwave est très stable (typiquement $\pm 2\mu\text{A}@100\text{mA}$), mais limitée à 500 mA. Elle peut fonctionner entièrement sur batteries et limiter ainsi les parasites liés à l'alimentation par le secteur. Pour pouvoir travailler à de plus forts courants, nous avons réalisé un boîtier d'alimentation à partir d'une alimentation en courant FPL5000 de chez Wavelength Electronics. Le courant limite est de 5 ampères, typiquement la stabilité est de $\pm 50\mu\text{A}$, ce qui occasionne une dégradation observable.

Ces deux alimentations possèdent une entrée extérieure, qui permet d'appliquer un signal de modulation en tension, répercuté, selon une certaine fonction de transfert, au courant diode laser. Nous verrons que notre système d'acquisition peut, de manière synchrone, générer une rampe susceptible de piloter le courant d'injection dans la diode laser.

2.2.2. Spectromètre à réseau

Ce spectromètre est dans la configuration de Czerny-Turner (cf. Figure 2.1.1). Une optique à miroirs image la source dans le plan de la fente d'entrée du spectromètre. Symétriquement, un système identique recollimate l'image située dans le plan de la fente de sortie. Ces fentes sont réglables en largeur de 0 à 2 mm. Les miroirs sphériques ont une focale de 500 mm, et sont ouverts à F/7. Les deux miroirs sont espacés de 108 mm, le réseau est situé 360 mm en deçà des miroirs, ainsi l'angle d'incidence sur le réseau, lorsque le plan de celui-ci est orthogonal à l'axe de symétrie du spectromètre est de $i_0 = 8.5^\circ$.

Le réseau comporte $n_r = 30000$ traits/m, la longueur d'onde de blaze est de $25 \mu\text{m}$, soit un angle de blaze de 22.3° . Pour un tel spectromètre, le nombre d'onde transmis σ s'écrit :

$$\sigma = \frac{n_r \cdot q}{2 \cos(i_0) \sin(\theta)}, \quad (2.2.1)$$

où q est l'ordre d'interférence et θ l'angle d'incidence sur le réseau. Pratiquement, on n'utilise guère cette relation, le spectromètre dispose d'un compteur variant avec l'angle du réseau, et le nombre d'onde transmis par le système est déduit d'un étalonnage préalable.

Le pouvoir de résolution de ce spectromètre dépend de la largeur de la fente de sortie. A partir de 2.2.1 celui-ci s'exprime :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{1}{\tan(\theta)} \frac{a}{F_m}, \quad (2.2.2)$$

où a est la largeur de fente et F_m la focale des miroirs du spectromètre. Il y a évidemment un compromis intensité transmise – résolution à faire lors de l'utilisation d'un tel système.

Enfin, la rotation du réseau a été motorisée via un moteur 1000 pas par tour, et le pilotage de l'ensemble se fait par le truchement d'un micro-ordinateur.

Nous venons de décrire le système, mais quelle est son utilité ? Notre source est une diode laser. Le spectromètre à réseau nous permet de connaître grossièrement la région spectrale d'émission du composant (Typiquement à $\pm 1 \text{cm}^{-1}$). D'autre part, dans le cas d'une émission laser multimode de la source, le système filtre un mode d'émission au choix. Les modes d'émission des diodes laser étant séparés de $2-3 \text{cm}^{-1}$, le système est efficace.

Deux miroirs escamotables permettent d'envoyer le faisceau dans le spectromètre à réseau ou pas. Quand le faisceau ne traverse pas le spectromètre, la source est alors imagée au centre de la platine située devant l'entrée du spectromètre. En ce point, nous plaçons un modulateur mécanique.

2.2.3. Etalon Fabry – Pérot

En sortie du deuxième module, le faisceau est séparé en deux par une lame séparatrice (BS) (R=30%). La partie réfléchie traverse un étalon Fabry – Pérot Sphérique (FPS) fixé sur un quatrième module. L'autre partie du faisceau traverse une cuve à gaz.

Les diodes laser sont continûment accordables en fréquence. L'étalon FPS fournit une échelle relative de la fréquence émise par la source laser.

Principe

Le FPS est un interféromètre à ondes multiples [9]. Cet étalon est un système afocal de grandissement 1 constitué de deux miroirs sphériques confocaux. Le principe est exactement le même que celui d'un Fabry-Pérot Plan (FPP), cependant dans le cas du FPS la différence de marche entre deux rayons successifs transmis est deux fois plus grande que dans le cas du FPP. Ceci s'explique par le fait que dans le cas du FPS il faut qu'un rayon subisse 4 aller-retour dans la cavité avant d'être transmis avec la même direction que le précédent rayon émergent ; dans le cas du FPP deux suffisent. Notons que dans l'hypothèse du stigmatisme approché la longueur optique d'un aller-retour est $2 \cdot \mu \cdot L$, où L est la longueur de la cavité et μ l'indice du milieu contenu par elle.

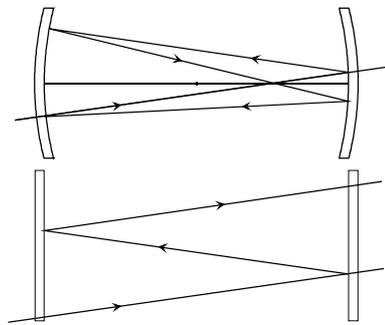


Figure 2.2.1

Comparaison des trajets de rayons lumineux dans un FPS et un FPP.

De plus, les réglages optiques sur un FPS sont nettement moins critiques que dans le cas du FPP.

Pour une radiation monochromatique, de nombre d'onde σ , incidente sur le FPS, en négligeant les pertes éventuelles, le facteur de transmission T_{FPS} de cet interféromètre est proportionnel la fonction d'Airy :

$$T_{\text{FPS}}(\sigma) = \frac{T^2}{2 \cdot (1-R)^2} \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R^2)} \sin^2(4\pi \cdot \mu \cdot L \cdot \sigma + 2\delta)}, \quad (2.2.3)$$

où R et T sont respectivement les facteurs de réflexion et transmission des miroirs et δ le déphasage introduit à la réflexion sur un miroir (autrement dit le coefficient de réflexion sur un miroir s'écrit : $r = \sqrt{R} \cdot e^{i\delta}$). Notons que cette expression de T_{FPS} n'est valable que si les milieux internes et externes à la cavité sont les mêmes.

Nous avons représenté la transmission d'un FPS en fonction du nombre d'onde de la radiation qui le traverse sur la figure 2.2.2. Les données utilisées sont proches de celles d'un des FPS disponible au laboratoire : $R=0.90$, $T=0.04$, $\mu=1$, $L=0.25$ m.

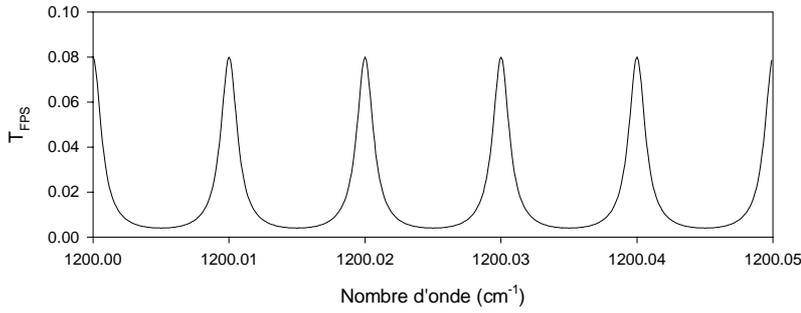


Figure 2.2.2
Facteur de transmission
d'un FPS.

Deux paramètres sont importants. D'abord la longueur de la cavité détermine l'intervalle spectral libre de l'interféromètre (intervalle de fréquence entre deux pics voisins). Ceci fixe l'échelle relative en fréquence (ou nombre d'onde). Ensuite, la finesse, définie comme le rapport de la largeur à mi-hauteur d'un pic par l'intervalle spectral libre, détermine la capacité de l'interféromètre à discriminer deux modes émis par la source laser. Pour un FPS cette finesse F_R s'exprime comme :

$$F_R = \frac{\pi \cdot R}{1 - R^2}. \quad (2.2.4)$$

Cette finesse ne dépend que du facteur de réflexion des miroirs, par exemple, sur la figure 2.2.2, la finesse est de 15. Cependant ceci est dans le cas idéal où l'état de surface des miroirs est parfait. En réalité, cette spécification doit être prise en compte. Pour des miroirs polis à λ/M , la finesse liée à l'état de surface est :

$$F_M = \frac{M}{2}. \quad (2.2.5)$$

La finesse de l'instrument est alors :

$$F = \frac{F_R \cdot F_M}{\sqrt{F_R^2 + F_M^2}}. \quad (2.2.6)$$

Utilité

Le spectre en sortie du FPS nous permettra d'obtenir des informations sur le spectre d'émission de la source. En effet, l'intensité transmise par le FPS s'écrit :

$$I_T(\sigma) = T_{FPS}(\sigma) \otimes I_S(\sigma), \quad (2.2.7)$$

or, si par exemple la diode laser émet deux modes simultanément de nombre d'onde σ_1 et σ_2 , la largeur de ces modes étant très petite comparée à la largeur d'un pic de la fonction d'Airy, on peut considérer que :

$$I_S(\sigma) = A_1 \cdot \delta(\sigma - \sigma_1) + A_2 \cdot \delta(\sigma - \sigma_2), \quad (2.2.8)$$

où A_1 et A_2 sont les intensités des modes 1 et 2.

Lorsque, en faisant varier un paramètre ad hoc, on balaiera la fréquence d'émission de la source laser, le signal détecté en sortie du FPS sera alors tel que représenté sur la figure

2.2.3 (Pour cette simulation nous avons gardé les paramètres du FPS utilisés précédemment, et avons choisit A_2 égale un tiers de A_1).

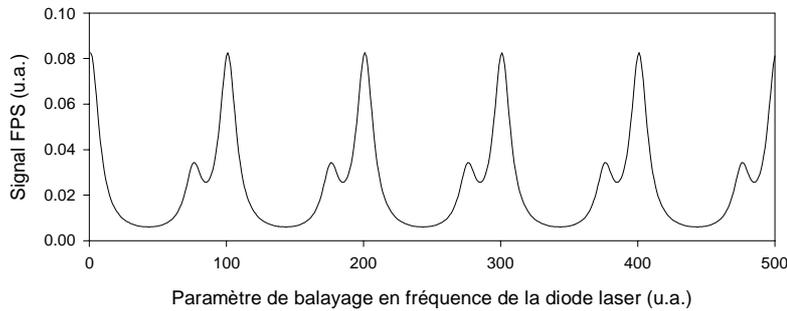


Figure 2.2.3
Signal détecté en sortie d'un FPS dans le cas d'un faisceau laser incident bimode.

D'autre part, le signal issu du FPS peut nous renseigner sur la largeur d'émission d'un mode. Supposons que la source ait le spectre d'émission suivant (gaussien) :

$$I_s(\sigma) = \frac{A_1}{\sqrt{2\pi} \cdot \Delta\sigma} \exp\left[-\frac{(\sigma - \sigma_1)^2}{2\Delta\sigma^2}\right], \quad (2.2.9)$$

si la largeur d'émission de ce mode $\Delta\sigma$ n'est pas négligeable devant la largeur des pics de la fonction d'Airy, de part la convolution (2.2.7), on observera alors sur le signal détecté en sortie du FPS, une finesse inférieure à la finesse donnée par (2.2.6). Connaissant les spécifications du FPS, il est alors possible de remonter à une estimation de $\Delta\sigma$.

Réalisation

Nous disposons au laboratoire de deux FPS couvrant une grande gamme de nombres d'onde. La gamme de travail d'un tel instrument dépend de la réflectivité des miroirs diélectriques (les miroirs à film métallique ne sont pas utilisés car trop absorbants). L'un possède des lames en ZnSe, avec un traitement réfléchissant optimisé à 1000 cm^{-1} . L'autre est fait de lames en BaF₂ avec traitement réfléchissant optimisé à 1200 cm^{-1} . La figure 2.2.4 représente les courbes de réflectivité des traitements.

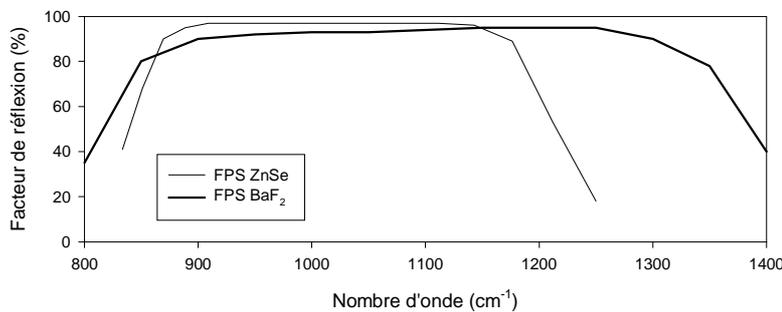


Figure 2.2.4
Caractéristique spectrale des traitements réfléchissants des deux FPS

Les lames sont afocales (ménisques parallèles). Le traitement réfléchissant est bien sûr apposé sur la face concave du ménisque, sur la face convexe est appliqué un traitement anti-réfléchissant.

L'intervalle spectral libre de l'instrument est donné par la distance qui sépare les deux miroirs sphériques, ce qui fixe également le rayon de courbure des miroirs puisque la cavité doit être confocale. L'échelle relative en fréquence choisie est de 10 mK (0.01 cm^{-1}), ce qui correspond à $L=250 \text{ mm}$, et à un rayon de courbure des miroirs de 250 mm également.

Les deux miroirs de diamètre 25 mm sont placés dans un tube en Invar afin de limiter les variations de longueur de cavité avec la température.

Adaptation

Jusqu'à présent, nous avons décrit le FPS comme un dispositif interférentiel. La fonction d'Airy de l'instrument (2.2.3) découle d'un modèle d'onde plane subissant des réflexions multiples. Mais, une description en terme de couplage onde-cavité apporte des informations sur l'intérêt de l'adaptation.

Un résonateur optique possède des modes propres ou encore des modes spatiaux électromagnétiques transverses, notés TEM_{qmn} , où q spécifie le mode axial et m et n caractérisent les modes transverses. Dans l'approximation paraxiale, ces modes propres sont représentés par les fonctions de Hermite-Gauss [10] :

$$U_{mn}(x, y, z) = \sqrt{\frac{2 \exp[-2 \cdot i \cdot (m+n+1)(\psi(z) - \psi_0)]}{\pi \cdot 2^m 2^n m! n! w^2(z)}} \cdot H_m\left(\frac{\sqrt{2} \cdot x}{w(z)}\right) \cdot \exp\left[-i \frac{k \cdot x^2}{2R(z)} - \frac{x^2}{w^2(z)}\right] \\ \times H_n\left(\frac{\sqrt{2} \cdot y}{w(z)}\right) \cdot \exp\left[-i \frac{k \cdot y^2}{2R(z)} - \frac{y^2}{w^2(z)}\right] \quad (2.2.10)$$

où x, y sont les coordonnées transverses, $R(z)$ le rayon de courbure du front d'onde, $w(z)$ la taille du faisceau gaussien, $k = 2\pi \cdot \sigma$, et

$$\psi(z) = \arctan\left(\frac{\pi \cdot \sigma \cdot w^2(z)}{R(z)}\right). \quad (2.2.11)$$

ψ_0 est la valeur particulière que prend $\psi(z)$ au waist de l'onde. Ces fonctions forment une base orthogonale complète, n'importe quelle distribution spatiale $\Psi(x, y, z)$ du champ dans le résonateur peut s'écrire comme superposition linéaire de ces modes propres de la cavité :

$$\Psi(x, y, z) = \sum_m \sum_n C_{mn} \cdot U_{mn}(x, y, z), \quad (2.2.12)$$

où C_{mn} est le coefficient de couplage du mode TEM_{qmn} .

Dans le cas où la cavité n'est pas adaptée, il n'y a aucun couplage privilégié avec l'un des modes propres. Pour connaître les modes présents, on part de l'expression (2.2.10) et l'on écrit la condition de phase sur un aller-retour [11], dans le cas particulier de la cavité confocale ces modes sont alors :

$$\sigma_{qmn} = \frac{1}{2 \cdot \mu \cdot L} \left[q + \frac{1}{2} (m+n+1) \right]. \quad (2.2.13)$$

Ceci nous apporte une information supplémentaire comparé au traitement précédent (fonction d'Airy). La fonction d'Airy d'une telle cavité prévoyait un espacement en nombre d'onde de

$\frac{1}{4\mu L}$ entre les pics successifs, ou modes. L'expression (2.2.13) nous indique qu'en fait, un pic sur deux est composé d'un mode axial superposé aux modes transverses impairs, et les pics complémentaires sont composés d'une superposition de modes transverses pairs.

Adapter le faisceau incident à la cavité consiste, dans le cas idéal, à faire en sorte qu'un seul mode, le mode fondamental, oscille dans le résonateur. Autrement dit, $C_{00}=1$, et $C_{mn}=0$ pour $m,n > 0$. La figure 2.2.5 représente pratiquement comment réaliser cette adaptation.

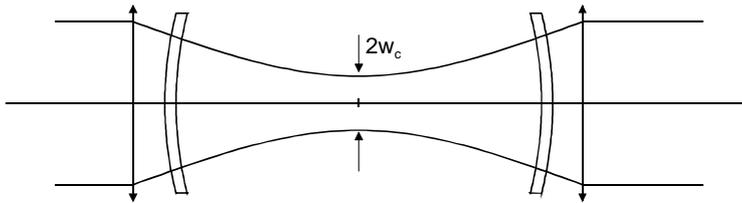


Figure 2.2.5
Adaptation d'un FPS.

Il s'agit de faire correspondre le waist du faisceau w_c avec le foyer de la cavité, et que, au niveau des miroirs, les rayons de courbure des fronts d'onde coïncident exactement avec ceux des miroirs.

Nous avons tenté de réaliser expérimentalement cette adaptation. L'absorption des miroirs n'étant jamais nulle, les diodes laser étant peu puissantes, les signaux en sortie du FPS sont faibles. Adapter le FPS permettrait d'augmenter la puissance de ces signaux. Nous avons travaillé avec une diode à homojonction, à $9.3 \mu\text{m}$, le waist à atteindre au niveau des foyers de la cavité est de $610 \mu\text{m}$, nous avons utilisé le FPS avec lames en ZnSe. La figure 2.2.6 montre le résultat obtenu.

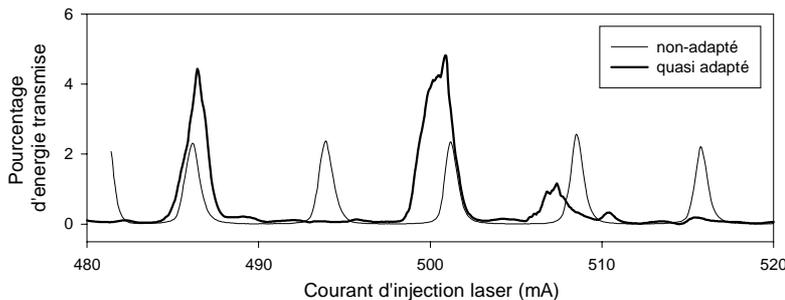


Figure 2.2.6
Résultat expérimental de l'adaptation du FPS.

Sur cette figure nous voyons effectivement un pic sur deux disparaître, ou presque. Le couplage est augmenté puisque la puissance optique transmise est plus importante. Cependant, l'adaptation présente de sévères limitations. Le réglage optique est extrêmement critique. Or, un mauvais alignement de l'axe optique du faisceau avec celui de la cavité, ou bien, une mauvaise coïncidence du waist avec le foyer de la cavité entraîne rapidement l'apparition de mode TEM d'ordre élevé [12]. D'autre part, la source laser, un laser à semi-conducteurs, n'est que très approximativement une source gaussienne, enfin, nous le verrons plus loin, ce type de laser est extrêmement sensible au retour optique. Quand la cavité est

parfaitement adaptée, la puissance optique réfléchiée par le système est alors parfaitement renvoyée dans le composant, ce qui perturbe considérablement la qualité de son émission. Pour toutes ces raisons, nous avons abandonné par la suite l'adaptation du FPS, qui reste cependant possible (notamment l'utilisation d'un isolateur optique faciliterait grandement cette réalisation).

2.2.4. Cuve à gaz : dioxyde de soufre

Après le prélèvement opéré par la lame séparatrice (BS), la partie du faisceau transmise traverse une cuve à gaz. Cette cuve est de 20 cm de long, les fenêtres sont en CaF_2 , orientées à 45° afin d'éviter les réflexions susceptibles de générer du retour optique. Elle est équipée d'un capteur de pression Baratron 0-10 torr.

Cette cuve est destinée à contenir un gaz de référence nous fournissant une échelle de fréquence absolue. Dans notre étude, le gaz que nous considérerons est le dioxyde de soufre (SO_2). Ce gaz est un important polluant atmosphérique. L'origine de ce polluant est due à la combustion du soufre, phénomène que l'on rencontre soit à l'état naturel dans les fumerolles volcaniques [13], soit comme produit anthropogénique à proximité des usines brûlant des huiles ou des charbons. Précisons que la production naturelle de ce polluant est négligeable. Par exemple, le rejet atmosphérique de ce polluant par un pays industrialisé tel que les Etats-Unis est de l'ordre de 40 millions de tonnes par an [14]. De plus ce gaz est très soluble dans l'eau, la dissolution produit de l'acide sulfurique. Ainsi, le SO_2 atmosphérique, se combinant à l'eau engendre le phénomène délétère de pluies acides.

La molécule de SO_2 est une toupie asymétrique, elle appartient au groupe de symétrie C_{2v} . La figure 2.27 est une représentation vraiment très schématique de la molécule.

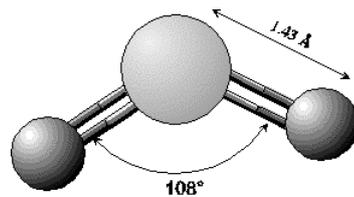


Figure 2.2.7
Représentation schématique de la molécule de SO_2 .

Comme cette molécule est un polluant majeur de l'atmosphère, les données spectroscopiques dans l'infrarouge moyen sont relativement abondantes. Dans le moyen infrarouge cette molécule présente deux bandes fondamentales (voir la figure 2.2.8), la bande ν_1 (centrée sur $1151.7130 \text{ cm}^{-1}$, somme des intensités $3.519 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^{-1}/\text{molécule.cm}^{-2}$), et la bande ν_3 (centrée sur $1362.0607 \text{ cm}^{-1}$, somme des intensités $3.08 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^{-1}/\text{molécule.cm}^{-2}$).

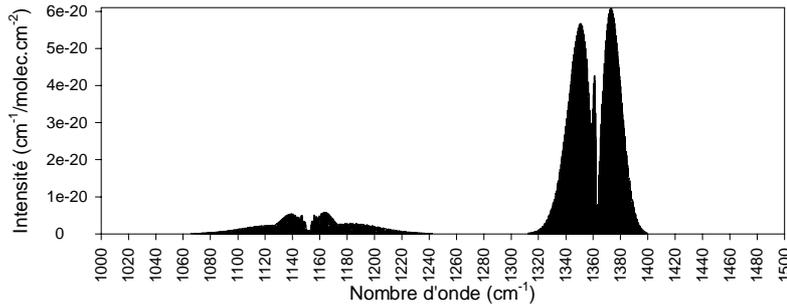


Figure 2.2.8
Bande ν_1 et ν_3 de transition moléculaire du SO_2 dans le moyen infrarouge.

Un compromis quant au choix de la bande de travail est à faire. La bande ν_1 est moins intense que la ν_3 , mais n'interfère pas avec les fréquences de transitions de l'eau atmosphérique. C'est une bonne zone spectrale de travail quand le SO_2 est présent en forte concentration, où que la cuve de travail est longue. Cependant, au cas où il faudrait détecter du SO_2 en faible concentration, sachant que le gaz s'étend sur une courte zone spatiale, la bande ν_3 est plus adaptée, tout en prenant garde de travailler spectralement entre les transitions de l'eau.

2.2.5. Détection – acquisition

Les deux faisceaux, celui qui traverse le FPS et celui qui traverse la cuve à gaz sont alors focalisés par des miroirs sphériques (focale 150 mm) sur deux détecteurs photoconducteurs HgCdTe. Ces détecteurs (D1 et D2 sur la figure 2.1.1) fonctionnent à la température de l'azote liquide, leur fenêtre d'entrée est en ZnSe, leur surface est de 0.01 cm^2 , leur champ de vision de 60° . Un montage de type photoconductif assure leur polarisation.

Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit du système de détection, le faisceau est modulé en amplitude par un hacheur mécanique, en fonction du temps le détecteur voit un éclairage assimilable à une fonction porte périodique. Le premier avantage de la modulation est que les détecteurs ont une meilleure détectivité lors d'un éclairage périodique. De plus ceci nous permet d'utiliser des détections synchrones. Ainsi, nous nous affranchissons du fond ambiant (en première approximation un corps noir à 300 K, donc un maximum d'émission à $10 \mu\text{m}$) et du bruit de scintillation en $1/f$.

Une fois le signal démodulé par la détection synchrone, un signal 0-10V est envoyé sur un tiroir d'acquisition géré par un PC. La figure 2.2.9 est un synoptique du système de gestion-acquisition.

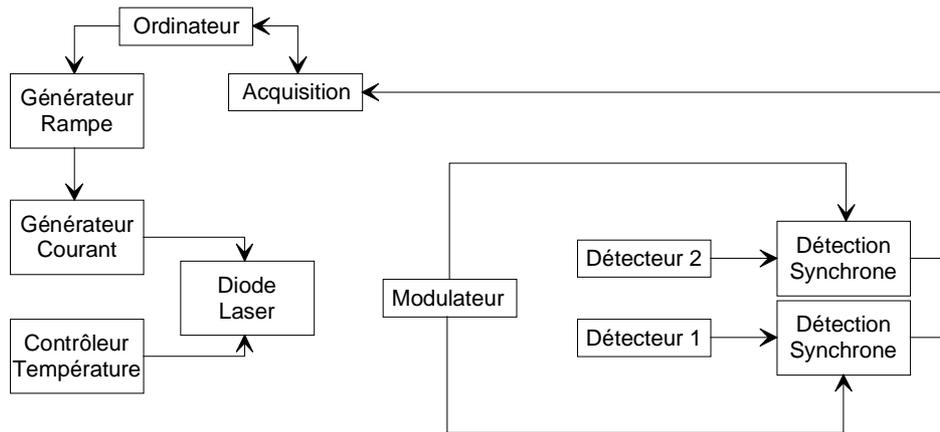


Figure 2.2.9 : Synoptique du système de gestion-acquisition.

Les éléments de contrôle de la diode laser seront exposés dans la partie suivante.

Le système d'acquisition a été réalisé au laboratoire par X. Thomas. La fréquence d'acquisition maximale est de 1 kHz. Le système repose sur l'utilisation d'un convertisseur tension-fréquence. Supposons un signal d'entrée de V volt. Le convertisseur tension-fréquence génère alors un signal d'impulsion de fréquence V MHz. Puis un système d'intégration numérique effectue le comptage du nombre d'impulsion pendant le temps d'intégration numérique choisi par l'utilisateur. Ceci est schématisé sur le synoptique de la figure 2.2.10.

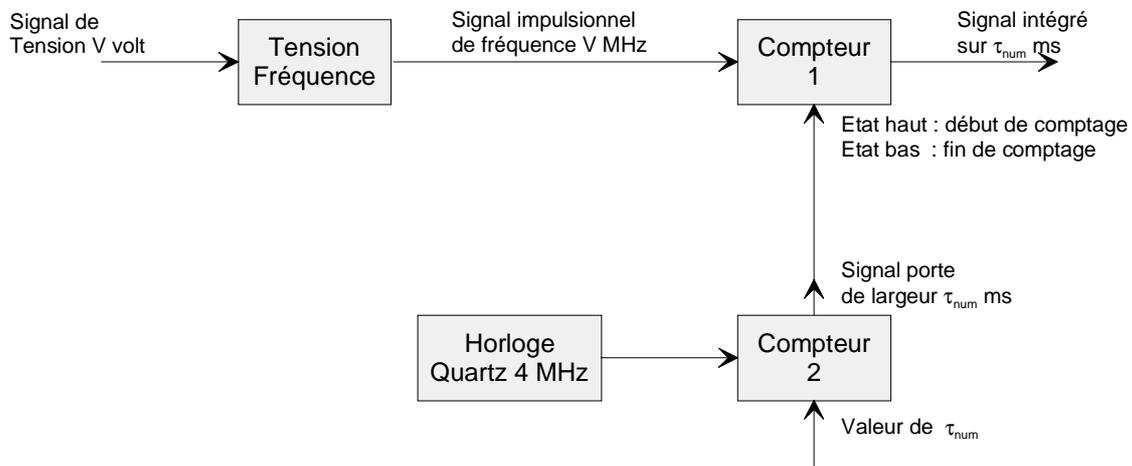


Figure 2.2.10 : Synoptique des cartes d'acquisition.

Un logiciel ad hoc (programmé en langage C par X. Thomas également) permet de récupérer l'ensemble des données. Notons qu'un tel système permet de gérer 4 voies simultanément, et commande de manière synchrone un générateur de rampe.

2.2.6. Exemple d'enregistrement expérimental

Pour conclure cette section consacrée au montage optique d'absorption directe, un exemple d'enregistrement expérimental de spectre d'absorption de SO₂ résumera l'ensemble du dispositif.

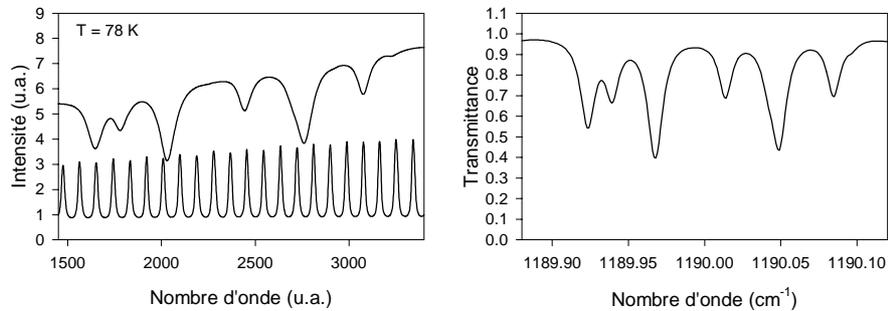


Figure 2.1.11 : Spectre expérimental d'absorption de SO₂ (gauche), spectre calculé correspondant (droite).

Sur le spectre expérimental (à gauche) est représenté, en fonction de la fréquence d'émission du laser, à la fois le signal issu du détecteur 2, et les franges de FPS, signal issu du détecteur 1. La cuve est remplie de SO₂ sous une pression de 7 torr. Le signal est modulé à 1713 Hz, la constante de temps des détections synchrones est de 3 ms, et le temps d'intégration numérique de 10 ms. A droite, nous avons représenté le spectre calculé grâce aux outils présentés dans la section 2.2.1.

Ce type d'enregistrement expérimental nous permet de réaliser une cartographie des points de fonctionnement de la diode laser. A titre d'illustration, nous avons renvoyé en annexe une cartographie complète.

3. Cryostat diode laser à azote liquide

La température est un paramètre d'accord d'une diode laser. Autrement dit, la moindre variation de température du composant se répercute par une variation de la fréquence d'émission. Assurer la stabilité de la fréquence d'émission nécessite, entre autre, d'assurer la meilleure qualité possible du contrôle de température. Dans ce but, ayant à notre disposition des diodes laser fonctionnant à la température de l'azote liquide, nous avons réalisé au laboratoire le cryostat destiné à recevoir ce composant.

3.1. Réalisation

3.1.1. Enceinte

Pour la réalisation, nous avons utilisé un dewar commercial de chez Infrared Laboratories (type ND-5). Sa contenance est de 1.2 L, ce qui correspond à une autonomie de

froid de 40 heures (sans modification du dewar). Le fond du réservoir à azote liquide est une plaque froide en cuivre sur laquelle sont prévues des fixations.

Pour augmenter l'espace disponible sous la plaque froide, nous avons conçu une pièce de Duralumin remplaçant le fond originel du dewar. Cette pièce est destinée à recevoir le support de diode refroidi. Afin de limiter les fuites thermiques, un disque de Plexiglas (conductivité thermique de $0.18 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) assure l'isolation. Ce disque repose sur deux fines collerettes, la surface d'échange entre le disque et l'enceinte de Duralumin est ainsi minimisée, par usinage conique le disque est autocentré.

Le fond de cette enceinte est percé d'un sas d'accès. Latéralement, une embase hermétique assure le passage des différentes connexions électriques ; une autre face de cette enceinte est percée d'un hublot de BaF₂ transparent au moyen infrarouge.

3.1.2. Support de diode

Le support de diode est destiné, comme son nom l'indique à recevoir la diode laser, mais aussi tous les éléments essentiels à la régulation de thermique : sonde de température, apport de chaleur et apport de froid. Le support est en cuivre OFHC (Oxygen Free High Conductivity). A l'une des extrémités du support est fixée une tresse d'apport de froid, puis vient une feuille réchauffante (15 Ohms) serrée sur le support par une plaque de cuivre. A l'autre extrémité la diode est fixée et de part et d'autre deux sondes Pt 1000 Ohms prélèvent la température. L'intimité de chaque contact est assurée par de la graisse cryogénique. La figure 3.1.1 schématise le support de diode.

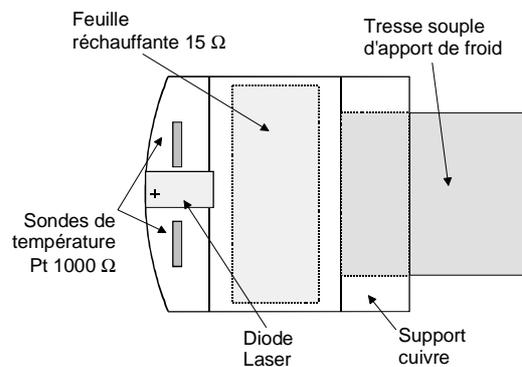


Figure 3.1.1
Support de diode laser.

3.1.3. Apport de froid

Apporter du froid au niveau du support revient à réaliser une jonction thermique entre la plaque froide du dewar et le support de diode. Au niveau de la plaque froide nous avons choisi de fixer un cylindre de cuivre massif. Cette pièce joue ainsi le rôle de tampon thermique lissant les éventuelles variations de température. L'intimité du contact thermique est assurée par une feuille d'indium de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La ductilité de l'indium et un fort serrage permettent un tel contact.

La stabilité mécanique de la diode est importante. Nous avons choisi de découpler mécaniquement le tampon thermique du support de diode. La tresse qui relie ces deux pièces doit posséder une certaine souplesse. Pour réaliser ceci, nous avons superposé 60 feuilles de cuivre (état recuit) de 25 μm d'épaisseur. La figure 3.1.3 présente le cryostat complet, la figure 3.1.2 est un schéma de la partie ajoutée au dewar commercial.

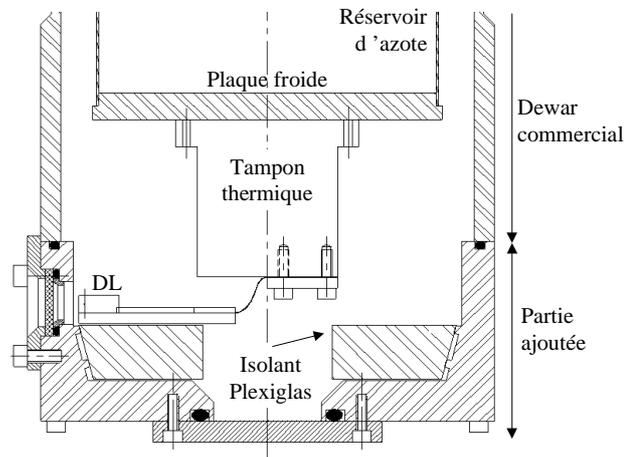


Figure 3.1.2
Schéma du cryostat diode laser

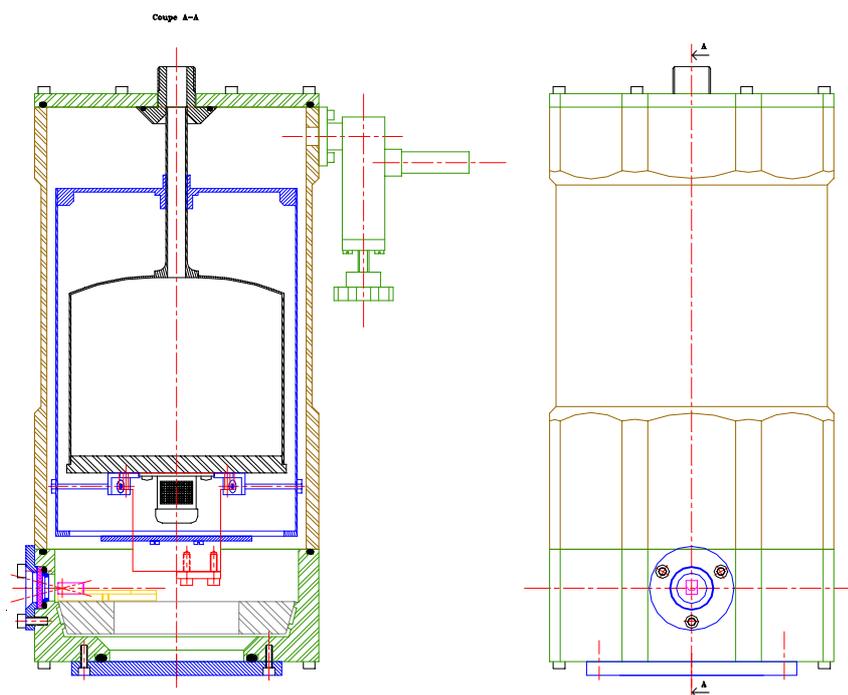


Figure 3.1.3 : Vue globale du cryostat diode laser

Le cryostat complet, une fois pompé sous un vide dynamique de 10^{-6} mbar, assure une autonomie de 30 heures pour plusieurs mois. Afin que celui-ci reste constamment en froid, un système de remplissage automatique d'azote liquide a été mis en place.

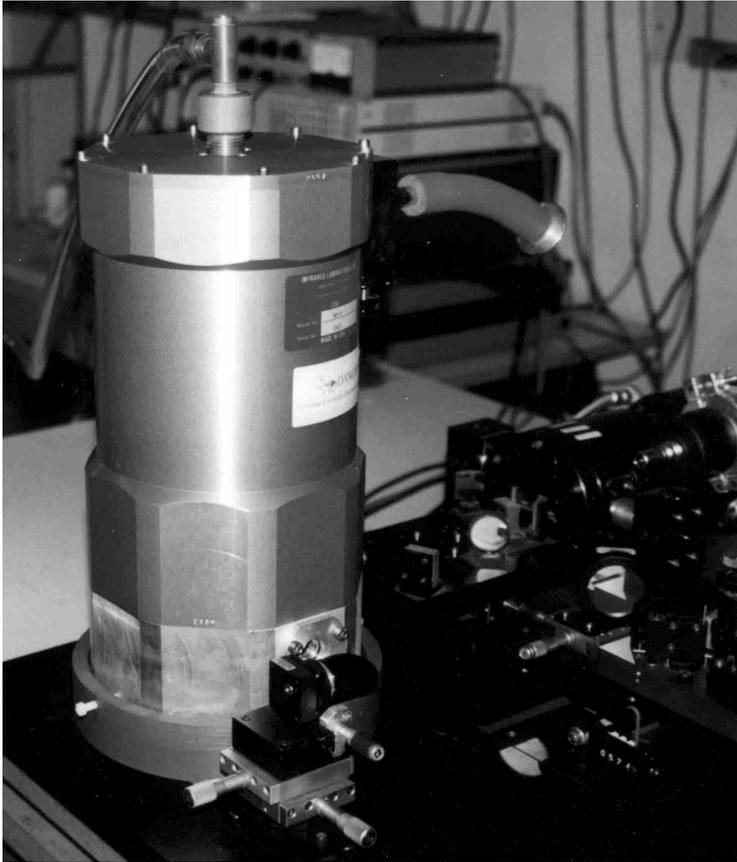


Figure 3.1.4
Photographie du cryostat réalisé.

3.2. Comportement en température

3.2.1. Mesure de température

La mesure de température se fait par des sondes de platine. Ce composant exploite le principe de la variation de la résistance d'un fil métallique avec la température. Dans notre cas, la sonde est un mince fil de platine lithographié sur un substrat de céramique. Ces sondes offrent une mesure très reproductible (environ ± 0.3 Ohm), et une sensibilité dR_{pt} / dT quasi constante sur une large gamme de température (30-870 K) [15].

Pour déduire la température, nous avons utilisé l'étalonnage standard DIN 43760 (voir figure 3.2.1).

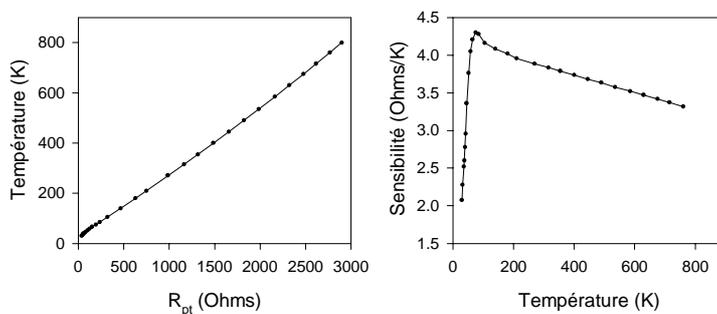


Figure 3.2.1
Etalonnage standard d'une sonde Pt 1000 et sensibilité associée.

La mesure de température est faite en mode « 4 fils », deux fils d'apport du courant d'excitation de la sonde, et deux fils permettant la lecture de la tension à ses bornes. Ainsi l'erreur liée à la résistance des fils est minimisée. La sonde est excitée par un courant de 0.1 mA, ce qui génère une puissance de chauffe maximale de 3 μ W. Nous supposons que cette puissance dissipée ne perturbe pas la mesure. De toute manière, dans ce type de mesure nous nous intéressons peu à la mesure absolue de la température mais plutôt à la stabilité de la régulation.

3.2.2. Comportement en température

Une fois le cryostat mis en froid, la limite de température basse se situe autour de 78.5 K. En raisonnant par analogie électrique, la température au niveau de la diode T_{DL} s'exprime par :

$$T_{DL} = \frac{1}{R_j + R_f} (R_f \cdot T_{LN2} + R_j \cdot T_{ext}), \quad (3.2.1)$$

où R_f est la résistance thermique de fuite entre le support de diode et l'environnement extérieur, T_{ext} la température de cet environnement ; R_j est la résistance de la jonction support de diode – azote liquide, et T_{LN2} la température de l'azote liquide. On a bien sûr intérêt, et c'est ce qui motiva la conception de notre cryostat, à obtenir une résistance de fuite très grande devant la résistance de la jonction. Une perte de 1.5 K sur l'ensemble est très correcte. On peut cependant descendre encore en température : en créant une dépression dans l'enceinte où est contenu l'azote liquide, on amène le cryostat à la température du point triple de l'azote, environ 63 K.

Le système est destiné à être régulé en température. Un paramètre important est alors le temps de réponse de ce dernier. Peut-on faire l'hypothèse que le support de diode est thermiquement mince ? Le calcul du nombre de Biot tranche en faveur de cette hypothèse.

$$Bi = \frac{h_{ext} \cdot L_c}{\lambda_{th}} \quad (3.2.2)$$

est le nombre de Biot où interviennent : h_{ext} le coefficient d'échange avec l'extérieur, L_c la longueur caractéristique du système, soit le volume divisé par la surface d'échange, λ_{th} la conductivité thermique du matériau, i.e. le cuivre. La conductivité du cuivre est très grande ($\approx 400 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et L_c est de l'ordre de quelques centimètres, ainsi la résistance interne $\frac{L_c}{\lambda_{th}}$ est très faible. En outre, le support de diode baigne dans un vide de l'ordre de 10^{-4} mbar, la résistance externe h_{ext}^{-1} est très grande. Le nombre de Biot est très petit : le système se réchauffe et se refroidit d'un bloc.

Lorsque l'on applique un échelon de puissance de chauffe et que l'on rompt l'équilibre, la modification d'énergie interne ne sera due qu'à un apport ou un retrait d'énergie par

conduction. Ceci s'écrit comme suit, où apparaît le volume V , la surface S , la capacité calorifique C , la densité ρ , et la température finale ou de consigne T_{con} [16]:

$$-\lambda_{\text{th}} \cdot S \cdot (T - T_{\text{con}}) = \rho \cdot C \cdot V \cdot \frac{dT}{dt}, \quad (3.2.3)$$

qui entraîne :

$$\frac{T - T_{\text{con}}}{T_0 - T_{\text{con}}} = \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (3.2.4)$$

avec T_0 la température initiale du support et τ la constante de temps du système définie par :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\lambda_{\text{th}}}{\rho \cdot C \cdot L_c}. \quad (3.2.5)$$

Nous avons soumis expérimentalement le support de diode à un échelon de puissance de chauffe puis, une fois le régime établi, nous avons coupé cet apport d'énergie. La figure 3.2.2 montre ces enregistrements, où sont tracés également le comportement prévu par le modèle ci-dessus et le résidu qui en découle.

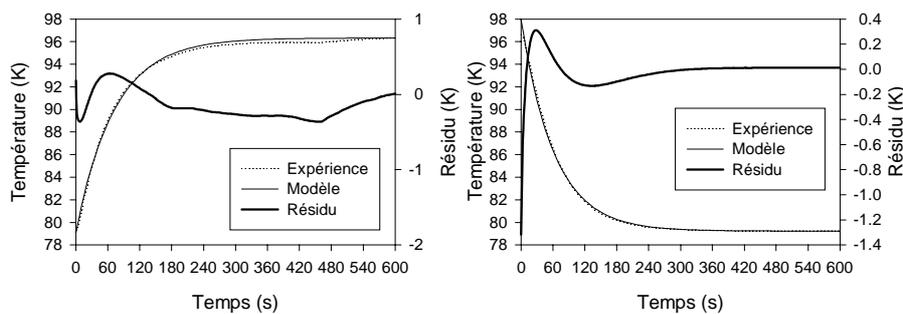


Figure 3.2.2 : Réponse du support de diode à une marche ascendante (gauche) et descendante de puissance de chauffe (droite).

La constante de temps déduite des enregistrements est de 65 s.

Afin de connaître la résistance thermique de l'ensemble du système et, par suite, de connaître la puissance de chauffe maximale extractible pour une température donnée, nous avons soumis le système à des puissances de chauffe continues. Nous avons alors relevé les températures atteintes au niveau du support de diode. Ceci est la figure 3.2.3.

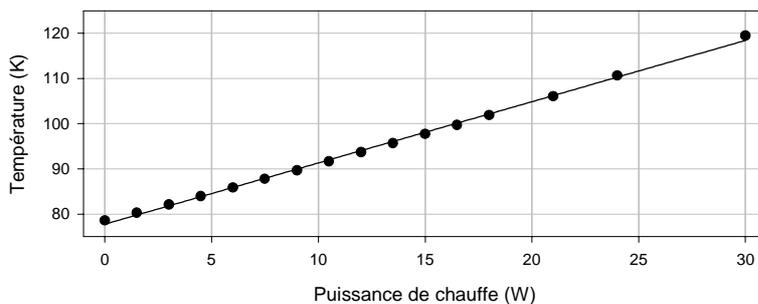


Figure 3.2.3
Température du support de diode en fonction de la puissance de chauffe.

Le graphe de la température atteinte par le système en fonction de la puissance de chauffe à laquelle il est soumis est une droite puisque :

$$\phi_{th} = \frac{R_j}{L_{th}} \cdot (T - T_i), \quad (3.2.6)$$

où T_i est la limite de température basse du support de diode, ϕ_{th} le flux thermique qui le traverse et L_{th} la longueur thermique équivalente du système.

3.2.3. Régulation

Pour assurer la régulation, nous avons opté pour un contrôleur numérique modèle 340 de chez LakeShore. D'une manière générale, pour assurer un contrôle de la balance apport de chaud – apport de froid sur un système quatre éléments essentiels sont à pourvoir : une source de froid (dans notre cas l'azote liquide), une source de chaud (feuille réchauffante par effet Joule), une contre-réaction (assurée par la sonde de température Pt1000), et enfin, un algorithme de comparaison entre consigne et contre-réaction agissant sur le réchauffement et/ou le refroidissement (Modèle 340 LakeShore). Ces éléments sont schématisés sur la figure 3.2.3.

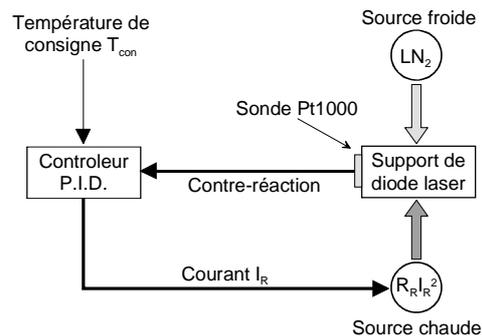


Figure 3.2.3
Schéma de la mise en œuvre de la régulation

Le contrôleur utilise un algorithme Proportionnel-Intégrale-Dérivée. Le courant I_R alimentant le réchauffeur s'écrit :

$$I_R(t) = P \cdot \left(e(t) + I \cdot \int e(t) \cdot dt + D \cdot \frac{d}{dt} e(t) \right), \quad (3.2.6)$$

où $e(t)$ est le signal d'erreur, c'est à dire la différence entre la température de consigne fixée par l'utilisateur et la température du système à l'instant t donnée par la sonde. P est le terme proportionnel (ou gain) ; si ce terme est trop grand, le système devient oscillant, s'il est trop petit la température de consigne ne sera jamais atteinte. I est le terme intégrale, il permet d'éviter, en régime établi, un écart entre la température du système et la température de consigne. Ce terme est directement lié au temps de réponse défini ci-dessus. Enfin D est le terme dérivée. Son rôle est de réduire le temps d'arrivée à l'équilibre. Mais nous avons constamment laissé ce terme nul, ce terme entraîne le contrôle à réagir trop brusquement à de petites variations de température, il nuit à la stabilité.

Quelques mots sur le modèle 340 LakeShore, les signaux d'entrée (résistance des sondes de platine) sont échantillonnés par un Convertisseur Analogique Numérique 24 bits. Le rafraîchissement de la mesure est à 20 Hz. Le signal de sortie (courant dans la feuille réchauffante) est limité à une puissance de 100 W, le signal numérique, résultat de l'algorithme PID est converti en signal analogique par un convertisseur 18 bits. Dernièrement, LakeShore a également mis au point un algorithme de détermination des meilleures constantes PID qui est très efficace. Enfin, le contrôleur est capable de générer au sein du système, des rampes temporelles de température à un taux défini par l'utilisateur. Nous verrons cette spécificité dans la section suivante.

La figure 3.2.4 témoigne de l'efficacité de la régulation de température. Cette figure présente les enregistrements simultanés des températures des sondes 1 et 2 sur 20 minutes de régulation. La consigne a été fixée à 88 K. La sonde qui assure le signal de contre réaction est la sonde 1.

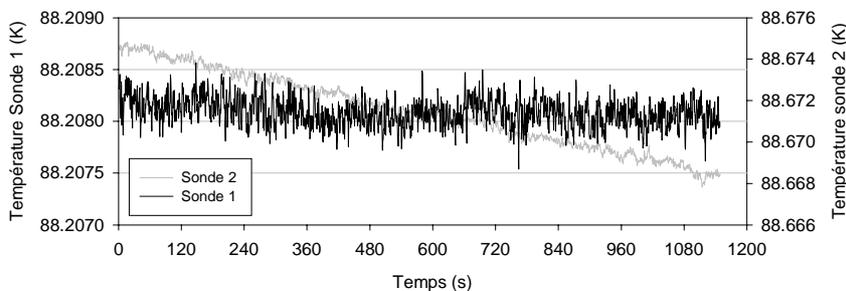


Figure 3.2.4 :
Température des sondes 1 et 2 durant une régulation de température.

Sur la sonde qui assure la contre réaction la stabilité est de $\pm 1.5 \cdot 10^{-4}$ K. Sur la sonde libre, la stabilité est du même ordre, cependant, on constate une légère dérive de la température à un taux de $5 \mu\text{K/s}$. Ceci traduit la persistance d'une légère inhomogénéité de température au sein du support de diode.

Nous le verrons plus en détail, mais la température est un paramètre d'accord de la diode laser, avec le courant. La stabilisation en température est l'élément critique et limitatif comparé à la stabilisation du courant d'injection. En définitive, assurer une bonne stabilisation en température revient à assurer une stabilisation de la fréquence d'émission du composant laser. Typiquement les taux d'accord en température des diodes laser sont de l'ordre de $1 \text{ cm}^{-1} / \text{K}$. Donc, ici, la stabilisation en fréquence sera de $\pm 1.2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

3.2.4. Rampe de température

Le contrôleur est capable de générer une rampe temporelle de température. Nous venons de voir que les diodes laser sont accordables en température, une telle possibilité ne manque pas d'intérêt.

Comment générer une rampe de température sur un système thermique ayant une grande inertie ? En fait le contrôleur agit en temps réel pour corriger la rampe en cours. Mais,

on peut également expliquer ce qui se passe en considérant la réponse impulsionnelle de notre système. Si l'on applique un signal de puissance de chauffe $P(t)$, le signal de température en résultant au niveau du support de diode est alors :

$$T(t) = H(t) \otimes P(t) \quad (3.2.7)$$

où $H(t)$ est la réponse impulsionnelle du support de diode. Connaissant $H(t)$, il suffit alors d'appliquer la puissance de chauffe $P(t)$ ad hoc pour obtenir une rampe de température. La figure 3.2.5 présente l'enregistrement d'une rampe de température de $-0.5\text{K}/\text{min}$ (graphe gauche supérieur) et la puissance de chauffe associée (graphe gauche inférieur).

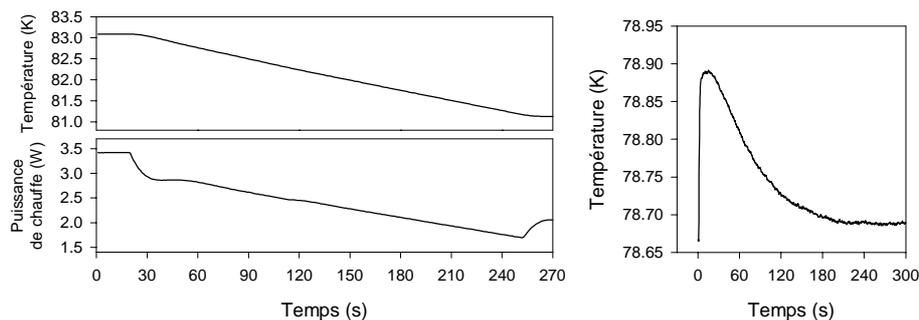


Figure 3.2.5 : Rampe de température (gauche haut) et puissance de chauffe associée (gauche bas), allure de la réponse impulsionnelle du système (droite).

La figure de droite est une allure de la réponse impulsionnelle du système, une allure seulement car la puissance de chauffe excitatrice n'était, bien sûr, pas un Dirac, mais un pulse de 60W de puissance et d'environ une demi-seconde de durée.

4. Conclusion

Cette partie préliminaire visait à introduire les notions expérimentales de base nécessaires pour la compréhension des parties suivantes. Tous les éléments cruciaux de nos montages expérimentaux ont ainsi été présentés : sources laser, spectromètre à réseau, Fabry Pérot sphérique, spectroscopie d'absorption. La partie suivante va exposer en détail la physique des lasers à semi-conducteurs, nous ne reviendrons alors pas sur les méthodes expérimentales utilisées pour caractériser les composants.

Nous avons également insisté sur la conception d'une source laser. Il était en effet nécessaire de soigner la régulation de température de la diode laser ; la partie suivante le mettra d'avantage en lumière.

5. Références

-
- 1 R. S. Eng, J. F. Butler et K. J. Linden, Tunable diode laser spectroscopy : an invited review, *Optical Engineering*, **19**, 6, 945-960, 1980
 - 2 R. K. Hanson, P. A. Kuntz et C. H. Kruger, High resolution spectroscopy of combustion gases using a tunable IR diode laser, *Applied Optics*, **16**, 8, 2045-2048, 1977
 - 3 G. Schmidtke, W. Kohn, U. Klocke, M. Knothe, W. J. Riedel et H. Wolf, Diode laser spectrometer for monitoring up to five atmospheric trace gases in unattended operation, *Applied Optics*, **28**, 17, 3665-3670, 1989
 - 4 P. Werle, A review of recent advances in semiconductor laser based gas monitors, *Spectrochimica Acta Part A*, **54**, 197-236, 1998
 - 5 Herzberg, *Infrared & raman spectra II*, D. van Nostrand Compagny, 1966
 - 6 P. A. Helminger et F. C. De Lucia, The submillimeter wave spectrum of $^{32}\text{S}^{16}\text{O}_2$, $^{32}\text{S}^{16}\text{O}_2(\nu_2)$, and $^{34}\text{S}^{16}\text{O}_2$, *Journal of Molecular Spectroscopy*, **111**, 66-72, 1985
 - 7 J. J. Olivero et R. L. Longbothum, Empirical fits to the voigt line width: a brief review, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **17**, 233-236, 1977
 - 8 L. S. Rothman, C. P. Rinsland, A. Goldman, S. T. Massie, D. P. Edwards, J. M. Flaud, A. Perrin, C. Camy-Peyret, V. Dana, J. Y. Mandin, J. Schroeder, A. McCann, R. R. Gamache, R. B. Wattson, K. Yoshino, K. V. Chance, K. W. Jucks, L. R. Brown V. Nemtchinov and P. Varanasi, The HITRAN Molecular Spectroscopic Database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 Edition, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **60**, 665-710, 1998
 - 9 P. Connes, L'étalon de Fabry-Pérot sphérique, *Journal de Physique*, **19**, 262-269, 1958
 - 10 N.M. Sampas, D.Z. Anderson, Stabilization of laser beam alignment to an optical resonator by heterodyne detection of off-axis modes, *Applied Optics*, **29**, 3, 394-403, 1990
 - 11 A. E. Siegman, *Lasers*, University science books, Sausalito, California, 1986
 - 12 D.Z. Anderson, Alignment of resonant optical cavities, *Applied Optics*, **23**, 17, 2944-2949, 1984
 - 13 C. Oppenheimer, Review article: Volcanological applications of meteorological satellites, *International Journal of Remote Sensing* **19**, 15, 2829-2864, 1998
 - 14 www.britannica.com, 2001

15 LakesShore, Temperature measurement and control, 1995

16 J. F. Sacadura, Initiation aux transferts thermiques, Lavoisier Tec & Doc, Paris, 1993

Symboles utilisés dans la 1^{ère} partie

a	Largeur d'une fente
A, B, C	Constantes rotationnelles
a_k, b_k, c_k, d_k	Coefficient de l'approximation polynomiale de la fonction de partition
C	Capacité calorifique
D	Terme dérivée
E''_{jki}	Niveau d'énergie le plus bas d'une transition
F	Finesse globale
$f_{app}(\sigma)$	Fonction appareil
F_m	Focale d'un miroir sphérique
F_M	Finesse d'état de surface
F_R	Finesse de réflexion
H(t)	Réponse impulsionnelle
I	Terme intégrale
i	Indice sur l'ensemble des transitions dans un domaine spectral
i_0	Angle caractéristique de la géométrie d'un spectromètre à réseau
I_R	Intensité du courant de réchauffe
I_S	Intensité incidente sur un FPS
I_T	Intensité transmise par un FPS
j	Indice le nombre de cuve
k	Indice le type de gaz
L	Longueur d'une cavité
L_j	Longueur d'une cuve j
m_k	Masse d'une molécule de type k
n	Densité volumique de molécules
N_c	Nombre total de cuves sur un parcours
n_r	Nombre de traits par mètre d'un réseau
P	Terme proportionnel
P(t)	Puissance de chauffe
P_0	Pression de référence (1 atm)
P_{jk}	Pression d'un gaz k contenu dans une cuve j
q	Ordre d'interférence
$Q_k(T_j)$	Fonction de partition ro-vibrationnelle
$Q_k^{ROT}(T_j)$	Fonction de partition rotationnelle
$Q_k^{VIB}(T_j)$	Fonction de partition vibrationnelle
R	Facteur de réflexion d'un miroir
r	Coefficient de réflexion d'un miroir
R_f	Résistance de fuite vers l'extérieur
R_j	Résistance de la jonction diode laser - azote liquide
R_{pt}	Résistance de la sonde de température
R_R	Résistance de la feuille réchauffante
S	Surface d'échange
$S_{jki}(T_j)$	Intensité d'une transition
T	Facteur de transmission d'un miroir
T_0	Température de référence (296 K)
T_{con}	Température de consigne
T_{DL}	Température de la diode laser

T_{ext}	Température de l'environnement extérieur
$T_{\text{FPS}}(\sigma)$	Fonction de transmission d'un FPS
T_j	Température d'une cuve j
T_{LN2}	Température de l'azote liquide
V	Volume
$I(\sigma)$	Intensité lumineuse transmise
$I_0(\sigma)$	Intensité lumineuse incidente
K	Coefficient d'absorption
α_{jki}^D	Demi-largeur Doppler
α_{jki}^L	Demi-largeur Lorentz
$\beta_{jk/jk'}$	Coefficient de dépendance en température
δ	Déphasage introduit lors d'une réflexion
ϕ_{jki}^D	Forme de raie Doppler
ϕ_{jki}^{EXP}	Forme de raie expérimentale
ϕ_{jki}	Forme de raie d'une transition
ϕ_{jki}^L	Forme de raie Lorentz
ϕ_{jki}^V	Forme de raie Voigt
$\gamma_{jk/jk'}$	Coefficient d'élargissement collisionnel de la molécule k par la molécule k'
μ	Indice de réfraction
ρ	Densité
σ	Nombre d'onde
σ_{jki}	Nombre d'onde central d'une transition
θ	Angle d'incidence
τ	Constante de temps

LASER A SEMI-CONDUCTEURS

1. Introduction

Nous utiliserons un laser à semi-conducteurs comme oscillateur local d'un système hétérodyne. Le comportement de l'oscillateur local est un paramètre clef d'un tel système. Nous allons détailler ici la physique de ce composant et ses principes de fonctionnement dont la compréhension nous paraît indispensable à une bonne maîtrise du composant. Nous porterons attention aux bruits limitant ses performances et introduirons rapidement les évolutions des lasers à semi-conducteurs.

1.1. Bref historique

Envisager un semi-conducteur comme milieu amplificateur et ainsi réaliser une amplification lumineuse par émission stimulée est une idée antérieure au LASER lui-même. L'année du MASER de C. H. Townes et ses collègues, 1953, J. Von Neumann dans une communication privée exprime cette possibilité. Les spéculations plus concrètes datent des années 1961 [1]. Un an plus tard, plusieurs équipes annoncent l'obtention d'un rayonnement laser issu d'un semi-conducteur (pour l'historique voir par exemple Panish et al. [2]).

Les premières diodes laser n'enthousiasmèrent pas le plus grand nombre vu la lourdeur du protocole et la fugacité de l'émission. Ces composants furent relégués au rang de curiosités de laboratoire. En effet ces jonctions p-n simples (ou homojonctions) nécessitaient une densité de courant très importante pour atteindre l'inversion de population (environ 10^5 A/cm²). L'échauffement produit par de tels courants dans la jonction entraînait très rapidement la destruction de celle-ci. Le composant était capable de produire un pulse laser de 10 μ s pour une injection de 100A avant sa destruction.

La viabilité de ces lasers sera considérablement accrue dans les années 1970 de part la mise en pratique de la suggestion de H. Kroemer [3] : créer des structures à confinement optique et électronique. L'intérêt commercial entrevu pour les applications de télécommunication a encouragé les recherches sur les diodes laser, mais pour les longueurs d'onde de 1.55 μ m. Bien que beaucoup plus confidentielles, les applications spectroscopiques ont entraîné le développement de diodes à sels de plomb émettant dans le moyen infrarouge. Les techniques d'épitaxie par jet moléculaire ont permis la création de structures toujours plus subtiles et efficaces, la qualité des matériaux a été largement accrue, et les techniques de clivage ont parachevé la qualité des miroirs du composant.

Ainsi la diode laser est devenue un composant des plus intéressants. La densité d'atomes actifs est celle de la matière condensée donc le gain du milieu amplificateur est très grand ce

qui permet des dispositifs compacts, et ces composants offrent l'avantage majeur de permettre l'accord continu de la fréquence émise. Les applications qui lui sont liées (mis à part tout ce qui est télécommunication) sont alors naturellement des applications spectroscopiques.

2. Physique de la diode laser

Un laser est un amplificateur contre-réactionné. Un tel système est, sous certaines conditions, oscillant. L'entrée du système est le bruit intrinsèque généré par l'amplificateur. Dans un laser ce bruit est l'émission spontanée. La contre-réaction est sélective, parmi le spectre large bande du bruit de l'amplificateur, elle va isoler un mode qui lui est propre. Dans le cas de la diode laser le milieu amplificateur est la jonction physique entre un semi-conducteur dopé p et un semi-conducteur dopé n. Contrairement aux autres types de lasers l'émission stimulée n'a pas lieu entre des niveaux d'énergie caractéristiques d'un atome ou d'une molécule isolé mais entre des niveaux d'énergie distribués au sein des bandes de valence et de conduction. Nous allons détailler l'origine de l'amplification. La contre réaction est assurée par les facettes du composant (surfaces clivées du cristal).

2.1. Rappels sur les semi-conducteurs

La conductivité électrique d'un matériau semi-conducteur est intermédiaire entre celles des isolants et des métaux. Cette propriété confère à ce type de matériau des propriétés thermiques et optiques spécifiques. Ce qui nous intéresse particulièrement est que la relative étroitesse de la bande interdite (comparée à celle des isolants) autorise des transitions électroniques entre bande de valence et bande de conduction. Ces matériaux peuvent interagir fortement avec les photons, et devenir émetteur de rayonnement.

2.1.1. Relations impulsion - énergie

Nous allons rappeler ici les relations qui gouvernent les états électroniques au sein d'un semi-conducteur, en fonction des paramètres qui le caractérisent. Ces relations nous seront utiles pour établir le gain d'un amplificateur optique à semi-conducteur.

Au voisinage du sommet de la bande de conduction, pour les électrons, on écrit l'approximation parabolique :

$$E = E_c + \frac{\hbar^2 \cdot k^2}{2 \cdot m_c}, \quad (2.1.1)$$

et au voisinage du sommet de la bande de valence, pour les trous :

$$E = E_v - \frac{\hbar^2 \cdot k^2}{2 \cdot m_v}, \quad (2.1.2)$$

avec m_c la masse des électrons, m_v la masse des trous.

2.1.2. Concentrations d'électrons et de trous

Dans l'espace des vecteurs d'onde à trois dimensions, le nombre d'états électroniques entre k et $k + \Delta k$ par unité de volume s'écrit :

$$\rho(k) \cdot \Delta k = \left[\frac{d}{dk} \left(\frac{k^3}{3\pi^2} \right) \right] \cdot \Delta k,$$

soit :

$$\rho(k) = \frac{k^2}{\pi^2}. \quad (2.1.3)$$

On peut réécrire la densité d'états électroniques en fonction de l'énergie à l'aide de (2.1.1) et (2.1.3), il vient :

$$\rho_c(E) = \frac{(2mc)^{3/2}}{2\pi^2 \cdot \hbar^3} \cdot \sqrt{E - E_c}, \quad (2.1.4)$$

de même pour la densité d'états des trous à l'aide de (2.1.2) et (2.1.3) :

$$\rho_v(E) = \frac{(2mv)^{3/2}}{2\pi^2 \cdot \hbar^3} \cdot \sqrt{E_v - E}. \quad (2.1.5)$$

A l'équilibre thermodynamique la probabilité d'occupation d'un état d'énergie E par un électron est donnée par la statistique de Fermi, elle s'écrit :

$$f(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E - E_f}{k_B \cdot T}\right) + 1}. \quad (2.1.6)$$

Ainsi les concentrations de porteurs seront la somme des états occupés faite sur toute les énergies d'une bande, soit :

pour les électrons

$$n = \int_{E_c}^{\infty} \rho_c(E) \cdot f(E) \cdot dE, \quad (2.1.7)$$

pour les trous

$$p = \int_0^{E_v} \rho_v(E) \cdot [1 - f(E)] \cdot dE. \quad (2.1.8)$$

2.1.3. Pseudo-équilibre des concentrations de porteurs

Tout ce qui précède est valable à l'équilibre thermodynamique du semi-conducteur. Il y a des situations où les électrons de la bande de conduction sont en équilibre, les trous de la bande de valence aussi, mais ils ne sont pas en équilibre mutuel. L'origine physique de cet équilibre local à une bande est l'énorme écart entre les temps de transitions intrabande (1ps) et interbande (1ns). Ceci a lieu par exemple quand un courant électrique externe ou un flux de photons crée des transitions. On utilise alors des fonctions de Fermi séparées pour chaque bande. On définit des pseudo-niveaux de Fermi, E_{fc} pour les électrons et E_{fv} pour les trous.

2.1.4. Génération - recombinaison à l'équilibre thermodynamique

Il y a deux grandes familles de processus de recombinaison : radiatif et non radiatif. Le taux de recombinaison radiatif par émission spontanée, intégré sur toutes les fréquences dépend de la concentration des électrons et des trous, dans le cas d'un semi-conducteur fortement dopé on a :

$$\bar{R}_{sp} = \gamma_{sp} \cdot n^2, \quad (2.1.9)$$

où γ_{sp} est un paramètre qui dépend des caractéristiques du matériau (défauts, composition, température, dopage...).

A ceci s'ajoutent les recombinaisons non radiatives. On sépare alors le taux global de recombinaison en deux contributions, radiative et non radiative :

$$R_n = \bar{R}_{sp} + R_{nr}. \quad (2.1.10)$$

Lors des transitions non radiatives, les énergies mises en jeu sont échangées sous forme de phonons, autrement dit sous forme de chaleur. L'un de ces processus est la recombinaison Shockley-Read-Hall. Un défaut cristallin ou une impureté particulière peut faire apparaître un niveau dit profond au sein même de la bande interdite. Lors d'une transition, l'électron peut ainsi transiter via ce niveau profond. L'efficacité de ce processus dépend donc de la densité de niveaux profonds et donc de la qualité du cristal semi-conducteur. L'autre processus de recombinaison non radiative est la recombinaison Auger. Par exemple, lors d'un processus électron-électron-trou, l'énergie de la recombinaison est cédée à un autre électron de la bande de conduction. Ce dernier se désexcite par thermalisation. Le coefficient de recombinaison Auger est une donnée intrinsèque du matériau utilisé. Ce phénomène prend d'autant plus d'ampleur que la longueur d'onde est grande. Pour les diodes à sels de plomb émettant dans l'infrarouge moyen, ce processus est loin d'être négligeable et fait baisser le rendement quantique interne (nombre d'électrons nécessaire à la production d'un photon). Le taux de recombinaison Auger varie en $\exp\left(-\frac{E_g}{2k_B \cdot T}\right)$, plus la longueur d'onde est grande plus l'énergie de bande interdite est faible et l'effet Auger important. Faisant apparaître le terme dû à l'effet Auger, le taux de recombinaison non-radiatives s'écrit alors :

$$R_{nr} = \gamma_{nr} \cdot n + \gamma_a \cdot n^3 \quad (2.1.11)$$

En l'absence d'apport d'énergie extérieur, le taux de recombinaison égale le taux de génération des paires électron-trou. La génération se fait par processus thermique. La concentration de porteurs résultante est telle que la loi d'action de masse [4] reste vérifiée :

$$n \cdot p \approx n_i^2 = 4 \cdot \left(\frac{2\pi \cdot k_B \cdot T}{h^2}\right)^3 \cdot (mc \cdot mv)^{3/2} \cdot \exp\left(-\frac{E_g}{k_B \cdot T}\right), \quad (2.1.12)$$

où n_i est la concentration de porteurs du semi-conducteur intrinsèque, et $E_g = E_c - E_v$, l'énergie de bande interdite du semi-conducteur.

2.1.5. Injection électron - trou

Maintenant on réalise un apport d'énergie extérieur, on génère des paires électron-trou à un taux stationnaire G (paires générées par unité de volume et de temps). Il apparaîtra donc un incrément des concentrations de porteurs :

$$n = n_0 + \Delta n ,$$

et

$$p = p_0 + \Delta p , \quad (2.1.13)$$

avec $\Delta n = \Delta p$.

Il est alors intéressant de définir un temps de vie des paires injectées. D'abord considérons l'équation d'évolution des porteurs :

$$\frac{dn}{dt} = G - R_n . \quad (2.1.14)$$

En considérant une analyse de type « petits signaux » telle que le suggèrent les relations (2.1.13), il vient :

$$\frac{d}{dt}(\Delta n) = \Delta G - \Delta n \cdot \left. \frac{\partial R_n}{\partial n} \right|_{n=n_0} . \quad (2.1.15)$$

Ainsi, on définit le temps de vie des porteurs, où l'on peut discerner les temps de vie liés au processus de recombinaison radiative et non radiative :

$$\frac{1}{\tau} = \left. \frac{\partial R_n}{\partial n} \right|_{n=n_0} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}} . \quad (2.1.16)$$

2.1.6. Jonctions

La diode laser est une diode, donc ce n'est pas autre chose qu'une jonction de semi-conducteurs dopés différemment. Le cas le plus simple, et historiquement la première réalisation pratique, est le cas de la jonction p-n. Nous allons voir cet exemple afin de comprendre l'intérêt des jonctions.

Accolons un semi-conducteur de type n (électrons porteurs majoritaires) avec un semi-conducteur de type p (trous porteurs majoritaires). Au niveau de la jonction, en vertu de la loi de Fick, les porteurs vont diffuser d'une zone de forte concentration à une zone de faible concentration. Les électrons diffusent vers la région dopée p, laissant les atomes donneurs ionisés positivement dans la région dopée n. Dans la région dopée p où les électrons diffusent, il y a une grande concentration de trous. Electrons et trous se recombinent. Le phénomène est identique pour les trous de la région dopée p, ceux-ci laisseront des atomes accepteurs ionisés négativement.

Ainsi au niveau de la jonction, une étroite région dépeuplée de charges mobiles se forme. D'autre part les atomes donneurs et accepteurs ionisés engendrent un champ électrique interne dirigé de la zone n vers la zone p. Ce champ implique la création d'un courant

d'entraînement qui s'oppose au courant de diffusion. A l'équilibre thermodynamique ces deux courants se compensent, il subsiste une différence de potentiel V_0 à la jonction (potentiel coté $n >$ potentiel coté p). L'existence de ce potentiel se traduit par une courbure des bandes d'énergie, à l'équilibre thermodynamique il y a nivellement des niveaux de Fermi.

Cette jonction peut être polarisée en direct, c'est à dire que l'on applique un potentiel positif coté p . Il apparaît alors une situation de pseudo-équilibre. Les deux pseudo-niveaux de Fermi E_{fc} et E_{fv} se séparent d'une énergie eV , V étant la polarisation appliquée. Ceci atténue la courbure de bande et diminue la largeur de la zone de déplétion, il en résulte une injection de porteurs minoritaires (cf. figure 2.1.1).

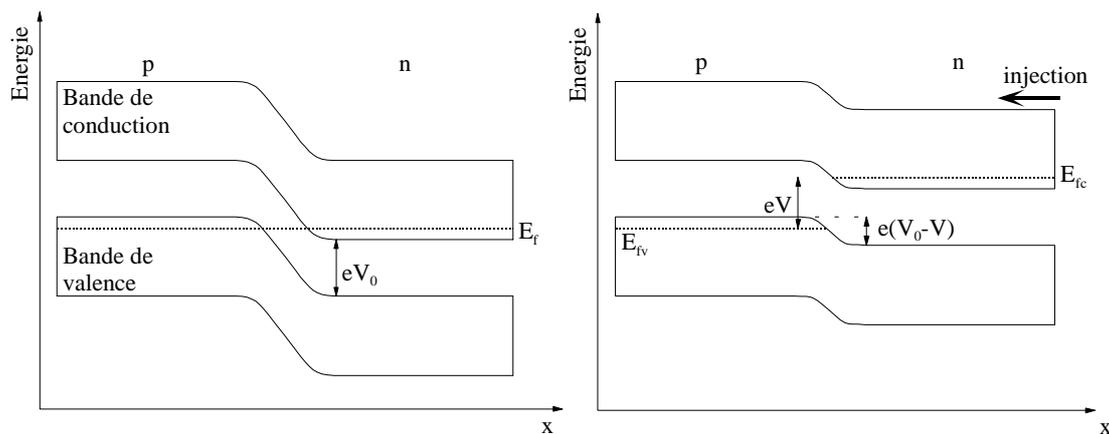


Figure 2.1.1 : effet d'une injection de porteur sur le diagramme de bande d'une jonction p-n.
Jonction non polarisée (gauche), jonction polarisée en direct (droite).

Pour les diodes laser, les concentrations de porteurs doivent être élevées (environ 10^{18} cm^{-3}). Le niveau de dopage n (resp. p) doit être très élevé afin que le niveau de Fermi soit dans la bande de conduction (resp. de valence). La population de porteurs libres est ainsi augmentée. Les premières diodes laser utilisaient des homojonctions, pour atteindre l'inversion de population, des courants d'injection très élevés s'imposaient et entraînaient la destruction du composant. On verra plus loin que l'on réalise plutôt une hétérojonction. Ces jonctions permettent d'avoir des sauts localisés dans le diagramme des bandes d'énergie, qui occasionnent des barrières permettant de confiner les porteurs dans une zone active d'environ une centaine de nanomètres et permettent ainsi l'injection de faibles courants. Cependant, la taille de la zone active ne peut être en deçà de la longueur d'onde de la radiation émise, donc pour les composants émettant dans le moyen IR, de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ (il s'agit d'une longueur optique).

2.2. Photons dans les semi-conducteurs

Après ces brefs rappels propres aux semi-conducteurs, nous allons davantage nous focaliser sur le comportement des photons dans les semi-conducteurs. Les mécanismes

pouvant mener à l'absorption ou à l'émission de photons sont nombreux : interbande, niveau d'impureté à bande, intrabande, absorption de photon avec création de phonons ou d'excitons.

2.2.1. Emission et absorption bande à bande

La première condition fondamentale pour qu'il y ait absorption ou émission d'un photon par le semi-conducteur est que l'énergie du photon $h\nu$ soit supérieure à celle de la bande interdite du matériau E_g :

$$h\nu > E_g. \quad (2.2.1)$$

A ceci s'ajoutent les deux conditions de conservation de l'énergie et de l'impulsion :

$$E_2 - E_1 = h\nu, \quad (2.2.2)$$

$$k_2 - k_1 = \frac{2\pi}{\lambda}, \quad (2.2.3)$$

où E_2 est l'énergie d'un niveau de la bande de conduction, E_1 l'énergie d'un niveau de la bande de valence. La conservation de l'impulsion nous donne une information physique importante. Etant donné que $\frac{2\pi}{\lambda} \ll k$, (2.2.3) entraîne :

$$k_2 \approx k_1. \quad (2.2.4)$$

La transition est donc verticale et les semi-conducteurs à bande interdite directe (coïncidence des sommets de la bande de valence et de la bande de conduction dans le diagramme E-k) seront des émetteurs de rayonnement privilégiés. Le rendement d'émission dans ce type de semi-conducteurs est environ 10^4 fois plus élevé que dans les semi-conducteurs à bande interdite indirecte (cf. figure 2.2.1).

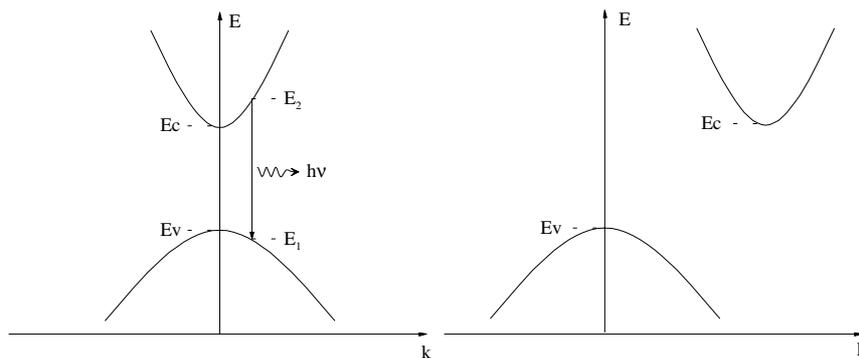


Figure 2.2.1 : Diagramme E-k d'un semi-conducteur à bande interdite directe (gauche) et indirecte (droite).

En utilisant les équations (2.1.1) et (2.1.2), l'équation (2.2.2) entraîne :

$$\frac{\hbar^2 k^2}{2 \cdot m_v} + E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2 \cdot m_c} = h\nu,$$

d'où :

$$k^2 = \frac{2 \cdot m_r}{\hbar^2} \cdot (h\nu - E_g), \quad (2.2.5)$$

avec m_r la masse réduite du couple électron-trou définie par : $\frac{1}{m_r} = \frac{1}{m_v} + \frac{1}{m_c}$.

Enfin (2.1.1) et (2.2.5) entraînent :

$$E_2 = E_c + \frac{m_r}{m_c} \cdot (h\nu - E_g), \quad (2.2.6)$$

de la même façon (2.1.2) et (2.2.5) entraînent :

$$E_1 = E_v - \frac{m_r}{m_v} \cdot (h\nu - E_g). \quad (2.2.7)$$

La densité spectrale d'émission est directement liée à la densité d'états d'énergie de la bande de conduction et est telle que $\rho(\nu) \cdot d\nu = \rho_c(E) \cdot dE$.

On utilise (2.2.6) et (2.1.4), et il vient :

$$\rho(\nu) = \frac{(2 \cdot m_r)^{3/2}}{\pi \cdot \hbar^2} \cdot \sqrt{h\nu - E_g} \quad (2.2.8)$$

2.2.2. Taux d'absorption et d'émission

La probabilité d'émission d'un photon dépend de la probabilité d'occupation des niveaux, de la probabilité de transition, et de la densité d'états.

Probabilité d'occupation :

Considérons une transition entre E_1 et E_2 . Pour qu'il y ait émission, il faut que l'état d'énergie E_2 de la BC soit occupé par un électron, et que l'état d'énergie E_1 de la BV soit vide. D'où la probabilité d'émission :

$$f_e(\nu) = f_c(E_2) \cdot [1 - f_v(E_1)] \quad (2.2.9)$$

Pour l'absorption on aura évidemment :

$$f_a(\nu) = [1 - f_c(E_2)] \cdot f_v(E_1), \quad (2.2.10)$$

avec $f_v(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E_{fv} - E}{k_B \cdot T}\right) + 1}$ et $f_c(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E - E_{fc}}{k_B \cdot T}\right) + 1}$,

fonctions de Fermi pour les deux bandes indépendamment en équilibre local.

Notons ici un phénomène important : l'énergie du pseudo-niveau de Fermi de la bande de conduction (resp. de la bande de valence) est directement liée à la densité d'électrons (resp. de trous). Or ces paramètres gouvernent principalement la probabilité d'occupation. Nous allons préciser la dépendance des pseudo-niveaux E_{fv} et E_{fc} . Reprenons l'équation (2.1.7), mais cette fois en considérant une jonction polarisée :

$$n = \frac{(2mc)^{3/2}}{2\pi^2 \hbar^3} \cdot \int_{E_c}^{\infty} \frac{\sqrt{E_2 - E_c}}{\exp\left(\frac{E_2 - E_{fc}}{k_B \cdot T}\right) + 1} dE_2 \quad (2.2.11)$$

La densité de porteurs n est déterminée par le courant injecté dans la jonction, ainsi l'injection influe directement sur E_{fc} afin que (2.2.11) soit vérifiée. Les niveaux de dopage et l'ampleur de l'injection nécessaires aux diodes laser impliquent :

$$E_{fc} - E_c \gg k_B \cdot T, \quad (2.2.12)$$

autrement dit le pseudo-niveau de Fermi se situe profondément dans la bande de conduction (dégénérescence de ce pseudo-niveau). Dans ce cas on peut faire l'approximation de la distribution de Fermi à $T = 0$ K, on peut alors intégrer symboliquement, en isolant E_{fc} , il vient :

$$E_{fc} = E_c + \frac{(3\pi^2)^{2/3} \hbar^2}{2mc} \cdot n^{2/3} \quad (2.2.14)$$

De même pour le pseudo-niveau de Fermi de la bande de conduction, on aura :

$$E_{fv} = E_v - \frac{(3\pi^2)^{2/3} \hbar^2}{2mv} \cdot p^{2/3} \quad (2.2.15)$$

Il apparaît dès lors que l'intensité de l'injection modifiera les probabilités d'émission et d'absorption par le biais des pseudo-niveaux de Fermi.

Probabilité de transition :

Nous venons de voir les conditions et probabilités d'occupation nécessaires pour qu'une transition interbande intervienne, maintenant explicitons les conditions de transition proprement dites. On utilise les probabilités de transition établies pour les transitions entre niveaux atomiques discrets pour une bande de fréquence comprise entre ν et $\nu + d\nu$. La section efficace de transition à la fréquence ν est donnée par [5] :

$$\sigma(\nu) = \frac{\lambda^2}{8\pi \cdot t_{SP}} \cdot g(\nu), \quad (2.2.16)$$

où $g(\nu)$ est la forme de raie normalisée de la transition centrée sur $\nu_0 = \frac{E_2 - E_1}{h}$, et t_{SP} le temps de vie de l'électron au niveau excité. Ceci étant rapporté au semi-conducteur, la probabilité par unité de temps d'émission spontanée d'un photon de fréquence comprise entre ν et $\nu + d\nu$ sera :

$$P_{SP}(\nu) \cdot d\nu = \frac{1}{\tau_r} \cdot g(\nu) \cdot d\nu \quad (2.2.17)$$

Si la condition d'occupation est vérifiée et qu'un flux de photons moyen ϕ existe dans le milieu, la probabilité d'émission stimulée d'un photon de fréquence comprise entre ν et $\nu + d\nu$ est :

$$W_i(\nu) \cdot d\nu = \phi \cdot \sigma(\nu) \cdot d\nu,$$

ou encore :

$$W_i(\nu) \cdot d\nu = \phi \cdot \frac{\lambda^2}{8\pi \cdot \tau_r} \cdot g(\nu) \cdot d\nu. \quad (2.2.18)$$

On aura une expression identique pour l'absorption.

Comme il existe un continuum d'états dans les différentes bandes, chaque transition a une fréquence centrale de transition ν_0 différente, on notera la forme de raie $g_{\nu_0}(\nu)$.

2.2.3. Taux de transition globaux

Finalement, pour qu'un électron se désexcite radiativement, il faut prendre en compte la conduction d'occupation et celle de transition. Ainsi le taux d'émission spontanée à la fréquence ν est donné par :

$$r_{sp}(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} \left[\frac{1}{\tau_r} \cdot g_{\nu_0}(\nu) \right] \cdot f_e(\nu_0) \cdot \rho(\nu_0) \cdot d\nu_0.$$

En général la largeur de $g_{\nu_0}(\nu)$ est négligeable devant celle de $f_e(\nu) \cdot \rho(\nu)$, donc :

$$g_{\nu_0}(\nu) \approx \delta(\nu - \nu_0),$$

et

$$r_{sp}(\nu) \approx \frac{1}{\tau_r} \cdot \rho(\nu) \cdot f_e(\nu) \quad (2.2.19)$$

En procédant de même, on établit le taux d'émission stimulée :

$$r_{st}(\nu) = \phi \cdot \frac{\lambda^2}{8\pi \cdot \tau_r} \cdot \rho(\nu) \cdot f_e(\nu), \quad (2.2.20)$$

et le taux d'absorption :

$$r_{abs}(\nu) = \phi \cdot \frac{\lambda^2}{8\pi \cdot \tau_r} \cdot \rho(\nu) \cdot f_a(\nu). \quad (2.2.21)$$

2.2.4. Coefficient de gain en pseudo-équilibre

Nous avons tous les éléments pour déterminer le coefficient de gain du matériau. Considérons un flux de photon ϕ incident sur une tranche dz du cristal (la direction définie par z est la direction de propagation). Au sortir de cette tranche le flux sera $\phi + d\phi$ tel que :

$$d\phi(z) = [r_{st}(\nu) - r_{abs}(\nu)] \cdot dz,$$

$$\frac{d\phi}{dz} = \frac{\lambda^2}{8\pi \cdot \tau_r} \cdot \rho(\nu) \cdot [f_e(\nu) - f_a(\nu)] \cdot \phi(z). \quad (2.2.22)$$

On appellera $f_g(\nu) = f_e(\nu) - f_a(\nu) = f_c(E_2) - f_v(E_1)$, le facteur d'inversion de Fermi.

De (2.2.10) et (2.2.8) on déduit le coefficient de gain :

$$\gamma_0(\nu) = \frac{\sqrt{2} \cdot m r^{3/2} \cdot \lambda^2}{h^2 \cdot \tau_r} \cdot \sqrt{h\nu - E_g} \cdot f_g(\nu) \quad (2.2.23)$$

Cette expression du gain est valable lorsque le flux de photons n'entraîne pas la saturation du milieu. On remarque que l'on a un gain positif (amplification) pour $f_g(\nu) > 0$, c'est à dire si $E_{fc} - E_{fv} > h\nu$. Pour un semi-conducteur à l'équilibre thermodynamique on a toujours

$f_g(\nu) < 0$ donc on aura atténuation de la lumière. Le pompage se fait, par exemple, par injection de porteurs et permet de réaliser la condition $f_g(\nu) > 0$. Nous reviendrons sur ces conditions.

2.3. Diode laser à homojonction

La diode laser à homojonction est historiquement la première diode laser à avoir été expérimentée. Elle était composée de couches de même cristal, l'un dopé n, l'autre dopé p. Dans ce cas la taille de la zone de recombinaison des porteurs (zone active) dépendait de la longueur de diffusion des porteurs injectés. La figure 2.3.1 montre ce type de laser.

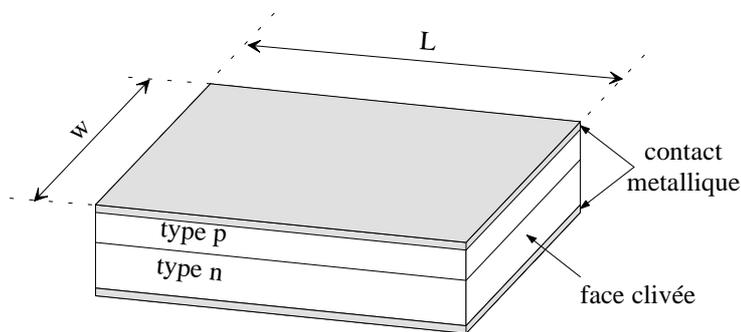


Figure 2.3.1.
Laser à homojonction

Dans ce type de laser, le milieu amplificateur est la zone active, la contre réaction sélective est assurée par les faces clivées du cristal, qui constituent une cavité résonnante Fabry - Pérot plan.

2.3.1. Courbe de gain du milieu amplificateur

Nous allons expliciter la courbe de gain d'un tel laser. Ainsi nous aurons les conditions pour que l'émission laser ait lieu.

Tout d'abord pour bien comprendre le phénomène d'inversion dans les semi-conducteurs, nous allons faire une analogie avec le laser à 4 niveaux.

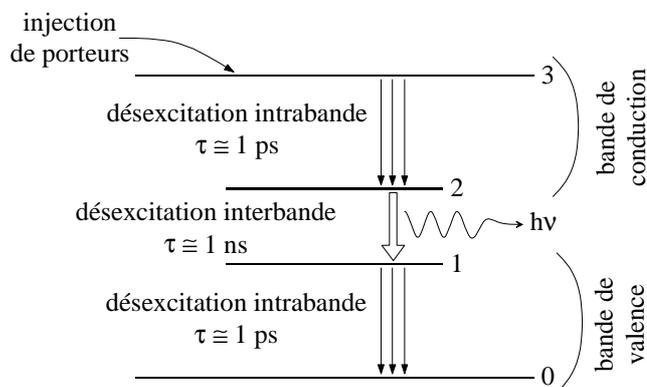


Figure 2.3.2
Schéma d'un système à 4 niveaux

Les électrons injectés dans la jonction arrivent dans la bande de conduction (symbolisée par le niveau 3). Un processus intrabande de désexcitation par thermalisation abaisse leur énergie jusqu'à un niveau proche du sommet de la bande de conduction (symbolisée par le niveau 2). Ce processus est très rapide, de l'ordre de la picoseconde.

Les électrons passent ensuite du sommet de la bande de conduction au sommet de la bande de valence (niveau 2 et 1) par une transition interbande radiative, dont le temps caractéristique est de l'ordre de la nanoseconde.

Puis, au sein de la bande de valence, les porteurs sont évacués par thermalisation jusqu'à leur niveau fondamental (niveau 0).

Nous voyons finalement que l'inversion de population du niveau 2 est réalisée, la caractéristique essentielle qui permet cette accumulation de porteurs au sommet de la bande de conduction est la différence de trois ordres de grandeur entre les temps de transition intrabande et interbande. Ici, nous avons supposé que l'inversion de population se faisait par injection de porteurs, ce n'est pas toujours le cas. Celle-ci peut également se faire par pompage optique, c'est à dire, une radiation laser vient exciter la zone active (ceci est particulièrement utilisé pour les diodes laser de puissance).

La courbe de gain du milieu amplificateur (gain en fonction de la fréquence) est donnée directement par l'équation du coefficient de gain de la zone active (2.2.23). Notons que cette équation n'est pas tout à fait exacte. En effet pour de forts niveaux de dopage (dégénérescence) la loi en racine qui gouverne la densité d'état aux extrémités des bandes n'est plus valable ; la loi devient exponentielle [6]. Ceci est dû au phénomène de « queue de bande », à fort dopage des niveaux donneurs proches de la bande interdite forment un pseudo-continuum. Cependant ceci ne modifie en rien les principes physiques décrivant le comportement des diodes. La bande passante de ce milieu amplificateur nous renseigne sur la région spectrale d'émission du composant. D'une part, il faut nécessairement que $h\nu > E_g$ pour qu'un photon interagisse avec le milieu. D'autre part, il y a amplification seulement si le facteur d'inversion de Fermi est positif, sinon le milieu atténuera le rayonnement. Ces considérations amènent la célèbre condition établie en 1961 par Bernard et Durafourg [7]:

$$E_g < h\nu < E_{fc} - E_{fv} \quad (2.3.1)$$

Ceci définit la bande passante maximale de l'amplificateur optique, en l'absence de pertes.

Jusqu'à présent, nous avons précisé que (2.2.23) est l'expression de la courbe de gain du milieu amplificateur en régime linéaire, ou, autrement dit, en régime où le pompage est suffisamment faible pour que le phénomène de saturation de gain n'intervienne pas. Loin de la saturation, si l'on considère que la puissance optique émise par le laser est proportionnelle au maximum de la courbe de gain, ce maximum varie linéairement avec le courant d'injection. La pente de cette variation est relativement élevée dans la mesure où, proche du seuil laser, un phénomène d'avalanche existe (démarrage exponentiel de l'émission au seuil laser). Puis, plus on augmente le taux de pompage, plus le temps de génération des paires

électron-trou est court, ce temps peut devenir inférieur au temps de vie des paires. Autrement dit, injecter de nouveaux porteurs ne génère pas de nouveaux photons laser. On arrive au cas où un électron injecté entraîne une désexcitation stimulée donc la création d'un seul photon cohérent (plus de phénomène d'avalanche).

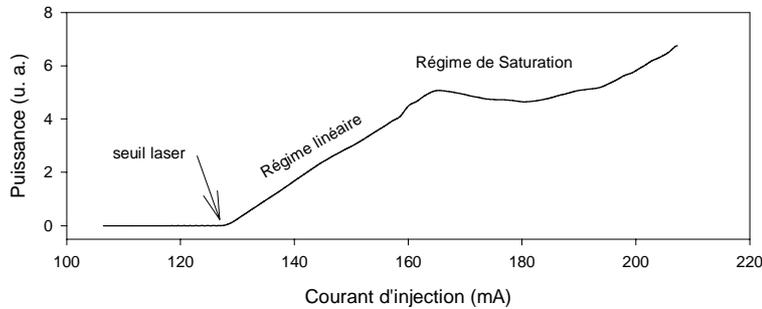


Figure : 2.3.3
Illustration expérimentale des régimes de fonctionnement de la diode laser.

La figure 2.3.3 est une illustration expérimentale de ce phénomène. La diode utilisée est une diode à double hétérojonction émettant autour de 1210 cm^{-1} à 79.5 K .

2.3.2. Dépendance de la courbe de gain avec les paramètres d'accord

Un des intérêts majeurs des diodes laser est l'accordabilité de la fréquence d'émission du composant. Les deux principaux paramètres d'accord sont le courant d'injection et la température (l'accord peut également se faire par variation de pression [8] ou du champ magnétique [9], mais ces techniques restent très exotiques). Nous allons comparer l'influence de ces deux principaux paramètres sur la courbe de gain du milieu amplificateur.

Influence du courant d'injection :

Nous l'avons vu, les équations (2.2.14) et (2.2.15) gouvernent l'énergie des pseudo-niveaux de Fermi ; celle-ci est sensible à la densité de porteurs injectés. D'autre part dans l'équation (2.2.23) du coefficient de gain intervient le facteur d'inversion de Fermi directement défini par E_{fc} et E_{fv} .

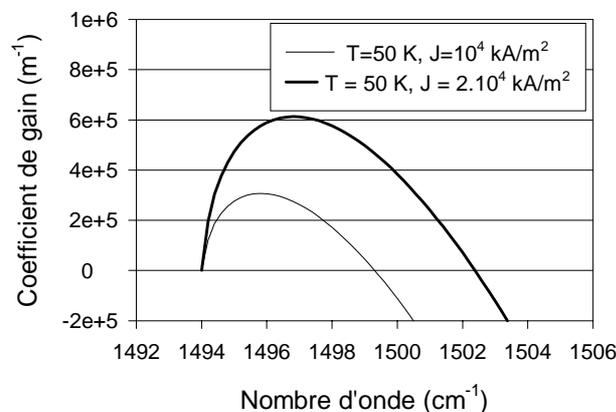


Figure 2.3.4
Variation de la courbe de gain avec le courant

La figure 2.3.4 montre deux courbes de gain pour deux courants d'injection différents. On constate une augmentation brutale du sommet de la courbe de gain (directement lié à la

puissance émise par la diode), on observe également une augmentation de la bande passante du milieu amplificateur avec le courant puisque celle-ci est déterminée par $E_{fc} - E_{fv}$. Il en découle que la zone horizontale du maximum de la courbe de gain s'étend. Cependant la variation du courant d'injection n'agit jamais seule. En effet, la jonction possède sa propre résistance R_{pn} (à un point de fonctionnement donné). L'énergie dissipée par effet Joule entraîne une élévation de température du composant, qui va modifier la fréquence émise par le laser d'une manière difficilement contrôlable.

Influence de la température :

Le courant d'injection agit sur la position des pseudo-niveaux de Fermi. La température n'agira que sur la distribution des porteurs autour des pseudo-niveaux. Mais l'influence de la température agit directement sur la bande interdite du semi-conducteur via une modification du paramètre cristallin (dilatation). Par exemple pour le PbSe, la figure 2.3.5 représente cette variation [10].

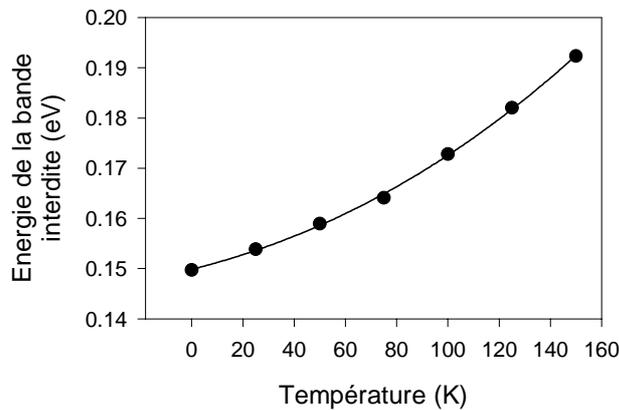


Figure 2.3.5

Variation de l'énergie de la bande interdite du PbSe en fonction de la température

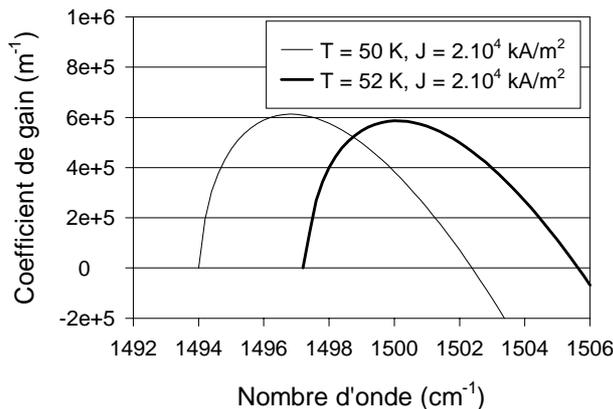


Figure 2.3.6

Variation de la courbe de gain avec la température.

La figure 2.3.6 représente les courbes de gain pour différentes températures. On constate que la variation de température n'affecte en rien la bande passante de l'amplificateur. L'augmentation de température opère juste une translation de la courbe de gain vers les plus hautes fréquences (dans le cas où l'énergie de bande interdite croît avec la température). On observe de plus une légère décroissance du sommet de la courbe de gain liée à l'étalement de

la distribution de Fermi. Il faut préciser que la variation de l'énergie de la bande interdite avec la température est extrêmement dépendante du type de matériau composant la zone active et de sa composition.

2.4. Le résonateur optique

2.4.1. Faces clivées

Nous venons de voir les caractéristiques du milieu amplificateur. En plaçant celui-ci dans une cavité résonante, on assurera ainsi la contre réaction. La cavité Fabry Pérot plan est directement intégrée au composant par clivage des faces de la diode. La différence entre l'indice de réfraction de la zone active (μ) et l'indice de l'air (1) implique, en incidence normale sur le dioptre, un facteur de réflexion :

$$R = \left(\frac{\mu - 1}{\mu + 1} \right)^2. \quad (2.4.1)$$

En l'absence de traitement spécifique sur les faces clivées, on supposera ce facteur de réflexion identique pour les deux faces. Pour les diodes à sels de plomb dont la zone active est en PbSe, Scifres et al. [11] donne les valeurs suivantes de l'indice de réfraction :

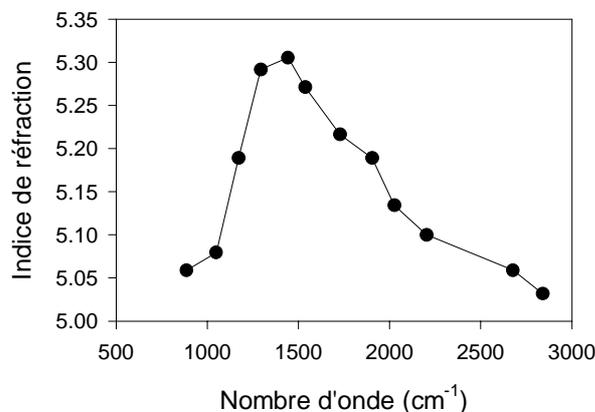


Figure 2.4.1
Indice de réfraction du PbSe en fonction du nombre d'onde

Autour de 1200 cm⁻¹ le facteur de réflexion des facettes sera de 65 %.

2.4.2. Conditions d'oscillation laser

La première condition est une condition de gain. Le gain stimulé doit compenser les pertes. Ces dernières sont de deux types. Les pertes nuisibles, réparties dans tout le matériau, dues à l'absorption, la diffusion, la diffraction ou l'étalement de la puissance optique en dehors de la zone active (fuites optiques). Absorption, diffusion, diffraction seront décrites par un coefficient global de perte par unité de longueur α . On tiendra compte des fuites optiques en définissant un facteur de confinement qui donne la proportion d'énergie optique effectivement présente dans la zone active :

$$\Gamma = \frac{\int_{-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} E^2 dz}{\int_{-\infty}^{\infty} E^2 dz}, \quad (2.4.2)$$

où d est l'épaisseur de la zone active. Les pertes utiles, localisées, dues à la transmission des faces clivées partiellement réfléchissantes seront décrites par le facteur de réflexion des facettes. Finalement, pour un aller-retour de la lumière, la condition d'oscillation s'écrit :

$$R^2 \cdot \exp[2(\gamma_0 - \alpha) \cdot \mu \cdot \Gamma \cdot L] > 1 \quad (2.4.3)$$

Il est pratique de définir un coefficient de perte total (incluant le facteur de réflexion des miroirs) :

$$\alpha_T = \frac{\ln(R)}{\mu \cdot L} - \alpha \cdot \Gamma \quad (2.4.4)$$

La seconde condition est une condition de phase. L'onde lumineuse, après un aller-retour dans la cavité doit se retrouver avec une même phase (à 2π près). Ceci s'écrit :

$$2 \left(\frac{2\pi \cdot \mu}{c} \cdot v + \varphi(v) \right) \cdot L = 2\pi \cdot q, \quad (2.4.5)$$

avec q un entier naturel, et $\varphi(v)$ un terme de phase supplémentaire lié à la partie réelle de la susceptibilité diélectrique du matériau remplissant la cavité [12]. Nous ferons l'hypothèse d'un résonateur « froid », c'est dire que nous négligerons ce terme de phase supplémentaire. L'influence de ce terme est de rendre les modes de la cavité non équidistants, de les rapprocher de la fréquence centrale de la courbe de gain. Ainsi, les modes σ_q de la cavité sont donnés par :

$$\sigma_q = \frac{q}{2 \cdot \mu \cdot L} \quad (2.4.6)$$

A titre d'exemple pour une cavité de 300 μm , et un indice μ de 5, les modes sont espacés de 3.3 cm^{-1} . Nous avons résumé toutes ces conditions sur la figure 2.4.1.

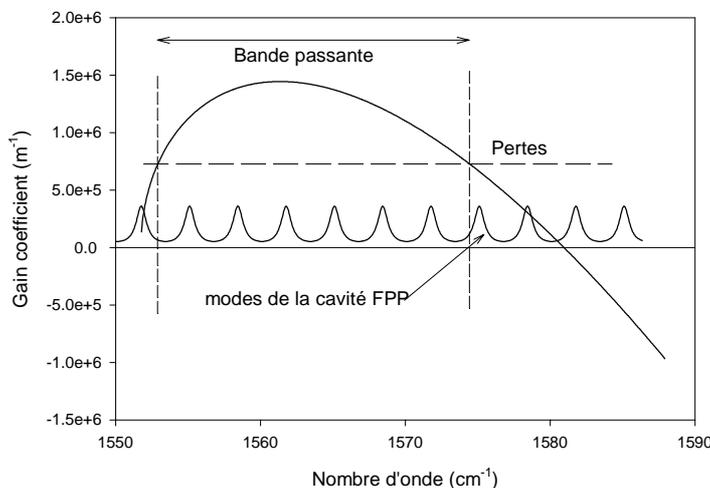


Figure 2.4.1
Représentation de l'ensemble des conditions d'oscillation laser

Sur cette figure nous avons représenté la courbe de gain du milieu amplificateur, le niveau de perte que nous avons supposé constant, et les modes de la cavité formée par les faces de la diode laser. Les points d'intersection de la courbe de gain et des pertes définissent la bande passante, les modes de la cavité présents dans cette bande passante sont alors susceptibles de laser. En fait, étant donné le caractère homogène de l'élargissement du milieu amplificateur, nous verrons plus loin que certains modes seront privilégiés.

2.4.3. Dépendance des modes de la cavité avec les paramètres d'accord

L'équation 2.4.6 fait intervenir l'indice optique du milieu composant la cavité laser. De petites variations sur l'indice entraînent une variation de la fréquence du mode :

$$d\mu = -\frac{q}{2L} \frac{d\sigma_q}{\sigma_q^2} \quad (2.4.7)$$

Le mécanisme d'accord en fréquence fin se fera donc par variation de l'indice optique. Celui-ci est dépendant du courant et de la température. Nous pouvons alors exprimer la variation de la fréquence d'émission du composant par :

$$d\sigma_q = -\frac{2L}{q} \sigma_q^2 \left(\frac{\partial \mu}{\partial i} di + \frac{\partial \mu}{\partial T} dT \right) \quad (2.4.8)$$

2.4.4. Intrication des phénomènes d'accord

Nous avons séparé l'explication de l'accord en fréquence des diodes laser en deux parties. Au paragraphe 2.3 nous avons vu l'accord en fréquence lié à la courbe de gain. Nous venons de voir l'influence du résonateur sur l'accord en fréquence. Ces deux phénomènes que nous avons séparés afin d'être plus clair, sont en fait, intimement liés.

Nous ferons les hypothèses suivantes pour résoudre les équations de Maxwell dans la zone active de la diode laser :

Les solutions des équations pour le champ électrique sont de la forme :

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \text{Re}[\vec{E}_r(x, y, z) \cdot \exp(-i \cdot \omega \cdot t)]. \quad (2.4.9)$$

Le vecteur polarisation s'écrit également sous la forme :

$$\vec{P}(x, y, z, t) = \text{Re}[\vec{P}_r(x, y, z) \cdot \exp(-i \cdot \omega \cdot t)]. \quad (2.4.10)$$

D'autre part, le système est linéaire donc :

$$\vec{P}_r = \epsilon_0 \cdot \chi(\omega) \cdot \vec{E}_r, \quad (2.4.11)$$

où χ est la susceptibilité de la zone active (milieu isotrope). On écrit cette susceptibilité sous la forme de deux contributions :

$$\chi = \chi_0 + \chi_p, \quad (2.4.12)$$

où χ_0 est la susceptibilité du milieu sans pompage, et χ_p la contribution due à une injection de porteurs dans la zone active. Ainsi la constante diélectrique de la zone active devient :

$$\varepsilon = \chi_0 + \chi_p + i \frac{\sigma_{za}}{\varepsilon_0 \cdot \omega}, \quad (2.4.13)$$

avec σ_{za} la résistivité de la zone active.

Le champ électrique pour une onde plane se propageant dans la cavité d'indice complexe $\bar{\mu}$ s'écrit :

$$\vec{E}_r = \vec{E}_0 \cdot \exp(i \cdot \bar{\mu} \cdot k_0 \cdot z) \quad (2.4.14)$$

où
$$\bar{\mu} = \mu - i \frac{\gamma_0}{2k_0}. \quad (2.4.15)$$

Avec l'hypothèse que $|\gamma_0| \ll \mu \cdot k_0$, il vient :

$$\mu = \sqrt{1 + \text{Re}(\chi_0 + \chi_p)}, \quad (2.4.16)$$

et
$$-\gamma_0 = \frac{k_0}{\mu} \left(\text{Im}(\chi_0 + \chi_p) + \frac{\sigma_{za}}{\varepsilon_0 \cdot \omega} \right) \quad (2.4.16)$$

Ces deux dernières équations sont lumineuses. Une injection de porteurs dans la zone active modifie l'indice de réfraction du matériau de la cavité résonante, donc les fréquences de ses modes ; ceci via la variation de la partie réelle de la susceptibilité du milieu. Le gain du milieu, lui, est affecté par la variation de la partie imaginaire de la susceptibilité. Finalement on constate la liaison intime entre gain et indice, puisque partie réelle et partie imaginaire de la susceptibilité obéissent aux équations causales de Kramers-Kronig.

2.4.5. Comparaison des deux types d'accord

A la lumière des considérations précédentes, nous allons à présent illustrer expérimentalement ces phénomènes, et comparer les deux types d'accord en fréquence du composant. Tout d'abord en ce qui concerne l'évolution du sommet de la courbe de gain, dans le régime linéaire de fonctionnement on peut considérer que la puissance totale émise par la diode reflète cette évolution.

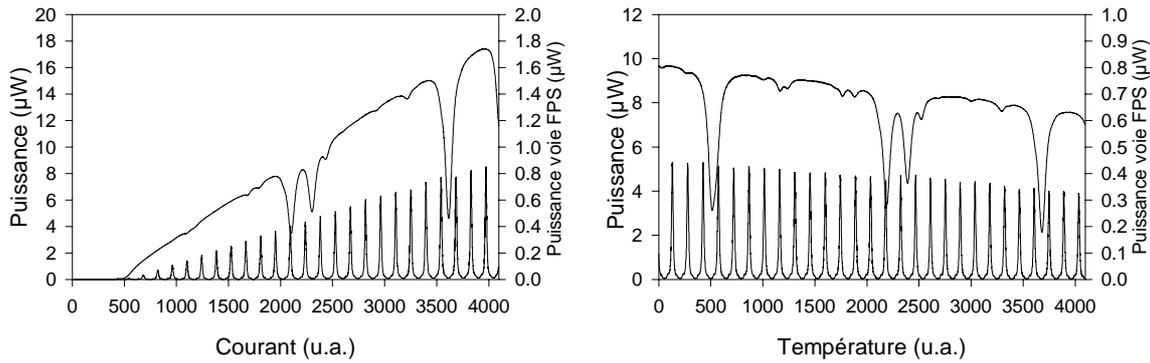


Figure 2.4.2 : Comparaison expérimentale des deux types d'accord en fréquence sur un même mode d'émission. Accord par le courant d'injection (gauche) – Accord par la température (droite).

La figure 2.4.2 montre deux enregistrements expérimentaux de spectre de SO_2 (3 torr) réalisés par les deux types d'accord. La région spectrale sondée est $1168.5 - 1169 \text{ cm}^{-1}$. Par exemple le doublet intense situé au centre des enregistrements est donné par Hitran96 à 1168.677160 et $1168.691830 \text{ cm}^{-1}$. Nous avons travaillé au voisinage du seuil de l'émission laser, situé à 80 mA, à des températures autour de 68.5 K.

Pour le spectre de gauche, où l'accord se fait en courant d'injection, la rampe de courant appliquée est de 16.5 mA. On remarque que la puissance émise croît avec le courant d'injection, résultat en concordance avec la figure 2.3.4. Dans ce cas la température est fixe. Pour le spectre de droite, où l'accord se fait grâce à une rampe de température de 0.5K/min, à courant fixé, on retrouve la légère décroissance de la puissance émise en accord avec la figure 2.3.6. De plus un premier avantage de ce balayage, quand on est proche du seuil est d'augmenter la gamme de balayage, puisque la première raie d'absorption apparaissant sur le spectre de droite n'était pas définie sur celui de gauche.

D'autre part, nous avons vu que lors d'une modification de température, la bande passante de la courbe de gain n'évolue pas. Par contre, l'augmentation du courant d'injection augmente cette bande passante et par suite les probabilités d'émission multimode. En effet, même si, en vertu du caractère homogène de l'élargissement d'un tel milieu, la courbe de gain s'effondre dès le seuil laser pour caler son maximum au niveau des pertes, l'augmentation de la bande passante implique que la zone quasi-plate au voisinage du sommet de la courbe de gain s'étend. Expérimentalement on observe effectivement qu'un balayage en température à courant fixé, permet une émission de meilleure qualité : les zones monomodes sont plus nombreuses. Ceci est illustré sur la figure 2.4.3.

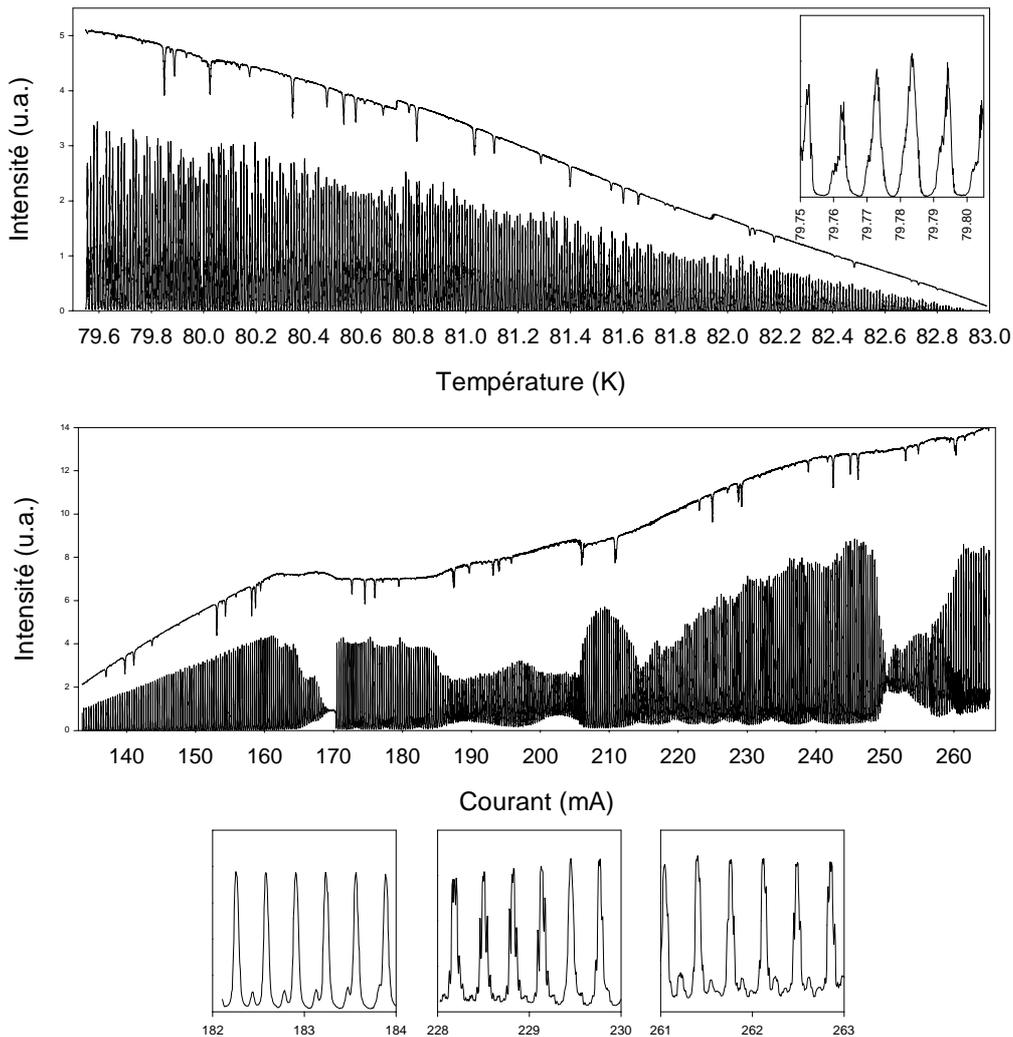


Figure 2.4.3 : Comparaison des deux types d'accord. La figure supérieure est un accord en température, la figure inférieure un accord en courant. Pour chacune, en médaillon, un agrandissement sur les franges du FPS est représenté.

Sur la figure supérieure (accord en température) on voit se succéder 4 modes d'émission. La qualité de l'émission est attestée par l'enveloppe des franges de FPS, ainsi que par les franges elles-mêmes, agrandies en médaillon dans le coin supérieur droit. Dans le cas d'un accord en courant (figure inférieure), seul le mode au seuil est de bonne qualité. Ensuite on distingue les différents modes qui se succèdent de part les variations de l'enveloppe des franges de FPS, enveloppe par ailleurs présentant des perturbations. En effet, les modes suivants celui du seuil présentent de légers modes résiduels et ne sont donc pas purement monomodes, comme l'indique les trois agrandissements situés sous le spectre.

Un ultime argument en faveur de l'accord en température, est lié à l'effet joule. Lorsque le courant d'injection dans la diode varie, ce courant entraîne une variation de température

dans la diode par échauffement, phénomène non maîtrisable. Par contre, à courant fixé, une rampe de température ne produit aucun phénomène secondaire.

Cependant, la rampe de température, de part l'inertie liée aux phénomènes thermiques, n'est pas adaptée pour des vitesses de balayage rapide.

2.5. Diode laser à hétérostructure

Nous avons vu que les diodes à homojonction, certes sont susceptibles d'émettre un rayonnement laser, mais que celui-ci est peu exploitable dans la mesure où les échauffements liés à de très fortes densités de courant injecté provoquent la destruction très rapide du composant si celui-ci n'opère pas à très basses températures. La densité de porteur injecté dans la zone active du composant s'écrit :

$$\Delta n = \frac{j \cdot \tau}{e \cdot d}, \quad (2.5.1)$$

où j est la densité de courant injecté, et d l'épaisseur de la zone active. Dans le cas de l'homojonction l'épaisseur de la zone active dépend de la longueur de diffusion des porteurs. Cette dernière dépend du taux de dopage n et p du semi-conducteur. Il est clair qu'à Δn fixé, réduire l'épaisseur de la zone active d , revient à réduire la densité de courant j . D'autre part, il est intéressant de chercher à augmenter le facteur de confinement Γ . L'équation (2.4.3) montre qu'augmenter Γ revient à réduire le gain net nécessaire à l'oscillation laser.

Nous allons voir que les hétérostructures réalisent à merveille ces deux améliorations, et permettent aux diodes laser de devenir un composant fiable, en abaissant le courant de seuil laser et les températures de fonctionnement.

2.5.1. Diode à sels de plomb

La figure 2.5.1 représente les longueurs d'onde susceptibles d'être couvertes par les différents matériaux semi-conducteurs [10].

Dans le moyen infrarouge les matériaux adéquats sont les sels de plomb. Ces sels sont des composés ternaires IV-VI, et les diodes ainsi fabriquées ne fonctionnent couramment qu'à la température de l'azote liquide. Classiquement de telles diodes laser peuvent émettre de 3 à 40 μm , du fait de la faible bande d'énergie interdite du matériau. La première émission laser à partir des sels de plomb est due à Dimmock et al. [13]. L'énergie de bande interdite varie beaucoup avec la température, il est ainsi possible d'avoir une large gamme d'accord. Le paramètre de maille ainsi que la bande interdite de ces matériaux varient avec la composition x . La figure 2.5.2 montre l'évolution de l'énergie de bande interdite en fonction de la composition pour différents couples de sels de plomb pour une température de 77 K [14]. Comme l'énergie de bande interdite fixe directement la longueur d'onde d'émission, par ajustement du paramètre x , il est possible de choisir la longueur d'onde d'émission du composant.

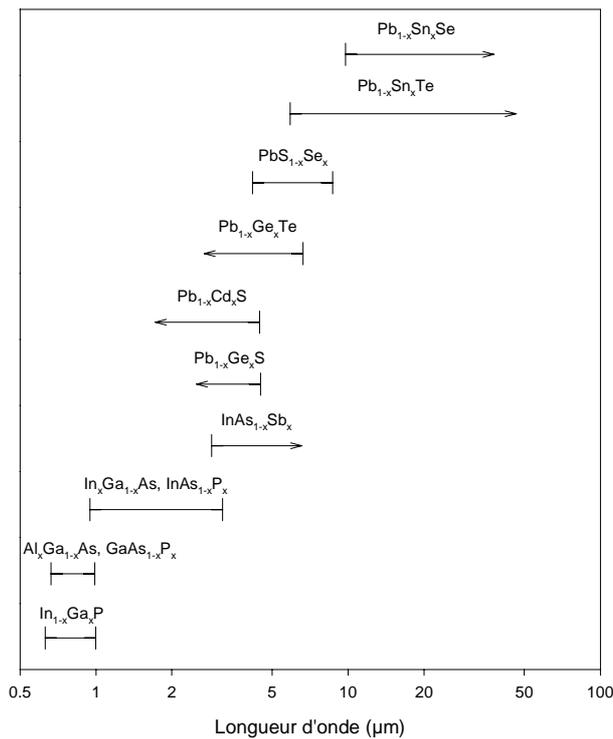


Figure 2.5.1
Longueurs d'onde couvertes par les matériaux semi-conducteurs.

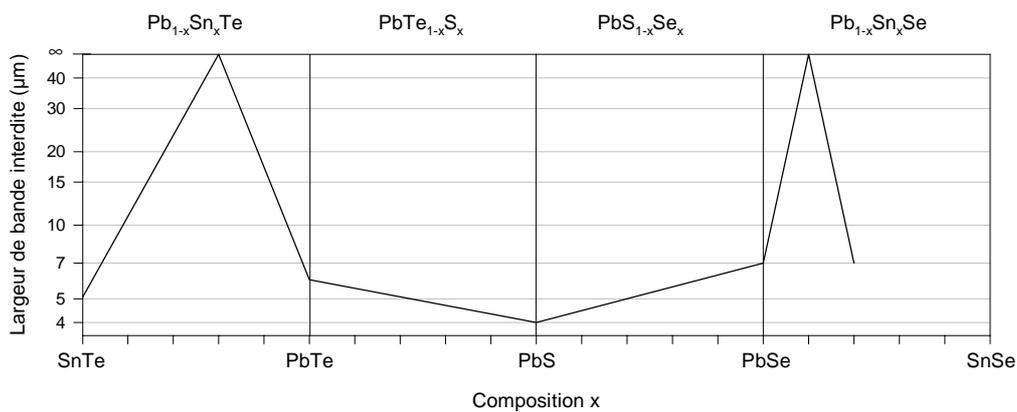


Figure 2.5.2 : Variation de la bande interdite des semi-conducteurs à sels de plomb en fonction des proportions de mélange.

Ces diodes laser sont des sources importantes en raison de leurs applications en spectroscopie et détection de gaz atmosphériques.

2.5.2. Techniques de croissance

L'amélioration des diodes laser est directement liée au développement des techniques de croissance de cristaux. Lors d'une croissance de cristaux semi-conducteurs hétérogènes, l'accord de maille aux interfaces doit être à mieux de 0.1%. Ce type de croissance est l'épitaxie.

La première technique est l'épitaxie en phase liquide. Elle date de 1963 [15]. Il s'agit d'amener en contact une solution sursaturée du matériau à faire croître avec un substrat

monocristallin. Si le paramètre de maille du matériau est proche de celui du substrat, le matériau va croître en un cristal de bonne qualité.

La deuxième technique est l'épithaxie en phase gazeuse [16]. Dans ce cas, le matériau à faire croître arrive à proximité du substrat sous forme de gaz de chlorure ou d'hydride.

La dernière technique, sans doute la plus pointue, est l'épithaxie par jet moléculaire [17]. Le substrat est porté par un support en molybdène, il est sous ultraviolette et reçoit des jets d'atomes ou de molécules du matériau à faire croître. Les constituants des jets viennent alors se coller sur le substrat en formant le cristal. Cette technique présente l'avantage de pouvoir s'associer à toutes les techniques d'analyse des solides, et la croissance peut être ainsi parfaitement contrôlée.

2.5.3. Confinement de porteurs

De manière à augmenter le confinement des porteurs au voisinage de la zone de recombinaison, on réalise des structures en feuillet de semi-conducteurs différents. Il s'agit de jongler avec les bandes interdites des matériaux que l'on accole afin de créer une structure de bande assurant le confinement. On peut ainsi réaliser des épaisseurs de zone active ad hoc. La double hétérostructure est la plus répandue. Comme le montre la figure 2.5.3, elle se compose de cinq feuillets de semi-conducteurs différents [18].

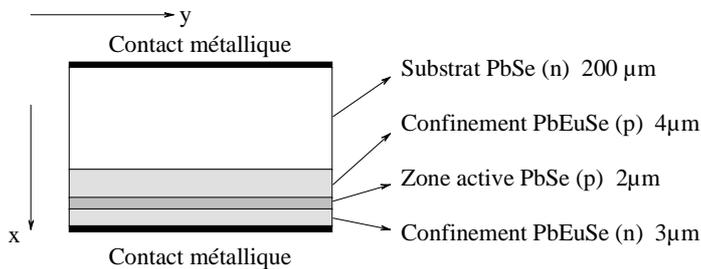


Figure 2.5.3
Structure en feuillet d'une double hétérostructure

La zone active est entourée de deux couches de confinement de type p et n. Ces matériaux de confinement doivent avoir une énergie de bande interdite supérieure à celle de la zone active. Dans ce cas, et une fois la structure polarisée en direct, le diagramme de bande à l'allure représentée sur la figure 2.5.4.

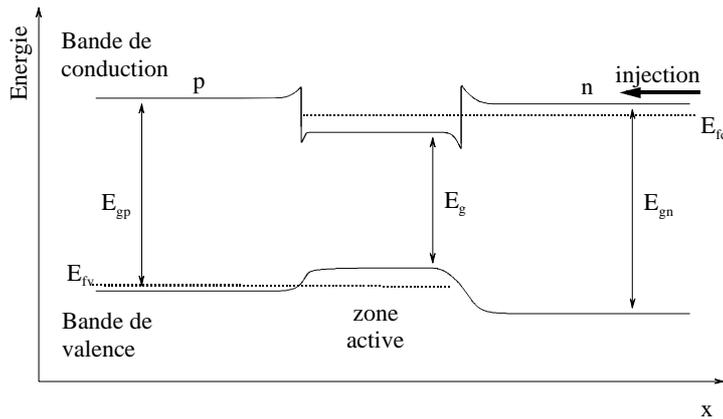


Figure 2.5.4
Diagramme de bande d'une double hétérojonction polarisée en direct.

Le fait que l'énergie de bande interdite des zones de confinement (E_{gp} et E_{gn}) soit plus grande que celle de la zone active provoque des sauts brusques de bandes aux interfaces. Ces sauts forment des barrières de potentiel qui assurent le confinement électronique. Ceci permet de réduire l'épaisseur de la zone active d , tout en augmentant la densité de porteurs dans la zone de recombinaison. Ainsi, le courant de seuil laser s'en trouve diminué.

D'autre part, dans les homojonctions, la température a un effet néfaste sur le confinement de porteurs, puisque les distributions de Fermi s'étalent. L'autre avantage du confinement par double hétérojonction est d'augmenter les températures de fonctionnement des diodes laser. Actuellement, les diodes à sels de plomb peuvent émettre en régime continu à des températures proches de l'ambiante, mais ceci reste confidentiel [19]. La plupart des composants accessibles sur le marché fonctionnent à la température de l'azote liquide.

2.5.4. Confinement de photons

Dans le cas d'une homojonction le facteur de confinement est faible. La zone active présente une variation d'indice comparée aux zones p et n due à l'injection de porteurs (cf. 2.4.1). Mais cette variation d'indice est très faible, elle ne dépasse pas 0.1%. De part l'hétérogénéité des matériaux constituant la double hétérostructure, la double hétérojonction forme un guide diélectrique plus efficace. Pour les diodes à sels de plomb, l'indice de réfraction diminue avec la bande interdite [20].

La figure 2.5.5 illustre la comparaison des confinements optiques entre homojonctions et hétérojonctions. Sur cette figure, nous avons représenté le profil d'indice de la diode laser et la répartition d'énergie optique correspondante. La zone active est délimitée par les traits pointillés.

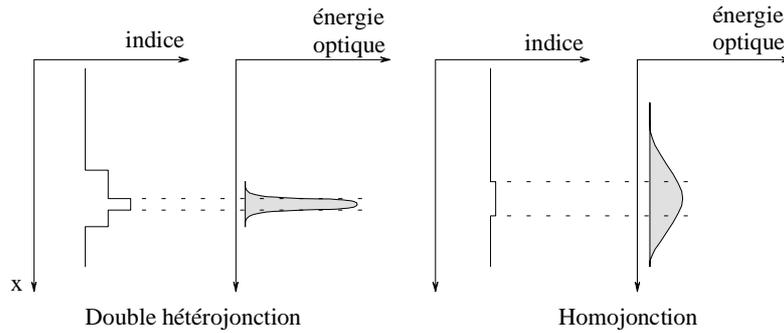


Figure 2.5.5 : représentation schématique du confinement optique.

Botez [21] donne une formule analytique pour le calcul du facteur de confinement. Cette formule est une très bonne approximation :

$$\Gamma = \frac{\Gamma'}{1 + \Gamma'}, \text{ avec } \Gamma' = 2\pi^2 (\mu^2 - \mu'^2) \left(\frac{d}{\lambda} \right)^2 \quad (2.5.1)$$

où μ' est l'indice de réfraction du matériau autour de la zone active. Pour une homojonction, avec des paramètres réalistes ($\lambda = 8 \mu\text{m}$, $d = 5 \mu\text{m}$, $\mu = 5$, $\mu' = 4.995$) on obtient un facteur de confinement de 0.28. Pour une hétérojonction ($\lambda = 8 \mu\text{m}$, $d = 2 \mu\text{m}$, $\mu = 5$, $\mu' = 4.7$), le facteur de confinement est de 0.78.

De plus l'épaisseur de la zone active peut être ajustée. Pour une longueur d'onde émise autour de $10 \mu\text{m}$, l'indice de la zone active est de l'ordre de 5. Ainsi, la longueur d'onde dans le matériau est de l'ordre de $2 \mu\text{m}$. Minimiser d à l'extrême entraîne une diminution de Γ . L'épaisseur optimale se situe, pour une émission à $10 \mu\text{m}$, entre 1 et $2 \mu\text{m}$.

De part l'hétérostructure, le confinement est assuré selon une direction. Les techniques d'épitaxie permettent de réaliser le confinement selon l'autre direction transverse. Il en existe deux principales : le guidage par le gain et le guidage par l'indice.

Dans le cas du guidage par le gain, la structure en feuillet du composant est inchangée. Seule la géométrie du contact métallique est modifiée. L'injection de porteurs ne se fait plus sur toute la surface du composant mais sur une bande étroite. On réalise cette bande étroite en rendant isolante une partie du substrat par bombardement de protons (destruction de la structure cristalline). En localisant l'injection, on crée une zone privilégiée de petite dimension où le gain sera supérieur aux pertes. La diffusion des porteurs dans la zone active occasionne une zone d'injection plus large que la zone réellement délimitée par l'isolant. Ainsi le profil de gain transversal (selon y) n'est pas rigoureusement une marche. D'après Yonesu et al. [22], la figure 2.5.6 représente le profil de gain.

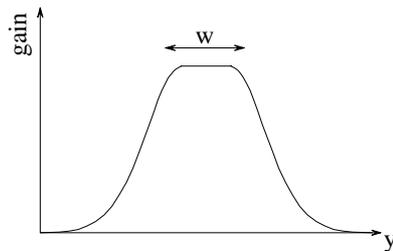


Figure 2.5.6
Profil transversal du gain dans une diode laser guidée par le gain.

Ce type de guidage engendre des problèmes d'astigmatisme. En effet selon la direction transversale x , l'hétérogénéité des matériaux induit un saut brutal d'indice dans la zone active, selon cette direction nous avons alors un excellent guide d'onde, une onde plane peut se propager et le waist du faisceau selon cette direction se situe sur le miroir de sortie. Pour l'autre direction transversale, selon y , la variation de gain, donc d'indice, provoque une courbure des fronts d'onde et le waist virtuel selon cette direction se situe quelques dizaines de microns avant le miroir de sortie.

Pour le guidage par l'indice, on crée un véritable guide d'onde bidimensionnel par une adjonction latérale d'un semi-conducteur de grande bande interdite, dopé p. D'une part, ceci localise le passage du courant dans la zone active car la barrière de potentiel à ce niveau est plus faible, d'autre part, ceci assure une variation brutale de l'indice de réfraction lorsqu'on sort de la zone active selon la direction y . Ce type de structure est aussi appelé hétérostructure enterrée. La figure 2.5.7 représente les deux structures décrites ci-dessus.

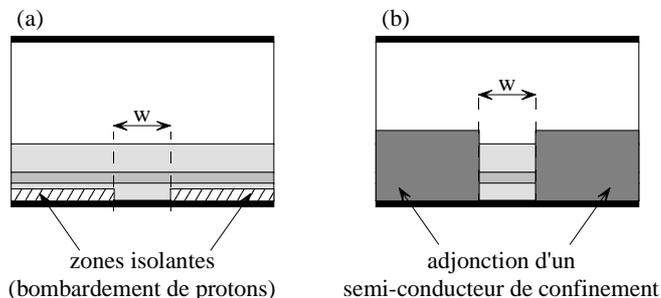


Figure 2.5.7
Représentation schématique d'une diode laser guidée par le gain (a) et par l'indice (b).

2.5.5. Fabrication et aspect du composant

Comme les autres composants à semi-conducteurs, la phase de croissance par épitaxie engendre un substrat (le wafer) de quelques centimètres carré d'où l'on tirera plusieurs centaines de composants. Une fois tout traitement global terminé sur ce substrat, on crée les composants individuels. D'abord par clivage on crée des barrettes dont la largeur sera la longueur de la cavité laser ($L \approx 300\mu\text{m}$). Puis sur ces barrettes une nouvelle découpe permettra d'isoler chaque composant (puce). Enfin pour chaque puce, on branche les contacts électriques et l'on soude le tout sur une embase dissipatrice de la chaleur. La figure 2.5.8 montre une photographie de l'aspect général du composant (a). On distingue l'embase métallique sur laquelle est monté le composant et le fil d'injection du courant. La flèche blanche indique l'endroit où est la diode laser. L'autre photographie a été réalisée par un

microscope électronique à balayage, on distingue le cristal qui est approximativement un cube d'arête 300 μm et le ruban de tungstène permettant l'apport de courant.

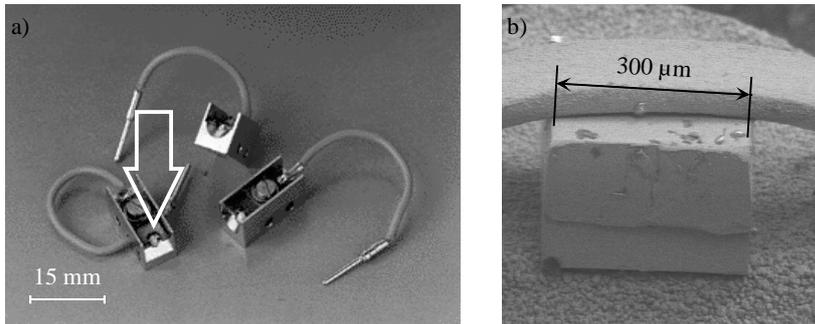


Figure 2.5.8

a) Aspect général du composant, b) photographie au MEB de la diode laser.

2.5.6. Propriétés de l'émission

La taille microscopique du milieu amplificateur et de la cavité engendrent des particularités dans les caractéristiques spatiales d'émission [23, 24]. L'ouverture du composant est très faible et asymétrique. Cette particularité entraîne un faisceau en champ lointain très elliptique, et des problèmes de collimation. Ceci est schématisé sur la figure 2.5.9. La divergence angulaire verticale est d'environ λ/d , la divergence horizontale de λ/w .

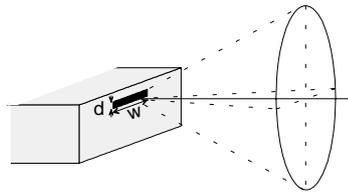


Figure 2.5.9

Divergence angulaire du faisceau diode laser.

Nous reviendrons dans la section suivante sur les caractéristiques spectrales du composant. D'ores et déjà, notons que ce composant ayant un milieu amplificateur homogène, l'émission devrait être monomode. Ceci est vérifié, mais uniquement au seuil laser du composant, quand le régime d'amplification est linéaire. A des courants d'injection élevés, et donc fatalement, à de fortes puissances d'émission, la saturation de gain introduit des phénomènes d'émission multimode détaillés ci-après. Rappelons cependant, que dans l'étude des phénomènes d'accord, un accord en température s'est avéré plus efficace.

Enfin, nous verrons également qu'un milieu amplificateur composé de matière condensée implique un spectre d'émission large (comparé aux lasers à gaz par exemple), typiquement de l'ordre de la dizaine de MHz.

3. limites des diodes laser

3.1. Bruits

Les diodes laser restent un laser particulier. En effet, au sein de la zone active il nous faut décrire le comportement de deux populations fortement couplées : la population électronique (porteurs) et la population photonique (champ). Ce phénomène va générer des bruits particuliers. Le bruit est un phénomène lié à la dynamique, il nous faut donc d'abord décrire les équations d'évolution des populations électroniques et photoniques au sein de la zone active.

3.1.1. Equations d'évolution

En toute rigueur, la dynamique des processus d'interaction rayonnement matière de la zone active doit prendre en compte la polarisation induite par le matériau semi-conducteur. Mais, en nous plaçant dans l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique local déjà utilisée pour la description des phénomènes de recombinaison, nous négligerons cette polarisation induite. Rigoureusement l'établissement de l'équation d'évolution du champ électrique dans la cavité laser se fait par résolution des équations de Maxwell [25]. Mais il est plus pratique de considérer la densité de photons P . On a évidemment $P(t) \propto |E(t)|^2$.

Considérons l'évolution de la densité de photons pendant un temps infinitésimal dt . Une partie des photons présents dans la cavité (milieu d'indice μ) vont disparaître (pertes dans la cavité), soit $-\frac{c}{\mu} \alpha_T \cdot P \cdot dt$. L'apport de photons est dû d'une part à l'émission stimulée, soit $\frac{c}{\mu} \Gamma \cdot \gamma_0 \cdot P \cdot dt$, d'autre part à l'émission spontanée, soit $R_{sp} \cdot dt$, où R_{sp} est le taux net d'émission spontanée. Ainsi il vient :

$$\frac{dP}{dt} = \frac{c}{\mu} (\Gamma \gamma_0 - \alpha_T) P + R_{sp} \quad (3.1.1)$$

Nous procédons de même pour établir l'équation d'évolution de la densité de porteurs. Pendant un temps dt , le gain de porteurs se fait par l'injection de courant, soit $\frac{j}{e \cdot d} \cdot dt$. Les pertes se font par recombinaisons (radiatives où non), soit $-\gamma_n \cdot n \cdot dt$, et par émission stimulée, soit $-\frac{c}{\mu} \Gamma \cdot \gamma_0 \cdot P \cdot dt$. Ainsi l'équation d'évolution des porteurs s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{j}{e \cdot d} - \gamma_n \cdot n - \frac{c}{\mu} \Gamma \cdot \gamma_0 \cdot P. \quad (3.1.2)$$

Le taux γ_n prend en compte tous les processus de recombinaison, il peut s'écrire :

$$\gamma_n = \gamma_{nr} + \gamma_{sp} \cdot n + \gamma_a \cdot n^2, \quad (3.1.3)$$

où γ_{nr} est le taux de recombinaison non radiative (via un niveau piège ou de surface), γ_{sp} est le taux de recombinaison radiative (émission spontanée), et γ_a est le taux de recombinaison par effet Auger.

Notons que nous avons négligé ici les éventuelles fuites de porteurs par diffusion.

Dans la suite nous utiliserons un taux d'émission stimulée effectif γ_{eff} tel que :

$$\gamma_{eff} = \frac{c}{\mu} \Gamma \cdot \gamma_0. \quad (3.1.4)$$

3.1.2. Fréquence de relaxation

Les équations d'évolution (3.1.1) et (3.1.2) décrivent le couplage entre les populations électronique et photonique. Ce couplage introduit des phénomènes particuliers que nous ne retrouvons pas dans d'autre type de laser, et qui génèrent un bruit caractéristique.

Pour obtenir les caractéristiques en fréquence du couplage, on procède à l'analyse petits signaux des équations d'évolution, autour d'une densité stationnaire de photons P_{st} et d'électrons n_{st} . Pour mener à bien cette analyse il est nécessaire de préciser la dépendance des différents coefficients avec P et n . Le taux d'émission stimulée dépend évidemment de l'inversion de population et de la densité de photons, donc $\gamma_0 = \gamma_0(n, P)$. Le coefficient de pertes total α_T est une constante. L'émission spontanée dépend de la densité d'électrons susceptibles de se désexciter, donc $R_{sp} = R_{sp}(n)$. Enfin, comme l'indique (3.1.3), $\gamma_n = \gamma_n(n)$.

En considérant une petite perturbation δP de P_{st} et une petite perturbation δn de n_{st} , et en négligeant les termes du deuxième ordre, il vient :

$$\frac{d(\delta P)}{dt} = \left(\frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial P} \cdot P - \frac{R_{sp}}{P} \right) \delta P + \left(\frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial n} \cdot P + \frac{\partial R_{sp}}{\partial n} \right) \delta n, \quad (3.1.5)$$

$$\frac{d(\delta n)}{dt} = \frac{\delta j}{e \cdot d} - \left(\gamma_n + \frac{\partial \gamma_n}{\partial n} \cdot n + \frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial n} \cdot P \right) \delta n - \left(\gamma_{eff} + \frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial P} \cdot P \right) \delta P. \quad (3.1.6)$$

On suppose des solutions de la forme (retour exponentiel à l'équilibre) :

$$\delta P(t) = \delta P_0 \cdot \exp(-(\beta_R \pm i \cdot \Omega_R)t), \quad (3.1.7)$$

$$\delta n(t) = \delta n_0 \cdot \exp(-(\beta_R \pm i \cdot \Omega_R)t), \quad (3.1.8)$$

où δP_0 et δn_0 sont les perturbations initiales, β_R l'inverse de la constante de temps de retour à l'équilibre (constante de relaxation du système), et Ω_R une pulsation décrivant un régime oscillatoire de retour à l'équilibre (pulsation de relaxation du système). Avec ces solutions très réalistes, on obtient :

$$\beta_R = \frac{1}{2} \left(-\frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial P} \cdot P + \frac{R_{sp}}{P} + \gamma_n + \frac{\partial \gamma_n}{\partial n} \cdot n + \frac{\partial \gamma_{eff}}{\partial n} \cdot P \right), \quad (3.1.9)$$

et en très bonne approximation :

$$\Omega_R \cong \sqrt{\gamma_{\text{eff}} \cdot \frac{\partial \gamma_{\text{eff}}}{\partial n} \cdot P} \quad (3.1.10)$$

Ces paramètres intrinsèques au couplage des deux populations en jeu dans les diodes laser vont apparaître dans la description du bruit.

3.1.3. Sources de Langevin

Dans le traitement qui précède, les densités de photons et d'électrons sont parfaitement déterminées. Afin de prendre en compte les fluctuations stochastiques autour de valeurs stationnaires, nous ajoutons dans les équations d'évolution des sources de bruits dites de Langevin, $F_P(t)$ pour les photons, et $F_n(t)$ pour les électrons. Nous faisons l'hypothèse réaliste que le temps de corrélation de ces sources de bruits est très court comparé aux temps de relaxation des photons (α_T^{-1}) et des électrons (γ_n^{-1}). Autrement dit, le système est Markovien, il n'a pas de « mémoire ». Ainsi les caractéristiques des sources de bruits de Langevin s'écrivent [26]:

$$\langle F_i(t) \rangle = 0, \text{ et } \langle F_i(t) F_j(t') \rangle = 2 \cdot D_{ij} \cdot \delta(t - t') \quad (3.1.11)$$

où $\langle \rangle$ indique la moyenne, et D_{ij} est le coefficient de diffusion des sources de bruits considérées, avec $i = P, n$ et $j = P, n$. Le bruit décrit par $F_P(t)$ provient de l'émission spontanée et est un bruit d'intensité, celui décrit par $F_n(t)$ provient de la nature discrète des processus de génération - recombinaison des porteurs (bruit de grenaille). Ces coefficients ont été calculés notamment par Vahala et Yariv [27]. Précisons que $F_P(t)$ ne prend pas en compte le bruit de grenaille des photons, que ce bruit sera décrit lors du traitement de la photo-détection.

En reprenant l'analyse petits signaux sur les équations d'évolution où les sources de bruits ont été ajoutées, et en menant la résolution dans l'espace de Fourier [25], il vient :

$$\tilde{\delta P}(\omega) = \frac{\left(\gamma_n + \frac{\partial \gamma_n}{\partial n} \cdot n + \frac{\partial \gamma_{\text{eff}}}{\partial n} \cdot P + i \cdot \omega \right) \tilde{F}_P + \left(\frac{\partial \gamma_{\text{eff}}}{\partial n} \cdot P + \frac{\partial R_{\text{sp}}}{\partial n} \right) \tilde{F}_n}{(\Omega_R + \omega - i \cdot \beta_R)(\Omega_R - \omega + i \cdot \beta_R)}, \quad (3.1.12)$$

où \tilde{X} symbolise la transformée de Fourier de X . On peut établir également une équation de ce type pour les porteurs, nous ne la donnerons pas car dans la suite nous nous intéresserons particulièrement au bruit d'intensité. L'équation (3.1.12) montre clairement qu'au voisinage de la pulsation de relaxation des populations électrons photons ($\omega \cong \Omega_R$), le bruit augmente considérablement. C'est un phénomène de résonance entre les deux populations qui est propre aux diodes laser, et fournit une information importante quant aux fréquences de modulation rédhibitoires ou aux signaux observés en détection hétérodyne.

3.1.4. Bruit d'intensité

En un point de fonctionnement donné, l'intensité émise par une diode laser fluctue autour d'une valeur moyenne. Le bruit d'intensité à une fréquence ω est usuellement caractérisé par le bruit d'intensité relatif (Relative Intensity Noise) que l'on définit par :

$$\text{RIN} = \frac{S_P(\omega)}{P^2} \quad (3.1.13)$$

où $S_P(\omega)$ est la densité spectrale de puissance des fluctuations d'intensité autour de la valeur stationnaire. Dès lors, il vient :

$$S_P(\omega) = \left\langle \left| \tilde{\delta P}(\omega) \right|^2 \right\rangle \quad (3.1.14)$$

Le bruit d'intensité présente donc un pic autour de la fréquence de relaxation du système électron photon. A basse fréquence ($\omega \ll \Omega_R$) ce bruit varie en $(P \cdot \Omega_R^4)^{-1}$ donc d'après (3.1.10) en P^{-3} [28].

3.1.5. Bruit de phase

Nous venons de voir le bruit d'intensité qui se traduit par des fluctuations de la puissance émise par le composant. Nous allons à présent considérer le bruit de phase. Ce bruit est très important, les fluctuations de phase du laser se répercutent directement sur la largeur spectrale d'émission de la diode, qui elle même détermine principalement la résolution d'un spectromètre à diode laser.

L'origine physique de ce bruit est due à deux phénomènes. Premièrement, l'émission spontanée ayant lieu dans la cavité occasionne des fluctuations aléatoires de phase. Deuxièmement, comme nous l'avons vu plus haut, la variation de la densité de porteurs implique une variation de l'indice de la zone active, donc du chemin optique, donc de la condition de phase (2.4.5).

Pour caractériser le bruit de phase, à partir des équations de Maxwell (avec quelques hypothèses sur le champ) on établit l'équation d'évolution de la phase. Par la méthode de l'analyse petits signaux utilisée pour décrire le bruit d'intensité, on établit le spectre de puissance du bruit de phase. En première approximation, ce spectre est une Lorentzienne centrée sur la fréquence d'émission du laser, la largeur de cette Lorentzienne est alors donnée par [29] :

$$\Delta\nu = \frac{R_{sp}(1 + \alpha_H^2)}{4\pi \cdot P} \quad (3.1.15)$$

Or la puissance totale émise par le laser étant :

$$P_{\text{Total}} = h \cdot \nu \left(\frac{c}{\mu} \right) \frac{\ln(R)}{L} P, \quad (3.1.16)$$

il vient :

$$\Delta\nu = \frac{R_{sp} \cdot h \cdot \nu \cdot c \cdot \ln(R)}{\mu \cdot L \cdot P_{Total}} (1 + \alpha_H^2) \quad (3.1.17)$$

Ceci n'est autre que la formule de Schawlow-Townes qui donne la largeur spectrale d'un laser, mais modifiée par le facteur d'élargissement de Henry α_H . Ce facteur prend en compte la particularité des lasers à semi-conducteurs d'être constitués d'une cavité très dispersive. Le facteur α_H n'est autre que la partie réelle de la susceptibilité diélectrique divisée par sa partie imaginaire.

3.1.6. Bruits multimodaux

Dans tout le traitement précédent, nous avons supposé implicitement une émission monomode du laser. Les lasers à semi-conducteurs sont typiquement multimodes. Ceci limite considérablement les performances des diodes laser dans les applications spectroscopiques. Bien que le protocole de balayage de la fréquence d'émission par variation de la température apporte une amélioration des qualités d'émission, l'émission multimodale et le phénomène de saut de mode limitant les zones continûment accordables perdurent.

Pour prendre en compte ce phénomène il nous faut réécrire les équations d'évolution pour chaque mode i . Ainsi (3.1.1) et (3.1.2) deviennent :

$$\frac{dP_i}{dt} = \frac{c}{\mu_i} (\Gamma_i \gamma_{0,i} - \alpha_{T,i}) P_i + R_{sp}(\nu_i) \quad (3.1.18)$$

$$\frac{dn}{dt} = \frac{j}{e \cdot d} - \gamma_n \cdot n - \sum_i \frac{c}{\mu_i} \Gamma_i \cdot \gamma_{0,i} \cdot P_i \quad (3.1.19)$$

La figure 3.1.1 est un schéma représentant les différents échanges entre les populations électroniques, et les populations photoniques dans le cas d'une émission bi-mode.

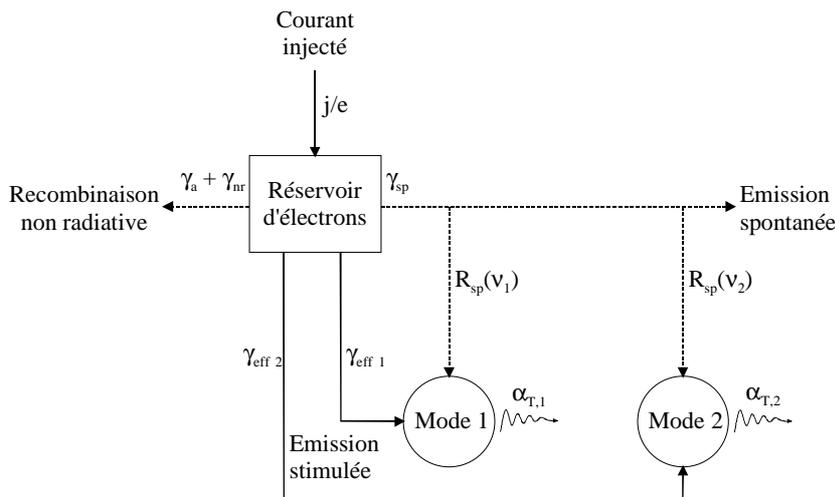


Figure 3.1.1
Schéma des échanges électrons – photons.

Une émission multimode entraîne l'apparition d'un bruit appelé bruit de partition. Dans ce cas, le bruit d'intensité global de l'émission laser reste bas, mais l'intensité répartie dans chaque mode lasant fluctue considérablement. Ceci s'explique par le fait que la saturation de

gain n'opère pas dans le cas d'une émission multimode. Comme le montre la figure 3.1.1, il n'y a qu'un réservoir d'électrons pour, par exemple ici, deux modes. La saturation de gain stabilisera la puissance totale émise dans les deux modes, mais n'empêchera pas les échanges d'énergie du mode 1 au mode 2.

Peterman [30] mène l'analyse du bruit de partition dans le cas où l'émission du laser est presque monomode. On a un mode 1 dominant, et un mode 2 latéral tel que $P_1 \gg P_2$. Dans ce cas, le bruit d'intensité relatif du mode dominant s'écrit comme la somme du bruit d'intensité totale émise et du bruit d'intensité lié au phénomène de partition :

$$RIN = RIN_T + RIN_P, \quad (3.1.20)$$

et

$$RIN_P \propto \frac{P_2^3}{P_1^2}. \quad (3.1.21)$$

Ce bruit de partition est très gênant, car, dans le cas d'une émission multimode, isoler un mode d'émission via, par exemple, un monochromateur demeure impossible, étant donné que le mode ainsi isolé sera considérablement bruité. Généralement ce bruit peut être négligé quand les modes latéraux sont vraiment très faibles, pour $P_1 > 1000 P_2$.

Saut de mode

L'autre type de bruit intervenant est le saut de mode. Ce phénomène est inhérent aux diodes laser. Lors de l'accord en fréquence (par le courant ou la température), le maximum de la courbe de gain du milieu amplificateur est translaté. En revanche, les modes sélectionnés par la cavité Pérot – Fabry n'évoluent pas de la même façon. Ceci entraîne un phénomène de saut brusque du mode lasant au mode directement voisin. C'est un cas très particulier du bruit de partition. Lorsque le laser passe d'un mode à l'autre, au moment du saut, le bruit de partition est alors maximal. Mais, un bruit de partition n'affecte pas la stabilité de la puissance totale émise par le laser, or dans le cas du saut ce n'est pas le cas. La figure (3.1.2) illustre parfaitement ce propos, il s'agit d'une zone de transition entre deux modes lors d'un balayage de température (on distingue la voie directe et la voie FPS). Ce phénomène de bruit est caractéristique du saut de mode.

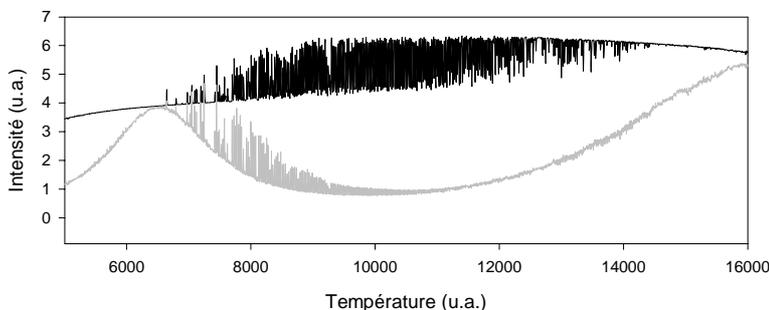


Figure 3.1.2
Enregistrement
expérimental d'un saut de
mode.

L'origine physique du saut est liée aux fluctuations de l'émission spontanée et à un couplage non linéaire entre les modes voisins de la cavité. Otsu et al. [31, 32] ont modélisé ce phénomène dans le cas de deux modes directement voisins. Les sauts de mode suivent une

statistique poissonnienne. Le paramètre important est le coefficient de couplage entre les deux modes qui s'exprime par :

$$\xi = \frac{4/3}{1 + \left(2\pi \cdot c \cdot \tau_{in} \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda^2} \right)^2}, \quad (3.1.22)$$

avec τ_{in} le temps de relaxation d'une paire électron – trou, $\Delta\lambda$ l'écart spectral entre les deux modes voisins, et λ la longueur d'onde moyenne d'émission.

La valeur numérique de ce coefficient dans nos conditions d'utilisation est faible, de l'ordre de 10^{-5} , ceci expliquant sans doute que le régime d'oscillation entre deux modes voisins reste très fugace.

3.2. Le retour optique

Nous allons aborder ici, succinctement, une limite des diodes laser qui n'est pas un bruit intrinsèque à celles-ci mais une particularité de ces composants. Il s'agit du retour optique dans la cavité de la diode. Sachant que ceci est néfaste à l'émission, ce phénomène peut être évité moyennant un soin particulier dans la disposition des éléments d'un montage optique.

Le modèle le plus simple est une configuration à trois miroirs représentée par la figure 3.2.1.

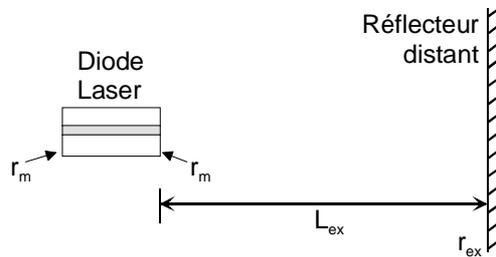


Figure 3.2.1
Représentation schématique d'un retour optique

Cette figure représente les deux miroirs, de coefficient de réflexion r_m , qui composent la cavité de la diode laser. Un troisième miroir distant d'une longueur L_{ex} de la face de sortie de la diode, et de coefficient de réflexion r_{ex} , représente un faible réflecteur intempestif situé dans le montage optique (coefficient effectif prenant en compte d'éventuelles grandeurs photométriques). Ainsi, le champ électrique réinjecté dans la cavité est [33]:

$$\kappa \cdot E(t - \tau) \cdot \exp(i \cdot \varphi_0), \quad (3.2.1)$$

avec :

$$\kappa = \frac{(1 - r^2)r_{ex}}{r_m \left(\frac{2\mu \cdot L}{c} \right)}, \quad (3.2.2)$$

et :

$$\tau = \frac{2L_{ex}}{c}, \quad \varphi_0 = 2\pi \cdot \nu \cdot \tau + \varphi_{ex}, \quad (3.2.3)$$

où φ_{ex} est un terme de phase constant ajouté lors de la réflexion sur le miroir distant.

En réitérant le même traitement qu'en 3.1, on retrouve une nouvelle largeur d'émission du laser donnée par :

$$\Delta v' = \Delta v \cdot \left(1 + \kappa \cdot \tau \sqrt{1 + \alpha_H^2} \cdot \cos[\varphi_0 + a \tan(\alpha_H)] \right)^2 \quad (3.2.4)$$

avec Δv donné par (3.1.17). Ce nouvel élargissement dépend du terme de phase contenu dans le cosinus. Un retour optique peut être bénéfique (rétrécissement de la largeur d'émission, cosinus négatif) ou néfaste (élargissement, cosinus positif). Mais, en règle générale, un retour optique dû à un élément du montage est tout sauf maîtrisé, et les chances de dégrader la pureté spectrale de l'émission sont grandes. Nous verrons plus loin l'utilisation de cette propriété pour améliorer les spécifications des diodes laser.

Le retour optique a également un effet variable sur le bruit d'intensité qui dépend de L_{ex} [34]. Il apparaît que si

$$\frac{2\pi}{\tau} < \Omega_R, \quad (3.2.5)$$

le spectre de bruit se trouve atténué, en revanche, la condition complémentaire introduit une dégradation. D'autre part Henry et al. [35] rapporte l'explication d'instabilité d'émission que le traitement petits signaux ne décrit pas. Un traitement non linéaire montre que ces instabilités sont dues au désaccord entre la phase du champ et la cavité qui le contient, sous l'influence du retour optique.

Pour montrer l'influence d'un retour optique dans la diode laser, nous avons expérimentalement enregistré les franges du FPS, alors que la fréquence de la diode était balayée en courant, dans deux cas : tout d'abord, nous avons fait un enregistrement de référence dans des conditions normales, c'est à dire sans retour optique. Puis, nous avons réitéré l'opération en incluant volontairement dans le faisceau issu de la diode une lame partiellement réfléchissante, créant ainsi un retour volontaire très important (25%). Ces résultats sont représentés sur la figure 3.2.1. L'influence du retour est alors manifeste. Nous avons vu que l'aspect des franges du FPS, particulièrement leur finesse, est une image du spectre d'émission de la diode. On constate sur la figure 3.2.1, que les franges en présence de retour optique sont altérées et élargies, conformément à ce que rapporte Harward et Hoell [36].

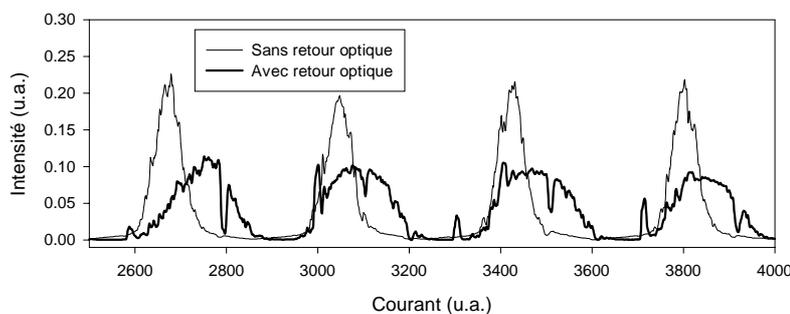


Figure 3.2.1
Aspect des franges du FPS en l'absence et en présence de retour optique.

3.3. Vieillessement

Les diodes laser sont des composants subissant de fortes contraintes. Les densités de courant injecté sont de quelques dizaines de kilo - ampères par centimètre carré. Ces fortes densités de courant entraînent de possibles contraintes et gradient de température dans la zone active susceptible de promouvoir l'apparition de défauts de structures. Localement ces défauts sont des dislocations dans la structure de la zone active occasionnant une perte drastique d'efficacité radiative [25]. Un grand soin dans la réalisation du wafer par épitaxie est nécessaire, une dislocation déjà présente pouvant faire office de germe.

Les diodes utilisées ici fonctionnent à la température de l'azote liquide. Les cycles thermiques sont apparus être fortement contre-indiqués pour augmenter le temps de vie d'un composant (1 cycle thermique signifie que la diode passe de 77 K à l'ambiante puis de l'ambiante à 77 K). Sur l'ancienne génération de diodes à sels de plomb (celles fonctionnant à 30 – 50 K) ces cycles ont engendré une hausse progressive du courant seuil jusqu'à l'inutilité complète du composant. Sur les diodes actuellement utilisées, nous avons tenté de limiter ce nombre de cycles. Les composants n'en ont subi que deux ou trois, et l'effet sur le courant seuil n'est actuellement pas probant ; des variations de $\pm 5\%$ ont été observées.

D'une manière générale le courant seuil des composants augmente avec le temps d'utilisation, traduisant une baisse du rendement électron-photon. L'origine de cette hausse de courant seuil est liée, dans les géométries à confinement de porteurs, à l'apparition de défauts dans les structures de confinement. Cette perte d'efficacité se traduit par une augmentation des courants de fuite (courant injecté sortant de la zone active) et donc le rendement électron-photon baisse. Mizuichi et al. [37] ont observé de tels défauts dans les jonctions de confinement, soit une destruction de la jonction abrupte, soit un piégeage de porteurs.

Les cycles thermiques génèrent un autre phénomène très gênant. Nous avons observé que tous les points de fonctionnement du composant changent lors d'un cycle. Il faut alors refaire une complète caractérisation du composant et une nouvelle cartographie de modes.

Un autre phénomène est possible, la destruction des facettes de la diode à la suite d'une puissance du rayonnement de sortie trop importante. Mais ceci n'arrive jamais dans le cas des diodes à sels de plomb car les puissances disponibles restent modestes.

4. Evolutions – perspectives

Les diodes laser à sels de plomb sont un outil précieux et puissant pour les applications spectroscopiques dans l'infrarouge moyen. Elles présentent cependant des limites qu'il est intéressant de repousser. Augmenter leur puissance, affiner leur spectre d'émission, réduire l'émission multimode, et étendre les zones continûment accordables participent à l'amélioration du composant.

4.1. cavité externe

Créer une cavité externe à la diode laser revient à créer un retour optique volontaire et maîtrisé dans le milieu amplificateur du composant. Ici, contrairement à ce qui est exposé au paragraphe 3.2, le retour doit être bénéfique à la qualité de l'émission.

Un retour optique contrôlé, pour certaines valeurs de phase du champ électrique réinjecté [38] permet une nette diminution du bruit de phase et par suite, accroît la pureté spectrale de l'émission [39], paramètre important car constitutif de la résolution d'un spectromètre à diode laser. Une telle technique peut être améliorée via un contrôle actif du miroir externe par un transducteur piézo-électrique.

L'application d'un traitement anti-réfléchissant sur l'une des faces de la diode laser [40] augmente le couplage du rayonnement et de la cavité étendue et ainsi assure une meilleure efficacité du système.

Une autre application utile de ce type de système est d'augmenter la gamme d'accord en fréquence du composant, en remplaçant le miroir externe par un réseau. En contrôlant simultanément le réseau et, par exemple, le courant d'injection dans la diode, de plus larges zones d'accord monomode peuvent être obtenues [41].

4.2. Diode à réseau de Bragg intégré

Pour un laser idéal, introduire des pertes sélectives au sein du milieu amplificateur, où au niveau des miroirs permet de favoriser un mode d'émission, d'éviter l'émission multimodale. Cette notion, transposée aux lasers à semi-conducteurs a donné naissance aux diodes laser à réflecteurs de Bragg (DBR) et à contre réaction répartie (DFB). Ces composants s'appuient sur l'implantation d'un réseau de Bragg au sein du composant privilégiant ainsi le mode qui s'y accorde. La figure 4.2.1 représente schématiquement ces deux types de composants. La zone active est figurée en gris foncé, à gauche il s'agit de la configuration DBR, à droite DFB.

Soit Λ le pas (période spatiale) du réseau de Bragg implanté. En première approximation une telle situation peut se décrire par une modulation périodique de la permittivité relative de la zone active, par exemple dans le cas d'un réseau en sinus :

$$\varepsilon = \varepsilon_M(x) \cdot \sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda} \cdot z\right). \quad (4.2.1)$$

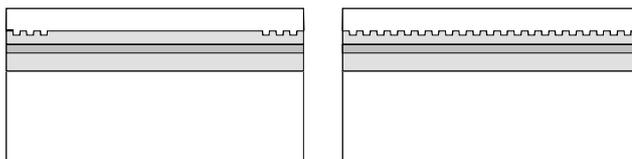


Figure 4.2.1
Représentation schématique d'une diode DBR (à gauche) et DFB (à droite).

On en déduit alors la forme du vecteur polarisation dans le milieu, et l'on résout les équations de Maxwell dans le milieu amplificateur [42]. Il apparaît alors qu'une structure de Bragg

introduit un couplage des modes de la cavité tendant à privilégier celui qui s'accorde sur le réseau. De plus, au voisinage de l'accord, l'espacement en longueur d'onde entre deux modes permis est donné par :

$$\Delta\lambda = 2 \cdot \mu \frac{\Lambda^2}{L}, \quad (4.2.2)$$

soit typiquement $\Delta\sigma = 100 \text{ cm}^{-1}$, soit 30 fois plus qu'une diode laser Fabry-Pérot plan classique.

Cependant, un compromis doit être trouvé pour de telles structures. Il y a intérêt à approcher au maximum le réseau de Bragg de la zone active afin d'assurer un fort couplage, ce qui augmente la largeur spectrale d'efficacité du système, mais ceci tend à accroître dramatiquement les pertes par diffraction sur les facettes du réseau.

De telles structures, en sels de plomb et émettant dans l'infrarouge moyen, ont été étudiées expérimentalement par, notamment, Shani et al. [43] et Fach et al. [44]. Les résultats sont impressionnants et l'on regrette que ces composants ne soient pas disponibles. Pour une géométrie DBR des accords continus de 10 cm^{-1} en régime monomode avec des puissances allant jusqu'à 1mW à température de l'azote liquide ont été obtenus. Les géométries de type DFB sont moins intéressantes pour nos applications, dans la mesure où elles ne permettent pas d'obtenir des composants très accordables.

4.3. Laser à cascade quantique

Une perspective des plus intéressantes dans le domaine des composants laser accordables est offerte par les diodes à cascade quantique (Quantum Cascade Laser : QCL) [45]. Ces lasers sont issus des travaux sur les puits quantiques et les super-réseaux, et des développements de l'ingénierie quantique.

Les processus d'émission laser de ces composants sont fondamentalement différents de ceux des diodes à hétérojonctions. Ce type de laser contrairement aux diodes laser, sont des composants unipolaires : ils ne mettent en jeu qu'un seul type de porteurs.

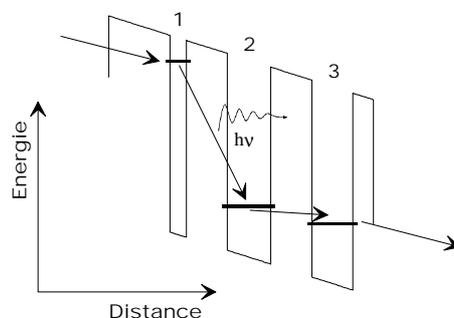


Figure 4.3.1
Diagramme d'énergie (bande de conduction) de l'élément de base

Les transitions électroniques sont intersousbandes, elles ne mettent pas en jeu des paires électron-trou. La structure énergétique de l'élément de base des lasers à cascade quantique est représentée sur la figure 4.3.1. Une telle structure est créée par ingénierie quantique, c'est à dire un empilement contrôlé de couches épitaxiales de divers matériaux semi-conducteurs.

Les niveaux d'énergie impliqués dans les phénomènes de désexcitation sont alors contrôlés par les épaisseurs de couches et ne dépendent pas du matériau.

La figure 4.3.1 représente un électron injecté sur un niveau élevé du premier puits. Ensuite celui-ci se désexcite, en émettant un photon, sur un niveau bas du deuxième puits, et repasse rapidement dans le troisième puits de la structure. L'électron passe alors dans une nouvelle zone d'injection et le processus se renouvelle dans une nouvelle structure. Si le composant comporte n structures, l'électron passe ainsi en cascade de l'une à l'autre en émettant n photons.

Ce type de composant est très prometteur. D'une part la gamme de longueur d'onde qu'il est possible de couvrir est très large, de $4\mu\text{m}$ à $100\mu\text{m}$, d'autre part vu qu'un électron engendre une multitude de photons, les puissances émises sont très importantes, plus d'un watt à une température de 100 K en régime pulsé [46]. De plus, les transitions intersousbandes étant très peu sensibles aux recombinaisons Auger [42], ces lasers peuvent fonctionner à température ambiante (en régime pulsé). En régime continu, à la température de l'azote liquide, les performances sont moins spectaculaires mais restent excellentes (200 mW par faces à 110 K) [47]. Tout dernièrement, une émission monomode continue de 17 mW de puissance à $9.1\mu\text{m}$ a été obtenue à température ambiante (19°C) [48].

Nous avons eu l'occasion d'aller expérimenter ce type de laser à l'Institut de Physique de Neuchâtel. Nous avons testé des lasers DFB ayant une cavité de 1.5 mm, à la température de l'azote liquide. La figure 4.3.2 montre un enregistrement expérimental de la puissance émise par le composant en fonction du courant injecté, ce laser émettait autour de 1090cm^{-1} .

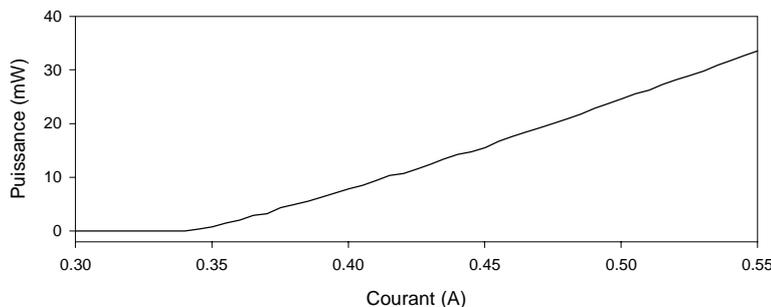


Figure 4.3.2
Puissance émise par un laser QC en fonction du courant injecté.

En terme de puissance les performances sont exceptionnelles comparées aux lasers à sels de plomb, à un courant de $1.6 I_{th}$ le laser émet 33 mW !

L'émission monomode est largement assurée par l'inscription d'un réseau de Bragg, en revanche les taux d'accord sont moindres. Que l'on accorde la fréquence par le biais du courant ou de la température, le processus physique reste le même et est purement thermique : il s'agit de variation de l'indice effectif de la cavité avec la température de la zone active. Les taux d'accord typiques que nous avons mesurés sont de l'ordre de $-3\text{cm}^{-1}/\text{A}$ pour l'accord en courant, et de $-0.06\text{cm}^{-1}/\text{K}$ pour l'accord en température.

4.4. Autres pistes

Pour finir, citons quelques types de laser en développement, qui pourraient devenir, dans un proche futur, d'importantes sources laser accordables émettant dans la fenêtre atmosphérique 8-12 μm :

- Les lasers à multiples puits quantiques (MQW), actuellement ils fonctionnent à 210 K en régime continu, mais sont pompés optiquement par un laser YAG. La longueur d'onde émise est de 6.1 μm [49].
- Les lasers à cavité verticale émettant par la surface (VCSEL) fonctionnent actuellement à 290 K, mais en régime pulsé à 4.5 μm [50].
- Enfin, les lasers à cascade interbande émettent à 3.9 μm en pulsé à 217 K [51].

5. Conclusion

Détailler le fonctionnement et les caractéristiques des lasers à semi-conducteurs nous a paru rigoureusement indispensable. Nous allons utiliser ces composants comme oscillateur local d'un radiomètre hétérodyne, or pour un tel instrument les caractéristiques de l'oscillateur local sont l'élément primordial caractérisant le radiomètre.

Comprendre les processus d'accord revient à se placer dans les conditions expérimentales optimales.

Comme nous le verrons plus loin, connaître les limites et bruits des diodes laser revient à comprendre les limites et bruits du radiomètre hétérodyne.

Il apparaît que ces composants sont très loin d'être la panacée en terme de laser. Au contraire, ils collectionneraient plutôt les défauts. Mais l'avantage de l'accordabilité en fréquence les rend indispensables pour les applications spectroscopiques.

Il apparaît également que la maîtrise complète de fabrication de ces composants n'est encore pas réalisé. Les fabricants sont rares, et la production d'un composant ayant de bonnes qualités relève de l'exception. A décharge, il faut préciser cependant que les spécifications que l'on recherche pour utiliser le laser à semi-conducteurs comme oscillateur local sont drastiques. Ceci sera précisé ultérieurement.

Pour les applications requérant d'excellentes qualités d'émission, il nous semble que les diodes à cascade quantique vont supplanter les diodes à sels de plomb dans la gamme du moyen infrarouge. Cependant, quand une large gamme d'accord en fréquence est recherchée le laser à sels de plomb est très indiqué.

6. Références

- 1 N. G. Basov, O. N. Krokhin, et Y. M. Popov, Production of negative temperature states in p-n junctions of degenerate semi-conductors, Soviet Physics – JETP, **13**, 6; 1320-1321, 1961
- 2 M. B. Panish, Heterostructure Injection Lasers, Proceedings of the IEEE, **64**, 10, 1512-1540, 1976
- 3 H. Kroemer, A proposed class of heterojunction injection lasers, Proceedings of the IEEE, **51**, 12, 1782-1783, 1963
- 4 C. Kittel, Physique de l'état solide, Dunod, Paris, 1998
- 5 Fundamentals of Photonics, B. E. A. Saleh et M.C. Teich, John Wiley & Sons, New York, 1991
- 6 H. Mathieu, Physique des semi-conducteurs et des composants électroniques, Masson, Paris, 1987
- 7 M. G. A. Bernard et G. Duraffourg, Laser conditions in semiconductors, Physica Status Solidi, **1**, 7, 699-703, 1961
- 8 J. N. Besson, W. Paul, et A. R. Calawa, Tuning of PbSe Lasers by hydrostatic pressure from 8 to 12 μm , Physical Review, **173**, 699-713, 1968
- 9 J. F. Butler, Magnetoemission experiments in $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$, Solid State Communications, **7**, 909-912, 1969
- 10 I. Melngailis et A. Mooradian, Laser Applications to Optics and Spectroscopy, Addison-Wesley, Reading, 1975
- 11 D. R. Scifres, C. Lindström, R. D. Burnham, W. Streifer, et T. L. Paoli, Phase-locked (GaAl)As laser diode emitting 2.6 W CW from a single mirror, electronics letters, **19**, 5, 169-171, 1983
- 12 E. E. Siegman, Lasers, University Science Book, Sausalito, 1986
- 13 J. O. Dimmock, I. Melngailis et A. J. Strauss, Band structure and laser action in $\text{Pb}_x\text{Sn}_{1-x}\text{Te}$, Physical Review Letters, **16**, 26, 1193-1196, 1966
- 14 A. H. Gnauck, B. L. Kasper, R. A. Linke, R. W. Dawson, T. L. Koch, T. J. Bridges, E. G. Burkhardt, R. T. Yen, D. P. Wilt, J. C. Campbell, K. Ciemieki Nelson et L. G. Cohen, 4 Gbit/s transmission over 103 km of optical fiber using a novel electronic multiplexer/Demultiplexer, Journal of Lightwave Technology, **LT-3**, 5, 1032-1035, 1985
- 15 H. Nelson, Epitaxial growth from the liquid state and its application to the fabrication of tunnel and laser diodes, RCA Review, **24**, 603-615, 1963

- 16 J. J. Tietjen et J. A. Amick, The preparation and properties of vapor deposited epitaxial GaAsP using Arsine and Phosphine, *Journal of Electrochemical Society*, **113**, 7, 724-728, 1966
- 17 J. R. Arthur, Interaction of Ga and As₂ molecular beams with GaAs surfaces, *Journal of Applied Physics*, **39**, 8, 4032-4034, 1968
- 18 M. Simpfendorfer, Diplomarbeit, Université de Fribourg, 1995
- 19 Z. Feit, D. Kostyk, R. J. Woods et P. Mak, Single mode molecular beam epitaxy grown PbEuSeTe/PbTe buried heterostructure diode lasers for CO₂ high – resolution spectroscopy, *Applied Physics Letters*, **58**, 4, 343-345, 1991
- 20 M. Agne, A. Lambrecht, U. Schießl et M. Tacke, Guided modes and far field patterns of lead chalcogenide buried heterostructure laser diodes, *Infrared Physics & Technology*, **35**, 1, 47-58, 1994
- 21 D. Botez, Analytical approximation of the radiation confinement factor for the TE₀ mode of a double heterojunction laser, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **14**, 4, 230-232, 1978
- 22 H. Yonesu, I. Sakuma, K. Kobayashi, T. Kamejima, M. Ueno et Y. Nannichi, A GaAs-Al_xGa_{1-x}As double heterostructure planar stripe laser, *Japanese Journal of Applied Physics*, **12**, 10, 1585-1592, 1973
- 23 Y. Shani, A. Hardy, E. Kapon et A. Katzir, The far field of PbSnTe injection lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **20**, 11, 1267-1270, 1984
- 24 M. Agne, A. Lambrecht, U. Schießl et M. Tacke, Guided modes and far-field patterns of lead chalcogenide buried heterostructure laser diodes, *Infrared Physics & Technology*, **35**, 1, 47-58, 1994
- 25 G. P. Agrawal et N. K. Dutta, Long wavelength semiconductor lasers, Van Nostrand Reinhold, New York, 1986
- 26 M. Lax, Classical noise IV: Langevin methods, *Review of Modern Physics*, **38**, 3, 541-566, 1966
- 27 K. Vahala, A. Yariv, Semiclassical theory of noise in semiconductor lasers, *IEEE journal of Quantum Electronics*, **19**, 6, 1096-1109, 1983
- 28 I. Joindot, Bruit relatif d'intensité des lasers à semiconducteur, Thèse, Université des Sciences et Techniques du Languedoc, 1990
- 29 C. H. Henry, Theory of linewidth of semiconductor lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **18**, 2, 259-264, 1982
- 30 K. Peterman, Laser diode modulation and noise, Kluwer Academic Publishers, London, 1991

-
- 31 M. Ohtsu et Y. Teramachi, Analyses of mode partition and mode hopping in semiconductor lasers, *Journal of Quantum Electronics*, **25**, 1, 31-38, 1989
- 32 M. Ohtsu, Y. Teramachi, Y. Otsuka, et A. Osaki, Analyses of mode hopping phenomena in an AlGaAs laser, *Journal of Quantum Electronics*, **22**, 4, 535-543, 1986
- 33 G. P. Agrawal, Line narrowing in a single mode injection laser due to external optical feedback, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **20**, 5, 468-471, 1984
- 34 P. Spano, S. Piazzolla, M. Tamburrini, Theory of noise in semiconductor lasers in the presence of optical feedback, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **20**, 4, 350-357, 1984
- 35 C.H. Henry, R.F. Kazarinov, Instability of semiconductor lasers due to optical feedback from distant reflectors, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **22**, 2, 294-301, 1986
- 36 C.N. Harward, J.M. Hoell, Optical feedback effects on the performance of $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ semiconductor lasers, *Applied Optics*, **18**, 23, 3978-3983, 1979
- 37 K. I. Mizuichi, M. Sawai, S. Tudoroki, S. Tsuji, M. Hirao et M. Nakamura, Reliability of InGaAsP/InP buried heterostructure 1.3 μm lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **19**, 8, 1294-1301, 1983
- 38 D. R. Hjelme and A. R. Mickelson, On the theory of external cavity operated single-mode semiconductor lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **23**, 6, 1000-1004, 1987
- 39 M. Murtz, M. Schaefer, S. König, W. Urban, Development of a line-narrowed and frequency-stabilized TDL system for sub-Doppler molecular spectroscopy, *Infrared Physics and Technology*, **37**, 109-116, 1996
- 40 W. Jianglin, Z. Hanyi, W. Qun, Z. Bingkun, Single-mode characteristics of short coupled-cavity semiconductor lasers, *Journal of Quantum Electronics*, **23**, 6, 1005-1009, 1987
- 41 T. Beyer, M. Tacke, A. Lambrecht, Monomode emission with external cavity lasers in the mid-infrared region, *Infrared physics & technology*, **39**, 283-286, 1998
- 42 E. Rosencher et B. Vinter, *Optoélectronique*, Masson, 1998
- 43 Y. Shani, A. Katzir, M. Tacke et H. M. Preier, $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}/\text{Pb}_{1-x-y}\text{Eu}_y\text{Sn}_x\text{Se}$ corrugated diode lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **25**, 8, 1828-1844, 1989
- 44 M. A. Fach, H. Böttner, K. H. Schlereth et M. Tacke, Embossed grating lead chalcogenide buried waveguide distributed feedback lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **30**, 2, 235-240, 1994
- 45 J. Faist, F. Capasso, D.L. Sivco, C. Sirtori, A.L. Hutchinson, A.Y. Cho, Quantum Cascade Laser, *Science*, **264**, 553-556, 1994

46 C. Gmachl, A. Tredicucci, F. Capasso, A.L. Hutchinson, D.L. Sivco, J.L. Baillargeon, A.Y. Cho, *Applied Physics Letters*, **72**, 24, 3130-3132, 1998

47 J. Faist, A. Tredicucci, F. Capasso, C. Sirtori, D.L. Sivco, J.N. Baillargeon, A.L. Hutchinson, A.Y. Cho, *High power continuous wave quantum cascade lasers*, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **34**, 2, 336-343, 1998

48 M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini et H. Melchior, *Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature*, *Science*, **295**, 301-305, 2002

49 W. W. Bewley, C. L. Felix, I. Vurgaftman, D. W. Stokes, E. H. Aifer, L. J. Olafsen, J. R. Meyer, M. J. Yang, B. V. Shanabrook, H. Lee, R. U. Martinelli, A. R. Sugg, *High temperature continuous wave 3-6.1 μm W lasers with diamond pressure bond heat sinking*, *Applied Physics Letters*, **74**, 8, 1075-1077, 1999

50 Z. Shi, G. Xu, P. J. McCann, X. M. Fang, N. Dai, C. L. Felix, W. W. Bewley, I. Vurgaftman, J. R. Meyer, *IV-VI compound midinfrared high reflectivity mirrors and vertical cavity surface emitting lasers grown by molecular beam epitaxy*, *Applied Physics Letters*, **76**, 25, 3688-3690, 2000

51 R. Q. Yang, J. D. Bruno, J. L. Bradshaw, J. T. Pham, D. E. Wortman, *Interband cascade lasers: progress and challenges*, *Physica E*, **7**, 69-75, 2000

Symboles utilisés dans la 2^{ème} partie

d	Epaisseur de la zone active
E	Energie d'un porteur de charge ou champ électrique
E_0	Amplitude du champ électromagnétique
E_1	Energie d'un trou de la bande de valence
E_2	Energie d'un électron de la bande de conduction
E_c	Energie du sommet de la bande de conduction
E_f	Energie de Fermi
E_{fc}	Energie de Fermi dans la bande de conduction
E_{fv}	Energie de Fermi dans la bande de valence
E_g	Energie de bande interdite du semi-conducteur
E_r	Champ électromagnétique dans la cavité
E_v	Energie du sommet de la bande de valence
$f(E)$	Fonction de Fermi
$f_a(E)$	Probabilité d'absorption
$f_c(E)$	Fonction de Fermi dans la bande de conduction
$f_e(E)$	Probabilité d'émission
$f_g(v)$	Facteur d'inversion de Fermi
$F_n(t)$	Source de Langevin pour les électrons
$F_p(t)$	Source de Langevin pour les photons
$f_v(E)$	Fonction de Fermi dans la bande de valence
G	Taux de génération des paires électron-trou
$g(v)$	Forme de raie normalisée d'une transition
j	Densité de courant
k	Module du vecteur d'onde électronique
k_0	Module du vecteur d'onde optique
L	Longueur de la cavité
L_{ex}	Longueur de la cavité externe introduite par un retour optique
m_c	Masse des électrons de la bande de conduction
m_r	Masse réduite d'une paire électron-trou
m_v	Masse d'un trou de la bande de valence
n	Concentration d'électron
n_0	Concentration d'électron à l'équilibre
n_i	Concentration d'électron du semi-conducteur intrinsèque
n_{st}	Densité d'électron en régime stationnaire
P	Module du vecteur polarisation
p	Concentration de trou
$P(t)$	Densité de photon au temps t
p_0	Concentration de trou à l'équilibre
$P_{sp}(v)$	Probabilité d'émission spontanée d'un photon d'énergie $h\nu$ dans un système à 2 niveaux
p_{st}	Densité de photon en régime stationnaire
P_{Total}	Puissance totale émise par le laser
q	Entier naturel
R	Facteur de réflexion d'un miroir
$r_{abs}(v)$	Taux d'absorption

RIN	Bruit d'intensité relatif
r_m	Coefficient de réflexion d'un miroir
R_n	Taux de recombinaison des porteurs
R_{nr}	Taux de recombinaison non radiative
$r_{sp}(v)$	Taux d'émission spontanée
$R_{sp}(v)$	Taux d'émission spontanée dans un mode optique donné
\bar{R}_{sp}	Taux d'émission spontanée tous modes
$r_{st}(v)$	Taux d'émission stimulée
$S_p(\omega)$	Densité spectrale de puissance des fluctuations d'intensité
T	Température
t_{sp}	Temps de vie d'un électron du niveau excité d'un système à deux niveaux
w	Largeur de la zone active
$W_i(v)$	Probabilité d'émission stimulée d'un photon d'énergie $h\nu$ dans un système à deux niveaux
z	Variable d'espace dans la direction de propagation
ω	Pulsation de l'onde
ξ	Coefficient de couplage entre modes
$\varphi(v)$	Déphasage
φ_{ex}	Déphase dû à un retour optique
Λ	Période spatiale d'un réseau de Bragg
Ω_R	Pulsation de résonance du système électron-photon
α	Coefficient de pertes optiques
α_H	Facteur d'élargissement de Henry
α_T	Coefficient de pertes totales
β_R	Contante de relaxation du système électron-photon
χ	Susceptibilité diélectrique de la zone active
χ_0	Susceptibilité de la zone active en l'absence d'injection
χ_p	Susceptibilité de la zone active due à l'injection
Δn	Variation de la concentration d'électron
Δp	Variation de la concentration de trou
δn	Perturbation petits signaux de la densité d'électron
δP	Perturbation petits signaux de la densité de photon
ε	Permittivité de la zone active
$\varepsilon_M(x)$	Permittivité transversale dans une DFB ou une DBR
ϕ	Flux de photon
Γ	Facteur de confinement optique
$\gamma_0(v)$	Coefficient de gain hors saturation
γ_a	Taux de recombinaison des paires électron-trou par effet Auger
γ_{eff}	Gain effectif hors saturation
γ_n	Taux de recombinaison des paires électron-trou
γ_{nr}	Taux de recombinaison des paires électron-trou par processus non-radiatif
γ_{sp}	Taux de recombinaison des paires électron-trou par émission spontanée
κ	Coefficient de couplage d'un retour optique
λ	Longueur d'onde d'une radiation
μ	Indice optique effectif de la zone active
μ'	Indice optique des matériaux autour de la zone active
ν	Fréquence d'une radiation
$\rho(k)$	Densité d'états des porteurs

$\rho_c(k)$	Densité d'états des électrons de la bande de conduction
$\rho_v(k)$	Densité d'états des trous de la bande de valence
$\sigma(v)$	Section efficace de transition entre deux niveaux atomiques discrets
σ_q	Nombre d'onde du mode q d'une cavité
σ_{za}	Résistivité de la zone active
τ	Temps de vie des paires électron-trou injectées
τ_{nr}	Temps de vie des paires électron-trou injectées, se désexcitant non-radiativement
τ_r	Temps de vie des paires électron-trou injectées, se désexcitant radiativement

BRÛLEUR & FLAMMES

1. Introduction

Quelle source choisir pour tester le radiomètre hétérodyne ? Il nous faut une source maîtrisable pour tester le prototype. Cependant, afin que celle-ci soit peu éloignée d'une source réelle, et pour montrer la pertinence de la détection hétérodyne appliquée aux diagnostics de combustion, nous avons choisi de concevoir et de réaliser un brûleur spécifique.

Cette partie exposera les choix sous-jacents à la conception du système de combustion. Dans un premier temps on exposera quelques éléments théoriques sur les flammes, et comme corollaire la réalisation d'un brûleur à flamme plate pré-mélangée.

Enfin, cette source particulière que constitue le brûleur sera caractérisée par plusieurs méthodes optiques dont la spectroscopie d'absorption par diode laser accordable.

2. Les flammes

Communément, on appelle réaction de combustion une réaction chimique impliquant l'oxydation du carbone ou de l'hydrogène contenu dans les hydrocarbures. Plus généralement une réaction d'oxydation traduit un processus de transfert d'électrons entre un combustible qui est un corps cédant des électrons et un comburant qui les accepte. La combustion peut être lente (par exemple la fermentation) ou bien vive. Ce dernier cas se caractérise par la présence d'une flamme : c'est un plasma délimitant l'espace où ont lieu les réactions. Ce phénomène est le plus souvent visible du fait de la présence de molécules ionisées et du caractère très exothermique des réactions : il y a effectivement libération d'énergie puisque des molécules se dissocient (comburants, combustibles) pour former des espèces plus stables (produits de la réaction).

2.1. Types de flamme

La classification des flammes dépend du type de mise en contact comburant – combustible, et du type d'écoulement de ces deux composés.

2.1.1. *Flammes à diffusion*

Pour ce type de flamme comburants et combustibles sont séparés, et ne se rencontrent, par diffusion qu'au niveau du front de réaction. C'est typiquement le cas de la combustion du

charbon ou bien de la bougie. L'avantage de ce type de flamme est qu'elles engendrent beaucoup de rayonnement, et que le front de réaction peut prendre des dimensions très importantes. D'autre part, le retour de flamme est impossible (nous verrons ce phénomène par la suite). En revanche, ces flammes ont une température peu élevée, et produisent des dépôts de carbone, les particules de carbone chaud forment d'ailleurs le panache jaune caractéristique de ces flammes. Ce type de flamme est particulièrement indiqué dans des applications industrielles, mais qu'elles soient laminaires ou turbulentes, elles conviennent peu à la réalisation d'une source stable de laboratoire.

2.1.2. *Flammes aérées*

Dans ce cas, combustibles et comburants sont mélangés préalablement, et la réaction est initiée dans ce fluide de mélange. Ces flammes sont aussi appelées flammes de mélange préalable. Ici, les gaz frais arrivent avec un haut potentiel chimique qui décroît rapidement dans la zone de combustion. Dans ce type de flamme le front de réaction est très localisé, la source de chaleur est ainsi plus concentrée, et par suite, les températures atteintes sont plus grandes que pour les flammes à diffusion. Quand le mélange est correctement réglé, ces flammes n'occasionnent aucun dépôt de carbone dans le système de combustion. Cependant l'expérimentation de ce type de flamme présente des risques de soufflage ou de retour de flamme.

Ces flammes peuvent être turbulentes ou laminaires, étant donné notre objectif, qui est la création d'une source stable, le type le plus indiqué est la flamme aérée laminaire. Dans la suite, nous ne nous intéresserons qu'à ces flammes.

2.2. Aspects cinétiques

2.2.1. *Allumage*

La réaction de combustion, avant sa propagation doit être initiée. Dans certaines réactions non maîtrisées, il arrive que le départ de réaction soit spontané ; ici nous parlerons d'allumage maîtrisé.

Tout mélange combustible comburant est caractérisé par une température d'allumage spontanée. Par exemple un mélange stœchiométrique de méthane et d'oxygène est parfaitement stable dans les conditions standard de température et de pression ; porté à 540 °C la réaction s'amorce. Augmenter la température revient à augmenter l'agitation moléculaire. Au-delà d'un seuil, les collisions intermoléculaires seront suffisamment violentes pour dissocier les molécules et générer les centres actifs, germes de la réaction en chaîne. Ainsi une méthode d'allumage possible est d'augmenter localement la température du mélange : par un filament chauffant on apporte de la chaleur au mélange (fonctionne mal pour des flux de gaz rapides) ou par l'approche d'une flamme annexe (veilleuse). Cette dernière méthode est

contre-indiquée dans le cas où la réaction se produit dans une enceinte fermée, ce qui sera notre cas.

Une autre méthode d'allumage consiste à dissocier les molécules par un autre biais que le procédé thermique. C'est le cas de l'étincelle. Dans ce cas on apporte au mélange une énergie :

$$E_{\text{et}} = \frac{1}{2} C \cdot U_{\text{et}}^2 \quad (2.2.1)$$

où C est la capacité du condensateur électrode – mélange - électrode, et U_{et} la différence de potentiel aux bornes des électrodes d'allumage. Typiquement pour les mélanges hydrocarbure-oxygène une énergie de l'ordre de 0.002 millijoule est nécessaire : un allume-gaz domestique est approprié.

Pour information, signalons qu'il existe d'autres méthodes plus exotiques : déclencher une onde de choc dans le mélange ou focaliser un laser puissant pour créer un claquage.

2.2.2. Propagation

Une flamme est un phénomène qui se propage. Le front de flamme, qui est l'interface entre la zone de gaz frais et la zone de réaction, est animé d'une vitesse. La propagation a pour origine l'auto-entretien de la réaction de combustion. Pour être stable, une flamme doit être nourrie sans cesse de gaz frais ; autrement dit pour que la réaction de combustion s'auto-entretienne un apport continu de réactifs est nécessaire.

Il existe deux manières simples d'expliquer la propagation. La première s'appuie sur la notion de transfert de chaleur (Le Chatelier). Une fois la réaction activée sur un petit volume, ce volume est porté à la température de combustion qui est largement supérieure à la température d'allumage spontané du mélange. Ce volume porté à haute température va échauffer les gaz frais d'alentour par transferts thermiques. Les gaz frais vont être ainsi portés à leur température d'allumage spontané et réagir de manière très exothermique ce qui va échauffer le volume de gaz frais immédiatement voisins, etc....

La seconde manière repose sur la diffusion de centres actifs (Semenov). Lors de l'allumage, des centres actifs sont créés dans un petit volume, ces espèces sont très fugaces. La réaction en chaîne de combustion ne s'établira que si, lors de leur diffusion, la probabilité de rencontre de ces centres avec d'autres molécules réactives est supérieure à leur probabilité de disparition. Ceci explique notamment l'existence de limites supérieures et inférieures d'inflammabilité des mélanges, et l'influence sur ces limites de la présence d'un gaz inerte dans le mélange. Par exemple, ces limites pour le méthane dans l'oxygène sont de 5% - 60% ; elles tombent à 5% - 15% pour le méthane dans l'air [1].

Il est probable que les deux phénomènes se combinent. La propagation dépend des paramètres physico-chimiques du mélange réactif : taux de réaction, énergie d'activation, constantes thermophysiques, constantes de diffusion des espèces. Cette propagation se classe

en deux modes distincts, celui que l'on vient de voir est la déflagration, il existe en outre la détonation.

Ce mode de propagation n'est pas immédiat, il doit s'établir et intervient après que le front de flamme a accéléré en régime de déflagration. Cette fois la transmission de chaleur d'un volume en combustion au volume immédiatement voisin de gaz frais se fait par le biais d'une onde de choc. Au niveau du front de flamme, il existe également un front d'onde où température et pression varient de manière discontinue. L'onde de choc se propageant provoque une brusque compression des gaz frais qui les enflamme et ainsi de suite. La vitesse de propagation dépend du type de mélange et est généralement de quelques kilomètres par seconde. Nous avons expérimenté la détonation d'un mélange méthane/oxygène ; c'est un phénomène particulièrement impressionnant de part sa dangerosité. Finalement, nous avons préféré revenir à un mélange méthane/air qui lui n'est pas détonant.

2.2.3. Stabilisation

Nous venons de voir qu'une flamme se propage. Elle est animée d'une vitesse dans le référentiel lié aux molécules de gaz frais. Supposons que nous avons un flux uniforme de gaz frais (pré-mélangés) dans un tube, caractérisé par un vecteur vitesse \vec{v}_i , vitesse initiale de ce flux loin de la zone de réaction, par rapport au tube auquel est lié notre référentiel de travail. Dans ce tube une flamme est amorcée et se propage à la vitesse \vec{v}_F . On suppose que la flamme n'interagit pas avec le tube. Après réaction, les gaz brûlés s'échappent à une vitesse \vec{v} . Ceci est représenté sur la figure 2.2.1.

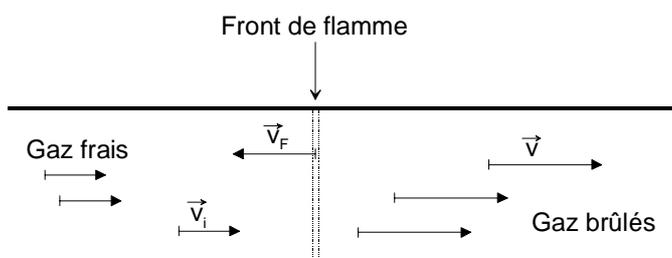


Figure 2.2.1
Propagation d'un front de flamme dans un tube

Il y a alors stabilisation de la flamme quand le module de la vitesse des gaz frais est exactement le même que celui du front de flamme : la flamme est immobile par rapport au tube. Evidemment ceci est purement théorique, en pratique maintenir la vitesse des gaz frais avec suffisamment de précision est impossible.

Pour stabiliser de manière plus réaliste une flamme il existe l'effet de paroi. Une paroi présente deux actions sur la combustion : un effet de refroidissement et d'extraction d'énergie occasionnant un ralentissement du front de flamme au voisinage de la paroi, et un effet inhibiteur sur les centres actifs. Ceci permet d'accrocher la flamme, par exemple, sur l'extrémité de son brûleur ; c'est typiquement le cas d'un bec Bunsen. D'autre part, sans cet

effet, on aurait systématiquement retour de flamme le long d'une paroi, puisqu'il y existe une couche limite de vitesse nulle.

La flamme étant ainsi accrochée, les variations permises sur la vitesse des gaz frais sont plus larges, mais des limites subsistent. Partons d'une flamme stable sur un bec Bunsen et augmentons la vitesse des gaz frais. Pour une certaine vitesse, l'effet de paroi n'agit plus : la flamme est décollée et oscille très au-dessus du brûleur. Il s'agit d'une flamme aérienne très instable. Augmentons derechef la vitesse des gaz frais : la flamme s'élève encore et disparaît. C'est le soufflage. Maintenant, partant de la flamme stable, si nous diminuons la vitesse des gaz frais, la flamme pénètre dans le tube du brûleur et retourne ainsi jusqu'à l'alimentation : c'est le phénomène de retour de flamme, très dangereux, contre lequel tout système de combustion doit être protégé. Ces différents régimes de stabilité sont schématisés sur la figure 2.2.2.

On remarque ici, que la vitesse du front de flamme est un paramètre d'une importance capitale et sa connaissance est primordiale [2]. Nous verrons plus loin comment ce dernier varie avec différents paramètres physiques.

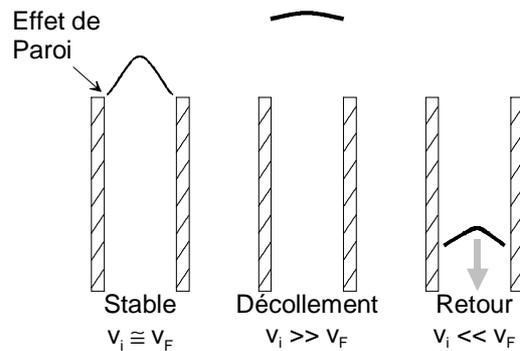


Figure 2.2.2
Les différents régimes de propagation d'une flamme dans un tube

2.2.4. Forme

La vitesse des gaz frais intervient également sur la forme que prend une flamme. La forme de flamme sera une image du profil de vitesse des gaz frais dans le tube du brûleur [3]. La vitesse du front de flamme est normale au front en tout point. La flamme étant stable, localement on a donc la condition, dite de Gouy :

$$v_F = v_i(r) \cdot \cos[\alpha_G(r)], \quad (2.2.2)$$

ou $\alpha_G(r)$ est l'angle entre $-\vec{v}_F$ et $\vec{v}_i(r)$ à la distance r de l'axe du tube, comme l'indique la figure 2.2.3 (implicitement nous avons supposé une symétrie de révolution). v_F est en première approximation une constante qui ne dépend que du type du mélange combustible/comburant. Ainsi on constate par (2.2.2) que la distribution de vitesse des gaz frais dans un tube brûleur détermine immédiatement la forme de flamme associée.

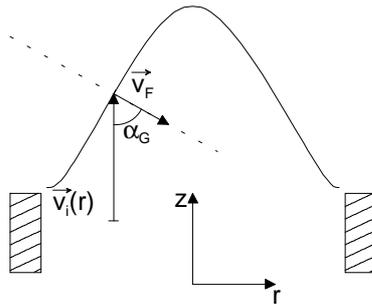


Figure 2.2.3
Illustration de la condition de Gouy

2.3. Paramètres Physiques

Les théories permettant de modéliser les flammes sont très complexes et constituent un large domaine d'étude [4]. Il n'est pas question ici de se lancer dans une si vaste investigation. Cependant nous donnerons dans ce qui suit quelques notions simples permettant de décrire qualitativement certains phénomènes de combustion.

2.3.1. Equations de conservation

La théorie cinétique des flammes se base sur un ensemble d'hypothèses [5] :

- Les gradients des variables macroscopiques décrivant la flamme sont suffisamment faibles, ainsi des variations significatives sur ces grandeurs interviennent sur des distances grandes devant le libre parcours moyen des molécules. Pour des flammes lentes, sans phénomène de détonation cette hypothèse est largement vérifiée.
- Les densités de gaz sont suffisamment faibles pour que seules les collisions binaires interviennent. Cette hypothèse est a fortiori valide pour des flammes telles que nous les verrons, à savoir les flammes basse pression.
- Les particules constituant les gaz subissent des collisions élastiques décrites dans le cadre de la mécanique classique.

Ainsi, nous pouvons introduire les équations de conservation qui gouvernent les phénomènes ayant cours dans les flammes [6]. Dans ce qui suit les grandeurs indicées i sont des grandeurs initiales, c'est à dire qu'elles caractérisent les gaz frais ; les grandeurs sans indice caractérisent les gaz brûlés. La première condition concerne l'invariance de la masse totale écrite dans le cas où la pression est fixée, ce qui est à peu près le cas en régime de déflagration :

$$\rho \cdot v = \rho_i \cdot v_i, \quad (2.3.1)$$

où ρ est la densité. L'équation de conservation suivante est celle de l'énergie, l'écriture unidimensionnelle est :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda_{th} \cdot \frac{\partial T}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (C_p \cdot T \cdot \rho \cdot v) + Q \cdot U = 0. \quad (2.3.2)$$

Dans cette équation les pertes de chaleur vers l'extérieur ont été négligées, ainsi l'équation de conservation de l'énergie n'est autre que l'équation du bilan thermique. Cette dernière

négligence reste grossière. $Q \cdot U$ est le terme source introduit par la réaction [$\text{W} \cdot \text{m}^{-3}$], U est la vitesse de réaction [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$], et Q l'énergie de réaction [$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$]. Le premier terme de l'équation caractérise l'effet de la conduction dans le milieu, le deuxième fait apparaître l'énergie apportée par le flux. Les variables λ_{th} , C_p , T sont respectivement la conductivité thermique du milieu, la chaleur spécifique à pression constante et la température.

Enfin, il y a la conservation massique par espèce j :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(D_j \cdot \frac{\partial n_j}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (n_j \cdot v) - N_j \cdot U = 0. \quad (2.3.3)$$

n_j est la concentration molaire de l'espèce j , D_j le coefficient de diffusion, et N_j la proportion de l'espèce j qui disparaît au cours de la réaction (coefficient stœchiométrique). Le premier terme rend compte de la diffusion des espèces, le deuxième décrit les espèces apportées par le flux.

Notons que ces deux dernières équations traduisent les deux contributions de propagation de la réaction en chaîne décrite plus haut (transmission de chaleur et diffusion d'espèces). La connaissance de tous ces paramètres interdépendants permettrait une résolution, mais hélas, ce n'est pratiquement jamais le cas.

2.3.2. Profils

Nous allons voir plutôt qualitativement l'aspect des profils de concentration et de température dans les flammes aérées. Il s'agit de profils en altitude (suivant la cote z), l'origine étant prise au niveau de la surface du brûleur. En régime de déflagration, le front de flamme possède une épaisseur δ_f et ne constitue pas une discontinuité. La figure 2.3.1 schématise l'allure générale de ces profils.

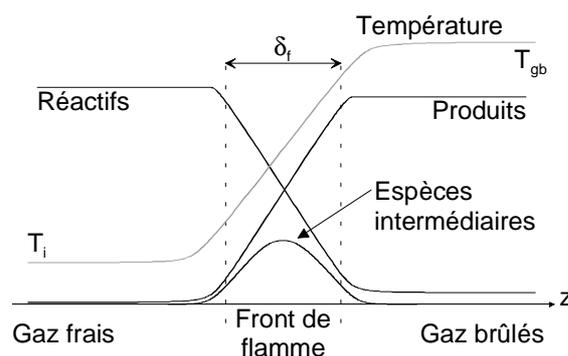


Figure 2.3.1

Allure schématique des profils de température et de concentrations des espèces

Ces évolutions sont très prévisibles. La concentration de réactifs diminue, tandis que celle des produits augmente. La température augmente également, la réaction étant exothermique. Dans le front de flamme, des espèces intermédiaires, centres actifs ou radicaux, sont localisées et forment le plasma qu'est la flamme. Dans le cas d'une flamme méthane/air, on trouve [7, 8] principalement des atomes d'oxygène [O], d'hydrogène [H], des radicaux

hydroxyles [OH], formyles [HCO], méthyles [CH₃]. Selon les proportions combustible/comburant, on peut retrouver des produits de combustion que ne décrit pas la simple combustion du méthane et de l'oxygène, tels que le monoxyde de carbone ou le dihydrogène.

Du fait que le front de flamme est étroit, le mélange gazeux subit une modification rapide de composition : modification de la densité et accélération du flux. Il en résulte une augmentation de pression statique sous le front de flamme telle que [1] :

$$P_2 = P_1 + \rho_i \cdot v_F^2 \cdot \left(\frac{T_{gb}}{T_i} - 1 \right). \quad (2.3.4)$$

P_1 est la pression environnant la flamme, P_2 la pression sous le front de flamme, T_{gb} la température de combustion ou des gaz brûlés. Cette augmentation est très faible, nous l'avons négligée dans la section 2.3.1, elle est de l'ordre, pour un mélange méthane/air, de 1 Pa.

2.3.3. Epaisseur de front

Une première approche simple pour évaluer la taille du front de flamme consiste à calculer le gradient de température maximal dans la flamme. En assimilant la variation de température à cette tangente on définit :

$$\delta_f = \frac{(T_{gb} - T_i)}{\left. \frac{dT}{dz} \right|_{\max}}. \quad (2.3.5)$$

Une autre expression découle d'une approximation de bilan thermique : la chaleur dégagée par la réaction est entièrement dédiée à établir le gradient de température du front de flamme. Le front de flamme est supposé être à la température moyenne entre T_i et T_{gb} . On résout alors l'équation (2.3.2) avec ces approximations sachant que :

$$Q = \Delta H \text{ et } U = k_n \cdot n_{ci}^n \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R \cdot T}\right), \quad (2.3.6)$$

k_n est une constante dimensionnelle de la loi d'Arrhenius, n étant l'ordre de la réaction, n_{ci} est la concentration de combustible, E_a l'énergie d'activation de la réaction. Cette résolution amène [9] :

$$\delta_f^2 = \frac{\lambda_{th} \cdot (T_{gb} - T_i)}{\Delta H \cdot k_n \cdot n_{ci}^n \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R \cdot T}\right)}. \quad (2.3.7)$$

On remarque que réduire la concentration de combustible entraîne une augmentation de l'épaisseur du front de flamme. Ceci peut aussi s'interpréter en terme de diffusion : en abaissant la pression le coefficient de diffusion des espèces augmente, la réaction peut ainsi être entretenue sur une épaisseur plus grande.

2.3.4. Vitesse de front

Nous avons vu l'importance de la vitesse de propagation ou vitesse de front de flamme. A l'aide de (2.3.2) on obtient une expression de cette vitesse en considérant que la chaleur de réaction établit un débit de chaleur à la vitesse v_F :

$$v_F^2 = \frac{\lambda_{th} \cdot \Delta H \cdot k_n \cdot n_{ci}^n \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R \cdot T}\right)}{\rho_i^2 \cdot C_p^2 \cdot (T_{gb} - T_i)} \quad (2.3.8)$$

Ceci nous montre que la vitesse du front de flamme dépend de la pression, de la composition et de la température du mélange frais. Mais il est plus utile d'utiliser des lois de dépendance empiriques.

L'influence de la richesse d'un mélange méthane/air sur la vitesse du front de flamme est décrite par la relation suivante [10] :

$$v_F = 0.422 \cdot \varphi^{0.15} \cdot \exp[-5.18 \cdot (\varphi - 1.075)^2], \quad (2.3.9)$$

où φ est la richesse du mélange, c'est le rapport de la quantité d'air à apporter pour que la réaction soit stœchiométrique sur la quantité d'air réellement apportée. Cette formule empirique décrit correctement les observations [11], notamment le maximum de vitesse de front observé pour des richesses de l'ordre de 1.1.

Un préchauffage des gaz frais a pour effet d'augmenter la vitesse du front de flamme. L'équation de Passauer décrit le phénomène :

$$v_F(T_i) = v_F(T_0) \cdot \left(\frac{T_i}{T_0}\right)^k, \quad (2.3.10)$$

où k = de 1.4 à 2 selon la gamme de température et le type de mélange.

Enfin, l'influence de la pression est assez bien décrite par l'équation (2.3.8). Typiquement la vitesse de déflagration est proportionnelle à la puissance m de la pression, avec m compris entre -0.3 et -0.5. Pour les mélanges méthane/air, Andrews et al. [12] ont compilé plusieurs mesures et donnent :

$$v_F = 43 \cdot P^{-0.5}. \quad (2.3.11)$$

On verra que la limite basse en pression pour l'établissement d'une flamme dépend de la géométrie du brûleur, quant à la limite haute, elle est directement corrélée au courage de l'expérimentateur.

2.3.5. Flammes plates basse pression

Rappelons que l'intérêt d'une flamme, en ce qui nous concerne, réside dans l'échauffement qu'elle produit sur les produits et les réactifs. Ces gaz chauds, se comporteront alors comme des émetteurs thermiques. Nous voulons collecter et analyser ce rayonnement.

Afin que ce rayonnement soit le plus stable possible, il faut réaliser une flamme ayant une grande stabilité. Ce type de flamme est obtenu à basse pression, en enfermant la bouche

du brûleur dans une enceinte étanche, et en établissant une basse pression dynamique à l'aide d'un réglage fin sur les débits d'alimentation et de pompage des gaz brûlés.

De plus, dans tout ce qui précède, nous n'avons jamais envisagé de dépendance radiale des grandeurs caractérisant les flammes : nous nous sommes placés dans l'hypothèse de la flamme plate. Par exemple, dans le cas d'un brûleur à bouche circulaire, la flamme plate présente un front semblable à un disque bleuté situé quelques millimètres au-dessus du brûleur. Nous allons détailler maintenant la réalisation pratique de ce type de flamme.

3. Réalisation

3.1. Tube brûleur

3.1.1. Choix combustible/comburant

Suite à quelques malencontreuses expériences, nous avons choisi de travailler avec le mélange le plus utilisé : méthane/air. La réaction d'oxydation est la suivante :



cette réaction est très exothermique, la combustion d'une mole de méthane libère 890 kJ.

D'autre part, les données expérimentales concernant cette réaction abondent, voici quelques-unes d'entre elles :

Limites d'inflammabilité dans l'air (en vol)	Vitesse maximale de déflagration	Température d'inflammabilité	Température Théorique de combustion
5% - 15%	35 cm/s	580 °C	1940 °C

Un avantage considérable de ce mélange est une vitesse de déflagration lente donc des régimes d'écoulement laminaires peuvent être atteints aisément. Rappelons encore une fois que ce mélange ne peut jamais détoner.

3.1.2. Flux laminaire

Notre brûleur sera constitué d'un tube. En sortie de celui-ci (bouche) la flamme laminaire se stabilisera. Connaissant la vitesse de déflagration du mélange méthane/air, quelle doit être la condition pour que le flux soit laminaire ? C'est en calculant le nombre de Reynolds que l'on tranche. Or :

$$\text{Re} = \frac{\bar{v} \cdot d}{\nu}, \quad (3.1.2)$$

où \bar{v} est la vitesse moyenne du mélange dans le tube, d le diamètre du tube, et ν la viscosité cinématique du mélange. Le flux reste laminaire tant que $\text{Re} < 2300$. Dans notre cas nous

avons choisi un diamètre de deux centimètres, ce qui correspond à un nombre de Reynolds de 400.

D'autre part pour que le régime laminaire s'établisse complètement, il y a une condition sur la longueur du tube. La longueur minimale L_m est grossièrement donnée par :

$$L_m = 0.05 \cdot Re \cdot d . \quad (3.1.3)$$

Dans notre cas il faudrait un tube de 40 cm, mais étant donné qu'un régime partiellement laminaire est déjà établi à l'entrée du tube du fait des plusieurs mètres de tuyaux d'apport du mélange, nous avons choisi un tube de 20 cm.

3.1.3. *Bouche*

Au sommet de ce tube brûleur, là où il débouche dans la chambre de combustion, le tube a été partiellement occulté par un disque poreux d'acier inoxydable fritté. Ce disque présente une porosité de 43%, celle-ci étant définie comme la différence relative du matériau poreux au matériau plein. Les pores ont une taille moyenne de 17 μm . L'épaisseur du disque est de 3 mm.

Ce disque assure deux rôles. D'une part, il sécurise le brûleur car en cas de retour de flamme, la flamme est incapable de se propager à travers le disque et la réaction s'arrête. D'autre part, il assure l'aplatissement du profil de vitesse du flux gazeux générant ainsi une flamme plate. La bouche du brûleur s'ouvre sur l'enceinte de combustion.

3.2. **Enceinte basse pression**

3.2.1. *Éléments de caractérisation*

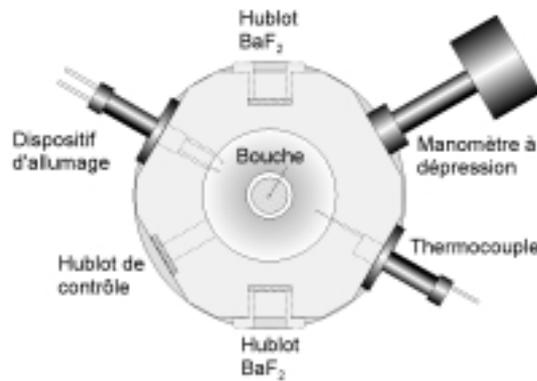
L'enceinte sur laquelle débouche le tube brûleur est un espace cylindrique de 6 cm de diamètre. Cette enceinte est percée de différents éléments de caractérisation. De part et d'autre l'enceinte s'ouvre de hublots en Fluorure de Baryum (BaF_2) de diamètre 25 mm destinés à laisser entrer ou sortir le rayonnement infrarouge.

Enfin, un autre hublot a été percé afin d'assurer un contrôle visuel permanent sur la flamme. Devant ce hublot est systématiquement placée une caméra vidéo CCD sensible au visible. L'image est alors visualisée sur un moniteur.

Un premier passage étanche est aménagé pour des mesures de température par thermocouple sur lesquelles nous reviendrons. Ce passage est tel que le thermocouple peut être déplacé dans la direction radiale et en altitude.

Un deuxième passage est dédié à un système d'allumage amovible.

La pression régnant dans l'enceinte est mesurée par un manomètre à dépression. L'ensemble de ces éléments est schématisé sur la figure 3.2.1.

**Figure 3.2.1**

Brûleur : vue de dessus, avec les éléments de caractérisation de la chambre.

3.2.2. Refroidissement

Les gaz brûlés, issus de la réaction de combustion sont à très haute température. Des échanges thermiques entre ces gaz et les parois métalliques de l'enceinte existent. Afin d'éviter une surchauffe du système, nuisible à l'étanchéité et dangereuse lors de la manipulation des vannes, l'ensemble des éléments constituant le brûleur ont été chemisés : une circulation d'eau évacue le surplus de chaleur. Au niveau de l'échappement, un dispositif de refroidissement à chicane assure l'abaissement de température des gaz brûlés.

3.2.3. Maintien en pression dynamique

Allumage

Voyons à présent comment établir une combustion basse pression dans la chambre. La première chose à faire est d'enclencher la combustion. Deux tiges de tungstène, dont les pointes sont en regard, solidaires d'une pièce en Téflon, peuvent coulisser dans un passage étanche de la chambre. Les tiges sont ainsi amenées à environ un centimètre au-dessus de la bouche du brûleur. Elles sont reliées à un allume-gaz domestique piézo-électrique légèrement modifié pour permettre le branchement des tiges.

La chambre doit être mise à l'air, un allumage basse pression est impossible : les variations brutales de pression dues à l'enclenchement de la réaction auto-soufflent la flamme, la basse pression n'assurant pas un amortissement suffisant. En revanche quand la chambre est à pression atmosphérique la réaction s'enclenche normalement.

Descente en pression

Les gaz de combustion s'échappent naturellement du brûleur. En manipulant délicatement les vannes pointeau de précision, il faut basculer l'échappement vers la pompe haut débit, tout en conservant la même pression dans la chambre (cf. figure 2.3.2).

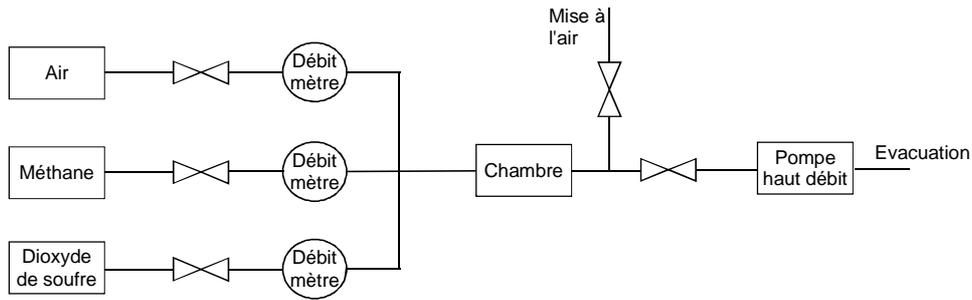


Figure 2.3.2 : Synoptique du circuit d'alimentation – échappement de la chambre de combustion.

Ceci réalisé, la descente en pression s'effectue en jouant simultanément sur les vannes d'alimentation en produits et sur la vanne d'échappement. Ces réglages sont longs et minutieux car tout en diminuant la pression dans la chambre les conditions doivent rester propices à la stabilité de la flamme.

3.3. Aspect global

Ci-après est représenté un plan du brûleur en coupe longitudinale (fig. 3.3.1), une photographie du brûleur en place sur le banc optique (fig. 3.3.2), et une image CCD visible d'une flamme typique (fig. 3.3.3). Sur cette dernière image, prise du hublot du brûleur, on discerne la zone des gaz frais située sous le front de flamme et au-dessus la zone des gaz brûlés.

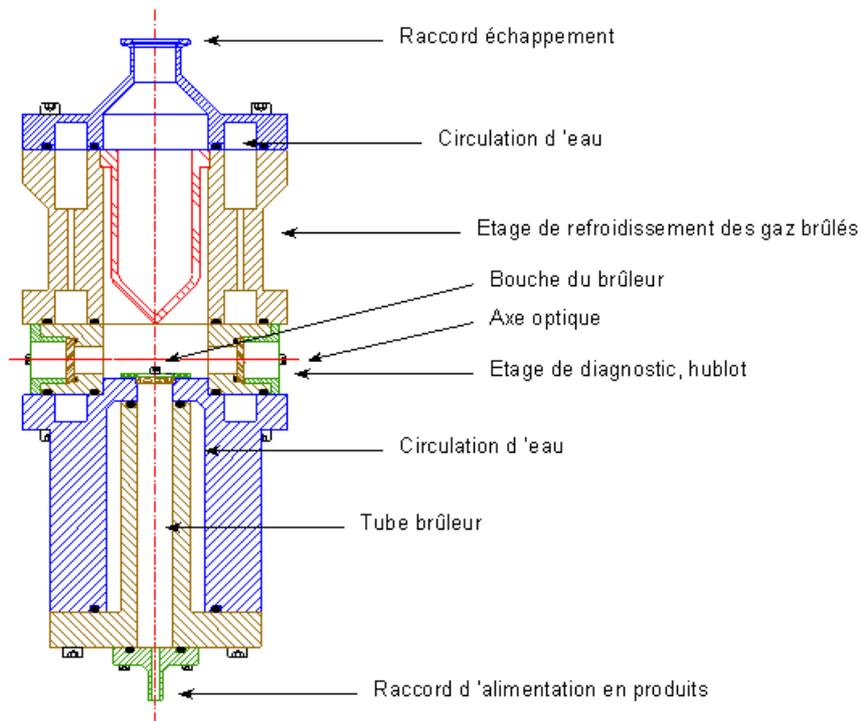


Figure 3.3.1 : Plan d'une coupe longitudinale du brûleur.

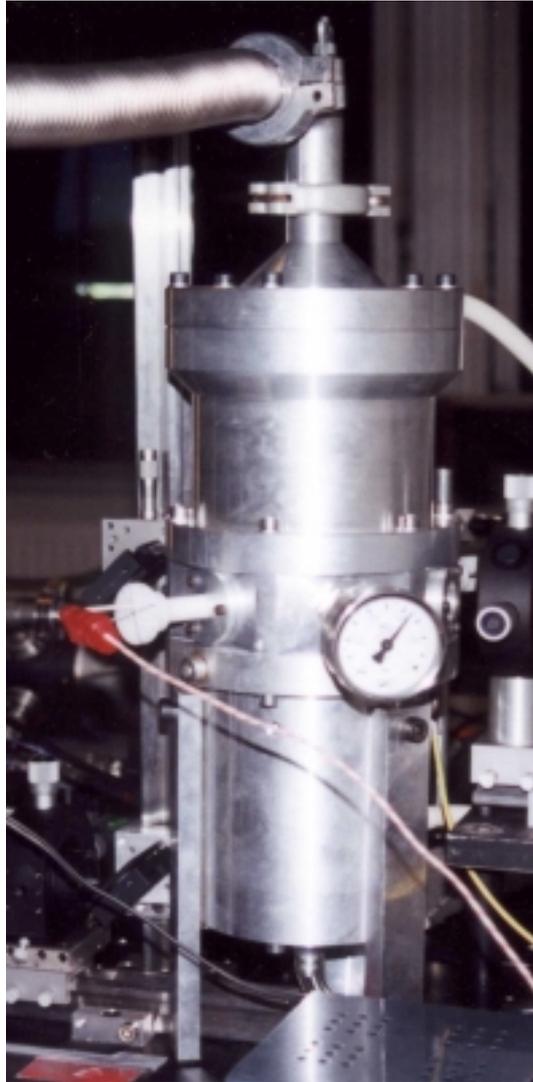


Figure 3.3.2 : Photographie du brûleur.

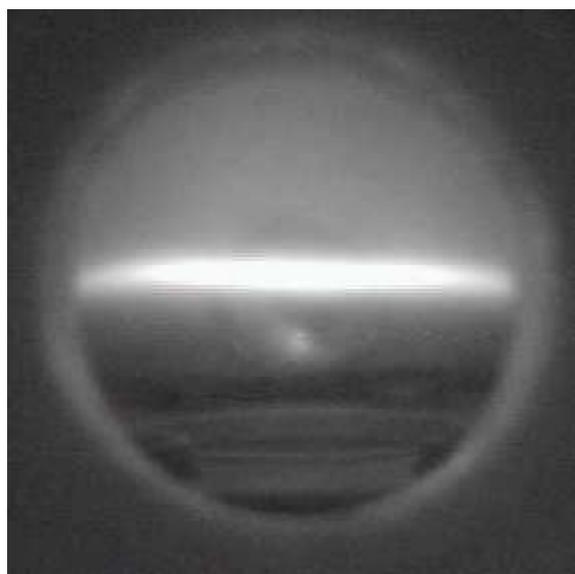


Figure 3.3.3
Image CCD d'une flamme
basse pression produite par
le brûleur ($P = 80$ torr)

4. Caractérisation

Nous avons réalisé un système de combustion susceptible de produire une flamme aérée plate et laminaire. Dans ce qui suit nous allons caractériser cette flamme, ou plus précisément, la zone des gaz brûlés, zone chaude où évoluent les produits de combustion.

Nous allons d'abord traiter de la mesure de température par thermocouple, puis caractériser l'émission des produits de combustion par spectroscopie basse résolution. Enfin nous verrons la spectroscopie d'absorption haute résolution dans la zone des gaz brûlés, qui peut, sous certaines hypothèses fournir une bonne image de l'émission. D'autre part, par cette technique, nous verrons la possibilité de mesures optiques de température et concentration.

4.1. Mesure de température par thermocouple

Rappelons que le brûleur est destiné à produire un gaz émetteur porté à une haute température. La température est ainsi un paramètre clef de la caractérisation du système. Dans un premier temps, nous allons aborder la mesure de température intrusive qu'est l'utilisation d'une sonde à couple thermoélectrique.

4.1.1. Type utilisé

Pour sonder la température dans un système de combustion, le thermocouple le plus indiqué est celui de type C (anciennement type W5). En effet ce type de thermocouple offre la plus grande limite haute de la plage de mesure : 2300°C. La classe de tolérance est de $\pm 1\%$ de la valeur lue. Les deux conducteurs de la jonction sont un alliage tungstène – 5% rhénium pour le conducteur positif, un alliage tungstène – 26% rhénium pour le conducteur négatif.

La géométrie du thermocouple a une influence non négligeable ; afin que les corrections à apporter à la mesure soient moindres, le diamètre du thermocouple se doit d'être très fin. Nous avons utilisé un thermocouple de diamètre 200 μm .

4.1.2. Incertitude sur la mesure

L'ensemble des signaux parasites aléatoires est lié à l'environnement électromagnétique et au bruit thermique de la chaîne de mesure. Ces parasites sont souvent négligeables comparés aux signaux parasites déterministes [13]. Ces derniers ont trois origines majeures : l'inhomogénéité des conducteurs constituant le thermocouple, l'incertitude sur la température de la jonction de référence (soudure froide), et enfin, l'incertitude sur la température de la jonction de mesure. Toutes ces incertitudes interviennent sur la force électromotrice de la jonction de mesure et par suite sur la température mesurée. En ce qui concerne cette dernière incertitude, dans le cas des hautes températures propres aux systèmes de combustion, les pertes d'énergie du thermocouple par rayonnement doivent être prises en compte pour corriger la température mesurée.

4.1.3. Correction de mesure

L'équation décrivant le bilan énergétique d'un fil à l'état stationnaire s'écrit [14] :

$$\frac{d}{dx} \left(\lambda_{th} \frac{dT}{dx} \right) + \frac{4h}{D} (T_G - T) - \frac{4\sigma}{D} (\epsilon_{th} \cdot T^4 - \alpha \cdot T_e^4) = 0, \quad (4.1.1)$$

où les trois termes décrivent successivement, la conduction dans le fil, les échanges par convection entre le fil et le gaz chaud, et le rayonnement entre le fil et l'enceinte alentour. λ_{th} est la conductibilité thermique du fil, T sa température et D son diamètre ; T_G est la température du gaz où baigne le fil, h le coefficient d'échange convectif ; T_e est la température de l'enceinte, α l'absorptivité des parois, ϵ_{th} l'émissivité du fil, et enfin, σ est la constante de Stefan - Boltzmann.

Pour un thermocouple bien conçu, fin et long, les fuites thermiques par conduction sont négligeables. De plus, dans notre cas, l'absorptivité des parois et la température de l'enceinte sont négligeables. Ainsi la correction à apporter à la mesure est la différence entre la température du gaz et celle du thermocouple, soit :

$$T_G - T = \frac{\sigma}{h} \epsilon_{th} \cdot T^4. \quad (4.1.2)$$

Reste alors à déterminer h et ϵ_{th} .

L'émissivité des thermocouples en platine est typiquement de 0.19 [15] autour de 1300°C. D'autres déterminations théoriques, basées sur la résistivité [16] donnent 0.16. La première valeur annoncée étant expérimentale nous conserverons celle-ci.

Le calcul du coefficient d'échange repose sur des corrélations impliquant les nombres de Nusselt, Prandtl et Reynolds. Pour un thermocouple perpendiculaire à un flux laminaire, Kramer donne (cité par Bradley et Matthews [14]) :

$$Nu = 0.42 \cdot Pr^{0.2} + 0.57 \cdot Pr^{0.33} Re^{0.5}, \quad (4.1.3)$$

où
$$Pr = \frac{\mu \cdot C_p}{\lambda_G} \text{ et } Nu = \frac{h \cdot D}{\lambda_G}. \quad (4.1.4)$$

La capacité calorifique (C_p), la viscosité (μ) et la conductivité thermique des gaz de combustion (λ_G) ont été prises dans les tables de Touloukian [17], ce qui mène autour de 1300°C à $Pr = 0.75$ et $Nu = 12.0$.

4.1.4. Profils de température

Nous avons vu au paragraphe 3.2.1 que le thermocouple est amovible, et peut être déplacé dans deux directions. Dans la direction radiale à la bouche du brûleur, le déplacement s'obtient par déplacement du corps en Téflon supportant le thermocouple dans le passage étanche. La variation d'altitude s'obtient par rotation du corps en Téflon dans le passage car le thermocouple y a été fixé de manière excentrée.

Le thermocouple est relié via des câbles de compensation à un boîtier de lecture assurant la compensation de soudure froide.

Les mesures sont présentées sur la figure 4.1.1. Elles ont été réalisées sur une flamme méthane/air stoechiométrique. La pression dynamique de l'enceinte était de 102 torr.

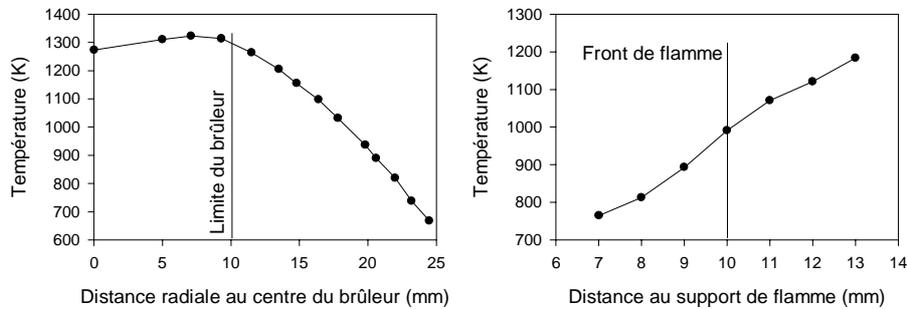


Figure 4.1.1 : A gauche, profil de température radial, thermocouple à 14 mm du brûleur ; à droite, profil en altitude.

Pour les mesures de la figure de gauche, le thermocouple est situé 14 mm au-dessus du support de flamme. L'évolution de la température avec la position radiale du thermocouple est alors enregistrée. Notons que le thermocouple sonde dans ce cas la zone des gaz brûlés car le front de flamme se situe autour de 10 mm. Sur la figure la limite physique de la bouche du brûleur est indiquée. On constate une légère chute de température au centre du brûleur, cette chute est assez étonnante et peut être due à un profil de vitesse du flux non uniforme. Une fois les limites du brûleur franchies, la température décroît plutôt lentement. Typiquement, pour isoler au mieux une flamme de l'environnement, un manteau d'azote gazeux circulant est indiqué autour de la flamme. Mais ce type de brûleur s'éloigne grandement d'un système de combustion courant.

La figure de droite présente l'évolution de la température en fonction de la distance au support de flamme. La position du front de flamme est indiquée sur la figure et coïncide évidemment avec le point d'inflexion de la courbe. Notons que la zone où les produits de combustion sont les plus chauds n'est pas juste après le front de flamme mais quelques millimètres au-dessus. Notre système ne nous a pas permis de mesurer la température jusqu'à la zone où la température se stabilise.

4.2. Emission thermique des produits

4.2.1. Spectromètre à réseau

Une première étape dans la caractérisation de l'émission infrarouge des produits de combustion est de collecter l'émission des produits et d'analyser cette dernière via un spectromètre à réseau : c'est une spectroscopie basse résolution.

Comme nous l'avons indiqué dans la première partie (paragraphe 2.2.2), nous disposons d'un spectromètre de Czerny – Turner. Le banc optique a été modifié, et se présente tel que schématisé sur la figure 4.2.1.

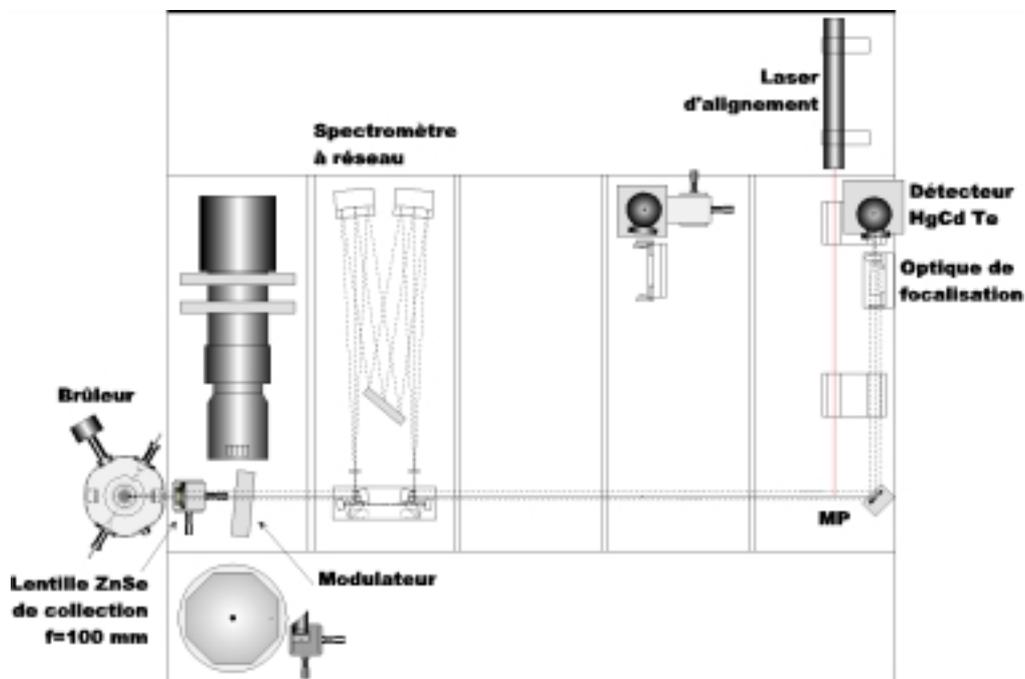


Figure 4.2.1 : Schéma du banc optique dédié à la spectroscopie basse résolution de l'émission des gaz brûlés.

Le brûleur constitue la source. Une lentille de focale 100 mm, ouverte à F/4 collecte le rayonnement provenant de la région des gaz brûlés. Le rayonnement est modulé en amplitude, passe dans le spectromètre de Czerny - Turner et est refocalisé sur un détecteur HgCdTe déjà décrit dans la première partie. Pendant que le moteur pas à pas assure la rotation du réseau, l'intensité détectée est enregistrée.

La figure 4.2.2 présente le résultat des enregistrements, obtenu avec une résolution de l'ordre de 2 cm^{-1} sur une flamme stœchiométrique méthane/air à une pression de 100 torr. En jouant sur la position de la lentille, nous avons collecté le rayonnement issu de la zone des gaz brûlés et celui issu de la zone de gaz frais. On constate que globalement le signal s'écroule.

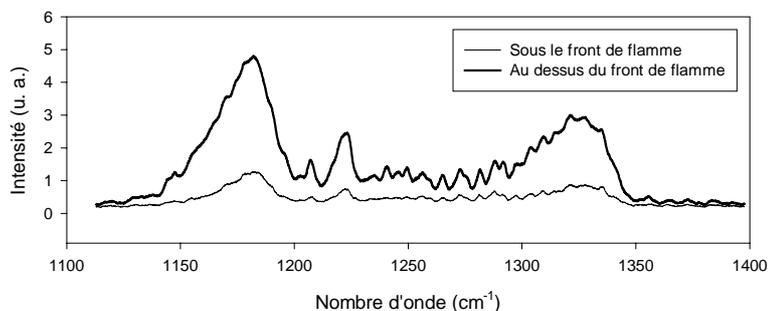


Figure 4.2.2
Spectre basse résolution d'émission d'une flamme méthane/air.

Cependant, il a été totalement impossible d'interpréter ce spectre. Nous avons calculé des spectres synthétiques, convolués par la fonction fente du spectromètre, de diverses molécules susceptibles de se trouver dans la région des gaz brûlés, à savoir, les produits de réaction que sont le gaz carbonique et l'eau, et éventuellement des espèces minoritaires issues d'une combustion imparfaite, CH₄, NO₂, CO, C₂H₂. Aucune de ces simulations ne décrit les deux bandes intenses centrées autour de 1180 et 1330 cm⁻¹. Pour ces calculs nous avons utilisé la banque de données Hitran96 [18], et Hitemp96 une extension de Hitran contenant les données spectroscopiques de H₂O, CO₂ et CO pour les hautes températures.

Ces bandes ne peuvent en aucun cas être dues à des émissions de radicaux. En effet ces radicaux sont très instables ; ils ne sont présents que dans la fine région que constitue le front de flamme, dans la région des gaz brûlés, soit quelques millimètres au-dessus du front de flamme ; ces espèces ont totalement disparu. Notre ultime hypothèse serait que ces bandes sont dues à des bandes chaudes n'étant pas encore compilées dans les banques de données spectroscopiques.

4.2.2. Caméra infrarouge

Le brûleur joue-t-il le rôle qui lui est dédié ? En dopant le mélange comburant/combustible de SO₂, celui-ci est-il échauffé et émet-il ? Pour le vérifier nous avons utilisé une caméra de thermographie infrarouge prêtée par le Laboratoire d'Energétique et d'Optique de l'Université de Reims Champagne Ardenne ; Nicolas Horny, doctorant de ce laboratoire nous a gratifiés de sa collaboration.

Modèle simple

La luminance, L_{cam} , reçue par une caméra infrarouge, visant un objet dans l'atmosphère, peut s'écrire, en première approximation comme la contribution de trois émetteurs :

$$L_{cam} = \tau_{atm} \cdot L_o + \tau_{atm} \cdot (1 - \epsilon) \cdot L^0(T_a) + (1 - \tau_{atm}) \cdot L^0(T_{atm}). \quad (4.2.1)$$

Le premier terme est la contribution propre de l'objet visé, L_o est la luminance de l'objet et τ_{atm} la transmission de l'atmosphère. Le deuxième terme est la contribution de la luminance parasite de l'environnement réfléchi par l'objet visé, T_a est la température de cet environnement et ϵ est l'émissivité de l'objet, L^0 est la notation pour la luminance de Planck. Le troisième terme est la luminance de la couche d'atmosphère entre l'objet et la caméra, T_{atm} est la température de cette couche.

Dans le cas où l'on travaille dans une fenêtre atmosphérique, et que la couche d'atmosphère est fine (ce sera notre cas), τ_{atm} se réduit à l'unité. Dans la suite, nous ne nous intéresserons pas à la luminance ambiante, elle sera considérée comme un bruit de fond L_{amb} . Le gaz chaud de la zone des gaz brûlés est à l'équilibre thermodynamique local, la loi de Kirschoff est valide : $\epsilon(\lambda) = \alpha(\lambda)$. Le terme d'absorption a été explicité dans la première partie. La luminance de l'objet peut ainsi se réécrire comme le produit de la luminance du corps noir à la température du gaz avec l'émissivité caractéristique des molécules en présence.

La caméra de thermographie est un dispositif à large bande spectrale. Cet instrument est caractérisé par une courbe réponse qui prend en compte la transmission de l'objectif, des prismes tournants, des filtres internes, et la réponse du détecteur. Cette courbe de réponse est tracée sur la figure 4.2.3. D'autre part, entre la zone sondée et la caméra vient s'intercaler un hublot en BaF₂ dont la transmission doit être prise en compte (cf. figure 4.2.3). Nous avons utilisé la caméra onde longue Thermovision 880 LWB de chez Agema Infrared Systems. Il s'agit d'une caméra à prismes tournants munie d'un détecteur MCT (Mercure Cadmium Tellurium) refroidi à l'azote liquide. Le logiciel auquel la caméra est reliée acquiert 25 images par seconde. Les prises de vue ont été faites avec un objectif 20° en Germanium traité.

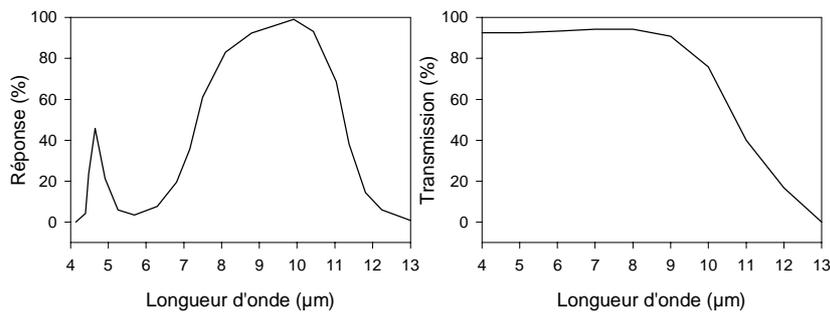


Figure 4.2.3

A gauche, réponse relative de la caméra de thermographie ; à droite, transmission d'une fenêtre de BaF₂.

Finalement la luminance reçue par la caméra sera :

$$L_{\text{cam}} = \int R_T(\lambda) (\epsilon(\lambda) \cdot L^0(T_G, \lambda) + L_{\text{amb}}(\lambda)) \cdot d\lambda, \quad (4.2.2)$$

où T_G est la température des gaz au-dessus du front de flamme, et $R_T(\lambda)$ la réponse totale, c'est à dire le produit des deux courbes de la figure 4.2.3.

Supposons que l'émissivité $\epsilon(\lambda)$ prenne en compte les gaz émetteurs lorsque l'on a une flamme méthane/air. Maintenant, on introduit dans le mélange une petite quantité de dopant, le dioxyde de soufre, d'émissivité $\epsilon_{\text{SO}_2}(\lambda)$. Cette quantité introduite étant très faible, on peut supposer qu'elle n'entraîne aucune variation de température T_G . A la luminance reçue par la caméra de l'équation (4.2.2), il faut donc rajouter la contribution due à l'émission du dopant, c'est à dire :

$$L_{\text{SO}_2} = \int R_T(\lambda) (\epsilon_{\text{SO}_2}(\lambda) \cdot L^0(T_G, \lambda)) \cdot d\lambda. \quad (4.2.3)$$

Ceci est en effet observé.

Résultats

La caméra infrarouge est placée à 40 cm de la flamme. La flamme générée est primitivement une flamme stœchiométrique méthane/air, d'une pression de 150 mbar. Nous enregistrons une séquence à la caméra de cette flamme. Nous introduisons alors dans le mélange initial de l'ordre de 1% en volume de dioxyde de soufre. A nouveau une séquence est enregistrée. A posteriori, nous soustrayons les images obtenues avec et sans introduction de dopant. Ces images sont présentées sur la figure 4.2.4. La palette de niveaux de gris utilisée est classique, le noir traduit une faible luminance, le blanc une forte. L'image à gauche est

l'image enregistrée avec SO_2 , l'image centrale correspond à la flamme sans. L'image de droite est la soustraction.

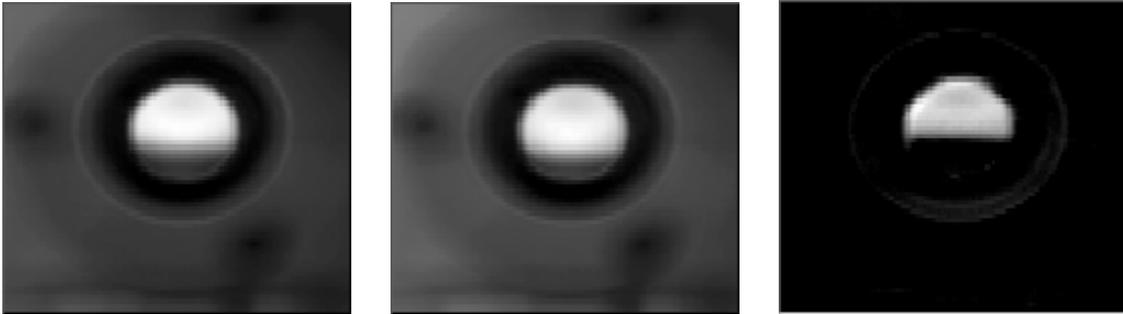


Figure 4.2.4 : Images en niveaux de gris extraites des séquences enregistrées à la caméra infrarouge. A gauche, une image enregistrée avec SO_2 , au centre sans. A droite, soustraction des deux images précédentes.

La contribution à la luminance due au SO_2 chaud est manifeste. Elle intervient uniquement dans la zone des gaz brûlés comme l'indique la frontière abrupte correspondant au front de flamme sur l'image résultant de la soustraction.

Cette contribution due à l'émission du SO_2 est mise en évidence également en considérant les profils horizontaux et verticaux de luminance. Ces profils sont représentés sur la figure 4.2.5.

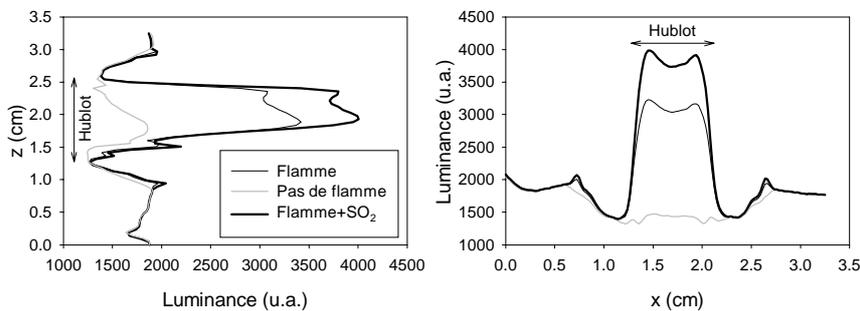


Figure 4.2.5
Profils verticaux (gauche) et horizontaux de luminance reçue par la caméra thermique.

Sur ces graphiques sont représentées trois conditions : en gris clair, il s'agit du profil de luminance en l'absence de flamme. En noir, trait fin, il s'agit de la luminance reçue par la caméra alors qu'une flamme non dopée existe. Enfin, en noir, trait gras, il s'agit du cas où dans le brûleur une flamme dopée de SO_2 est présente ; où l'on constate derechef l'effet de l'émission du polluant. Notons que l'on retrouve le léger creux central déjà observé lors des mesures de température par thermocouple (cf. figure 4.1.1). Sur ces graphiques la position du hublot est matérialisée par une double flèche.

Enfin pour parachever cette étude large bande à la camera infrarouge, nous avons regardé ce qui se passe temporellement. Nous observons l'évolution avec le temps de la luminance reçue par la caméra en un pixel fixé. Nous commençons l'observation alors qu'une flamme dopée au SO_2 est allumée. Puis, au cours de l'enregistrement de la séquence,

successivement, nous stoppons l'injection de SO₂, puis nous éteignons la flamme. Le résultat est présenté sur la figure 4.2.6.

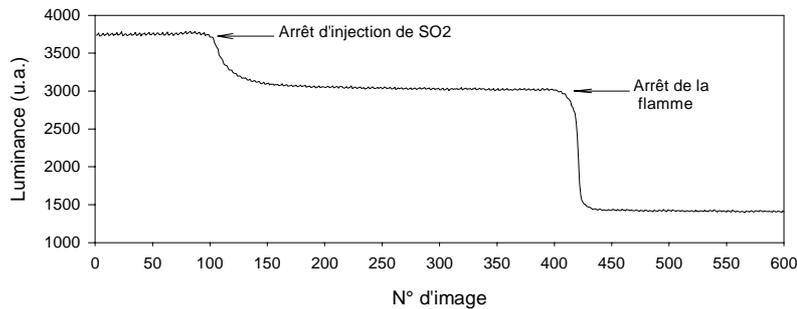


Figure 4.2.6
Enregistrement temporel de la luminance reçue par un pixel fixé de la caméra.

Sur cette évolution, il apparaît que l'injection de 2% en volume de SO₂ dans les gaz frais provoque une augmentation de luminance de 40% dans la zone des gaz brûlés produite par une flamme à 150 mbar.

Un dispositif tel que la caméra thermique est donc capable de caractériser la présence d'un gaz émetteur. Cependant, ce dispositif, en large bande ne donne aucune indication sur la nature de ce gaz. Connaissant exactement le gaz à détecter et moyennant un calcul raie par raie assez lourd, il est possible d'établir un étalonnage de caméra pour déduire des concentrations d'après des luminances détectées.

Ici, il s'agissait de vérifier que le brûleur assure l'échauffement du gaz polluant. L'émission thermique de ce dernier prouve l'efficacité du système.

4.3. Spectroscopie d'absorption des produits de combustion

Tous les dispositifs de caractérisation décrits ci-dessus, ne fournissent aucune information de haute résolution spectrale. Moyennant l'hypothèse simplificatrice que l'émissivité spectrale est le complément à un de la transmittivité spectrale, il est alors intéressant de mener des expériences de spectroscopie par diode laser accordable dans la région des gaz brûlés ; les spectres d'absorption obtenus seront une image directe des spectres d'émission à venir. D'autre part, ce type d'expérience est d'un grand intérêt pour les diagnostics de combustion, quel que soit le produit de combustion à caractériser [19, 20, 21]. Dans ce qui suit, il s'agira d'appliquer cette technique à la détection du dioxyde de soufre.

4.3.1. Description de l'expérience

Comme dans la première partie, nous réalisons un spectromètre par diode laser accordable sur le banc optique. Cette fois, la cuve contenant le gaz à sonder sera particulière : ce sera le brûleur. La figure 4.3.1 présente le montage optique utilisé. Décrivons-le.

La source est une diode laser à double hétérojonction enterrée, fournie par le Fraunhofer Institut für Physikalische Meßtechnik de Fribourg. Ce laser émet autour de 1380 cm⁻¹, pour une température de 65 K, et coïncide ainsi avec la bande ν_3 du SO₂. Le laser est installé dans

le cryostat à azote liquide. On crée une dépression dans le dewar d'azote afin d'atteindre la température de 65 K. Le rayonnement est collecté par le miroir parabolique hors d'axe 90°, de focale 50mm et ouvert à F/2.

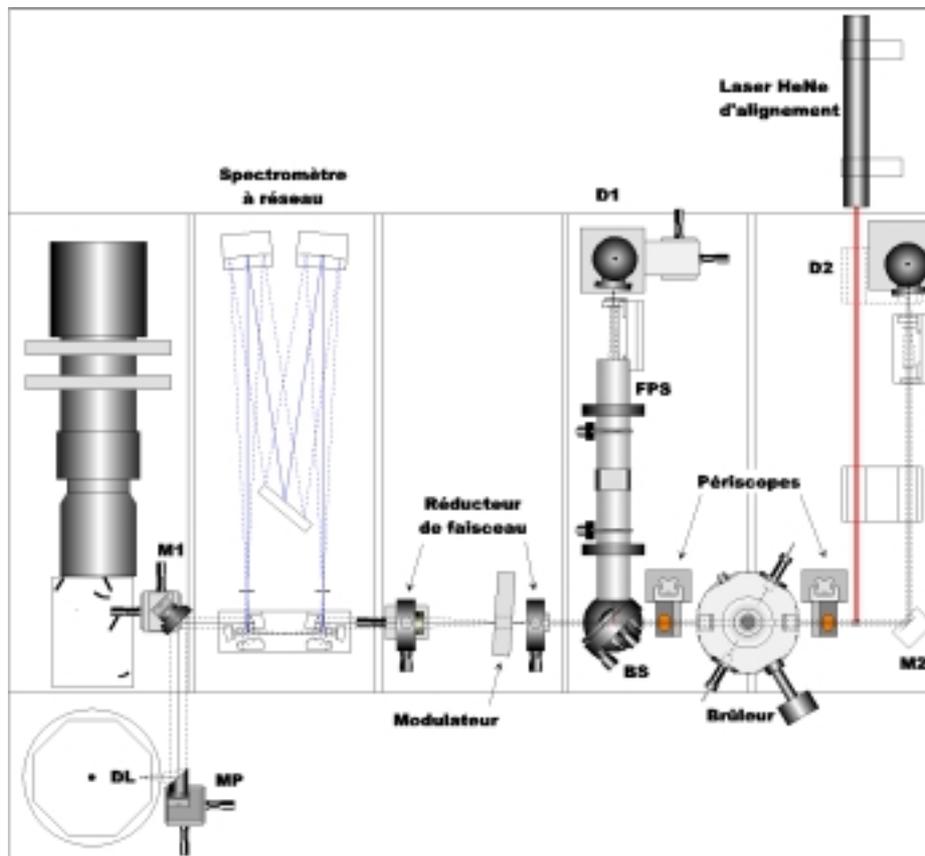


Figure 4.3.1 : Schéma optique du spectromètre d'absorption des gaz brûlés.

En sortie du module du spectromètre de Czerny – Turner, le faisceau est réduit d'un facteur 4 pour atteindre un diamètre de 4 mm. Le dispositif de réduction est composé de deux lentilles convergentes en ZnSe. Au point image de la première lentille rencontrée par le faisceau est placé un modulateur mécanique réglé à 2800 Hz. Le faisceau a été réduit afin de s'assurer, lors de son passage dans le brûleur, qu'il sonde uniquement soit la zone de gaz frais, soit la zone des gaz brûlés.

Le faisceau est alors divisé en deux bras par une lame séparatrice en ZnSe (R=25%, T=75%). Le faisceau réfléchi passe dans un étalon Fabry – Pérot sphérique. L'autre partie passe dans le brûleur. Afin de rehausser l'axe optique pour permettre le passage du rayonnement dans le brûleur, nous avons utilisé deux périscopes dont la hauteur est réglable et permet de choisir la zone de la flamme à sonder.

4.3.2. Mesure optique de température

Parmi les différents modes d'émission qu'offre la diode laser, nous avons choisi un mode à 1384.4 cm^{-1} accordable continûment sur 0.8 cm^{-1} . L'avantage de ce mode est certes

qu'il permet d'atteindre des raies d'absorption du dioxyde de soufre, mais en outre des raies d'eau à haute température. Nous allons voir que cette dernière caractéristique va nous permettre de faire une estimation de la température dans la zone des gaz brûlés par voie optique, c'est à dire sans aucune intrusion dans le milieu à caractériser. Ceci présente un grand intérêt car les milieux où règne une réaction de combustion vive sont très agressifs pour les sondes.

Spectre d'eau à haute température

Dans un premier temps, nous avons sondé une flamme « naturelle » (sans ajout de polluant). Le courant d'injection dans la diode laser est maintenu fixe, l'accord de la fréquence d'émission se fait par une rampe linéaire de température de 1K/min. Nous avons travaillé avec une flamme stœchiométrique à 102 torr. Les périscoptes sont réglés afin que le faisceau sonde la région située au-dessus du front de flamme. Le spectre de vapeur d'eau ainsi obtenu est présenté sur la figure 4.3.2. Sur ce spectre, en abscisse, les nombres d'onde ont été recalibrés grâce aux franges données par le Fabry – Pérot sphérique.

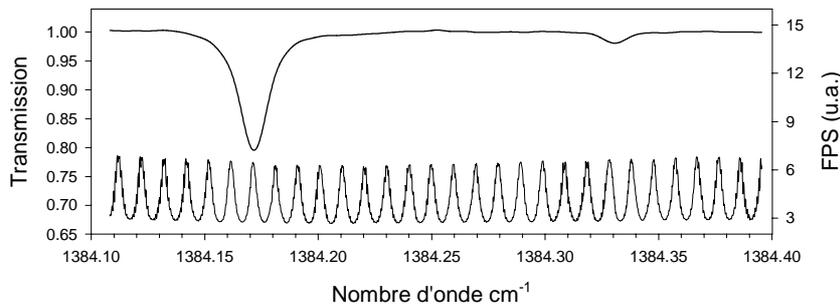


Figure 4.3.2

Spectre d'absorption de la vapeur d'eau à haute température présente dans la région des gaz brûlés d'une flamme à 102 torr.

Sur ce spectre, nous distinguons deux raies. Celles-ci vont nous permettre de remonter à la température.

Méthode des deux raies

Cette méthode repose sur l'expression de l'intensité d'une raie d'absorption donnée en première partie (équation 2.1.4). Considérons une transition i et une autre i' . Le rapport des intensités de ces deux transitions s'écrit :

$$\frac{S_{jki}(T_j)}{S_{jki'}(T_j)} = \frac{S_{jki}(T_0)}{S_{jki'}(T_0)} \frac{\exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot E''_{jki}}{k_B} \left(\frac{1}{T_j} - \frac{1}{T_0}\right)\right] \left(1 - \exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki}}{k_B \cdot T_j}\right]\right) \left(1 - \exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki'}}{k_B \cdot T_0}\right]\right)}{\exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot E''_{jki'}}{k_B} \left(\frac{1}{T_j} - \frac{1}{T_0}\right)\right] \left(1 - \exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki}}{k_B \cdot T_0}\right]\right) \left(1 - \exp\left[-\frac{h \cdot c \cdot \sigma_{jki'}}{k_B \cdot T_j}\right]\right)} \quad (4.3.1)$$

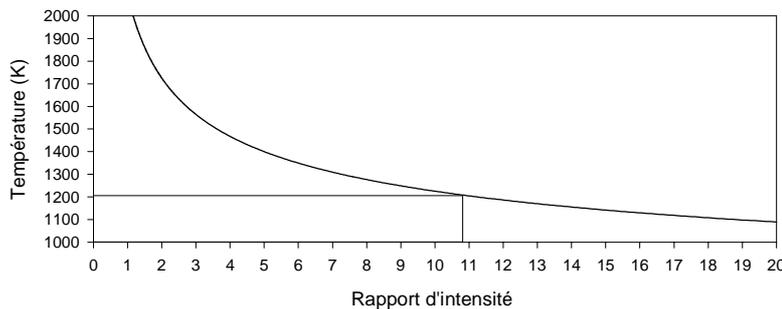
Ainsi, sur notre spectre expérimental de la figure 4.3.2, nous allons pouvoir calculer les intensités des deux raies y apparaissant. La table 4.3.1 résume les données spectroscopiques des deux raies apparaissant dans la figure 4.3.2. Ces données sont issues de Hitemp96. Les forces de raies sont données à 1000 K car c'est la température de référence de Hitemp96.

Nombre d'onde (cm ⁻¹)	Force de raie@1000K (cm ⁻¹ /molecule.cm ⁻²)	Energie niveau bas (cm ⁻¹)	J'' (inf.)
1384.16994	6.745E-21	2495.1660	8
1384.32847	1.932E-22	4750.3790	10

Table 4.3.1

Données spectroscopiques issues de Hitemp96 des deux raies d'eau apparaissant sur la figure 4.3.2.

Le rapport des intensités des deux raies étant accessible expérimentalement par le calcul des aires sous tendues par les raies, la seule inconnue de l'équation 4.3.1 reste la température. On peut alors tracer la courbe montrant l'évolution de la température en fonction du rapport. Ceci apparaît sur la figure 4.3.3.

**Figure 4.3.3**

Température de la vapeur d'eau en fonction du rapport d'intensité des raies de la figure 4.3.2.

Sur cette figure 4.3.3, nous avons reporté la valeur du rapport expérimental : 10.7. La température coïncidente est de 1210 K. L'incertitude sur une telle mesure s'exprime par :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{1}{\left. \frac{d}{dT_j} g(T_j) \right|_T} \left[\frac{\Delta S_{jki}}{S_{jki}} + \frac{\Delta S_{jki'}}{S_{jki'}} \right], \quad (4.3.2)$$

où $g(T_j)$ est la fonction du membre de droite de l'équation 4.3.1. Pour assurer un bon intervalle de confiance nous avons largement surestimé l'erreur relative commise sur le calcul des intensités ; nous avons choisi 10%. Tous calculs faits, il apparaît que la température de la vapeur d'eau située dans la zone des gaz brûlés, estimée par méthode optique est 1210 ± 30 K.

Si l'on se reporte au paragraphe 4.1 de cette partie où des mesures par thermocouple ont été présentées, il apparaît que la méthode optique sous-estime la température. Par thermocouple, la température intégrée sur la zone des gaz brûlés est de 1294 K. L'incertitude correspondante est de 30K. On peut proposer deux hypothèses pour expliquer cet écart. Primo, la région des gaz brûlés n'est pas isolée du milieu environnant (par un manchon d'azote gazeux par exemple comme cela se fait dans un brûleur type de laboratoire). L'eau peut ainsi diffuser et, que ce soit sous forme gazeuse ou de micro-gouttelettes, peut perturber la mesure optique. Secundo, dans la zone des gaz brûlés où le faisceau était incident, la température n'était toujours pas stabilisée et continuait de croître à un taux de 40K/mm. Tandis que la mesure par thermocouple est très ponctuelle, la mesure par la méthode optique donne une température effective intégrée sur le volume de sondage.

4.3.3. Mesure de concentration

La deuxième étape consiste alors à injecter le polluant dans les gaz frais, et à répéter l'enregistrement du spectre. La pression totale dans la chambre de combustion est de 110 torr. La pression partielle de dioxyde de soufre injecté est, compte tenu de la précision des débitmètres et manomètres, 1.6 ± 0.3 torr.

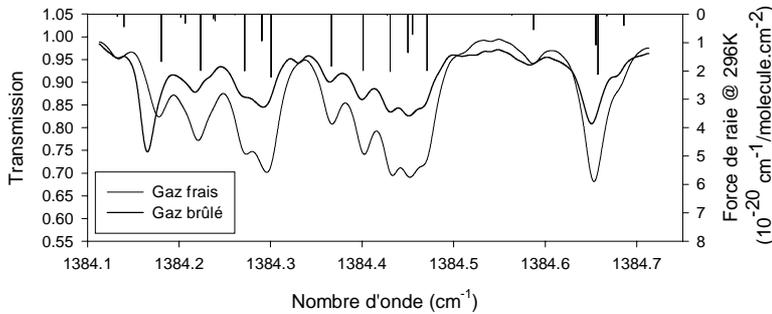
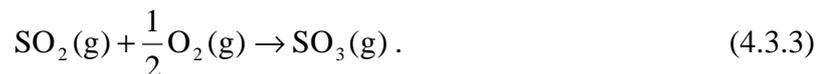


Figure 4.3.4
Spectres enregistrés dans les deux zones que sépare le front de flamme lors d'une injection de SO₂.

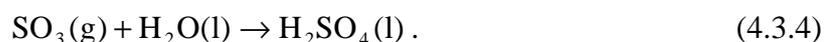
La figure 4.3.4 présente les spectres enregistrés sous ces conditions. Il y a deux spectres : dans un cas le faisceau laser traverse la zone des gaz frais (sous le front de flamme), dans l'autre cas, il traverse la zone des gaz brûlés. On peut dès lors noter l'influence de l'échauffement produit au passage du front de flamme. En effet, les populations des niveaux rotationnels se réorganisent en fonction de la température. La fonction de partition rotationnelle, indiquée dans la première partie (équation 2.1.8), permet de prévoir cette évolution. On constate, en comparant les distributions de Boltzmann des niveaux rotationnels à 296 K et 1300 K, que pour des $J'' < 45$ les niveaux rotationnels se dépeuplent à 1300K. Symétriquement, pour $J'' > 45$ et 1300 K, les niveaux se repeuplent. Les caractéristiques des transitions principales apparaissant sur le spectre de la figure 4.3.4, ont été listées dans la table 4.3.2. La diminution globale de l'absorption observée à 1300 K s'explique alors par le fait qu'aucun J'' n'est supérieur à 45.

Mais qu'arrive-t-il au SO₂ lorsqu'il est injecté dans la flamme ? La seule réaction chimique que ce dernier peut subir est l'oxydation. C'est typiquement la réaction à l'origine de la formation d'acide sulfurique dans les nuages lors d'une pollution atmosphérique au dioxyde de soufre, la voici :

Dans un premier temps il y a oxydation du SO₂ en trioxyde de soufre (ou anhydride sulfurique).



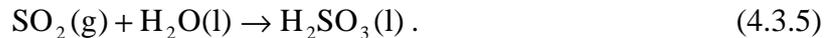
Ensuite, le trioxyde de soufre se dissout dans l'eau pour former l'acide sulfurique.



Deux arguments confirment que la réaction (4.3.3) ne peut avoir lieu au sein de la chambre de combustion. D'une part, la réaction d'oxydation du dioxyde de soufre a une cinétique très lente, pour avoir lieu rapidement elle doit être catalysée [22]. D'autre part,

l'oxygène ne peut être présent dans la chambre si l'on prend soin de travailler avec une flamme stœchiométrique, ou légèrement en excès de combustible.

Une autre réaction peut avoir lieu impliquant le SO₂. Ce dernier peut se dissoudre dans l'eau pour former un acide faible : acide sulfureux.



Or, dans la zone des gaz brûlés, la température avoisine les 1300 K. L'eau n'est pas à l'état liquide, la dissolution ne peut avoir lieu. En définitive, le polluant injecté disparaît bien après la chambre, dans les conduits d'échappement.

D'autre part, sur la figure 4.3.4, nous retrouvons la présence des raies d'eau à haute température sur le spectre de la région des gaz brûlés.

Sur l'axe supérieur de cette même figure, nous avons porté les forces de raie issues de Hitran96 pour le SO₂ à 296 K.

Nombre d'onde (cm ⁻¹)	Force de raie@296K (cm ⁻¹ /molecule.cm ⁻²)	Energie niveau bas (cm ⁻¹)	J'' (inf.)
1384.13971	4.39E-21	794.7205	41
1384.18057	1.66E-20	512.1743	37
1384.20179	1.08E-21	1093.9195	45
1384.20676	3.18E-21	863.6545	42
1384.22343	1.99E-20	471.5944	36
1384.23751	1.57E-21	1013.2798	44
1384.23929	2.26E-21	936.5161	43
1384.27150	1.99E-20	477.8335	37
1384.29045	9.31E-21	636.7320	39
1384.30049	2.22E-20	450.8016	36
1384.36634	1.83E-20	493.9847	37
1384.40111	1.99E-20	490.2974	39
1384.43068	2.02E-20	492.6180	40
1384.44980	1.36E-20	558.1388	38
1384.45509	7.15E-21	694.3472	40
1384.47073	1.98E-20	484.9207	38
1384.58726	5.38E-21	755.9758	41
1384.65517	1.08E-20	608.1866	39
1384.65742	2.12E-20	460.1980	36
1384.68577	3.96E-21	821.5877	42

Table 4.3.2

Données spectroscopiques issues de Hitran96 des principales raies de SO₂ apparaissant sur la figure 4.3.4.

Dans la première partie, nous avons vu la description théorique qui sous-tend les spectres observés. A partir de ces résultats expérimentaux, nous pouvons alors tenter de déduire la concentration de polluant injecté dans la flamme. Avant cela, il faut modéliser la cuve particulière que constitue le brûleur.

Le brûleur est considéré comme divisé en trois cuves distinctes ainsi que le présente la figure 4.3.5. Deux cuves « froides » équivalentes (Cuve₁ et Cuve₃) et une cuve « chaude » composée par la région des gaz brûlés.

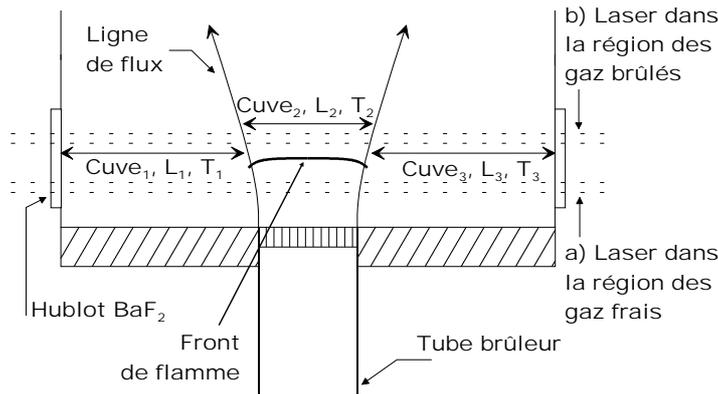
**Figure 4.3.5**

Schéma représentant le modèle appliqué au brûleur pour la déduction des concentrations.

Pour la cuve chaude, la longueur a été fixée légèrement supérieure à celle de la bouche du brûleur, puisque les lignes de flux divergent au sortir d'une conduite. Nous avons fixé L_2 à 25 mm, c'est à dire à la taille de la flamme telle qu'elle apparaît sur les images visibles. La température T_2 , est la température obtenue précédemment par mesure optique, soit 1210 K.

Pour les cuves froides, les longueurs sont, bien sûr, les longueurs complémentaires, soient 34.5 mm. La température moyenne régnant dans le milieu entourant la flamme a été choisie comme température des cuves 1 et 3, c'est à dire 540 K. Evidemment, les profils de température ne sont pas aussi abrupts, comme l'indique d'ailleurs les mesures faites au thermocouple (figure 4.1.1). Cependant, par le biais de ce modèle simple il est possible de déduire une concentration effective du SO_2 présent dans la région des gaz brûlés.

A partir des considérations théoriques décrites en première partie, nous avons alors utilisé un algorithme d'ajustement. Pour le calcul des fonctions de partitions ro-vibrationnelles, nous avons utilisé l'approximation polynomiale rappelée au paragraphe 2.1.1 de la première partie, avec les coefficients issus de Hitran96 reproduits dans la table 4.3.3.

Plage de Température		70 K – 500 K	500 K – 1500 K
Coefficients H ₂ O :	a	-4.440500	-9.432700E+01
	b	0.276780	8.190300E-01
	c	1.253600E-03	7.400500E-05
	d	-4.893800E-07	4.243700E-07
Coefficients SO ₂ :	a	-2.405600E+02	-2.116200E+04
	b	1.110100E+01	1.184600E+02
	c	2.216400E-02	-1.664800E-01
	d	5.233400E-05	1.682500E-04

Table 4.3.3

Coefficients issus de Hitran96 pour l'approximation polynomiale de la fonction de partition du SO_2 et de H_2O .

L'algorithme fut primitivement développé par A. Hamdouni [23] pour la simulation de spectres atmosphériques terrestres, puis modifié en un programme d'ajustement de spectres de laboratoire [24]. Enfin, il a été à nouveau modifié pour simuler notre brûleur. Dans ce programme, tous les paramètres sont fixés, exceptées les concentrations moléculaires.

Les spectres, expérimental et synthétique ajusté, sont représentés sur la figure 4.3.6. Nous avons en outre fait figurer dans la partie inférieure de la figure un agrandissement du

résidu, qui n'excède jamais 2%. La pression partielle de SO₂ ainsi déduite est de 1.51 torr. L'écart quadratique moyen global est de $1.4 \cdot 10^{-4}$.

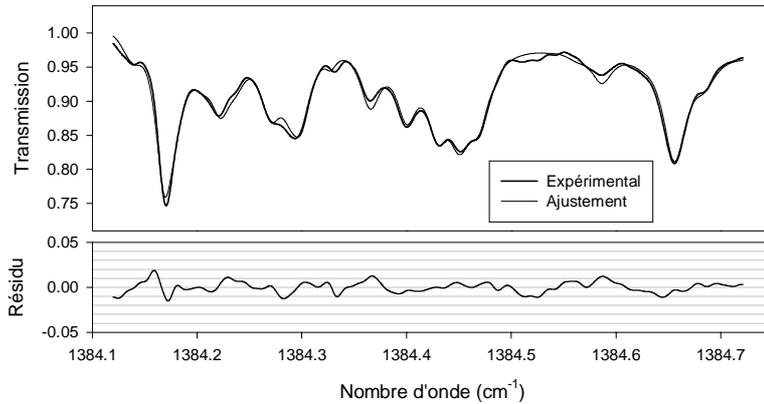


Figure 4.3.6
Spectre expérimental et spectre synthétique ajusté du dioxyde de soufre dans la région des gaz brûlés ; en bas est indiqué le résidu.

Afin de valider ce modèle, somme toute simple, décrivant le brûleur comme une succession de trois cuves, nous avons réajusté le spectre expérimental en modélisant le brûleur par une structure de 16 couches de longueurs et températures connues. La structure découle directement du profil de température mesuré à l'aide du thermocouple. Par ce nouveau modèle, plus lourd, la pression partielle de SO₂ déduite est de 1.55 torr. L'écart quadratique moyen est amélioré et passe à $0.9 \cdot 10^{-4}$. Ce dernier résultat est cohérent avec la première méthode d'ajustement.

Enfin, un tel dispositif peut être utilisé comme détecteur de dioxyde de soufre. Auquel cas le paramètre intéressant est la limite de détection. Le rapport signal sur bruit de notre spectromètre à diode laser est de l'ordre de 1000, nous nous fixons alors un critère de détection assez strict : une raie d'absorption est détectable dans le cas où l'absorbance est dix fois plus grande que le niveau de bruit. Autrement dit, 1% d'absorbance est détectable. Considérant la raie de SO₂ la plus intense qui apparaît sur les spectres (la grande raie située à droite) ce critère entraîne, dans nos conditions expérimentales, une limite de détection correspondant à une concentration de 0.1 %.

5. Conclusion

Un brûleur destiné à être utilisé comme source d'un radiomètre hétérodyne a ainsi été conçu et réalisé. Les méthodes de caractérisation que nous avons mises en œuvre tendent à montrer qu'autant une flamme naturelle qu'une flamme dopée de SO₂ devrait présenter des raies d'émission décelables. Pour une flamme naturelle, l'eau à haute température produite par la réaction de combustion est un excellent émetteur. Une flamme dopée au SO₂ gagne une contribution radiative dans le moyen infrarouge comme l'a montré un dispositif large bande comme la radiométrie par thermographie infrarouge.

Enfin, nous avons voulu montrer l'utilité de la spectroscopie d'absorption par diode laser accordable comme technique de caractérisation de dispositif de combustion in situ. Il s'agit d'un large champ d'application de cette technique d'analyse.

6. Références

- 1 Association technique de l'industrie du gaz en France, La combustion des gaz et les flammes, Collection des techniques gazières, Paris, 1973
- 2 M. Gerstein, O. Levine et E. L. Wong, Fundamental flame velocities of pure hydrocarbons, National Advisory Committee for Aeronautics, Research Memorandum E50G24, 1950
- 3 R. Borghi et M. Destriau, La combustion et les flammes, Editions Technip, Paris, 1995
- 4 R. Borghi et M. Champion, Modélisation et théorie des flammes, Editions Technip, Paris, 2000
- 5 R. M. Fristom et A. A. Westenberg, Flame Structure, McGraw-Hill, New York, 1965
- 6 A. G. Gaydon et H. G. Wolfhard, Flames, Chapman and Hall, London, 1970
- 7 J. C. Biordi, C. P. Lazzara et J. F. Papp, Flame structure studies of CF₃Br-inhibited methane flames, Journal of Physical Chemistry, **81**, 12, 1139-1145, 1977
- 8 C. P. Lazzara, J. C. Biordi et J. F. Papp, Concentration profiles for radical species in a methane-oxygen-argon Flame, Combustion and Flame, **21**, 371-382, 1973
- 9 P. Arquès, Inflammation combustion pollution, Collection Technologies, Masson, Paris, 1992
- 10 P. G. Hill et A. Kapil, The relation between cyclic variations in spark ignition engines and the small structure of turbulence, Combustion and Flame, **78**, 237-247, 1989
- 11 A. Van Maaren, D. S. Thung, L. P. H. De Goeij, Measurement of flame temperature and adiabatic burning velocity of methane/air mixtures, Combustion Science and Technology, **96**, 327-344, 1994
- 12 G. E. Andrews et D. Bradley, The burning velocity of methane-air mixtures, Combustion and Flame, **19**, 275-288, 1972
- 13 G. Bonnier et E. Devin, Couples thermoélectriques, Caractéristiques et mesure de température, Technique de l'Ingénieur, traité Mesures et Contrôle
- 14 D. Bradley et K. J. Matthews, Measurement of high gas temperature with fine wire thermocouples, Journal of Mechanical Engineering Science, **10**, 4, 299-305, 1968
- 15 D. Bradley et A. G. Entwistle, Determination of the emissivity, for total radiation, of small diameter platinum-10% rhodium wires in the temperature range 600-1450°C, British Journal of Applied Physics, **12**, 708-711, 1961

- 16 C. Davisson et J. R. Weeks, The relation between the total thermal emissive power of a metal and its electrical resistivity, *Journal of the Optical Society of America*, **8**, 5, 581-607, 1924
- 17 Y. S. Touloukian, *Thermophysical properties of matter*, IFI/Plenum, New York, 1979
- 18 L. S. Rothman, C. P. Rinsland, A. Goldman, S. T. Massie, D. P. Edwards, J. M. Flaud, A. Perrin, C. Camy-Peyret, V. Dana, J. Y. Mandin, J. Schroeder, A. McCann, R. R. Gamache, R. B. Wattson, K. Yoshino, K. V. Chance, K. W. Jucks, L. R. Brown V. Nemtchinov and P. Varanasi, The HITRAN Molecular Spectroscopic Database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 Edition, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **60**, 665-710, 1998
- 19 S. M. Schoenung et R. K. Hanson, CO and Temperature measurements in a flat flame by laser absorption spectroscopy and probe techniques, *Combustion Science and Technology*, **24**, 227-237, 1981
- 20 B. Rosier, P. Gicquel, D. Henry et A. Coppalle, Carbon Monoxide concentrations and temperature measurements in a low pressure CH₄-O₂-NH₃ flame, *Applied Optics*, **27**, 2, 360-364, 1988
- 21 J. Wang, M. Maiorov, D. S. Baer, D. Z. Garbuzov, J. C. Connolly et R. K. Hanson, In situ combustion measurements of CO with diode laser absorption near 2.3 μm, *Applied Optics*, **39**, 30, 5579-5589, 2000
- 22 R. Pointeau, *Nouveau traité de chimie minérale*, **12**, Masson, Paris, 1958
- 23 A. Hamdouni, A. Barbe, P. Demoulin et R. Zander, Retrieval of ozone vertical column amounts from ground-based high resolution infrared solar spectra, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **57**, 1, 11-22, 1997
- 24 C. Boussin, B. L. Lutz, A. Hamdouni, C. de Bergh, Pressure broadening and shift coefficients for H₂, He and N₂ in the 3ν₂ band of ¹²CH₃D retrieved by a multispectrum fitting technique, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **63**, 49-84, 1999

Symboles utilisés dans la 3^{ème} partie

\bar{v}	Vitesse moyenne des gaz dans une conduite
φ	Richesse d'un mélange
C	Capacité
C_p	Chaleur spécifique
d	Diamètre d'une conduite
D	Diamètre d'un thermocouple
D_j	Coefficient de diffusion de l'espèce j
E''_{jki}	Niveau d'énergie le plus bas d'une transition
E_a	Energie d'activation d'une réaction
E_{et}	Energie fournie par une étincelle
h	Coefficient d'échange convectif
k_n	Constante d'Arrhenius
L_0	Luminance de la source visée par la caméra
L^0	Luminance de Planck
L_{amb}	Luminance parasite reçue par la caméra (c'est à dire autre qu'émission par l'objet)
L_{cam}	Luminance reçue par la caméra IR
L_m	Longueur minimale d'établissement du régime linéaire
L_{SO_2}	Luminance émise par le SO_2
n	Ordre d'une réaction
n_{ci}	Concentration de combustible
n_j	Concentration massique de l'espèce j
N_j	Proportion stœchiométrique de l'espèce j
Nu	Nombre de Nusselt
P_1	Pression au voisinage du front de flamme
P_2	Pression sous le front de flamme
Pr	Nombre de Prandtl
Q	Energie de réaction
r	Coordonnée radiale
Re	Nombre de Reynolds
$R_T(\lambda)$	Réponse globale de la caméra
$S_{jki}(T_j)$	Intensité d'une transition
T	Température
T_0	Température des gaz frais avant préchauffage si ce dernier a lieu
T_a	Température de l'environnement entourant l'objet visé par la caméra
T_{atm}	Température de l'atmosphère
T_e	Température de l'enceinte de combustion
T_G	Température des gaz autour d'un thermocouple
T_{gb}	Température stationnaire des gaz brûlés
T_i	Température des gaz frais
U	Vitesse de réaction
v	Vitesse des gaz brûlés
V_{et}	Tension d'allumage
v_F	Vitesse du front de flamme
v_i	Vitesse des gaz frais
z	Coordonnée d'altitude
α	Absorptivité des parois de l'enceinte

α_G	Angle de Gouy
δ_f	Epaisseur du front de flamme
ε	Emissivité de l'atmosphère
ε_{SO_2}	Emissivité du SO ₂
ε_{th}	Emissivité des fils du thermocouple
λ	Conductivité thermique des gaz
λ_{th}	Conductibilité thermique
μ	Viscosité dynamique
ν	Viscosité cinématique
ρ	Densité des gaz brûlés
ρ_i	Densité des gaz frais
σ	Constante de Stephan Boltzmann
σ_{jki}	Nombre d'onde central d'une transition
τ_{atm}	Transmission de l'atmosphère

RADIOMETRIE HETERODYNE

1. Introduction

Les éléments principaux du radiomètre hétérodyne ont été détaillés précédemment. Nous avons vu en détail la physique des lasers à semi-conducteurs : de tels lasers nous serviront d'oscillateur local. Le système de combustion détaillé dans la partie précédente sera quant à lui, notre source.

Tout d'abord nous présenterons les principes de base de la détection hétérodyne afin d'explicitier en quoi cette méthode permet la spectrométrie. Nous préciserons alors la physique du mélange optique. Nous pourrions ainsi étudier en quoi consiste un radiomètre hétérodyne idéal et nous introduirons les dégradations subies par un instrument dont le modèle se situe en dehors de ce cadre idéal, ce qui est précisément le cas de notre instrument dont nous exposerons la mise en œuvre expérimentale.

Les résultats de l'instrument sont des spectres d'émission moléculaire. Nous discuterons sur ces résultats et un modèle théorique simple d'émission dans le cadre de notre brûleur sera développé. Les résultats obtenus peuvent être largement améliorés, nous verrons par quels biais, ce qui introduira les perspectives de notre radiomètre hétérodyne.

2. Théorie hétérodyne

2.1. Présentation historique

2.1.1. Les pionniers

L'histoire de la détection hétérodyne débute en 1902 par un brevet de Fessenden intitulé « Transmission sans fil » (Wireless signaling) où il est question de transmettre des signaux aux fréquences actuellement nommées radios puis de les recombinaison afin de générer des battements audibles. En 1913, on doit à Hogan [1] l'idée de ne transmettre qu'une onde sur deux et de générer la seconde au niveau du récepteur : c'est la notion d'oscillateur local qui est ainsi établie. Les systèmes alors opérationnels ne sont bons qu'à transmettre du Morse, les distorsions étant rédhibitoires. Durant la première guerre mondiale, Edwin H. Armstrong est dans le corps des transmissions de l'armée des Etats-Unis. Il perfectionne alors les systèmes existants pour mettre au point en 1921 les récepteurs radio superhétérodynes [2], toujours actuellement employés.

Dans le domaine des ondes radios et millimétriques, les récepteurs hétérodynes sont toujours en développement et très employés pour des applications astrophysiques et atmosphériques [3].

2.1.2. *La détection hétérodyne optique*

Ce type de détection doit parfaitement être réalisable dans le domaine des fréquences optiques ; l'expérience historique eut lieu en 1955 [4]. Dans cette expérience, le battement entre deux composantes Zeeman d'une raie d'émission spectrale visible a été observé.

En 1960, la première réalisation du Maser et puis du Laser, constitue une avancée majeure dans la réalisation de la détection hétérodyne submillimétrique et optique, puisque ces systèmes offrent l'oscillateur local idéal dans ces gammes de fréquence. En 1961, le laser étant viable, Forrester envisage le mélange optique comme un outil spectroscopique [5]. Dans le domaine de l'infrarouge moyen, les premières réalisations ont été menées par Teich et al. [6].

2.1.3. *Les applications*

Les avantages incomparables qu'offre la détection hétérodyne en ont fait une importante technique de détection et caractérisation optique dans l'infrarouge moyen, domaine où de nombreuses molécules présentent un spectre de ro-vibration. Une première application est la spectrométrie. Un spectromètre hétérodyne est très résolutif (résolvançe $> 10^6$), et est, théoriquement, limité par le bruit de grenaille. D'autre part le filtrage des fréquences de la bande d'analyse se fait dans la gamme des fréquences radios, et sans dispositif optique. Ceci est un avantage car l'adjonction dans un système d'un filtre optique revient à introduire dans le montage un corps rayonnant parasite. Un appareil si résolutif est parfaitement adapté pour la spectroscopie sub-doppler. Cette dernière caractéristique en fait un instrument idéal pour sonder les constituants minoritaires des couches supérieures de l'atmosphère. L'instrument peut résoudre les raies d'absorption des molécules d'où l'on tire des informations quantitatives. Le spectromètre peut être utilisé selon deux modes : comme radiomètre où la source est le gaz dont on collecte l'émission thermique, ou bien comme spectromètre où la source est le soleil et l'on observe les raies d'absorption occasionnées par l'atmosphère. De nombreux auteurs ont mis au point et utilisé un tel spectromètre pour l'analyse atmosphérique, la détection distante de polluants, la mesure de constituants à l'état de trace, l'oscillateur local étant un laser CO₂ : Menzies et Shumate [7], King et al. [8], Seals et Peyton [9], Thiebeaux et al. [10], Jain [11]. Le développement des lasers à semi-conducteurs émettant dans l'infrarouge moyen a permis de réitérer ce type d'expérience avec un oscillateur local accordable. L'initiative fut due à Frerking et Muehlner [12] et ce type de travaux furent poursuivis par notamment Hoell et al. [13], Glenar et al. [14], Fukunishi et al. [15] et Parvitte et al. [16].

Un spectromètre hétérodyne peut également être employé comme radiomètre passif. Ainsi il est possible de caractériser de faibles émissions provenant de sources chaudes atmosphériques ou d'objets extraterrestres (recherche de planètes, caractérisation des atmosphères des planètes du système solaire, caractérisation d'étoiles,...). Ces applications astronomiques ont été entreprises entre autres par Kostiuk et Mumma, [17], par Betz et al. [18], par McElroy [19], de telles expériences sont toujours en cours, voir par exemple Schmülling et al. [20].

La grande résolution du récepteur hétérodyne en fait un instrument privilégié pour la spectroscopie moléculaire en régime sub-doppler [21], ou pour la calibration de fréquences d'absorption moléculaire [22]. La grande sensibilité est attractive pour la détection de signaux faibles, comme par exemple en cavity ringdown spectroscopy [23].

D'autres applications interviennent dans le domaine des systèmes radars, la communication optique [24, 25], la vélocimétrie [26, 27].

La passivité d'un tel radiomètre en fait un instrument privilégié dans le domaine militaire.

2.2. Principe

Nous allons voir dans ce qui suit deux descriptions de principe de la détection hétérodyne. Le but étant de voir le phénomène opérant la transposition de fréquence, et dans quelle mesure cette technique permet la spectrométrie.

2.2.1. Battement de deux ondes planes

Considérons le cas idéal de deux ondes planes : une onde représentant l'oscillateur local dont les grandeurs seront indexées OL, et une onde représentant le signal dont les grandeurs seront indexées S. Ces deux ondes, supposées avoir la même polarisation, sont superposées sur un détecteur quadratique. La non-linéarité du détecteur est l'origine du phénomène de battement. Le photo-courant délivré alors par le détecteur s'écrit :

$$i_{ph}(t) = \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \left\langle [E_{OL} \cdot \cos(\omega_{OL} \cdot t) + E_S \cdot \cos(\omega_S \cdot t + \varphi)]^2 \right\rangle_{\tau_d}, \quad (2.2.1)$$

où η_d est le rendement quantique du détecteur et $\bar{\nu}$ la fréquence moyenne des rayonnements incidents. τ_d est le temps de réponse du détecteur, temps sur lequel s'effectue la moyenne ; ce temps est très grand devant la période des oscillations optiques. On développe alors l'expression, il vient :

$$i_{ph}(t) = \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \left[\frac{E_{OL}^2}{2} + \frac{E_S^2}{2} + E_{OL} \cdot E_S \langle \cos[(\omega_{OL} + \omega_S)t + \varphi] + \cos[(\omega_{OL} - \omega_S)t - \varphi] \rangle_{\tau_d} \right]. \quad (2.2.2)$$

Il est d'usage d'argumenter que le terme en $\cos[(\omega_{OL} + \omega_s)t + \varphi]$ est systématiquement en dehors de la bande passante du détecteur. Mais ce terme n'a pas de signification physique réelle puisqu'un traitement quantique du mélange optique montre que ce terme n'existe pas [28].

Si nous introduisons l'hypothèse supplémentaire que :

$$\frac{2 \cdot \pi}{\omega_{OL} - \omega_s} \gg \tau_d, \quad (2.2.3)$$

autrement dit que la fréquence de battement est dans la bande passante électrique du détecteur – hypothèse réalisée en pratique quand les fréquences de l'oscillateur local et de la source sont suffisamment proches – et bien l'équation (2.2.2) devient :

$$i_{ph} = \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{v}} \left[\frac{P_{OL} + P_s}{2} + \sqrt{P_{OL} \cdot P_s} \cos[(\omega_{OL} - \omega_s)t - \varphi] \right]. \quad (2.2.4)$$

En éliminant la composante continue du photo-courant, il apparaît que le signal issu du détecteur est proportionnel à la racine carré de la puissance du signal ; le spectre du photo-courant est constitué de deux pics de Dirac à la fréquence $\omega_{OL} - \omega_s$ et $-\omega_{OL} + \omega_s$, c'est à dire une image du spectre de la source mais dupliquée et transposée. Notons d'ores et déjà que cette duplication du spectre fait d'un récepteur hétérodyne un récepteur à double bande latérale.

2.2.2. Battement d'une onde plane et d'une onde polychromatique

Nous reprenons le raisonnement ci-dessus, mais cette fois, considérons que la source émet une onde polychromatique que l'on peut écrire :

$$\sum_i E_{Si} \cdot \cos(\omega_{Si} \cdot t + \varphi_i). \quad (2.2.5)$$

Par un traitement identique, il vient :

$$i_{ph}(t) = \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{v}} \left[\frac{P_{OL} + P_s}{2} + \sum_i E_{OL} \cdot E_{Si} \cdot \cos[(\omega_{OL} - \omega_{Si})t - \varphi_i] \right. \\ \left. + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{E_{Si} E_{Sj}}{2} \cos[(\omega_{Sj} - \omega_{Si})t + \varphi_i - \varphi_j] \right]. \quad (2.2.6)$$

Or, si cette fois nous ne conservons que la composante continue du photo-courant, ce dernier s'écrit :

$$i_{ph}(t) = \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{v}} \left[\frac{P_{OL} + P_s}{2} + E_{OL} \cdot E_{Si} (\omega_{Si} = \omega_{OL}) \cdot \cos(\varphi_i) \right]. \quad (2.2.7)$$

Il apparaît alors que parmi les composantes de la source polychromatique, seule la composante E_{Si} dont la fréquence est identique à celle de l'oscillateur local contribue au photo-courant (plus précisément à la composante continue du photo-courant). Ici s'explique en quoi la détection des battements optiques s'applique à la réalisation de spectromètres. Si de

plus l'oscillateur local est une source monochromatique accordable en fréquence, on peut alors résoudre une partie du spectre optique de la source.

2.3. Le mélange optique

2.3.1. Cadre classique

Un traitement complet du mélange optique utilise le formalisme des fonctions de cohérence décrites par Mandel et al. [29]. Ces fonctions prennent en compte les effets de cohérence spatio-temporelle, et ne sont rien d'autre que des fonctions de corrélation. La cohérence entre deux champs existe alors lorsqu'il existe des corrélations spatiales et temporelles non nulles entre ces deux champs.

Par exemple, reprenons les deux expériences historiques d'interférences lumineuses. Dans le cas de l'interféromètre de Michelson, deux champs sont remélangés en un endroit de l'espace, sachant que l'un d'eux a subi un retard. Dans ce cas, la figure d'interférence traduit la corrélation temporelle qui existe entre les deux champs.

Dans le cas de l'expérience des trous d'Young, nous avons deux champs issus de deux endroits différents de l'espace. La figure d'interférence produite traduit la corrélation spatiale qui existe entre ces deux champs.

Dans ce qui va suivre, nous décrirons l'onde lumineuse en terme de champ électrique scalaire sans se soucier de la polarisation. Nous supposerons le champ à symétrie radiale, afin de ne pas repérer un point du plan par un vecteur et ainsi alourdir les écritures. La représentation de ce champ électrique se fera sur la base du signal analytique complexe [30], à savoir, un champ réel peut s'écrire comme une intégrale de Fourier :

$$E^r(r, t) = \int_{-\infty}^{\infty} a(r, \omega) \cdot e^{-i\omega t} d\omega, \quad (2.3.1)$$

le signal analytique complexe associé est alors :

$$E(r, t) = \int_0^{\infty} a(r, \omega) \cdot e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.3.2)$$

Parmi les nombreuses propriétés de cette dernière écriture, notons que :

$$2 \cdot \text{Re}[E(r, t)] = E^r(r, t). \quad (2.3.3)$$

Dans ce qui suit nous considérerons les champs dans un plan donné, par exemple le plan d'un détecteur ; ce plan étant pris comme origine de la propagation, la variable r représente $r = (x, y, 0)$.

Spectre du photo-courant

Le calcul qui va suivre reprend la démarche de Cummins et Swinney [31], dans un cadre plus général (prise en compte de la cohérence spatiale). Soit $i(t)$ le courant délivré par un détecteur photovoltaïque éclairé par un rayonnement. En vertu du théorème de Wiener-

Khintchine, le spectre de puissance de ce courant est proportionnel à la transformée de Fourier de l'autocorrélation du courant, c'est à dire :

$$P_i(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega\tau} \langle i(t) \cdot i(t + \tau) \rangle d\tau. \quad (2.3.4)$$

La probabilité pour qu'un photo-électron soit émis au temps t par le détecteur est :

$$W(t) = \int_A \eta(r) \cdot E^*(r, t) \cdot E(r, t) \cdot dr, \quad (2.3.5)$$

où l'on reconnaît l'intensité instantanée incidente sur le détecteur $E^*(r, t) \cdot E(r, t)$; $\eta(r)$ décrit la distribution spatiale de l'efficacité quantique du détecteur ; nous incluons dans cette contribution les constantes : 2π , liée à la symétrie, $(h\bar{\nu})^{-1}$ où $\bar{\nu}$ est la fréquence moyenne de la radiation, et $(2z_0)^{-1}$ l'inverse de l'impédance du vide. L'intégration porte sur la surface A du détecteur, cette intégration peut être étendue de $-\infty$ à $+\infty$, considérant que l'efficacité quantique est nulle en dehors des limites physiques du détecteur. Or :

$$\langle i(t) \cdot i(t + \tau) \rangle = e^2 \cdot \langle W(t) \cdot W(t + \tau) \rangle, \quad (2.3.6)$$

il reste ainsi à évaluer l'autocorrélation de la probabilité de génération d'un photo-électron.

Afin de simplifier le processus de photo-détection, considérons que le courant $i(t)$ est constitué d'une série discrète de pulses supposés infiniment fins. $\langle W(t) \cdot W(t + \tau) \rangle$ se scinde alors en deux contributions. Premièrement l'électron considéré au temps t est le même que celui considéré au temps $t + \tau$. Dans ce cas :

$$\langle W(t) \cdot W(t + \tau) \rangle = \langle W(t) \rangle \cdot \delta(\tau) = \delta(\tau) \cdot \int \eta(r) \langle I(r, t) \rangle \cdot dr, \quad (2.3.7)$$

et remarquons d'ores et déjà que ce terme contribuera au spectre du photo-courant comme signal à spectre blanc ; il s'agit du terme de bruit de grenaille. Deuxièmement, les électrons considérés aux temps t et $t + \tau$ sont distincts, alors :

$$\langle W(t) \cdot W(t + \tau) \rangle = \int \int \eta(r) \cdot \eta(r') \langle E^*(r, t) \cdot E(r, t) \cdot E^*(r', t + \tau) \cdot E(r', t + \tau) \rangle \cdot dr \cdot dr'. \quad (2.3.8)$$

Le terme entre crochet n'est autre que la fonction de corrélation spatio-temporelle d'ordre deux du champ, que typiquement on note $\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$ [32]. En définitive, l'autocorrélation du photo-courant se résume à :

$$\langle i(t) \cdot i(t + \tau) \rangle = e^2 \cdot \delta(\tau) \cdot \int \eta(r) \langle I(r, t) \rangle \cdot dr + e^2 \cdot \int \int \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \Gamma^{(2)}(r, r', \tau) \cdot dr \cdot dr', \quad (2.3.9)$$

et le spectre de puissance du photo-courant se détermine par (2.3.4). Rappelons tout de même que nous parlons ici de mélange optique, c'est à dire que le champ $E(r, t)$ considéré dans le plan du détecteur, est la superposition linéaire d'un champ $E_{OL}(r, t)$ issu de l'oscillateur local et d'un champ $E_S(r, t)$ issu de la source thermique à caractériser. Mathématiquement dit :

$$E(r, t) = E_{OL}(r, t) + E_S(r, t). \quad (2.3.10)$$

Ainsi, le développement du calcul de $\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$, que nous ne ferons pas ici, fait apparaître 16 termes (cf. Annexe). Par l'adjonction d'une hypothèse supplémentaire, parfaitement

réalisable en pratique, à savoir que le champ issu de l'oscillateur local et le champ issu de la source sont statistiquement indépendants, de nombreux termes du développement de $\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$ s'annulent. Cette hypothèse nous permet d'autre part de simplifier certaines corrélations d'ordre deux en produit de deux corrélations d'ordre un, par exemple :

$$\langle E_S^*(r, t)E_S(r, t)E_{OL}^*(r', t + \tau)E_{OL}(r', t + \tau) \rangle = \langle E_S^*(r, t)E_S(r, t) \rangle \langle E_{OL}^*(r', t + \tau)E_{OL}(r', t + \tau) \rangle. \quad (2.3.11)$$

De manière à alléger l'écriture, les corrélations intervenant dans l'expression du spectre du photo-courant peuvent se réécrire en utilisant les définitions suivantes des fonctions de cohérences, respectivement il s'agit de la fonction de cohérence temporelle d'ordre un, de la fonction de cohérence spatio-temporelle ou mutuelle, de la fonction de cohérence spatio-temporelle d'ordre deux :

$$\begin{aligned} \Gamma^{(1)}(r, \tau) &= \langle E^*(r, t)E(r, t + \tau) \rangle \\ \Gamma(r, r', \tau) &= \langle E^*(r, t)E(r', t + \tau) \rangle \\ \Gamma^{(2)}(r, r', \tau) &= \langle E^*(r, \tau)E^*(r', t + \tau)E(r, \tau)E(r', t + \tau) \rangle. \end{aligned} \quad (2.3.12)$$

Ainsi :

$$\begin{aligned} \Gamma^{(2)}(r, r', \tau) &= \Gamma_{OL}^{(2)}(r, r', \tau) + \Gamma_S^{(2)}(r, r', \tau) + \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_S(r', t + \tau) \rangle + \\ &\Gamma_S(r, r', \tau)\Gamma_{OL}^*(r, r', \tau) + \Gamma_S^*(r, r', \tau)\Gamma_{OL}(r, r', \tau) \end{aligned} \quad (2.3.13)$$

où évidemment l'indice OL se rapporte au champ de l'oscillateur local et l'indice S au champ issu de la source. Utilisant les mêmes hypothèses, l'intensité apparaissant dans le premier membre de l'équation (2.3.9) peut également se réécrire :

$$\langle I(r, t) \rangle = \langle I_{OL}(r, t) \rangle + \langle I_S(r, t) \rangle. \quad (2.3.14)$$

Ceci peut être surprenant, dans la mesure où l'on s'attend à voir apparaître un terme d'interférence. Mais, l'intensité apparaissant dans le premier membre de (2.3.9) est la contribution du processus de détection avec émission d'un seul photo-électron, le terme d'interférence est en fait bien présent, il apparaît dans $\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$.

Arrivé à ce stade du calcul, des hypothèses supplémentaires sont nécessaires, si l'on veut établir une expression analytique "signifiante" du spectre du photo-courant. Ce qui suit reprend le développement de Andrade et Rye [33].

Première hypothèse, l'oscillateur local est un laser idéal d'intensité constante. Comme pour la cohérence d'ordre deux la phase du champ n'intervient pas, il vient :

$$\Gamma_{OL}^{(2)}(r, r', \tau) = \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle. \quad (2.3.15)$$

D'autre part, la source sera une source thermique. On supposera que les fluctuations du champ obéissent à une statistique gaussienne. Dans ce cas :

$$\Gamma_S^{(2)}(r, r', \tau) = \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_S(r', t) \rangle + |\Gamma_S(r, r', \tau)|^2. \quad (2.3.15)$$

On peut alors réécrire $\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$ en tenant compte de ces hypothèses :

$$\begin{aligned} \Gamma^{(2)}(r, r', \tau) = & \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle + \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_S(r', t) \rangle + |\Gamma_S(r, r', \tau)|^2 + \\ & \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle + \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_S(r', t) \rangle + 2\text{Re}[\Gamma_S(r, r', \tau) \Gamma_{OL}^*(r, r', \tau)]. \end{aligned} \quad (2.3.16)$$

Enfin, ultime étape et nouvelle hypothèse réaliste : l'intensité du champ issu de l'oscillateur local (hypothétiquement déjà considéré comme un laser) est très supérieure à celle du champ issu de la source. Donc :

$$I_S \ll I_{OL}, \quad (2.3.17)$$

ce qui est toujours vérifié quand la détection hétérodyne se fait dans de bonnes conditions. On injecte alors toutes ces dernières simplifications, résultantes d'hypothèses supplémentaires, dans l'équation (2.3.9) exprimant l'autocorrélation du photo-courant. Puis, pour obtenir le spectre de puissance on en prend alors la transformée de Fourier. Il vient :

$$\begin{aligned} P_i(\omega) = & \frac{e^2}{2\pi} \int \eta(r) \langle I_{OL}(r, t) \rangle \cdot dr + \frac{e^2 \cdot \delta(\omega)}{2\pi} \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle \cdot dr dr' \\ & + \frac{e^2}{\pi} \text{Re} \left[\iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot dr dr' \int G_S(r, r', \Omega) \cdot G_{OL}(r, r', \omega + \Omega) \cdot d\Omega \right], \end{aligned} \quad (2.3.18)$$

avec $G_S(r, r', \Omega)$, encore appelée densité spectrale de puissance croisée, la transformée de Fourier de $\Gamma_S(r, r', \tau)$. Le premier terme de cette expression constitue un bruit blanc, c'est le bruit de grenaille (il avait déjà été évoqué lors de l'établissement de (2.3.7)), le deuxième est évidemment la composante continue du spectre du photo-courant et enfin le dernier terme constitue le terme de mélange, c'est ce terme qui contient l'information des battements optiques.

On peut encore simplifier cette expression. Considérant que l'oscillateur local est un laser, la densité spectrale d'une telle source est très petite devant celle de la source thermique. Comparée à $G_S(r, r', \Omega)$, la densité spectrale de l'oscillateur local peut s'écrire :

$$G_{OL}(r, r', \omega + \Omega) = \langle E_{OL}(r, t) \rangle \cdot \langle E_{OL}^*(r', t) \rangle \cdot \delta(\Omega - \omega_{OL}), \quad (2.3.19)$$

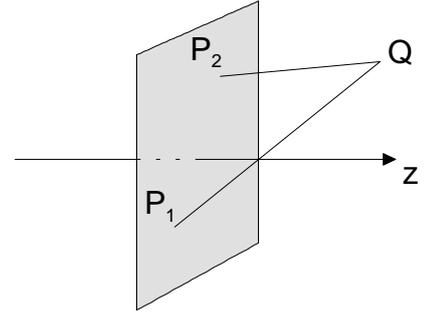
ainsi le spectre de battement devient :

$$P_{i, \text{batt.}}(\omega) = \frac{e^2}{\pi} \text{Re} \left[\iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot G_S(r, r', \omega - \omega_{OL}) \cdot \langle E_{OL}(r, t) \rangle \cdot \langle E_{OL}^*(r', t) \rangle \cdot dr dr' \right]. \quad (2.3.20)$$

A ce stade, nous pouvons introduire une hypothèse supplémentaire concernant la source à caractériser. Cette hypothèse est la pureté spectrale croisée [34], vocable provenant d'une analogie à la génétique ; nous allons ici l'exposer en détail. Cette hypothèse n'est pas forcément évidente, Mandel donne quelques exemples pour la formation de faisceaux spectralement purs [35] et impurs.

Pureté spectrale croisée

Une perturbation électromagnétique $V(r,t)$ arrive sur un plan percé de deux pupilles P_1 et P_2 repérées par r_1 et r_2 . On considère le point Q où interfère la lumière issue de P_1 et P_2 . Soit $G(\omega)$ la densité spectrale de puissance de V au niveau des deux pupilles, et $G_Q(\omega)$ la densité spectrale de puissance au point Q . On dira qu'il y a pureté spectrale croisée quand $G(\omega) = G_Q(\omega)$.



Au point Q on peut écrire :

$$V(Q,t) = K_1 \cdot V(r_1, t - \tau_1) + K_2 \cdot V(r_2, t - \tau_2), \quad (2.3.21)$$

τ_i est le temps de propagation de P_i à Q , et K_i sont des constantes ($i = 1, 2$). La fonction d'autocohérence de la perturbation en Q est :

$$\Gamma_Q(\tau) = \langle V(Q, t + \tau) \cdot V^*(Q, t) \rangle, \quad (2.3.22)$$

ce qui se développe :

$$\begin{aligned} \Gamma_Q(\tau) = & K_1^2 \cdot \langle V^*(r_1, t) \cdot V(r_1, t + \tau) \rangle + K_2^2 \cdot \langle V^*(r_2, t) \cdot V(r_2, t + \tau) \rangle \\ & + K_1 \cdot K_2 \cdot \langle V^*(r_1, t) \cdot V(r_2, t + \Delta\tau + \tau) \rangle + K_1 \cdot K_2 \cdot \langle V^*(r_2, t) \cdot V(r_1, t - \Delta\tau + \tau) \rangle \end{aligned} \quad (2.3.23)$$

avec $\Delta\tau = \tau_2 - \tau_1$. Comme $\Gamma(r_2, r_1, -\Delta\tau + \tau) = \Gamma^*(r_1, r_2, \Delta\tau - \tau)$, par transformation de Fourier et normalisation il vient :

$$G_Q(\omega) = I(r_1) \cdot G(\omega) + I(r_2) \cdot G(\omega) + \tilde{\Gamma}(r_1, r_2, \Delta\tau + \tau) + \tilde{\Gamma}^*(r_1, r_2, \Delta\tau - \tau) \quad (2.3.24)$$

On pose l'hypothèse :

$$I(r_1) \cdot \Gamma(r_1, r_2, \Delta\tau + \tau) = \Gamma(r_1, r_1, \tau) \cdot \Gamma(r_1, r_2, \Delta\tau). \quad (2.3.25)$$

C'est cette propriété, appelée réductibilité qui est nécessaire pour qu'il y ait pureté spectrale croisée. Cela revient à décomposer la cohérence spatio-temporelle en un produit de deux termes représentant respectivement la cohérence temporelle et la cohérence spatiale. Ainsi :

$$\Gamma(r_1, r_2, \Delta\tau + \tau) + \Gamma^*(r_1, r_2, \Delta\tau - \tau) = \frac{2}{I(r_1)} \Gamma(r_1, r_1, \tau) \cdot \text{Re}[\Gamma(r_1, r_2, \Delta\tau)], \quad (2.3.26)$$

et par suite la pureté spectrale croisée apparaît :

$$G_Q(\omega) = \left[I(r_1) + I(r_2) + \frac{2}{I(r_1)} \cdot \text{Re}[\Gamma(r_1, r_2, \Delta\tau)] \right] \cdot G(\omega). \quad (2.3.27)$$

Avec cette hypothèse supplémentaire, et en ajoutant l'hypothèse d'une source quasi monochromatique, on peut alors écrire que :

$$\Gamma_S(r, r', \tau) = g(\tau) \cdot \Gamma_S(r, r', 0), \quad (2.3.28)$$

et en définitive le terme de battement (2.3.20) se réécrit :

$$P_{i,\text{batt.}}(\omega) = \frac{e^2}{\pi} \text{Re} \left[G_S(\omega - \omega_{OL}) \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \Gamma_S(r, r', 0) \cdot \langle E_{OL}(r, t) \rangle \cdot \langle E_{OL}^*(r', t) \rangle \cdot dr dr' \right],$$

(2.3.29)

où l'on retrouve que le spectre du photo-courant est directement une image transposée du spectre de la source.

Ultime remarque, dans ce qui précède, nous considérons systématiquement les champs dans un plan qui coïncide avec le plan du détecteur. Mais, le calcul, selon le cas, peut être mené dans un tout autre plan. Il faut alors prendre en compte l'effet de la propagation sur l'état de cohérence du champ. Dans le vide les équations de propagation sont similaires à celles du champ [36] :

$$\nabla_r^2 \Gamma(r, r', \tau) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} \Gamma(r, r', \tau), \quad (2.3.30)$$

où l'indice r sur l'opérateur NABLA indique la coordonnée d'espace pour laquelle on applique l'opérateur. Il existe la même équation pour la coordonnée r' . Cette propagation de la cohérence implique deux conséquences. D'une part, nous l'avons déjà dit, le calcul du spectre de photo-courant peut être mené dans un tout autre plan que celui du détecteur, à condition que l'on prenne en compte la propagation. D'autre part, ces équations indiquent que le rayonnement émis par une source spatialement incohérente peut devenir spatialement cohérent au cours de la propagation de part le couplage entre la cohérence spatiale et la cohérence temporelle que sous-tend l'équation (2.3.30).

En un plan orthogonal à la propagation, le degré de cohérence d'une source incohérente est donné par la transformée de Fourier du profil d'intensité de cette source (théorème de van Cittert-Zernike). On peut alors, par le biais de masques, agir sur la distribution spatiale du degré de cohérence.

2.3.2. Cadre quantique

Dans le cadre classique, nous n'avons jamais pris en compte la nature du détecteur. Dans le cadre quantique, la description du mélange optique repose sur l'interaction du champ incident avec les électrons du détecteur. L'hamiltonien décrivant l'interaction s'écrit au premier ordre pour un ensemble d'électrons k :

$$-\frac{e}{m \cdot c} \sum_k \vec{A} \cdot \vec{p}_k, \quad (2.3.31)$$

où \vec{A} est le potentiel vecteur associé au champ incident, et \vec{p}_k l'impulsion de l'électron k . m est la masse de l'électron. Traiter le champ classiquement introduit la limite semi-classique de la description du mélange optique, en revanche, si le champ est considéré comme un opérateur, il devient un système quantique et la description s'inscrit totalement dans le cadre quantique. Il n'est pas question ici de traiter complètement le mélange optique dans le cadre de la mécanique quantique, nous n'en avons pas la compétence, cependant, il est intéressant d'esquisser cette approche.

Cohérence quantique

La description de la cohérence quantique est principalement due à Glauber [37]. Le champ E devient alors un opérateur que l'on décompose en deux contributions :

$$E(r, t) = E^+(r, t) + E^-(r, t) \quad (2.3.32)$$

où $E^+(r, t)$ (resp. $E^-(r, t)$) est la contribution à l'amplitude du champ ayant un spectre de fréquences positives (resp. négatives). $E(r, t)$ est un opérateur hermitien, $E^+(r, t)$ et $E^-(r, t)$ ne le sont pas, mais :

$$E^-(r, t) = \{E^+(r, t)\}^*, \quad (2.3.33)$$

ces opérateurs jouent un rôle particulier. $E^+(r, t)$ décrit la création d'un photon, $E^-(r, t)$ l'annihilation d'un photon. Un détecteur est un système susceptible d'absorber des photons, si les atomes qui le composent ne sont pas dans un état excité (ce qui est souvent le cas), seul l'opérateur annihilation intervient. Supposons un détecteur idéal dont on ne considère pas la dynamique, uniquement sensible au champ en un point d'espace r , la probabilité que le détecteur absorbe un photon est proportionnelle à :

$$W_{i \rightarrow f} = \langle f | E^+(r, t) | i \rangle^2, \quad (2.3.34)$$

où $|i\rangle$ est l'état initial du champ avant le processus de détection et $\langle f|$ l'état final. Pratiquement, la seule chose que l'on mesure est un taux de comptage d'électrons, il faut donc prendre en compte tous les états finals susceptibles d'être atteints lors de l'absorption. Ainsi :

$$W = \sum_f \langle f | E^+(r, t) | i \rangle^2 = \langle i | E^-(r, t) E^+(r, t) | i \rangle, \quad (2.3.35)$$

en vertu de la relation de fermeture $\sum_f |f\rangle \langle f| = 1$.

Concrètement, les sources radiatives sont d'une telle complexité que l'on ne peut atteindre une description de l'état initial du champ. L'approche est alors statistique, le taux de comptage est moyenné sur toutes les variables aléatoires influençant l'état initial du champ. La grandeur que l'on peut atteindre est ainsi :

$$\bar{W} = \left\{ \langle i | E^-(r, t) E^+(r, t) | i \rangle \right\}_{\text{moyenné sur } i}. \quad (2.3.36)$$

On introduit l'opérateur densité :

$$\rho = \left\{ |i\rangle \langle i| \right\}_{\text{moyenné sur } i}. \quad (2.3.37)$$

Cet opérateur hermitien permet d'introduire l'approche statistique au sein d'un système quantique, il décrit le poids statistique d'un état initial du champ $|i\rangle$. Élégamment le taux de comptage moyen de photons absorbés se réécrit :

$$\bar{W} = \text{Tr} [\rho E^-(r, t) E^+(r, t)]. \quad (2.3.38)$$

Cette approche permet alors de définir une fonction de corrélation quantique du premier ordre sous la forme :

$$G^{(1)}(r, t, r', t') = \text{Tr}[\rho E^-(r, t) E^+(r', t')]. \quad (2.3.39)$$

Dans ce qui précède, le détecteur est largement idéalisé. Une description plus précise implique de considérer le système quantique absorbant le photon, par exemple un atome. Le phénomène est alors décrit par un hamiltonien prenant en compte la contribution du champ libre, de l'atome constituant le détecteur et la contribution de l'interaction de ces deux systèmes. Cette description ne sera pas menée ici, cf. Glauber [37]. Cependant, notons qu'à partir de l'équation (2.3.39), on peut réitérer le traitement du mélange optique pour deux ondes monochromatiques [28]. On retrouve le même résultat que ce qui est exposé en 2.2.1, sauf que le terme en $\omega_{OL} + \omega_s$ n'apparaît plus.

2.4. Spectromètre hétérodyne idéal

Nous venons de voir le traitement théorique du mélange optique. Nous avons vu que cette technique offre la possibilité d'effectuer de la spectrométrie. Nous allons ici considérer dans un premier temps une idéalisation d'un spectromètre hétérodyne et le caractériser. La figure 2.4.1 montre un schéma de principe du spectromètre, indépendamment de tous les éléments situés en amont, la figure schématise une façon de superposer un faisceau issu de la source à caractériser avec le faisceau issu de l'oscillateur local. Cette superposition s'effectue sur un détecteur quadratique appelé également mélangeur. Le photo-courant est ensuite analysé. Les éléments de cette analyse n'apparaissent encore pas sur cette figure.

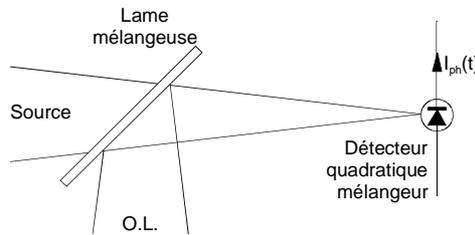


Figure 2.4.1
Schéma de principe (incomplet) d'un spectromètre hétérodyne

2.4.1. Signal de battement

Approche par les fonctions de cohérence optique

Nous nous plaçons sous les mêmes hypothèses qu'au début du paragraphe 2.3.1. Le cadre est classique, les champs scalaires (leurs vecteurs polarisation étant supposés colinéaires) et à symétrie radiale. D'après tout ce qui précède, en conservant les mêmes écritures, le photo-courant instantané généré par le détecteur du fait de son insolation par les deux champs est :

$$i_{ph}(t) = e \int \eta(r) \cdot \{E_s(r, t) + E_{OL}(r, t)\}^* \cdot \{E_s(r, t) + E_{OL}(r, t)\} \cdot dr. \quad (2.4.1)$$

Le spectre de puissance du photo-courant est une image du spectre de la source, ce qui nous intéresse est donc lié à la puissance du photo-courant, donc proportionnel à i_{ph}^2 . De plus,

cette puissance est au moins intégrée sur le temps de réponse du détecteur, ainsi il faut considérer la moyenne quadratique du photo-courant, soit :

$$\langle i_{\text{ph}}^2(t) \rangle = e^2 \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \left\langle \frac{\{E_S(r,t) + E_{\text{OL}}(r,t)\}^* \cdot \{E_S(r,t) + E_{\text{OL}}(r,t)\} \cdot \{E_S(r',t) + E_{\text{OL}}(r',t)\}^* \cdot \{E_S(r',t) + E_{\text{OL}}(r',t)\}}{\{E_S(r',t) + E_{\text{OL}}(r',t)\}^* \cdot \{E_S(r',t) + E_{\text{OL}}(r',t)\}} \right\rangle \cdot dr \cdot dr', \quad (2.4.2)$$

où l'expression dans l'intégrale est évidemment $\Gamma^{(2)}(r,r',0)$. Avec les hypothèses que les champs oscillateur local et source sont statistiquement indépendants, que l'oscillateur local est un laser parfait dont l'intensité est très supérieure à celle de la source, la contribution "intéressante" du photo-courant, autrement dit la contribution liée aux battements des deux champs devient :

$$\langle i_{\text{batt.}}^2(t) \rangle = 2 \cdot e^2 \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \text{Re}[\Gamma_S(r,r',0)\Gamma_{\text{OL}}^*(r,r',0)] \cdot dr \cdot dr'. \quad (2.4.3)$$

Pour atteindre l'expression courante du photo-courant de battement, utilisée par de nombreux auteurs, nous devons considérer deux nouvelles hypothèses : la pureté spectrale croisée des champs et leur quasi-monochromaticité [30]. Cette dernière hypothèse est toujours réalisable en pratique par l'adjonction d'un filtre optique limitant une source au spectre étendu. Dans ce cas la fonction de cohérence spatio-temporelle se réécrit :

$$\Gamma(r,r',\tau) = g(\tau) \cdot J(r,r') \cdot e^{-i\bar{\omega}\tau}, \quad (2.4.4)$$

où $\bar{\omega}$ est la pulsation moyenne du champ considéré, et $J(r,r')$ la fonction d'intensité mutuelle. Cette dernière fonction est définie par (2.4.4) pour un décalage temporel nul, c'est aussi la fonction de corrélation du champ à temps égal, soit :

$$J(r,r') = \Gamma(r,r',0) = \langle E^*(r,t)E(r',t) \rangle \quad (2.4.5)$$

car $g(0) = 1$.

Ainsi, on retrouve l'expression typique du photo-courant de battement [38] :

$$\langle i_{\text{batt.}}^2(t) \rangle = 2 \cdot e^2 \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \text{Re}[J_S(r,r') \cdot J_{\text{OL}}(r',r)] \cdot dr \cdot dr'. \quad (2.4.6)$$

Tout comme dans la section précédente, notons que ce calcul, ici exprimé dans le plan du détecteur, peut être mené dans n'importe quel autre plan du trajet optique, sous réserve que l'on prenne en compte la propagation de l'intensité mutuelle soit à travers l'espace libre soit à travers des systèmes optiques. Ceci présente un grand intérêt dans le cas d'un récepteur hétérodyne passif où la source est incohérente. En effet, il est beaucoup plus commode d'effectuer ce calcul dans le plan de l'antenne optique, dans la mesure où l'on n'a pas à considérer la propagation du champ source, mais la propagation inverse du champ oscillateur local, qui lui est cohérent [39].

Approche simplifiée

Une approche très simple peut être menée, ne faisant pas intervenir la cohérence, au cas où l'on considère un champ oscillateur local et un champ source directement comme quasi-monochromatiques et spatialement cohérents, en plus de toutes les hypothèses précédemment

supputées. Cette approche simple suffit largement dans la plupart des cas courants de détection hétérodyne. Ces champs peuvent alors s'exprimer simplement par :

$$\begin{aligned} E_s(r, t) &= E_s(r) \cdot e^{-i\omega_s t} \\ E_{OL}(r, t) &= E_{OL}(r) \cdot e^{-i\omega_{OL} t} \end{aligned} \quad (2.4.7)$$

Le photo-courant est alors (voir par exemple Kingston [40]) :

$$i_{ph}(t) = e \cdot \int \eta(r) \cdot \left\{ |E_{OL}(r)|^2 + |E_s(r)|^2 + 2\text{Re}[E_s(r) \cdot E_{OL}^*(r) \cdot e^{-i(\omega_s - \omega_{OL})t}] \right\} \cdot dr, \quad (2.4.8)$$

où les deux premiers termes dans l'intégrale représentent la composante continue du photo-courant, et le dernier terme le photo-courant de battement. Dans ce modèle simplifié, la moyenne quadratique du signal utile est ainsi :

$$\langle i_{batt.}^2(t) \rangle = 2e^2 \left| \int \eta(r) \cdot E_s(r) \cdot E_{OL}^*(r) \cdot dr \right|^2. \quad (2.4.9)$$

2.4.2. Analyse du photo-courant

Le signal de battement contient les informations de la source, et notamment le spectre optique de celle-ci. Le photo-courant doit être analysé afin d'en extraire l'information utile. Le type d'analyse dépend fortement de l'oscillateur local du spectromètre ; nous allons voir que l'oscillateur local accordable présente un grand avantage.

Le détecteur, ou, autrement dit le mélangeur, n'est en aucun cas idéal. Il présente un certain temps de réponse et donc une bande passante électrique de détection finie. Supposons que la fonction de transfert du filtre ainsi occasionné soit une fonction porte de largeur $B/2$, avec B la bande passante électrique du mélangeur. En l'absence de tout filtre radiofréquence, $[v_{OL} - B/2, v_{OL} + B/2]$ est alors la bande passante du récepteur hétérodyne, ce récepteur étant à double bande latérale, avec v_{OL} la fréquence de l'oscillateur local.

Typiquement, les puissances des signaux radiofréquences délivrés par le détecteur sont très faibles, et doivent être amplifiées. Les amplificateurs, dans le domaine radiofréquence ont souvent des fréquences de coupures basses non nulles, et ainsi, la bande de détection présente un trou au niveau des fréquences voisines de la fréquence de l'oscillateur local. Soit b la fréquence de coupure basse du système d'amplification, la bande passante du récepteur est alors $[v_{OL} - B/2, v_{OL} - b] \cup [v_{OL} + b, v_{OL} + B/2]$, ce que l'on a schématisé sur la figure 2.4.2.

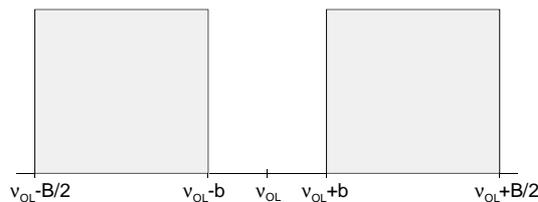


Figure 2.4.2
Schématisation de la bande passante de détection d'un récepteur hétérodyne.

Cette bande passante présente l'avantage de pouvoir être ajustée, selon les desiderata de l'expérimentateur et l'application du récepteur, par l'adjonction d'un filtre passe bas en sortie

d'amplification. Finalement, le schéma de la figure 2.4.1 du récepteur hétérodyne, prenant en compte tous ces éléments, devient le schéma représenté sur la figure 2.4.3.

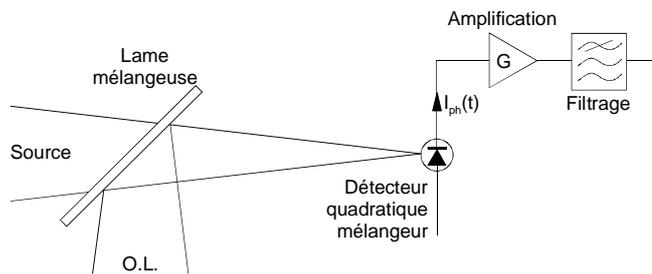


Figure 2.4.3
Schéma de principe (incomplet) d'un spectromètre hétérodyne.

Arrivé à ce stade de l'élaboration du récepteur, connaître le type d'oscillateur local est primordial pour choisir le type d'analyse radiofréquence le plus adéquat.

Oscillateur local fixe

Le cas de l'oscillateur fixe en fréquence est, dans le domaine de l'infrarouge moyen, typiquement représenté par le laser CO₂. Nous avons déjà cité de nombreux auteurs ayant réalisé des spectromètres hétérodynes de ce type dans notre présentation des applications. Utiliser un laser à gaz comme oscillateur local offre des avantages : de la puissance est disponible et les propriétés spectrales et spatiales du faisceau laser sont très proches du modèle du laser parfait. En revanche, la fixité de la fréquence émise est un inconvénient ; même si la fréquence émise par un tel laser est accordable, elle ne l'est que discrètement. L'oscillateur local étant fixe, la bande d'analyse est au mieux la bande passante du mélangeur.

La bande d'analyse étant définie, comment procéder à l'analyse elle-même ? Parmi les différentes techniques d'analyse radiofréquence (voir par exemple Faye [41] pour les détails), pour les récepteurs dans le moyen infrarouge, les trois techniques courantes sont l'analyse multiplexe à banques de filtres (maintenant désuète) [42], le récepteur super-hétérodyne où le signal de battement est remélangé à un oscillateur local radiofréquence accordable [43], et l'utilisation d'un spectromètre acousto-optique. Cette dernière technique est multiplexe, et, offrant les meilleurs avantages, est la plus courue [41]. D'une manière générale, c'est la technique d'analyse qui fixe la résolution du spectromètre (nombre de canaux dans les cas multiplexes, filtre passe bande dans le cas super-hétérodyne).

Finalement utiliser un système à oscillateur fixe est très coûteux, puisque cela nécessite un détecteur très rapide. De plus, le récepteur étant à double bande latérale, une ambiguïté dans l'analyse des spectres obtenus s'insinue. Ce dernier phénomène est connu sous le nom de repliement du spectre [44].

Oscillateur local accordable

Voyons à présent les avantages qu'offre un oscillateur local accordable, comme un laser à semi-conducteurs. Dans un premier temps, l'oscillateur accordable permet de couvrir toutes les régions du spectre, la bande d'analyse n'est ainsi plus dépendante des raies d'émission d'un

laser à gaz comme dans le cas du laser CO₂. En effet, pratiquement, dans l'infrarouge moyen, la bande passante des photodiodes n'excède pas 1.5 GHz, si l'intervalle spectral entre deux raies d'émission successives du laser à CO₂ excède 3 GHz, une partie du spectre reste hors d'atteinte. On peut alors utiliser les mêmes techniques d'analyse que celles décrites ci-dessus, sauf que cette fois on maîtrise la fréquence de l'oscillateur local [45].

Mais la continuité d'accord en fréquence que présentent les lasers à semi-conducteurs offre une autre technique d'analyse beaucoup moins lourde que celles déjà évoquées. C'est celle que nous adopterons. La voici.

Le but est justement d'éviter l'analyse radiofréquence. Complétons de nouveau le schéma du récepteur hétérodyne : il s'agit de la figure 2.4.4.

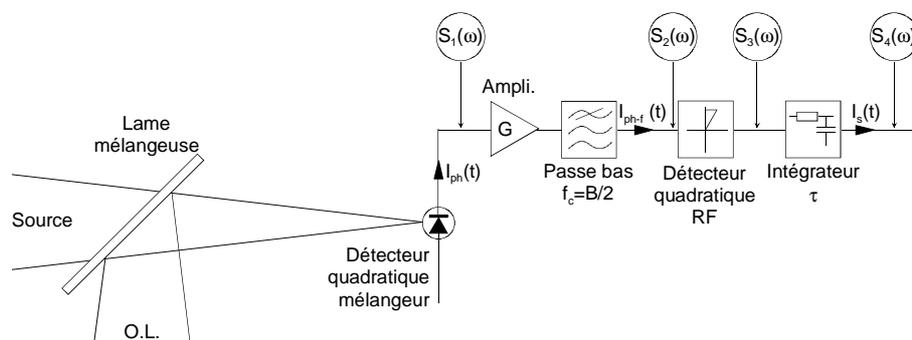


Figure 2.4.4 : Schéma (complet) d'un récepteur hétérodyne avec oscillateur local accordable.

Commentons ce schéma. Nous avons fait apparaître dans des bulles, les spectres des signaux à différents étages du récepteur. En sortie du mélangeur, nous avons le photo-courant lui-même, donc $S_1(\omega) = P_1(\omega)$, déjà exprimé, sous certaines hypothèses, en (2.3.18). Remarquons que nous ne prenons pas en compte la composante continue du photo-courant, cette dernière est filtrée par un dispositif situé en sortie du mélangeur, dispositif que nous n'avons pas représenté.

Le courant de battement est amplifié ; évidemment la bande passante des amplificateurs doit être adaptée afin de ne perdre aucune information. Puis, le photo-courant est filtré par un filtre passe bas de fréquence de coupure $B/2$. Le rôle de filtre peut être joué par le mélangeur lui-même. Nous avons appelé $I_{ph-f}(t)$ le photo-courant ainsi filtré, et $S_2(\omega)$ son spectre.

L'étage suivant est une diode de détection radiofréquence, c'est un détecteur quadratique qui délivre un signal proportionnel au carré du signal entrant, soit 'a' cette constante de proportionnalité. Autrement dit, le signal délivré par ce détecteur est proportionnel à la puissance radiofréquence du photo-courant intégrée sur toute la bande de détection. Soit $S_3(\omega)$ le spectre du signal en sortie du détecteur radiofréquence.

Ensuite nous avons représenté un intégrateur de constante de temps τ , qui dans notre cas, nous le verrons plus loin, sera le filtre passe bas d'entrée d'une détection synchrone.

Mettons tout ceci en équation. Nous avons déjà rappelé que :

$$S_1(\omega) = P_1(\omega), \quad (2.4.10)$$

où apparaît le spectre transposé de la source, ensuite le photo-courant est filtré par un filtre passe bas, que nous pouvons idéaliser, dans le domaine des fréquences, par une fonction porte centrée sur zéro et de largeur B (nous négligeons le "trou" apparaissant aux basses fréquences). Ainsi :

$$S_2(\omega) = \prod_{\frac{-B}{2}, \frac{B}{2}}(\omega) \cdot S_1(\omega), \quad (2.4.11)$$

et ceci est le spectre du photo-courant filtré $I_{\text{ph-f}}(t)$. Réécrivons le spectre du photo-courant en faisant explicitement apparaître les termes importants :

$$P_1(\omega) = S_1(\omega) = P_{i,g} + \text{Re}[G_s(\omega - \omega_{OL}) \cdot A], \quad (2.4.12)$$

avec (cf. équation (2.3.18)) :

$$P_{i,g} = \frac{e^2}{2\pi} \int \eta(r) [\langle I_{OL}(r, t) \rangle], \quad (2.4.13)$$

c'est la contribution blanche au spectre du bruit de grenaille, et avec (cf. équation (2.3.29)) :

$$A = \frac{e^2}{\pi} \cdot \iint \eta(r) \cdot \eta(r') \cdot \Gamma_s(r, r', 0) \cdot \langle E_{OL}(r, t) \rangle \cdot \langle E_{OL}^*(r', t) \rangle \cdot dr dr'. \quad (2.4.14)$$

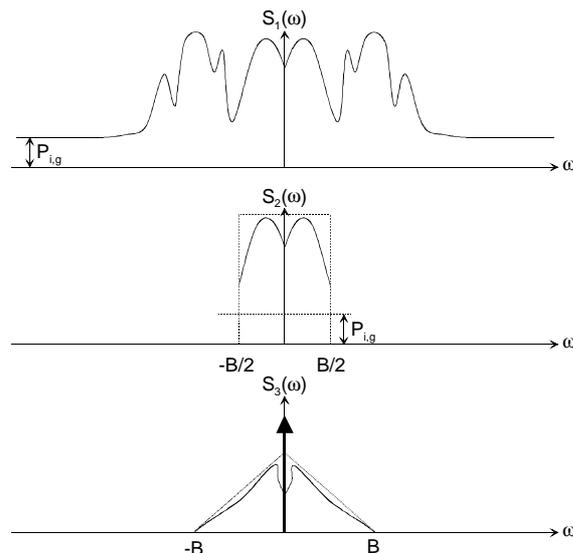
Quel est maintenant le spectre du signal délivré en sortie du détecteur radiofréquence quadratique ? Sous réserve que le signal d'entrée soit à bruit gaussien, on peut établir que [46] :

$$S_3(\omega) = a^2 \cdot \langle I_{\text{ph-f}}(t) \cdot I_{\text{ph-f}}(t) \rangle^2 \cdot \delta(\omega) + 4\pi \cdot a^2 \int S_2(\omega') \cdot S_2(\omega - \omega') \cdot d\omega'. \quad (2.4.15)$$

Enfin, le signal est intégré par un filtre passe bas de fonction de transfert $W(\omega)$:

$$S_4(\omega) = S_3(\omega) \cdot W(\omega), \quad (2.4.16)$$

et si ce filtre a une coupure suffisamment basse, le spectre du signal en sortie de récepteur se réduit à la composante continue de $S_3(\omega)$ qui contient l'information de la puissance radiofréquence du photo-courant de battement dans la bande B, ainsi que la puissance équivalente de bruit de grenaille dans la même bande. Tout ceci est résumé sur la figure 2.4.5.

**Figure 2.4.5**

Allure des spectres des signaux aux différents étages du récepteur hétérodyne.

Ajoutons alors une hypothèse supplémentaire. Supposons que la largeur du filtre $B/2$ soit très petite, suffisamment petite pour que dans la bande B le spectre transposé de la source soit quasi constant. Nous pouvons alors assimiler la fonction porte du filtre à la distribution de Dirac :

$$\prod_{\frac{-B}{2}, \frac{B}{2}}(\omega) \approx B \cdot \delta(\omega), \quad (2.4.17)$$

et ainsi :

$$S_2(\omega) = B \cdot S_1(\omega) \cdot \delta(\omega) = B \cdot P_{i,g} + B \cdot \text{Re}[G_s(\omega_{OL}) \cdot A]. \quad (2.4.18)$$

Cette équation nous montre alors l'intérêt énorme que présente l'oscillateur local, sous réserve d'utiliser un détecteur de faible bande passante, on n'a plus qu'à balayer la fréquence d'émission de l'oscillateur local pour décrire le spectre optique de la source. Plus besoin d'un détecteur large bande, plus besoin de système d'analyse radiofréquence, plus de repliement de spectre.

2.4.3. Rapport signal sur bruit

Nous avons établi ce que l'on définit comme le signal utile en sortie du détecteur, c'est à dire la puissance du photo-courant de battement $\langle i_{\text{batt}}^2 \rangle$ (cf. équation 2.4.9). A présent, afin d'envisager le rapport signal sur bruit du spectromètre hétérodyne, il nous faut détailler les phénomènes que nous étiquetterons comme bruits. Ce type d'étude a été mené notamment par Blaney [47].

Bruit de grenaille

Ce bruit, encore appelé bruit Schottky ou bruit de grenaille, est inhérent à la nature discrète du rayonnement, il ne résulte d'aucune imperfection du système de détection mais lui est intrinsèque. La création de photo-électrons par le détecteur obéit à une statistique

poissonienne, pour un détecteur photo-émissif idéal la variance du photo-courant, autrement dit la puissance de bruit de grenaille s'écrit [48] :

$$\langle i_s^2 \rangle = 2e \cdot \langle i_{ph} \rangle \cdot B. \quad (2.4.19)$$

La puissance optique transportée par un champ s'écrivant :

$$P = \frac{1}{2z_0} \int |E|^2 dS, \quad (2.4.20)$$

où l'intégration est menée sur une surface infinie, en considérant que (cf. paragraphe 2.3) :

$$\eta(r) = \frac{2\pi}{2z_0 \cdot h\bar{\nu}} \eta_d(r), \quad (2.4.21)$$

la puissance de bruit de grenaille se réécrit :

$$\langle i_s^2 \rangle = \frac{2 \cdot e^2 \cdot P_s \cdot B}{h\bar{\nu}} \cdot \frac{\int \eta_d(r) \cdot |E_{OL}(r)|^2 dS}{\int |E_s(r)|^2 dS}, \quad (2.4.22)$$

où l'on a considéré l'expression du photo-courant issue de l'approche simplifiée (2.4.8), et nous avons exprimé l'impédance du vide en fonction des termes caractérisant la source de par (2.4.20). D'autre part, nous avons fait apparaître l'expression rigoureuse du rendement quantique du détecteur η_d . Rappelons que nous sommes toujours sous l'hypothèse de la prépondérance de l'oscillateur local sur le signal et le fond continu, ce qui explique que la moyenne du photo-courant est principalement le courant continu généré par l'oscillateur local, en dehors de cette hypothèse il faut ajouter la contribution de la source et du fond continu. Enfin, l'expression de la puissance de bruit de grenaille doit être multipliée par deux dans le cas où le photo-détecteur est de type conducteur afin de prendre en compte le bruit induit par les processus de génération-recombinaison de porteurs [49].

Ainsi, nous pouvons écrire l'expression du rapport signal sur bruit d'un récepteur hétérodyne idéal, seulement limité par le bruit de grenaille :

$$RSB = \frac{\langle i_{batt}^2 \rangle}{\langle i_s^2 \rangle} = \frac{P_s}{h \cdot \bar{\nu} \cdot B} \frac{\left| \int \eta_d(r) \cdot E_s(r) \cdot E_{OL}(r) \cdot dS \right|^2}{\int \eta_d(r) \cdot |E_{OL}(r)|^2 dS \cdot \int |E_s(r)|^2 dS}. \quad (2.4.23)$$

Le rapport d'intégrales peut s'écrire sous la forme d'une efficacité quantique effective η_{eff} et ainsi on retrouve l'expression classique du rapport signal sur bruit de la détection hétérodyne dans le cas de deux ondes planes. Ce rapport prend alors en compte une dégradation du rapport signal sur bruit liée à une mauvaise adaptation des faisceaux ou à un désalignement ; ou encore les inhomogénéités du mélangeur. Nous reviendrons sur ces problèmes ultérieurement.

Bruit Johnson

Nous l'avons vu, en sortie de mélangeur le signal doit être amplifié. Le couple mélangeur - amplificateur est un système électrique générant un bruit thermique ou bruit Johnson. Même si ce système est idéal, il n'est jamais à une température nulle, l'agitation

thermique électronique entraîne des fluctuations de courant parasites, dont la puissance dans la bande du récepteur s'exprime par :

$$\langle i_J^2 \rangle = 4 \cdot k_B \cdot B \cdot \left(\frac{T_M}{R_M} + \frac{T_A}{R_A} \right). \quad (2.4.24)$$

R_M et R_A sont respectivement la résistance de charge du mélangeur et la résistance d'entrée de l'amplificateur ; T_M et T_A les températures de bruit du mélangeur et de l'amplificateur. Dans la plupart des cas, le mélangeur est refroidi et son bruit johnson est négligeable devant celui du système d'amplification.

Bruits de fond

Le mélangeur possède souvent un angle de vue très supérieur à l'angle de vue hétérodyne que nous définirons dans la prochaine section. D'autre part, la courbe de réponse spectrale du mélangeur est très large devant la bande de réception du spectromètre. Il s'ensuit que de la puissance optique spatialement et spectralement en dehors du récepteur sera incidente sur le mélangeur et générera un photo-courant. Ce photo-courant ne sera bien sûr pas amplifié. Nous mentionnons ce type de bruit pour être exhaustif, concrètement ce dernier est négligeable quand le signal source est faible, sinon cette contribution apporte un fond continu au signal détecté. L'influence du fond peut être réduite par l'adjonction de filtres spectral et spatial dans le parcours optique du faisceau issu de la source à caractériser.

Bruit de scintillation

Dans tout système électrique intervient toujours un autre type de bruit appelé bruit de scintillation ou plus souvent bruit en $1/f$. C'est un bruit essentiellement dû à des phénomènes de surface, principalement les imperfections des contacts ohmiques. Ce bruit est prépondérant aux basses fréquences, ainsi ce dernier n'a pas de répercussion sur le récepteur hétérodyne, car il tombe dans le "trou" de la bande de détection (cf. figure 2.4.2).

Détection et intégration

Nous avons jusqu'ici considéré la puissance de fluctuation du courant. Cette puissance est ensuite transformée en tension par le détecteur radiofréquence quadratique, et intégrée (cf. figure 2.4.4). Le filtre passe bas étant rectangulaire, et le rapport signal sur bruit en puissance étant très inférieur à 1, le rapport signal sur bruit s'écrit [47] :

$$RSB_V = RSB_P \cdot \sqrt{B \cdot \tau}, \quad (2.4.25)$$

sachant que l'hypothèse très réaliste de $B \gg \tau^{-1}$ est nécessaire.

2.4.4. Cas du radiomètre idéal

Aux vues des considérations précédentes, nous allons préciser l'influence des différents paramètres. Simplifions encore les expressions en ajoutant de nouvelles hypothèses : les champs sont cohérents dans le plan du détecteur, le rendement quantique est homogène (plus de dépendance spatiale). De plus on suppose que l'intégralité de la puissance émise par

l'oscillateur local et la source est incidente sur le détecteur. Réécrivons le rapport signal sur bruit en prenant en compte tous les facteurs décrits ci-avant :

$$\text{RSB}_P = \frac{2 \left(\frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \right)^2 P_{OL} \cdot P_S}{2 \cdot e \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} (P_{OL} + P_S + P_B) \cdot B + 4 \cdot k_B \cdot B \left(\frac{T_A}{R_A} \right)}, \quad (2.4.26)$$

où apparaît P_B la puissance du fond continu. Nous comparerons cette expression, à l'expression du rapport signal sur bruit du récepteur limité par le bruit de grenaille (équation (2.4.23) où $\eta_{\text{eff}} = \eta_d$) :

$$\text{RSB}_P = \frac{\eta_d \cdot P_S}{h \cdot \bar{\nu} \cdot B}. \quad (2.4.27)$$

Nous considérons le cas du radiomètre. Ce dernier reçoit le rayonnement thermique provenant d'une source incohérente. Compte tenu du théorème de l'antenne, et du fait que le récepteur est sensible à la polarisation, il vient :

$$P_S = \frac{h \cdot \bar{\nu} \cdot B}{e^{k_B \cdot T_S} - 1}, \quad (2.4.28)$$

où T_S est la température de corps noir équivalent de la source. L'expression P_B est similaire. Pour les courbes qui vont suivre, nous avons choisi les valeurs suivantes pour les paramètres fixes :

P_{OL}	T_S	T_B	η_d	T_A	R_A	λ	B
300 μW	1000 K	300 K	0.5	600 K	50 Ω	8 μm	100 MHz

Les courbes de la figure 2.4.6 montrent l'évolution du rapport signal sur bruit en puissance en fonction de la longueur d'onde du signal à détecter, de la puissance de l'oscillateur local et de la température équivalente de corps noir de la source émettrice.

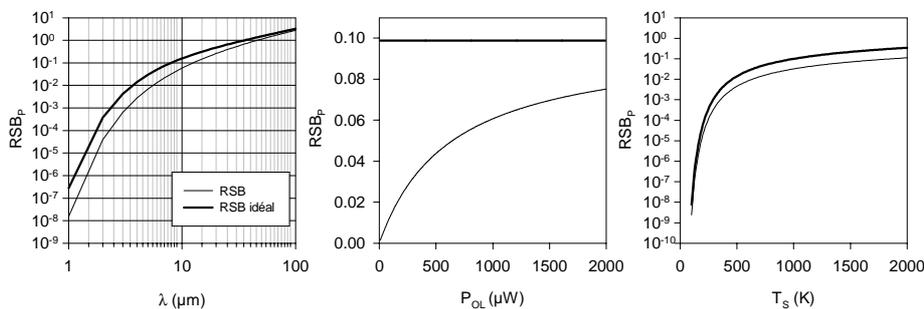


Figure 2.4.6 : Evolution du RSB_P en fonction des différents paramètres physiques influents.

2.4.5. Comparaison à la détection directe

Si la puissance de l'oscillateur local est suffisante, le bruit de grenaille sera l'ultime limite d'un récepteur hétérodyne. En pratique cela est possible également en détection directe,

mais à de courtes longueurs d'onde. Dès que l'on approche l'infrarouge moyen le niveau de bruit du détecteur direct s'accroît du fait des multiples sources rayonnantes qui l'environnent. Pour un détecteur direct, si la puissance émise par le fond ambiant sur le détecteur est de l'ordre du signal à détecter, ce dernier n'est plus détectable. En revanche, en détection hétérodyne, le signal à détecter n'est plus discernable quand la puissance du fond ambiant est de l'ordre de la puissance de l'oscillateur local.

La bande passante de réception déterminant la résolution de l'instrument est, dans le cas hétérodyne, la bande passante du filtre passe bas filtrant le photo-courant de mélange. Dans le cas d'un détecteur direct, une résolution équivalente implique l'adjonction dans le parcours optique d'un filtre optique (filtre spectral, réseau), or ce filtre rayonnera sur le détecteur sans que ce rayonnement ne soit filtré...

Enfin, pour certaines applications la détection hétérodyne présente l'avantage de conserver l'information sur la phase de la source, information perdue dans notre cas lors de la détection RF quadratique.

Cependant, la détection directe présente l'avantage de l'étendue. En conséquence, la détection hétérodyne trouve son application idéale dans la gamme des grandes longueurs d'onde (à partir de l'infrarouge moyen), pour la caractérisation de sources très peu étendues.

Le rapport signal sur bruit en détection directe, en présence d'un fond continu, peut s'écrire :

$$RSB_p = \frac{\left(\frac{\eta_d \cdot e \cdot P_s}{h \cdot \bar{\nu}} \right)^2}{2e \cdot \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \cdot B \cdot (P_s + P_B) + 4k_B \cdot B \cdot \frac{T_A}{R_A}}, \quad (2.4.29)$$

ainsi on peut comparer la détection directe à la détection hétérodyne. Sur la figure 2.4.7 nous avons représenté les évolutions des deux rapports signal sur bruit en fonction des paramètres physiques influents. A étendue de détection égale et fixée à l'étendue hétérodyne, la détection hétérodyne reste toujours plus performante que la détection directe. La limitation liée à l'étendue apparaît sur le dernier graphe, où l'on constate que lorsque l'étendue de détection directe devient environ 15000 fois supérieure à l'étendue hétérodyne, la détection hétérodyne perd son avantage.

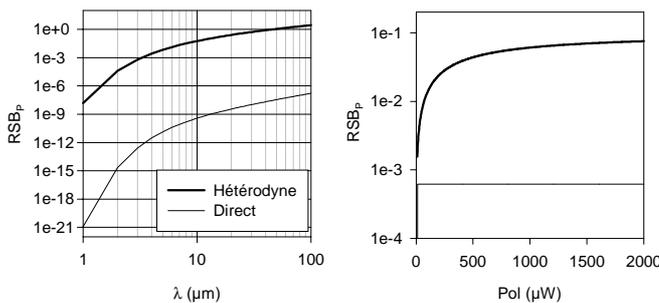
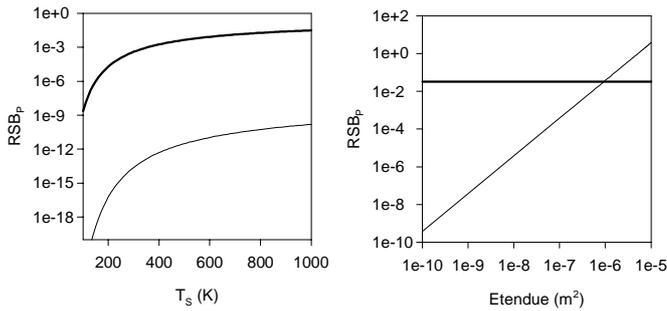


Figure 2.4.7
 Comparaison entre la détection directe et la détection hétérodyne.



2.5. Facteurs de dégradation

Nous venons de voir en détail la description d'un récepteur hétérodyne idéal. Il s'agit d'une limite qu'il est ardu d'atteindre en pratique. Beaucoup d'éléments, à tous les niveaux du récepteur nuisent à l'obtention de la limite théorique de l'instrument [50]. Nous allons ici rapidement aborder les principaux.

2.5.1. Facteurs de dégradation optiques

Angle de vue du récepteur

Ce premier élément ne constitue pas à proprement parler une dégradation, mais plutôt une sévère restriction. Elle fut mise en lumière par Siegman [51]. Ce dernier montra que tout comme dans le domaine radio, un récepteur hétérodyne optique obéit au théorème de l'antenne :

$$A_R \cdot \Omega_R \approx \lambda^2, \quad (2.4.30)$$

où A_R est la surface de l'optique de réception (assimilable à une antenne optique) et Ω_R l'angle solide de réception. λ est la longueur d'onde du signal à capter. Ce théorème constitue un invariant du récepteur hétérodyne : l'étendue géométrique du système optique de collection et focalisation est déterminée par la longueur d'onde du signal. Ceci explique pourquoi l'utilisation de la détection hétérodyne devient vite rédhibitoire quand l'on se rapproche du domaine visible. A titre d'exemple, à 8 μm , une optique de collection de diamètre 2.5 cm permet de collecter le signal sur un angle solide de 10 milliardième de tout l'espace.

Cependant une alternative est envisageable dans la mesure où la technologie des matrices de photodiodes rapides se développera. Waksberg [52] montre qu'une matrice de $N \times N$ éléments permettrait d'adoucir le critère de l'antenne optique à :

$$A_R \cdot \Omega_R \approx N^2 \cdot \lambda^2. \quad (2.4.31)$$

Le critère de Siegman peut tout de même être avantageux dans le cas où une grande résolution spatiale est recherchée. Ce critère limite également le flux parasite dû au fond continu reçu par le récepteur.

Influence du désalignement et des faisceaux

La qualité de la superposition des deux faisceaux sur le mélangeur influe beaucoup sur le rendement de mélange. Une explication physique simple décrivant ce phénomène pourrait être la suivante : découpons par la pensée le plan du détecteur en une infinité de petites zones élémentaires. Chaque zone contribuera au photo-courant total délivré. Mais, les courants générés par chaque zone vont s'ajouter vectoriellement. Obtenir un photo-courant maximum revient donc à rechercher une phase identique pour chacune des zones élémentaires. Ceci revient à dire que les plans iso-phase du faisceau source et du faisceau oscillateur local doivent coïncider entre eux et avec le plan du détecteur. Autrement dit, les fronts d'onde du champ signal et du champ oscillateur local doivent se confondre.

Mathématiquement, ceci apparaît dans l'expression du rendement effectif du mélange hétérodyne η_{eff} décrit au chapitre 2.4.3. Ce rendement dépend explicitement de la distribution spatiale des faisceaux. Le problème complet des défauts d'alignement a été traité par Cohen [53], et pour des géométries plus particulières par Tanaka [54]. Reprenons les résultats de Cohen dans le cas le plus proche de ce qui sera le nôtre, à savoir : un faisceau source ayant une distribution d'Airy et un oscillateur local gaussien, soit :

$$E_S(r) = A_S \cdot \frac{J_1\left(\frac{\pi \cdot r}{\lambda \cdot N}\right)}{\frac{\pi \cdot r}{\lambda \cdot N}}, \quad E_{OL}(r) = A_{OL} \cdot e^{-\frac{r^2}{w^2}}. \quad (2.4.32)$$

A_S et A_{OL} sont des constantes, l'optique de collection est ouverte à F/N , w est la gorge du faisceau gaussien (beam waist). Dans le cas où le rendement quantique du détecteur est uniforme, il vient :

$$\eta_{\text{eff}} = \frac{\left[\int_0^{r_0} E_S(r) \cdot E_{OL}(r) \cdot J_0\left(\frac{2\Theta\pi r}{\lambda}\right) \cdot r \cdot dr \right]^2}{\int_0^{r_0} (E_{OL}(r))^2 \cdot r \cdot dr \cdot \int_0^{\infty} (E_S(r))^2 \cdot r \cdot dr}, \quad (2.4.33)$$

où l'indice 0 se rapporte aux grandeurs exprimées dans le plan du détecteur, r_0 est le rayon du détecteur, et Θ est l'écart angulaire d'alignement entre le faisceau source et le faisceau oscillateur local. Nous avons calculé ce rendement pour trois valeurs de la gorge de l'oscillateur local sur le détecteur, il s'agit de la figure 2.4.8, à gauche. Les autres paramètres utilisés sont les plus proches possibles de nos conditions de travail, les voici :

N	η_d	r_0	λ
4	0.5	50 μm	8 μm

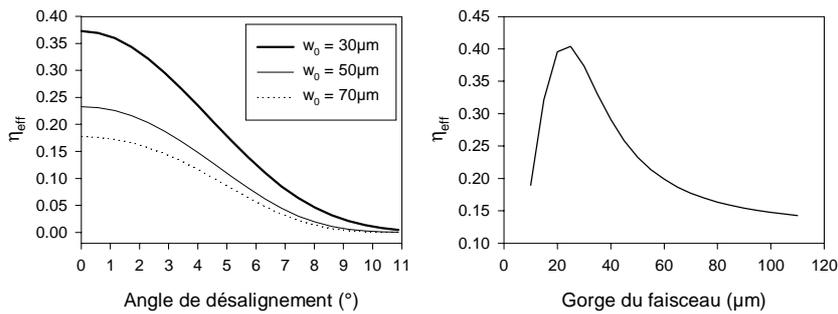


Figure 2.4.8
Influence d'un écart d'alignement et de la gorge du faisceau sur le rendement hétérodyne.

Première constatation, le rendement hétérodyne, sans aucun problème d'alignement ($\Theta = 0$), devrait être égal à l'efficacité quantique du détecteur. Or il n'en est rien. Ici, c'est la distribution spatiale des faisceaux au niveau du détecteur qui nuit au rendement. Selon que ces distributions sont gaussiennes, d'Airy, ou uniformes, selon les grandeurs qui caractérisent ces faisceaux, la gorge, l'ouverture de l'optique de collection, le rendement hétérodyne sera affecté [55]. La figure 2.4.8, à droite, montre le calcul de l'évolution du rendement hétérodyne en fonction de la taille de la gorge du faisceau oscillateur local, l'alignement étant parfait.

Nous reviendrons ultérieurement sur les particularités impliquées par l'utilisation d'un laser à semi-conducteurs comme oscillateur local, précisons encore ici, conformément à ce qui est décrit dans la deuxième partie, qu'assimiler une diode laser à un laser parfait est une approximation grossière ; décrire le faisceau oscillateur local comme un faisceau gaussien elliptique et astigmatique auréolé de nombreux points chauds, serait plus juste !

Nous constatons également que dans le moyen infrarouge la tolérance angulaire est assez peu critique : 3° d'écart assure un rendement à 80% du maximum. Ceci est d'autant plus rassurant que pour éviter un éventuel retour optique dans le laser à semi-conducteurs, dérégler l'alignement est nécessaire.

2.5.2. Facteurs de dégradation lors de la détection

Influence du détecteur optique

Nous allons considérer ici le cas où le détecteur est une photodiode. Pratiquement, les détecteurs que nous utilisons ont une détectivité maximale dans l'infrarouge moyen, il s'agit de photodiodes à tellures de mercure et cadmium (HgCdTe). La physique de ce type de photodiodes, particulièrement pour des applications hétérodynes, a été largement étudiée par Siriex [56].

Ces détecteurs sont couramment utilisés car ils présentent plusieurs avantages [57] :

- Le gain est augmenté d'un facteur $\sqrt{2}$ comparé aux photoconducteurs.
- Le temps de réponse est très court, autrement dit, la bande passante est large.
- Leur échauffement est très faible, ce qui facilite le refroidissement à l'azote liquide.

En première approximation ils sont modélisables par une jonction p-n, même si, tout comme pour les diodes laser, des structures plus performantes sont utilisées. La

caractéristique I-V d'un tel composant, éclairé par un flux lumineux de puissance P, est décrite par :

$$I = I_{\text{sat}} \left(\exp \left(e \frac{V - R_s \cdot I}{k_B \cdot T} \right) - 1 \right) + G_d (V - R_s \cdot I) - \eta_d \cdot e \cdot P. \quad (2.4.34)$$

I_{sat} est le courant de saturation, c'est un courant qui subsiste en l'absence d'éclairement et sans polarisation ; il est lié à la diffusion des porteurs au niveau de la jonction. R_s est la résistance série du détecteur, G_d la conductance de fuite sur les bords de la jonction.

Ce détecteur se polarise en inverse, on l'utilise en mode photo-courant. A un point de polarisation donné, l'éclairement du détecteur produira un courant inverse $\eta_d \cdot e \cdot P$ s'ajoutant au courant d'obscurité.

Le détecteur est destiné à délivrer des photo-courants dont les fréquences sont dans la gamme radio. L'étude en fréquence de leur comportement est nécessaire. Le schéma équivalent du détecteur, représenté sur la figure 2.4.9 fait apparaître la capacité de la jonction C_d et une self de connexion.

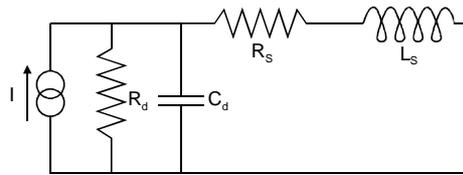


Figure 2.4.9
Schéma équivalent d'une photodiode

Prenant en compte ces éléments on peut alors réécrire l'équation 2.4.26 du rapport signal sur bruit hétérodyne.

$$RSB_p = \frac{2 \left(\frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \right)^2 P_{OL} \cdot P_S \cdot \left[(1 + R_s G_d)^2 + (R_s \cdot C_d \cdot \omega)^2 \right]}{2 \cdot e \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} (P_{OL} + P_S + P_B) \cdot B + 4 \cdot k_B \cdot B (T_A + T_M) (G_d (1 + G_d \cdot R_s) + R_s \cdot C_d^2 \cdot \omega^2)}, \quad (2.4.35)$$

Afin de bien illustrer l'influence des paramètres électriques du détecteur (ou mélangeur), nous avons tracé l'évolution de ce rapport en fonction de la fréquence, il s'agit de la figure 2.4.10 sur laquelle est également tracé le rapport signal sur bruit idéal.

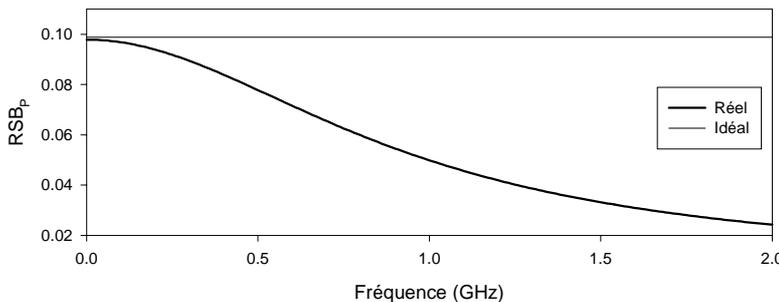


Figure 2.4.10
Rapport signal sur bruit hétérodyne en fonction de la fréquence électrique.

Pour ces calculs nous avons réutilisé les paramètres définis au paragraphe 2.4.4. Pour les caractéristiques électriques du mélangeur, nous avons utilisé les paramètres très réalistes suivants :

T_M	R_S	R_d	C_d
77 K	10 Ω	10 k Ω	5 pF

Ces paramètres posent un problème : ils sont relativement insaisissables car ils varient avec la polarisation inverse appliquée et, dans une moindre mesure, avec la puissance incidente sur le mélangeur. La résistance de fuite R_d et la capacité de jonction C_d diminuent avec la polarisation inverse appliquée, il s'ensuit que la bande passante hétérodyne effective augmente. Une autre solution pour réduire C_d consiste à réduire la taille du détecteur, mais l'on atteint alors rapidement des limites optiques. Quoi qu'il en soit, ce qui précède offre un argument profond en faveur de l'utilisation d'un oscillateur local accordable, de manière à utiliser un mélangeur en basses fréquences.

Un autre paramètre du détecteur intervient sur la qualité du récepteur hétérodyne. Il s'agit bien sûr de l'efficacité quantique. Une partie du rayonnement incident est perdu par réflexion sur la face d'entrée du mélangeur. Avec les lasers à semi-conducteurs ceci est particulièrement nuisible, car du retour optique est ainsi généré. Ensuite, la puce constituant la photodiode doit être la plus transparente possible pour qu'un maximum de photons atteignent la jonction. Quelques recombinaisons de surface peuvent encore réduire le rendement. En définitive, l'efficacité quantique est plutôt aux alentours de 0.5.

D'autre part cette efficacité est loin d'être homogène spatialement. Ceci influence directement sur le rendement hétérodyne η_{eff} comme l'indique l'équation 2.4.23. Selon la technologie utilisée pour la conception du détecteur, méso [58], ou planar [59], l'efficacité présentera une bosse ou un creux au centre de la photodiode. Cohen [53] montre qu'à efficacité quantique égale, la forme de la distribution $\eta_d(r)$ influence grandement le rendement hétérodyne, en mieux ou en pire. Cependant ce paramètre est totalement hors de notre contrôle.

Influence de l'amplification

La photodiode constituant le mélangeur est couplée à un système d'amplification. Ce dernier influence beaucoup sur les caractéristiques du récepteur. En terme de rapport signal sur bruit, le bruit Johnson ajouté au récepteur par l'amplificateur a déjà été décrit par une température équivalente de bruit. En pratique, l'amplificateur est plutôt décrit par un facteur de bruit F . La température équivalente de bruit s'écrit alors :

$$T_A = (F - 1)T_A^0 \quad (2.4.36)$$

où T_A^0 est la température de référence 273 K. Actuellement, on peut trouver des amplificateurs ayant un facteur de bruit de 1.2 dB, soit $F = 1.32$. Selon le gain d'amplification souhaité, il est souvent nécessaire de connecter en cascade plusieurs amplificateurs, dans notre cas, deux. F devient alors :

$$F = F_1 + \frac{F_2 - 1}{G_1}. \quad (2.4.37)$$

F_1 et F_2 sont les facteurs de bruit des amplificateurs 1 et 2, G_1 est le gain du premier des deux (le préamplificateur).

Mais, ces définitions ont été faites dans le cas où l'accord d'impédance entre le mélangeur et le préamplificateur est réalisé. Or, rappelons que l'impédance de sortie du mélangeur est très variable selon les conditions d'éclairement et de polarisation ; en général l'accord d'impédance n'est pas réalisé. Cette nouvelle dégradation est prise en compte par l'adjonction d'un paramètre de désaccord d'impédance M inférieur à l'unité, et (2.4.24) devient :

$$\langle i_J^2 \rangle = 4 \cdot k_B \cdot B \cdot \left(\frac{T_M}{R_M} + \frac{T_A}{M \cdot R_A} \right) \quad (2.4.38)$$

Le meilleur type d'amplification en sortie d'une photodiode est réalisé par l'amplificateur de transimpédance. Ainsi, les bornes du mélangeur sont virtuellement court-circuitées et le photo-courant délivré circule alors dans la résistance de transimpédance. Comparé à l'amplificateur de tension, ce système permet de s'affranchir des désagréments introduits par R_d , résistance de fuite du mélangeur (ou de shunt). L'amplification en mode photovoltaïque transimpédance offre les meilleurs résultats en terme de bruit [60].

Ceci est encore en faveur de l'utilisation d'un oscillateur local accordable, puisque ce type d'amplificateur n'est disponible qu'à des bandes passantes encore faibles (typiquement 100 à 200 MHz).

2.5.3. Facteurs de dégradation liés aux lasers à semi-conducteurs

Les particularités optiques des lasers à semi-conducteurs, qui rappellent le, sont très loin de celles du laser parfait, impliquent une dégradation du rapport signal sur bruit hétérodyne. Les faibles puissances émises par ce type de laser en font un oscillateur local loin d'être idéal. Evidemment, des diodes à sels de plomb ayant une émission monomode, avec une puissance de l'ordre du milliWatt existent mais elles semblent plutôt rares et obtenir un tel composant commercialement relève de la gageure. Les dégradations que peuvent introduire ces deux spécifications ont déjà été traitées.

Ici, il s'agit de prendre en compte des effets de bruits liés intrinsèquement aux lasers à semi-conducteurs. Les limites de ces lasers ont été exposées au paragraphe 3 de la deuxième partie, nous allons à présent voir leurs implications sur le récepteur hétérodyne et le bruit d'excès qu'elles engendrent. Ce bruit sera décrit par sa puissance équivalente P_{ex} dans la bande de détection, ainsi l'équation (2.4.26) se réécrit :

$$\text{RSB}_p = \frac{2 \left(\frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} \right)^2 P_{OL} \cdot P_S}{2 \cdot e \frac{\eta_d \cdot e}{h \cdot \bar{\nu}} (P_{OL} + P_S + P_B + P_{ex}) \cdot B + 4 \cdot k_B \cdot B \left(\frac{T_A}{R_A} \right)}. \quad (2.4.39)$$

Ce bruit d'excès est très difficilement quantifiable, il dépend fortement du point de fonctionnement de la diode laser [61], on ne peut alors échapper à une cartographie fine du comportement du laser en fonction de la température et du courant injecté (cf. première partie). D'autre part les bruits d'excès sont imprévisibles, une description phénoménologique des types de bruits d'excès observés s'impose.

Types de bruits d'excès

Le protocole expérimental d'observation des bruits d'excès consiste à exploiter la large bande passante d'un détecteur rapide, à amplifier la composante radiofréquence du photocourant généré par l'éclairement de l'oscillateur local et à visualiser les spectres de bruit obtenus sur un analyseur de spectre. A partir de l'allure des spectres de bruit, le bruit d'excès peut être catégorisé [62].

Le premier type se situe vers les basses fréquences. Le graphe a) de la figure 2.4.11 correspond à cette situation. Ce graphe est une capture de l'écran de l'analyseur de spectre. L'analyse s'est faite dans la bande 0-1 GHz, la bande de résolution était de 200 kHz. Nous avons représenté en traits fins le bruit inhérent aux deux amplificateurs en cascade (absence d'éclairement du détecteur), et en traits gras le même signal mais avec le détecteur éclairé par l'oscillateur local. La présence de ventres et de nœuds sur le spectre de bruit des amplificateurs seuls correspond à un résidu d'ondes stationnaires induites par des réflexions au niveau des connecteurs, du fait de désaccords d'impédance.

Ce bruit basse fréquence peut avoir plusieurs origines. Expérimentalement, le graphe a) a été enregistré alors que le point de fonctionnement de la diode laser correspondait à une zone de transition entre deux modes. Comme nous l'avons vu dans la deuxième partie, une partie de la puissance émise oscille alors entre ces deux modes. Ce bruit peut également avoir pour origine un très léger retour optique.

Une deuxième catégorie de bruit d'excès se caractérise par l'apparition de plusieurs pics de résonance. Le graphe expérimental b) de la figure 2.4.11 correspond à cette situation. Ce type de spectre est irrémédiablement dû à une émission multimode de l'oscillateur local. Ces pics pourraient être occasionnés par le battement entre des modes transverses très proches. Il est intéressant de noter que la fréquence de résonance des pics varie avec le point de fonctionnement de la diode laser. Par exemple, le premier pic du graphe b) a pu être accordé entre 270 MHz et 550 MHz en augmentant le courant d'injection de 9 mA. Pour comparaison, le graphe c) montre le spectre de bruit de l'oscillateur local lors d'une émission monomode.

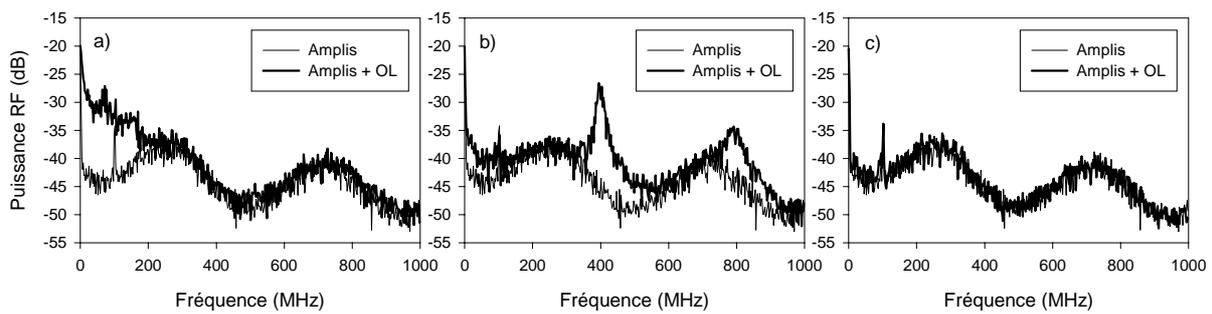


Figure 2.4.11 : Spectres de bruit d'excès de l'oscillateur local pour différents points de fonctionnement de l'oscillateur local.

Le dernier type de bruit d'excès, intrinsèque aux lasers à semi-conducteurs, est celui occasionné par le couplage entre les populations électroniques et photoniques (cf. deuxième partie). Cette résonance intervient généralement pour des fréquences supérieures à 1 GHz. Elle peut néanmoins, quand elle est très large, occasionner un bruit large bande aux fréquences inférieures à 1 GHz. Autrement dit, on observe les ailes du pic de la résonance.

Enfin, précisons que l'analyse spectrale du photo-courant généré par l'oscillateur local peut être d'un grand secours pour détecter un éventuel retour optique. Ce dernier se traduit par l'apparition de pics étroits et régulièrement espacés dans la bande d'analyse.

A ces bruits d'excès décrits ci-dessus, et majoritairement occasionnés par une émission multimode de la diode laser, s'ajoute systématiquement une détérioration du lobe d'émission du laser, et une dégradation optique se surajoute au bruit d'excès proprement dit.

D'un point de vue pratique, Allario et al. [63] ont résumé tout ceci en terme de spécifications sur le laser à semi-conducteurs : la puissance émise par le composant en sortie de facette doit être supérieure à 700 μ W, la pureté spectrale telle qu'au moins 80% de la puissance émise le soit dans le mode central, enfin la puissance équivalente de bruit d'excès doit être inférieure à 0.8 fois la puissance incidente de l'oscillateur local sur le mélangeur. Ces spécifications assurent une dégradation de 1/2 comparée au rapport signal sur bruit idéal. Que l'oscillateur local soit en deçà de ces spécifications n'implique pas qu'il soit impropre à la détection hétérodyne, mais que les dégradations qu'il occasionnera deviendront conséquentes.

2.5.4. Autres facteurs

Nous allons clore cette partie sur les dégradations du rapport signal sur bruit hétérodyne en citant de nouveaux facteurs triviaux ou que nous ne détaillerons pas.

La détection hétérodyne est sensible à la polarisation. Il s'ensuit que, dans le cas d'une source incohérente, seule la moitié de la puissance optique issue de la source sera en correspondance avec la polarisation de l'oscillateur local.

La source est le plus souvent modulée en amplitude. Ceci entraîne une nouvelle diminution de moitié de la puissance disponible.

La transmission des optiques de l'instrument est imparfaite.

Enfin, un radiomètre hétérodyne est destiné à caractériser des sources astronomiques ou atmosphériques distantes. Les turbulences atmosphériques vont affecter l'instrument. Ici, nous réaliserons un prototype de laboratoire ce type d'effets n'interviendra pas, mais ce problème a été traité par maints auteurs, par exemple Fried [64].

3. Réalisation du radiomètre hétérodyne

Cette partie vise à décrire la réalisation pratique du prototype de radiomètre hétérodyne que nous avons réalisé. Nos choix n'ont pas toujours été optimisés en raison des coûts que ces derniers eussent impliqués.

3.1. Description du banc d'expérimentation

Le banc expérimental du radiomètre présente de nombreux éléments, ce qui de prime abord occasionne une impression de grande complexité. Pour des raisons de clarté, nous allons découper la description en quatre grandes parties.

3.1.1. Voie oscillateur local

La figure 3.1.1 suivante représente la voie oscillateur local telle que nous l'avons réalisée sur le banc.

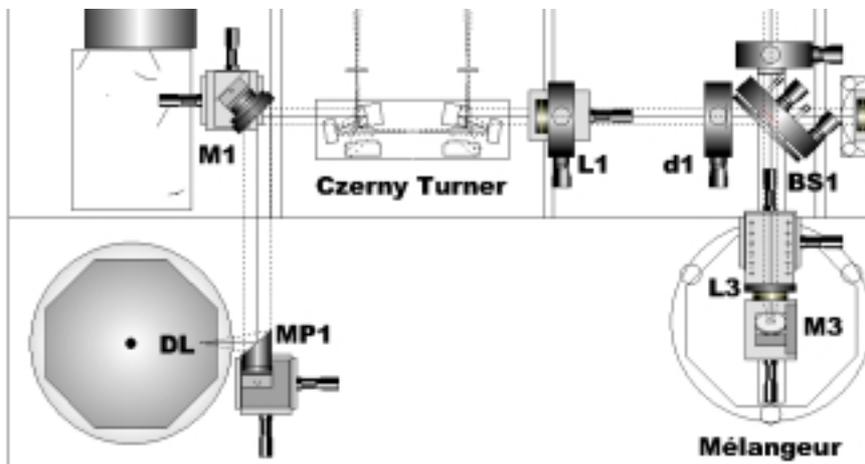


Figure 3.1.1
Schéma de la partie du banc d'optique consacrée à l'oscillateur local.

L'oscillateur local est, bien sûr, la diode laser (DL) logée dans le cryostat décrit dans la première partie. L'optique de collection n'a pas changé, il s'agit toujours d'un miroir parabolique hors d'axe 90° ouvert à $F/2$ et de focale 50 mm (MP1). L'ouverture à $F/2$ peut être insuffisante, mais seulement dans le cas où le lobe d'émission présente plusieurs modes spatiaux, cas qui coïncide avec l'émission de plusieurs modes spectraux donc inintéressant quand la diode laser est dédiée au rôle d'oscillateur local.

Après la réflexion sur MP1, le faisceau parallèle est redirigé par un miroir plan M1. On peut alors envoyer, ou pas, dans le spectromètre de Czerny Turner, le faisceau issu de la diode. Mais ceci a déjà été décrit dans la première partie.

Le faisceau arrive alors sur L1, lentille de focale 200 mm, de diamètre 25.4 mm, et en BaF₂. Cette lentille forme une image de la diode laser avec, en première approximation un grandissement de 4. Suit un diaphragme d1 repérant la position de cette image. En pratique sur notre montage, nous avons placé d1 avant l'image, d1 étant un diaphragme à iris. Le but est de constituer ainsi un masque anti-retour bloquant la fraction de rayonnement laser réfléchi par le mélangeur.

Ensuite, une lame séparatrice, encore appelée lame mélangeuse (BS1), opère une division d'amplitude sur le faisceau oscillateur local. Nous avons utilisé une lame en ZnSe traitée 50-50 sur la première face, et anti-réflexion sur la deuxième. Hélas, ce traitement est optimisé pour 10.6 μm , longueur d'onde du laser CO₂. Nous travaillons entre 7.5 et 8 μm . A ces longueurs d'onde, le traitement n'assure plus qu'une réflexion de 40 %, ce qui est regrettable, notre oscillateur local étant déjà trop peu puissant.

Le faisceau réfléchi par BS1 est repris par la lentille L3, focale 50 mm, diamètre 25.4 mm, matière BaF₂, qui reforme une nouvelle image de la diode laser sur le mélangeur avec un grandissement de 1/3 par rapport à l'image intermédiaire. Le mélangeur étant à visée verticale, un miroir M3 assure le renvoi du faisceau.

La partie du faisceau, issue de l'oscillateur local, transmise par BS1 sera décrite dans la partie 3.1.3 sur le module de détection directe.

L'ensemble des optiques est évidemment placé sur des platines micrométriques permettant les réglages.

3.1.2. Voie source

Les deux figures suivantes, 3.1.2 et 3.1.3, décrivent les éléments du banc consacrés à la voie source. Cette voie, dans un radiomètre classique, récolte normalement le rayonnement thermique issu d'une source chaude distante par le biais d'un système de collection de type télescope ou pointeur (l'antenne optique).

Pour notre radiomètre de laboratoire, nous aurons deux modes de fonctionnement possibles selon la source utilisée. Nous pouvons utiliser dans un premier temps une source intense pour les réglages de l'instrument. Typiquement, un barreau de Nernst, simulant un corps noir autour de 1500 K fait l'affaire.

Toujours avec cette source, en plaçant une cuve contenant un ou plusieurs gaz, l'instrument peut être utilisé comme spectromètre hétérodyne caractérisant la transmission haute résolution du milieu gazeux.

Mais, le but premier reste de montrer la faisabilité d'une mesure radiométrique de produits de combustion. Notre brûleur, décrit dans la troisième partie, et plus précisément, la zone supérieure de la flamme produite sera notre source privilégiée.

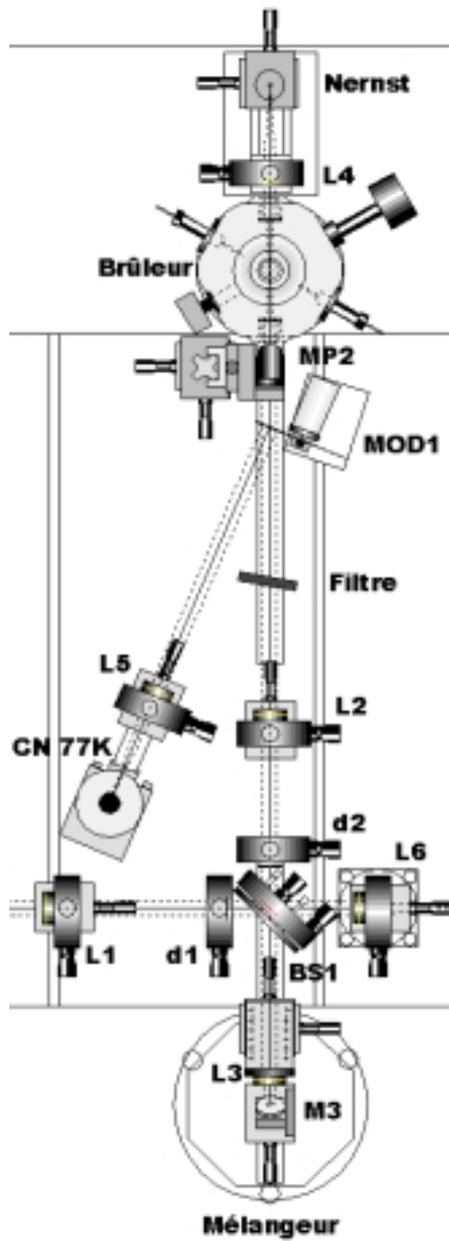


Figure 3.1.2 : Vue de haut de la partie du banc d'optique consacrée à la source.

Quelle que soit la source utilisée, le faisceau est alors repris par un miroir parabolique hors d'axe 90° (MP2), ouvert à $F/4$, de focale 100 mm. Le faisceau parallèle descendant est redirigé sur le banc par un miroir de renvoi M4. L'ensemble des réglages micrométriques associés à MP2 permet éventuellement de sonder différentes zones de la chambre de combustion. Le faisceau source est alors modulé par un hacheur mécanique MOD1 (Scitec Instruments) à une fréquence proche de 300 Hz. Les pales du disque modulant sont recouvertes d'un dépôt d'or et sont donc réfléchissantes. Lorsque le modulateur est "passant",

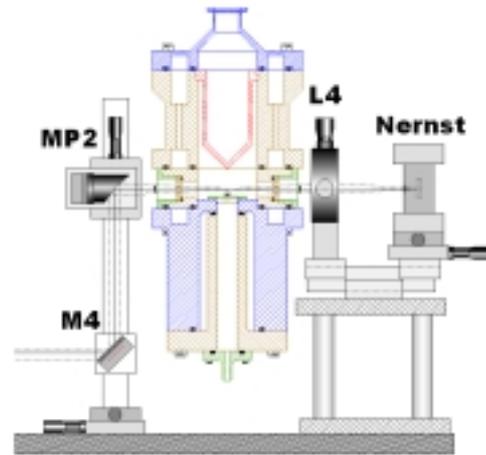


Figure 3.1.3 : Vue transversale du brûleur installé sur le banc d'optique.

La figure 3.1.2 est une vue de haut de la zone du banc d'optique dédiée au faisceau source. La figure 3.1.3 est une vue transversale de la disposition du brûleur sur le banc et de l'optique qui l'entoure. Les deux sources dont nous avons parlées ci-dessus sont présentes. Le barreau de Nernst est situé à l'arrière du brûleur. Une image du barreau est alors formée au centre du brûleur par une lentille en ZnSe de focale 50 mm, de diamètre 12 mm (L4). Le grandissement est de 1. Ce système offre l'avantage de nous permettre de passer d'une source à l'autre sans modification de l'optique de collection, ainsi le réglage de cette voie est simplifié. L'ensemble lentille ZnSe - Barreau de Nernst est amovible.

le faisceau continuant vers le filtre est issu de la source car rien ne l'occulte. Lorsque la pale bloque le faisceau issu du brûleur, cette pale écran se comporte comme un miroir, il arrive alors sur le filtre le rayonnement réfléchi par la pale.

Nous nous arrangeons alors pour que ce rayonnement réfléchi provienne d'une surface de graphite enclose dans un cryostat et susceptible d'être refroidie à la température de l'azote liquide. Ce cryostat est noté CN77K sur la figure 3.1.2 représentant le banc. La surface de graphite peut donc éventuellement constituer un corps noir à 77 K ; cette surface est placée au foyer de la lentille L5, le rayonnement provenant de la surface de graphite est ainsi recollimaté en faisceau parallèle.

Ceci permet dans les cas critiques, d'augmenter le contraste thermique entre la référence (modulateur bloquant le signal source) et le signal (modulateur passant). Autrement dit, le détecteur, une fois voit la source (brûleur) et ensuite, le modulateur tournant, il voit le corps noir à 77 K, puis il voit de nouveau la source, etc.... Il devient alors théoriquement possible de détecter le rayonnement d'un corps noir à l'ambiante (300 K).

Vient ensuite un filtre optique. Il s'agit d'un passe haut coupant à $6.7\mu\text{m}$, assurant 85% de transmission jusqu'à $8\mu\text{m}$. Ce filtre permet de s'affranchir des contributions au photocourant du rayonnement émis dans un domaine spectral fort éloigné de celui de l'étude, on ne l'utilise qu'avec le Nernst comme source.

Le faisceau ainsi filtré passe dans une lentille de focale 200 mm, de diamètre 25.4 mm en BaF_2 . Une image, avec un grandissement 2 est ainsi formée au niveau du diaphragme d2. d2 doit bien sûr être le conjugué de d1. Outre l'aide aux réglages qu'apporte la matérialisation des images intermédiaires par le biais d'un diaphragme, le rôle de d2 est également de limiter l'étendue du faisceau source, jusqu'à la rendre égale à l'étendue hétérodyne. On limite ainsi les contributions liées au fond. Cependant cette contribution est importante lorsque la source est puissante, par exemple quand cette dernière est le barreau de Nernst.

60% de la puissance émise par la source est alors transmise par BS1. Et, tout comme dans le cas de l'oscillateur local, la lentille L3 forme une image de d2 sur le mélangeur via M3, avec un grandissement de 1/3.

La source étant étendue, contrairement à la voie oscillateur local, les réglages optiques de la voie source ne sont pas critiques.

3.1.3. Module détection directe

Un module de détection directe subsiste sur le banc. La figure 3.1.4 suivante en est une illustration.

Ce module est maintenu en place, car comme indiqué dans la première partie, il nous permet de caractériser les diodes lasers utilisées comme oscillateur local. La deuxième partie a montré que ces composants sont versatiles, les points de fonctionnements sont souvent

sujets à changement ; il est nécessaire de ré-étalonner la longueur d'onde émise en fonction du courant d'injection et de la température.

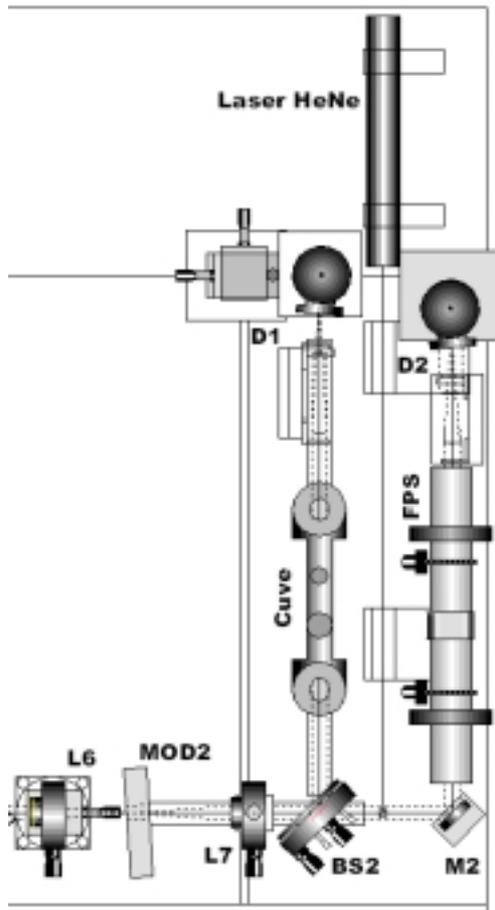


Figure 3.1.4 : Module de détection directe.

Ce module est dédié à la diode laser. Lors de son utilisation, il faut prendre garde à occulter la voie source. Reprenons le parcours suivi par le faisceau de la diode laser. Nous avons vu précédemment qu'une partie de ce faisceau était transmis par BS1. C'est cette partie transmise que l'on récupère pour la détection directe. En sortie de BS1, le faisceau est repris par une lentille L6, de focale 75 mm, de diamètre 25.4 mm, en ZnSe. Utilisée dans une configuration où le grandissement est de 1, cette lentille reforme une image intermédiaire de d1. Au niveau de cette image on intercale un modulateur mécanique (MOD2) modulant le faisceau à 240 Hz. En effet, le faisceau issu de la diode laser n'est pas modulé tant que cette dernière joue le rôle d'oscillateur local afin de ne pas moduler le bruit de grenaille du laser. Mais, en détection directe cela devient nécessaire. L7, lentille en ZnSe de focale 63 mm et de diamètre 25.4 mm, reprend alors le faisceau pour le rendre parallèle.

En sortie de L7 le montage est identique à celui décrit dans la première partie. BS2 est une lame semi-réfléchissante en ZnSe qui prélève par réflexion 40% de la puissance et l'injecte dans la cuve contenant le gaz de référence. D1 détecte alors la puissance transmise dans la cuve.

Le faisceau transmis par BS2 est redirigé par le miroir M2 dans le Fabry Péroto Sphérique (FPS). D2 détecte la puissance transmise par ce dernier. La présence du FPS implique que le module de détection directe ne peut en aucun cas être utilisé en même temps que le module de détection hétérodyne. Nos mesures ont montré que le FPS correctement aligné, transmet en sommet de frange quasiment autant d'énergie qu'il en réfléchit. En d'autres termes, le FPS introduit du retour optique. Nous avons vu que ce retour est nuisible, il induit du bruit supplémentaire. Ce bruit, ne sera pas forcément rédhibitoire en détection directe, car la bande passante électrique de détection est de quelques kiloHertz : il est donc invisible. En revanche, la bande de détection du mélangeur hétérodyne est telle que ce bruit est transmis dans la chaîne de mesure.

3.1.4. Détection - amplification - acquisition

Les deux figures suivantes, 3.1.5 et 3.1.6, montrent l'agencement du mélangeur sur le banc d'optique.

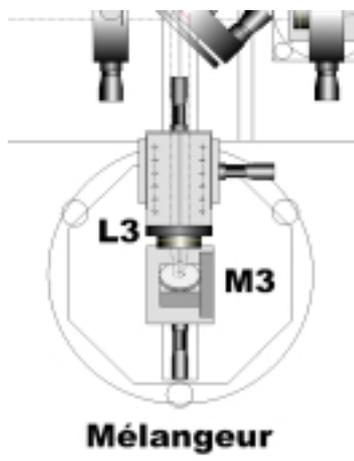


Figure 3.1.5 : Mélangeur sur le banc expérimental.

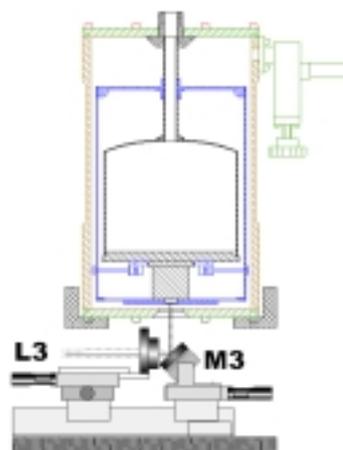


Figure 3.1.6 : Vue transversale du mélangeur et de l'optique associée.

Afin d'en assurer le refroidissement, la photodiode HgCdTe constituant le mélangeur est logée dans un cryostat à azote liquide. Le cryostat commercial est du même type (ND-5 Infrared Laboratories) que celui décrit dans la première partie. Sous la plaque froide du réservoir d'azote est vissé un tampon thermique en cuivre, dont l'extrémité accueille la photodiode. Le fond du cryostat a été percé d'un hublot en BaF₂. Une embase coaxiale SMA hermétique assure le passage de la connexion.

Voyons les spécifications de la photodiode que nous avons utilisée. Cette photodiode provient de la Société Anonyme de Télécommunication. Devant la photodiode un diaphragme refroidi limite l'angle de vue à 30°. La surface sensible de détection est de 10⁻⁸ m² (100µm×100µm). Tout comme l'optique en ZnSe que nous avons utilisée, ce détecteur est optimisé pour les longueurs d'onde voisines de celle du laser CO₂. La figure 3.1.7 donne l'allure de la réponse spectrale du détecteur.

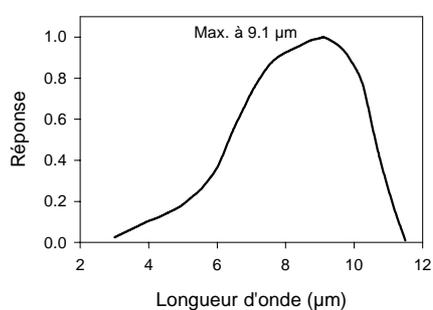


Figure 3.1.7
Courbe de réponse spectrale du mélangeur.

Dans notre région de travail, entre 7.5 et 8 µm, la réponse est entre 86 et 92% de la réponse maximum. Les autres spécifications sont données également à 10.6 µm. La détectivité

spécifique vaut $4 \cdot 10^{10} \text{ cm} \cdot \sqrt{\text{Hz}} \cdot \text{W}^{-1}$. La bande passante équivalente est de 350 MHz avec une polarisation inverse de -1V. Le rendement quantique est donné comme supérieur à 0.25.

En sortie du mélangeur, il faut découpler la composante continue du photo-courant de sa composante alternative. Nous connectons alors un "T" de polarisation d'impédance 50Ω ; à l'une des branches du "T" ressort la haute fréquence (entre 10 MHz et 1.5 GHz pour le modèle que nous avons utilisé), à l'autre branche ressort la composante continue, qui sera mesurée. Cette dernière branche nous permettra également d'apporter aux bornes de la photodiode la polarisation inverse.

Conformément au schéma du radiomètre détaillé dans la section 2.4.2, la composante HF (Haute Fréquence) du photo-courant est ensuite amplifiée par une cascade de deux amplificateurs. Le premier est un amplificateur Miteq (modèle AM-4A-000515) de bande passante 5-1500 MHz ; le second est un amplificateur Avantek (modèle AWL-1200M), de bande passante 0.1-1200 MHz. Nous avons mesuré les courbes de gain de ces amplificateurs à l'aide d'un synthétiseur Marconi, générant une rampe de fréquence de niveau constant. Les courbes de gain sont tracées sur la figure 3.1.8.

Le préamplificateur Miteq présente l'avantage d'avoir une fréquence de coupure basse assez élevée, soit 5 MHz. Expérimentalement, nous avons observé un bruit d'oscillateur local important dans la bande 0-3 MHz, dont l'origine peut être un faible retour optique. Le préamplificateur permet alors de rejeter ce bruit.

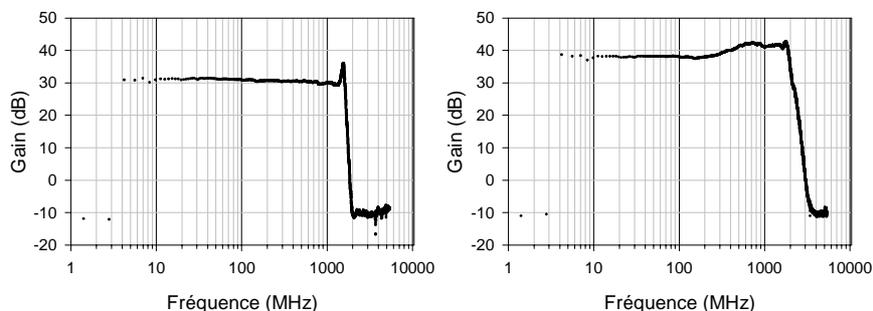


Figure 3.1.8 : Mesure de la bande passante des amplificateurs utilisés.

En sortie d'amplification, le signal est alors filtré. Les filtres passe bas utilisés sont des filtres coaxiaux de chez Mini-Circuits. Selon la résolution désirée, nous avons employé soit un filtre 50 MHz (c'est à dire 100 MHz de bande d'analyse hétérodyne), soit un filtre 90 MHz (180 MHz de bande d'analyse hétérodyne). Le problème de ce dernier filtre est qu'il laisse passer une partie de la bande FM, dont il s'est avéré impossible de se débarrasser dans la chaîne de mesure (par exemple, le pic autour de 100 MHz apparaissant dans les spectres de la figure 2.4.11 est précisément la bande FM). Par la même méthode que pour les amplificateurs, nous avons mesuré la bande passante de ces filtres. Ceci apparaît sur la figure 3.1.9, à gauche il s'agit du filtre 50 MHz, à droite du filtre 90 MHz.

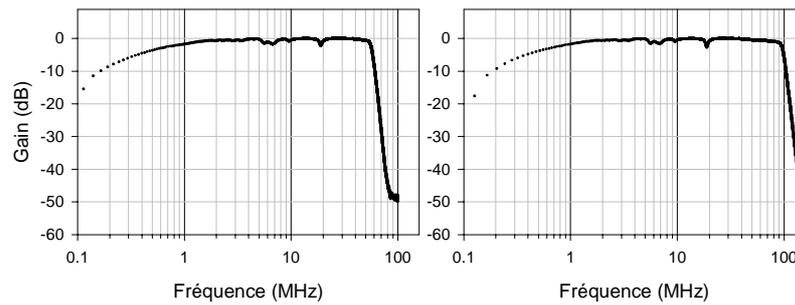


Figure 3.1.9 : Mesure de la bande passante des filtres passe bas 50 et 90 MHz.

Le filtrage étant fait, reste à mesurer la puissance RadioFréquence (RF) du signal résultant. Ceci est la fonction du détecteur radiofréquence. Ce dernier est une diode à barrière en AsGa. Nous disposons de trois détecteurs RF, un modèle de chez Hewlett-Packard (33331E), un modèle de chez Texscan (CD51), enfin un modèle de chez OmniSpectra (2090). Les bandes passantes de détection sont standard : 10 MHz-12.4 GHz. Nous avons enregistré les courbes de transfert de ces détecteurs. Le synthétiseur Marconi produit une porteuse à 500 MHz, et nous appliquons une rampe de niveau RF. Ce signal est envoyé sur le détecteur RF, la tension au borne du détecteur est simultanément enregistrée. Les courbes de transfert sont représentées sur la figure 3.1.10, où le détecteur Texscan apparaît comme le moins bruité à faibles niveaux d'entrée.

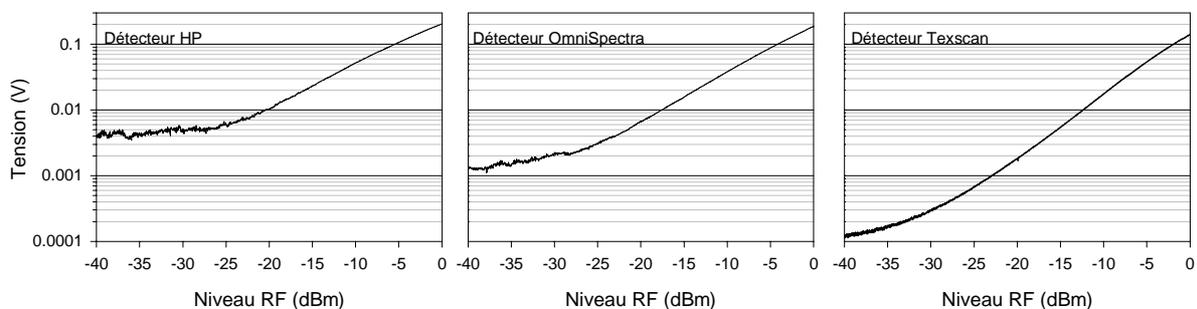


Figure 3.1.10 : Courbes de transfert des différents détecteurs RF

Ces détecteurs sont, à faibles niveaux d'entrée (ce qui est notre cas) quadratiques. Comme nous l'avons vu dans la section 2.4.2, ce caractère quadratique entraîne la proportionnalité de la tension de sortie à la puissance du signal d'entrée.

Ultime étape : démoduler le signal hétérodyne. Rappelons que le faisceau source est modulé en amplitude ; le signal (une tension) détecté par la diode RF est alors envoyé sur un amplificateur à détection synchrone (Physics Applied Research 124). Ce dernier joue le rôle de l'intégrateur du schéma 2.4.4. Le signal hétérodyne final est ensuite acquis par le système décrit dans la première partie. La figure suivante, 3.1.11, schématise l'ensemble du système d'amplification-détection.

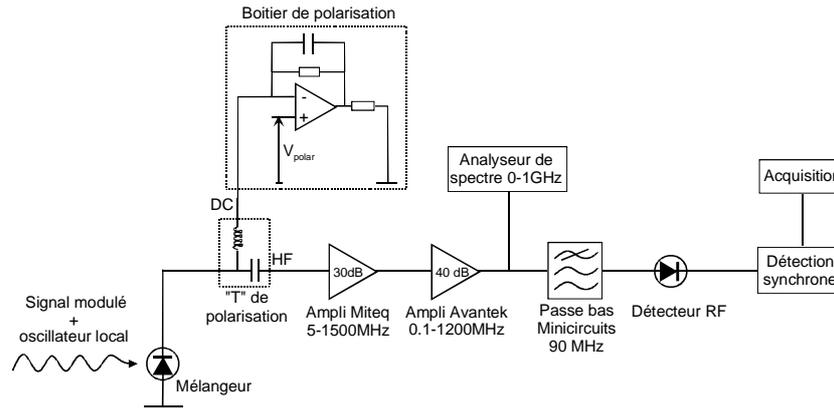


Figure 3.1.11 : Synoptique de l'ensemble des éléments de la détection.

Nous avons représenté sur cette figure le boîtier de polarisation apportant la tension inverse au borne du mélangeur. D'autre part, ce système récupère la composante continue du photo-courant (principalement due à l'oscillateur local), ce qui en permet la mesure. Ce photo-courant nous donne grossièrement une estimation de la puissance de l'oscillateur local.

Enfin, nous prélevons le signal RF en sortie d'amplificateur pour analyser son spectre dans la bande 0-1 GHz à l'aide d'un analyseur Texscan. Ceci nous permet, le cas échéant, d'obtenir une information sur le bruit d'excès apporté par la diode laser.

Tous les systèmes nécessitant une alimentation continue sont alimentés par batterie, afin de limiter l'introduction de parasites. Pour bien faire, l'ensemble mélangeur-amplificateur devrait être placé sous cage.

L'ensemble du système RF définit la fonction appareil de notre instrument, sous réserve que l'on puisse assimiler le spectre d'émission du laser à semi-conducteurs à une distribution de Dirac. Le graphe de gauche de la figure 3.1.12 est la fonction appareil expérimentale de notre instrument lorsque le filtre passe bas de 90 MHz est employé.

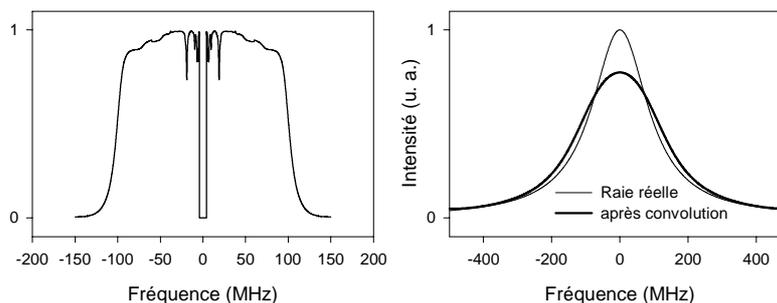


Figure 3.1.12 : A gauche, fonction appareil du radiomètre hétérodyne (filtre 90 MHz), à droite, répercussion de cette fonction appareil sur un profil de Voigt ayant environ 300 MHz de largeur à mi-hauteur.

Sur le graphe de droite de cette même figure, nous avons tracé un profil de Voigt, tel que sa largeur à mi-hauteur soit de 300 MHz environ. C'est approximativement la largeur des structures que nous chercherons à observer. Le tracé en trait gras, correspond à ce profil après qu'il a été convolué à la fonction appareil. En détection hétérodyne dans une bande de 200

MHz, la fonction appareil doit donc être prise en compte. Réduire la bande de détection pourrait permettre de s'affranchir de cette influence, mais avec une diode laser à sels de plomb nous sommes toujours dans le cas critique où le rapport signal sur bruit est faible, on cherche alors à l'améliorer en augmentant la bande de détection, quitte à introduire la fonction appareil dans le modèle théorique.

Enfin, quand les niveaux de puissance à détecter sont très faibles et que la largeur des structures spectrales à caractériser est importante (supérieure au GHz), on ôte tout filtre passe bas de la chaîne RF. Ainsi la bande d'analyse du récepteur hétérodyne est fixée par la bande passante électrique du mélangeur. La fonction appareil de l'instrument est alors la réponse en fréquence du mélangeur. Nous avons représenté la fonction appareil de l'instrument en l'absence de filtre RF sur la figure 3.1.13.

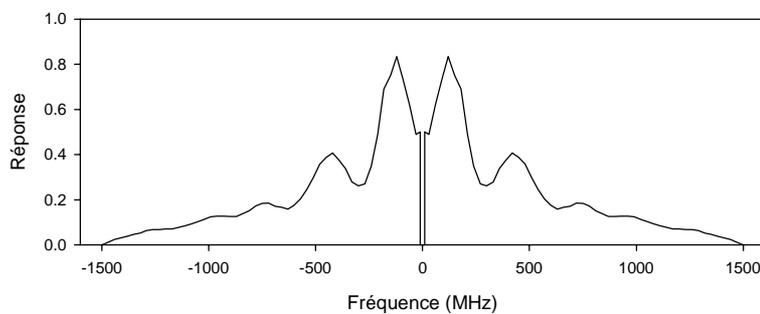


Figure 3.1.13
Fonction appareil du récepteur hétérodyne en l'absence de filtre RF

En puissance, la bande d'analyse effective équivalente du mélangeur est de 700 MHz.

3.1.5. Aspect global

Nous avons présenté l'instrument partie par partie. Tous les éléments décrits ci-dessus sont bien sûr liés. La figure 3.1.14 montre un plan complet du banc d'expérimentation.

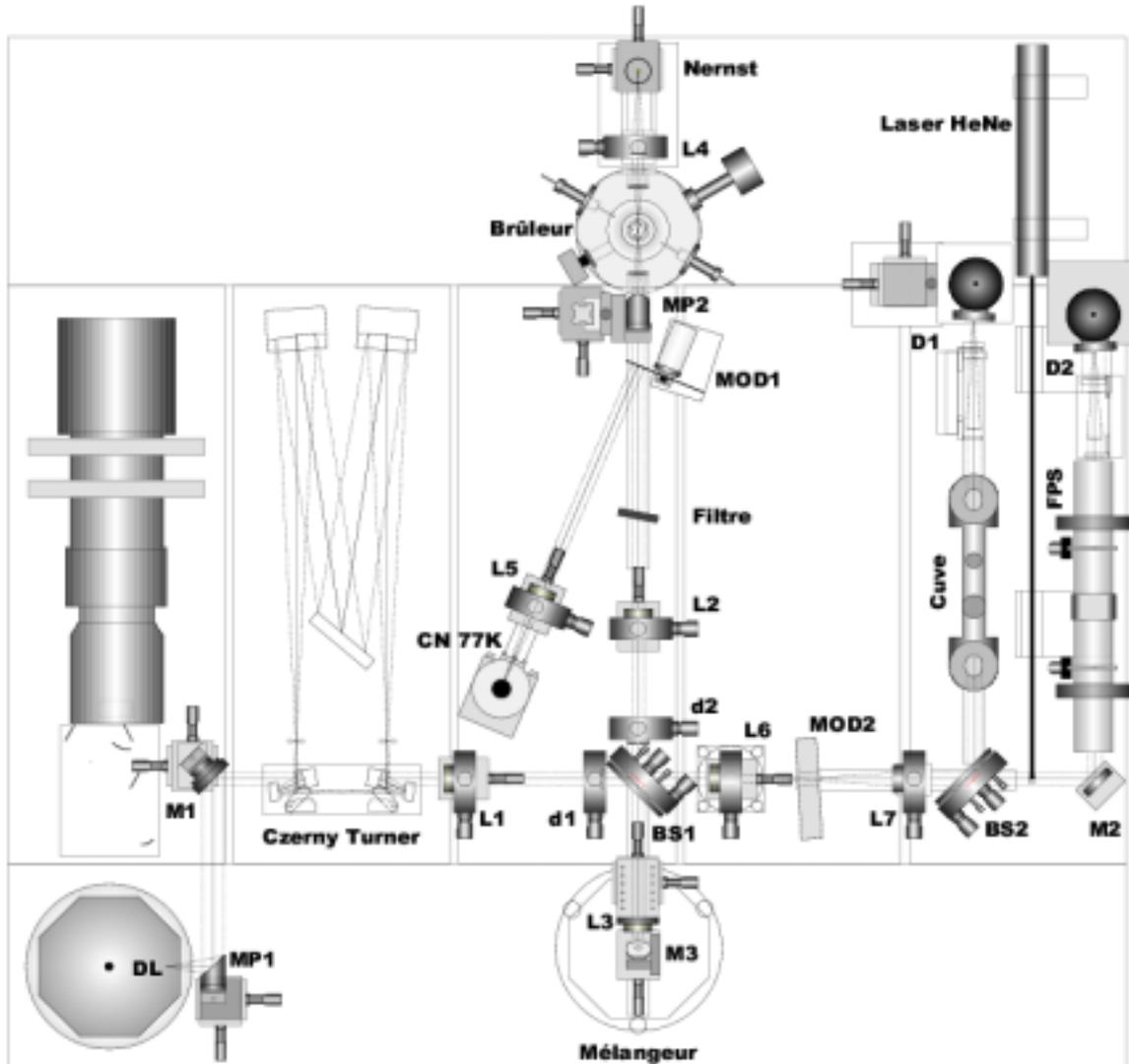


Figure 3.1.14 : Vue complète du banc d'expérimentation accueillant l'instrument.

Pour finir, la figure 3.1.15 montre deux photographies du banc que nous avons monté. Derrière l'entrelacs de fils et tuyauteries se cache notre instrument !

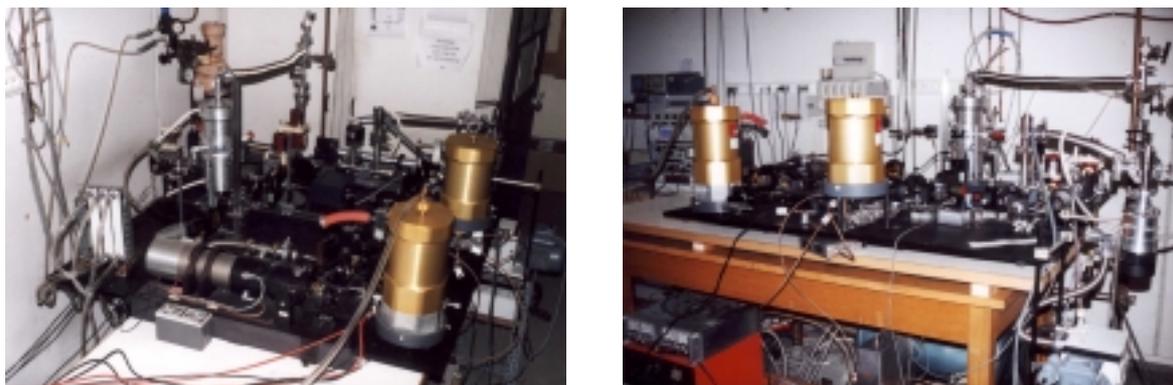


Figure 3.1.15 : Photographies du banc d'expérimentation.

3.2. Spectres obtenus

Le radiomètre est monté. Voyons à présent le type de spectre que nous pouvons enregistrer et les protocoles qui s'y rapportent.

3.2.1. Transmission

Il est totalement impossible de régler l'ensemble de l'instrument dans la configuration du radiomètre, avec le brûleur comme source. En effet, le réglage optimisé se fera au maximum de signal hétérodyne, la condition préalable est qu'un tel signal existe. Compte tenu de l'extrême sensibilité de la longueur d'onde émise par l'oscillateur local, mettre en route l'ensemble du banc d'expérimentation et observer dans l'instant un signal provenant d'une raie d'émission moléculaire relève du plus grand des hasards.

Protocole

L'instrument étant très complexe et extrêmement sensible, un protocole rigoureux se doit d'être mis en place pour son réglage. Observer des spectres de transmission participe de ce protocole.

Nous avons déjà lourdement insisté, mais la qualité de l'oscillateur local est d'importance capitale. Une première étape consiste à choisir la diode laser selon les critères de qualité dont nous avons parlé précédemment (section 2.5.3) et selon la molécule que l'on souhaite sonder. Comme nous le verrons nous n'avons à notre disposition aucune diode laser d'excellente qualité, nous avons ainsi travaillé dans de mauvaises conditions, ceci transparaîtra sur le rapport signal sur bruit de nos spectres expérimentaux.

La diode étant choisie, il faut se fixer un point de fonctionnement, ou plutôt une zone de fonctionnement. Il s'agit de choisir une zone spectrale d'émission monomode présentant des signatures moléculaires. La recherche et la caractérisation des zones propices se font par la méthode de caractérisation exposée dans la première partie, à savoir la spectroscopie d'absorption, et le module de détection directe du banc d'optique est dédié à cette fin.

Notre référence sera donc fournie par un spectre d'absorption directe, associé au signal issu du Fabry Péroto Sphérique (FPS) donnant l'échelle relative de fréquence. Voici, un

exemple, sur la figure 3.2.1. Ce spectre d'absorption a été enregistré avec la diode laser 398/2S-48L-32 fournie par le Lebedev Institut de Moscou. Le mode se situe vers 1337 cm^{-1} . 4 torr de SO_2 ont été injectés dans la cuve d'absorption de 20 cm.

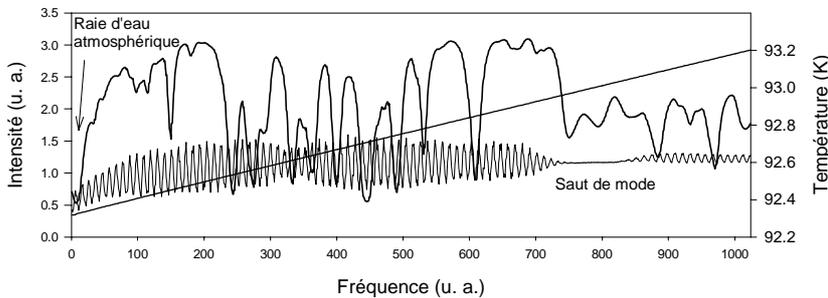


Figure 3.2.1

Caractérisation d'une zone de fonctionnement de l'oscillateur local par spectroscopie d'absorption directe.

Le spectre de cette figure a été obtenu par balayage de la température de la diode laser, le courant d'injection reste fixé à 900 mA. La droite, en diagonale de la zone de graphique, se réfère à l'ordonnée située à droite et représente l'évolution de la température. Sur ce graphique on reconnaît le signal provenant de la voie FPS. Rappelons qu'il y a 10 milliKayser d'un sommet de frange à l'autre. En outre, l'interruption des franges sur ce même signal, sur la droite du graphique, indique un saut de mode du laser. Sur la gauche du graphique, la lente décroissance de l'intensité en sommet de franges est caractéristique d'une raie d'eau atmosphérique. L'aspect du spectre expérimental de SO_2 comparé aux spectres calculés nous permet de reconnaître la région d'émission.

Ensuite nous utilisons le radiomètre hétérodyne, mais pas avec le brûleur allumé. Nous utilisons le barreau de Nernst, chauffé à environ 1500 K, comme source rayonnante ; cette source est intense ce qui facilite grandement les réglages optiques et électroniques de l'instrument. Le brûleur éteint, se situant sur le parcours optique, est utilisé comme simple cuve dans laquelle on injecte du SO_2 . On réalise ainsi des spectres hétérodynes d'absorption du SO_2 .

Spectres typiques

Un exemple typique sont les spectres hétérodynes expérimentaux de la figure 3.2.2. Ces spectres correspondent à la zone de fonctionnement de la figure 3.2.1. Dans le premier cas (spectre de gauche), 10 torr de SO_2 ont été injectés dans le brûleur ; la connaissance précise de la pression est impossible, le brûleur n'étant équipé que d'un manomètre à dépression à aiguille peu précis. Dans le second cas (spectre de droite), nous avons enclenché le pompage du gaz contenu dans l'enceinte, le manomètre à dépression est au taquet et indique -1 bar. Cependant, on constate qu'il subsiste une pression résiduelle estimée à 1 torr, ce qui est peu étonnant puisque le SO_2 est une molécule lourde.

Détaillons les conditions d'obtention de ces spectres : Le photo-courant continu généré par l'oscillateur local focalisé sur le mélangeur était de $-100\ \mu\text{A}$ pour une polarisation électrique de $-1.4\ \text{V}$. nous n'avons aucun étalonnage précis, mais d'après Parvitte [65] nous pouvons estimer à partir de ce photo-courant que la puissance laser incidente sur le mélangeur

n'est pas supérieure à 100 μW . Nous sommes donc loin de l'hypothèse où l'instrument n'est limité que par le bruit de grenaille, le rapport signal sur bruit n'est que de 40 alors qu'il devrait être de l'ordre de 500 pour un instrument idéal – sachant que nous avons utilisé une valeur de 0.25 pour l'efficacité quantique effective du mélangeur. La bande d'analyse était de 100 MHz (filtre passe bas 50 MHz), le temps d'intégration de l'amplificateur à détection synchrone recevant le signal hétérodyne était de 300 ms, le système d'acquisition effectuant par la suite une moyenne numérique sur 500 ms, donc le temps d'enregistrement de ces spectres est de 8 min 30 s.

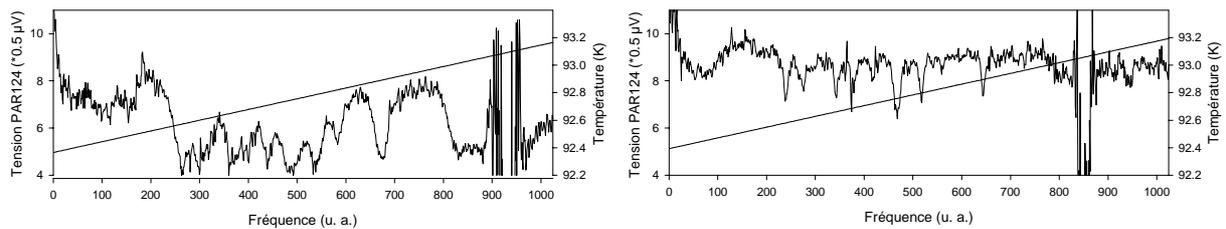


Figure 3.2.2 : Spectres hétérodynes d'absorption du SO_2 pour une cuve de 9.4 cm. A gauche, la pression de SO_2 est d'environ 10 torr, à droite, d'environ 1 torr.

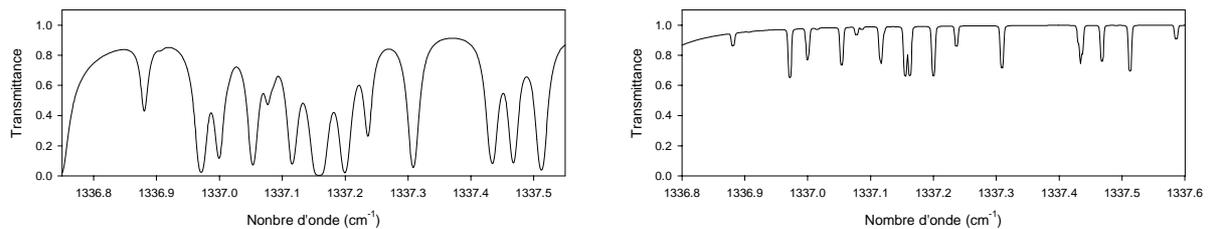


Figure 3.2.3 : Spectres d'absorption calculés correspondant aux spectres expérimentaux de la figure 3.2.2.

L'accord en fréquence de l'oscillateur local a été fait par variation de température. La rampe est indiquée sur les graphiques (ordonnées de droite), son taux est de 0.1 K/min. Ce taux de rampe de température constitue la limite basse des fonctionnalités intégrées de notre contrôleur de température. Pour obtenir un taux plus faible il faudrait piloter ce contrôleur par un PC. Or, nos conditions expérimentales nécessitent des temps d'intégration très longs, dans la mesure où le bruit d'excès est très important du fait de la ténuité de l'oscillateur local ; le taux de la rampe de température doit être en adéquation avec le temps d'acquisition du signal. Par exemple, sur les spectres présentés ci-dessus, à partir du spectre d'absorption directe (figure 3.2.1) nous connaissons le taux d'accord en température de la diode laser, soit $1.07 \text{ cm}^{-1}/\text{K}$. Appliquer une rampe de température de 0.1 K/min, revient faire évoluer la fréquence d'émission de la diode laser à un taux de $1.07 \text{ cm}^{-1}/\text{min}$ ou 17.8 milliKayser/s. Ainsi pendant une acquisition de 500 ms, la fréquence laser varie de 9 milliKayser, soit 270 MHz. La bande de détection hétérodyne est de 100 MHz, cette variation introduit donc un biais de la fonction appareil qu'on ne peut pas négliger. Nous avons vu précédemment que l'accord en fréquence de la diode laser (deuxième partie) par la température apporte une amélioration, cependant, en détection hétérodyne avec de faibles niveaux d'oscillateur local

nous procéderons à un balayage en courant, car dans l'état actuel de notre dispositif, nous ne pouvons pas générer des rampes de température à des taux suffisamment faibles correspondant à de longs temps d'intégration.

Continuons à commenter les spectres de la figure 3.2.2. par deux autres traits marquants. Tout d'abord, à droite du graphique, on observe une courte zone où le signal hétérodyne « s'affole » et se limite à du bruit. Cette zone correspond au saut de mode indiqué sur le spectre direct de la figure 3.2.1. Comme nous l'avons vu, ce phénomène propre aux lasers à semi-conducteurs entraîne un bruit rendant l'instrument inopérant. Ensuite, sur la gauche des spectres hétérodynes, au début des enregistrements, on observe un signal hétérodyne intense à l'origine qui progressivement décroît. En fait, il ne s'agit pas de signal hétérodyne, mais de bruit noyant complètement le signal. Ceci a été confirmé par des observations à l'analyseur de spectre. Ce bruit présent au début des enregistrements, trouve son origine dans la présence d'une raie d'absorption de l'eau atmosphérique indiquée sur le spectre direct 3.2.1. Cette raie provoque évidemment un effondrement des signaux source et oscillateur local incidents sur le mélangeur.

Pour comparaison, nous avons fait figurer, sous les spectres expérimentaux, les spectres calculés correspondants. Il s'agit de la figure 3.2.3. Pour le spectre de droite, calculé pour une pression de 1 torr de SO₂, la fonction appareil de largeur 100 MHz de l'instrument n'est plus négligeable devant la largeur des structures du spectre. Nous avons donc convolué le spectre calculé par une porte de 100 MHz.

Les spectres hétérodynes d'absorption peuvent être également obtenus par balayage de courant. Ce type de balayage peut se faire quel que soit le temps d'intégration choisi car la commande en courant est pilotée par le système d'acquisition (cf. première partie). Mais ceci entraîne une détérioration car la stabilité en courant de notre alimentation est plutôt médiocre en mode balayage.

La figure 3.2.4 montre un spectre hétérodyne d'absorption du SO₂, l'accord de fréquence de l'oscillateur local étant fait par balayage de courant. La diode laser utilisée est la 63HV-1-103. Une rampe de courant de 28 mA autour de 1220 mA a été appliquée ; la température restant fixée à 102 K. En ce point de fonctionnement, le taux d'accord en courant est de 21.1 cm⁻¹/A. Le mode d'émission est autour de 1329 cm⁻¹. Les conditions sont identiques à celles des spectres précédents : bande d'analyse de 100 MHz, temps d'intégration de 300 ms, temps d'acquisition de 500 ms. Quant à la puissance de la diode elle est toujours aussi faible ; le photo-courant continu recueilli en sortie de mélangeur est de -100 µA, sous une polarisation de -1.4 V. Le rapport signal sur bruit est de l'ordre de 20.

Sous le spectre expérimental, nous avons tracé un spectre calculé pour 10 torr de SO₂ dans la région correspondante.

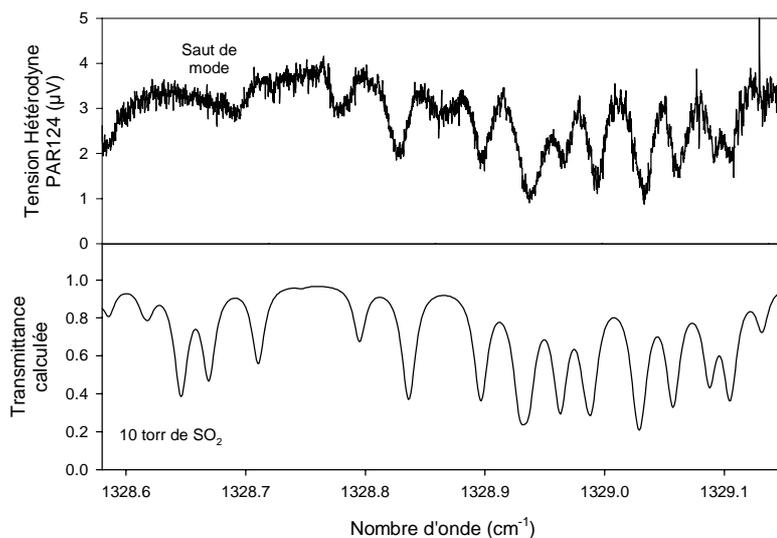


Figure 3.2.4
Spectres hétérodynes d'absorption du SO_2 obtenus par balayage du courant d'injection de l'oscillateur local

Les enregistrements de spectres hétérodynes nous permettent de valider le bon fonctionnement de l'ensemble du dispositif et d'opérer tous les réglages. Ceci étant fait, nous allons utiliser l'instrument en radiomètre haute résolution.

3.2.2. Emission

A présent il s'agit de collecter l'émission infrarouge des espèces moléculaires présentes dans la région des gaz brûlés de la flamme plate produite par le brûleur. Nous ôtons donc le barreau de Nernst et utilisons le brûleur comme source.

Emission en flamme naturelle : eau de combustion

Voyons tout d'abord le cas de la flamme, dite naturelle, produite par le mélange méthane/air. Quelles sont les espèces susceptibles d'émettre dans le moyen infrarouge ? Nous allons tout naturellement choisir un produit de combustion, le CO_2 est exclu, il ne présente que de très faibles absorptions dans la région spectrale couverte par nos lasers à semi-conducteurs ($1200\text{-}1300\text{ cm}^{-1}$), or en première approximation nous assimilons l'émissivité à l'absorptivité. L'eau semble alors toute indiquée, mais il faut prendre en compte sa présence dans l'atmosphère. Le cas idéal serait de travailler dans une région spectrale où les absorptivités de l'eau à 1200 K sont très importantes alors que celles de l'eau à 300 K sont quasi nulles. Mais le choix de la région de travail est dicté par la diode laser !

A partir de la cartographie spectrale des modes d'émission de la diode laser, nous réalisons des spectres synthétiques d'absorption de l'eau à température ambiante et à haute température. Les paramètres choisis sont proches des conditions de travail d'une flamme à 150 mbar : pour l'eau de combustion à 1200 K , 30 torr , 2.5 cm de longueur de cuve, 90 torr d'air ; pour l'eau atmosphérique à 300 K , 6 torr , 1.12 m de longueur et 750 torr d'air. Un exemple de ces spectres synthétiques entre 1300 et 1320 cm^{-1} est représenté sur la figure

3.2.5. Ces spectres permettent de prévoir grosso modo ce que le radiomètre hétérodyne pourra enregistrer.

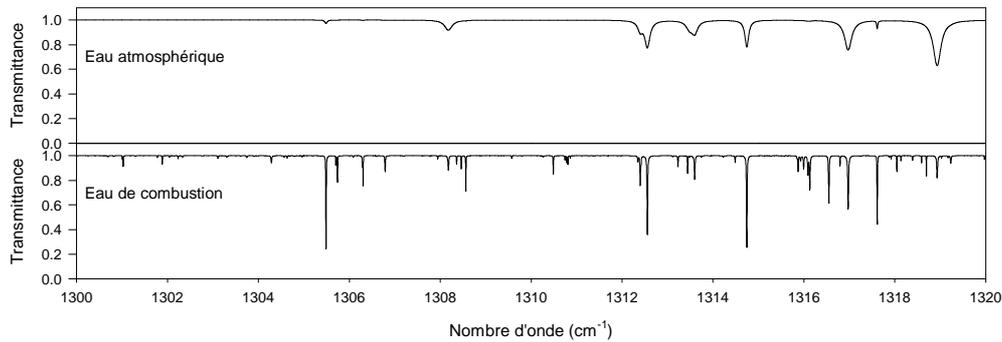


Figure 3.2.5 : Spectres synthétiques d'eau atmosphérique et d'eau de combustion.

A partir de ces spectres il est alors intéressant de calculer une température de corps noir équivalent, ceci permet d'estimer les niveaux de signal et de comparer avec des expériences faites avec le barreau de Nernst comme source. La température de corps noir équivalent T_{eq} est définie par la relation :

$$\frac{\varepsilon(\sigma)}{e^{\frac{h \cdot c \cdot \sigma}{k_B \cdot T}} - 1} = \frac{1}{e^{\frac{h \cdot c \cdot \sigma}{k_B \cdot T_{eq}}} - 1}, \quad (3.2.1)$$

où l'on a écrit que la luminance du gaz de molécules à température T et d'émissivité $\varepsilon(\sigma)$ est égale à la luminance d'un corps noir de température T_{eq} . En première approximation, l'émissivité est le complément à 1 de la transmittance, il faudrait donc écrire $\varepsilon(\sigma, T, P)$.

L'une de nos diodes laser, fournie par Laser Component, nous a permis d'atteindre la raie intense d'eau de combustion située un peu après 1305 cm^{-1} . La raie d'eau atmosphérique correspondante est peu intense. Au sommet de cette raie d'eau de combustion, l'émissivité atteint 0.8, soit une température de corps noir équivalent autour de 1070 K. Au sommet de la raie suivante, l'émissivité est de 0.2, soit une température de corps noir équivalent de 630 K.

Cette analyse préliminaire étant faite, nous passons à l'enregistrement expérimental de l'émission dans la région choisie. Dans un premier temps, nous ajustons finement le point de fonctionnement de la diode laser par spectroscopie d'absorption directe. Nous accordons la fréquence du laser et enregistrons les signaux du module de détection directe qui constituent notre référence pour la calibration en fréquence.

Sur ces entrefaites nous allumons la flamme comme cela a été décrit dans la troisième partie, et passons en détection hétérodyne. Nous répétons alors le balayage de fréquence d'émission de la diode laser.

Le tableau ci-après résume l'ensemble des conditions expérimentales pour l'enregistrement des spectres présentés sur la figure 3.2.6. Sur cette figure le graphique supérieur est l'enregistrement du spectre d'absorption directe, et le graphique inférieur est le spectre hétérodyne d'émission de l'eau de combustion correspondant.

Température DL	96.0 K	Temps d'intégration	1 s
Courant DL	1020 mA	Temps d'acquisition	2 s
Etendue balayage	56 mÅ	Temps total	17 min
Photo-courant	- 130 µA	Pression flamme	93 torr
Polarisation mélangeur	-1.6 V	Débit CH ₄	0.4 g/min
Bande d'analyse	180 MHz	Débit air	2.2 g/min

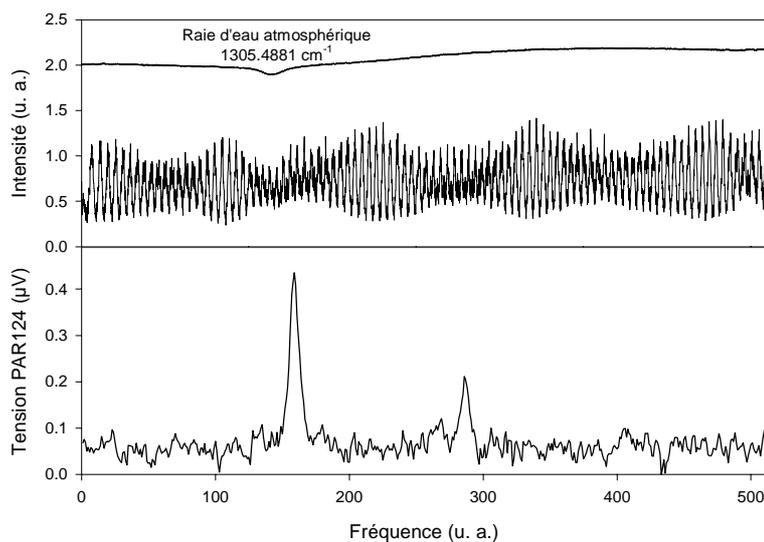


Figure 3.2.6
Spectre d'absorption directe (supérieur) et spectre hétérodyne de l'eau de combustion correspondant (inférieur)

Au point de fonctionnement considéré, le taux d'accord en courant est de $17.5 \text{ cm}^{-1}/\text{Å}$. Les spectres de la figure 3.2.6 présentent une zone de 0.98 cm^{-1} d'étendue spectrale. Les deux raies d'émission apparaissant sont celles dont nous avons calculé la température de corps noir équivalent. Nous réitérons ces enregistrements en réduisant l'étendue de la rampe de courant à 28 mÅ afin de mieux cadrer le couple de raies d'émissions. Nous enregistrons des spectres avec une bande d'analyse successivement de 180 MHz et 100 MHz ; ceci est présenté sur la figure 3.2.7.

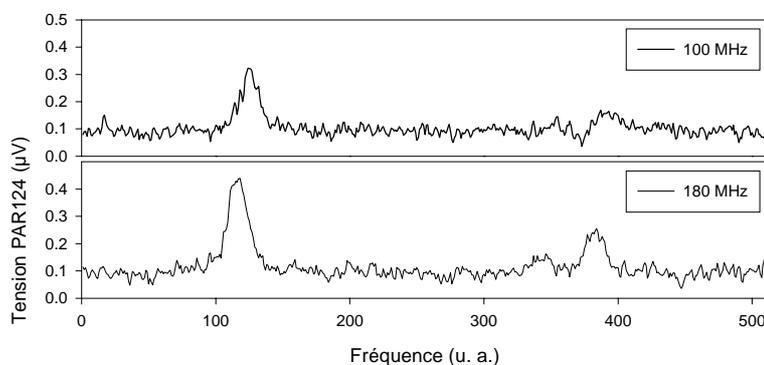


Figure 3.2.7
Influence de la bande d'analyse sur le spectre d'émission hétérodyne de l'eau de combustion.

Tout d'abord on constate que d'un spectre à l'autre – soit après un laps de temps de 17 min – le sommet du pic d'émission a légèrement varié en fréquence, signe que le point de

fonctionnement du laser à semi-conducteurs a évolué. Le signal est évidemment plus faible en bande plus étroite, mais les largeurs à mi-hauteur sont identiques.

Pour ces spectres les rapports signal sur bruit sont bien sûr bien inférieurs à ceux attendus dans le cas d'un instrument idéal, mais ceci a déjà été dit. Nous commenterons plus longuement ces spectres en les comparant à un modèle de flux émis par les produits de combustion dans une section à venir.

Emission en flamme polluée : dopage en SO₂

A quoi peut-on s'attendre avec une flamme dopée au SO₂ ? Tout comme pour l'eau nous calculons des spectres synthétiques et estimons, en première approximation, la température de corps noir équivalente. Nous nous plaçons dans des conditions réalistes pour le calcul : une température de 1200 K, une pression partielle de 2.4 torr une pression d'air de 160 torr, une longueur de 2.5 cm. Les spectres calculés sont sur la figure 3.2.8.

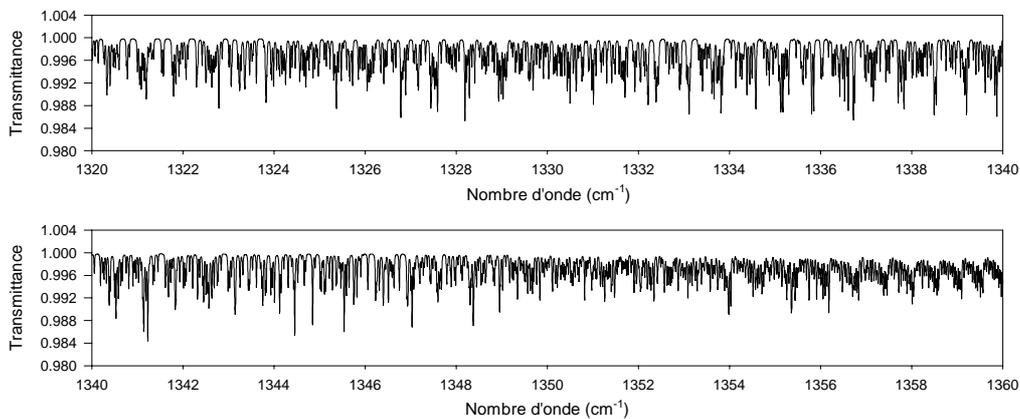


Figure 3.2.8 : Spectres synthétiques de SO₂ dans la flamme à 1200 K.

Sur ces spectres une chose frappe : les absorptions restent très faibles. Ceci est directement lié à la température. Une augmentation de température provoque, via la statistique d'occupation des niveaux ro-vibrationnels, un effondrement de l'intensité des raies d'absorption. Ainsi pour les raies les plus intenses, la température de corps noir équivalente n'est que de 350 K ! Nous pouvons d'ores et déjà prévoir que l'observation de l'émission du SO₂ sera problématique.

Pour régler l'instrument en détecteur de SO₂, et voir l'influence de la quantité de polluant injecté dans la flamme nous réalisons une expérience préliminaire. Nous utilisons le mélangeur en simple détecteur photovoltaïque. Nous allumons la flamme, injectons du SO₂ dedans et nous collectons le flux émis par la région des gaz brûlés pour le focaliser sur le détecteur. Nous collectons simplement le signal délivré par le détecteur en fonction de la pression partielle de SO₂ injecté. Ces mesures apparaissent sur la figure 3.2.9. Nous avons travaillé avec une flamme de 140 torr.

Ceci revient à faire une détection large bande de l'émission du polluant, la bande de détection étant la bande passante optique du détecteur SAT1903, soit environ 6 – 11 μm (cf. figure 3.1.7). Comme l'indique la figure 3.2.9, la contribution du SO_2 est flagrante. Cette configuration nous permet en outre d'optimiser les réglages optiques pour la collection de l'émission.

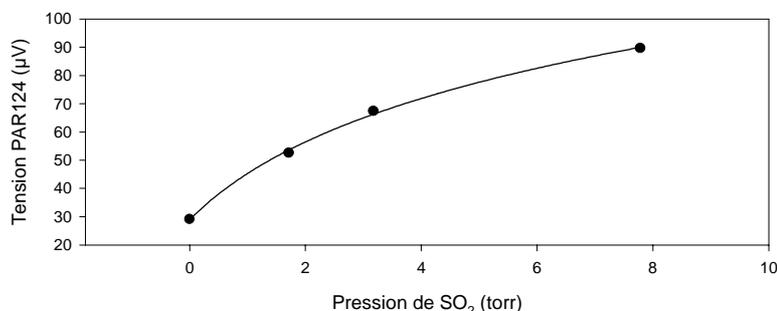


Figure 3.2.9

Influence de la pression de SO_2 dans la flamme sur le signal infrarouge large bande.

Nous tentons alors d'observer l'émission du polluant avec le radiomètre hétérodyne. Nous savons que les conditions sont extrêmement critiques. Cependant, dans le cas du dioxyde de soufre, nous allons pouvoir améliorer la sensibilité du radiomètre en élargissant la bande passante d'analyse RF et donc en réduisant la résolution. Ceci est d'autant plus possible que les raies d'émission de ce composé s'élargissent très vite avec la pression.

Parmi les lasers disponibles au laboratoire, l'un d'eux, fourni par le Lebedev-Institut de Moscou, semble adéquat, aux vues des tests de caractérisation en spectroscopie d'absorption directe. A de forts courants d'injection (1 A), ce laser présente un mode de bonne qualité spectrale autour de 1336 cm^{-1} , mais très court en gamme d'accord (environ 0.45 cm^{-1}). La puissance incidente sur le mélangeur, sans être exceptionnelle de par son ampleur, permet la détection hétérodyne. Nous l'estimons entre 100 et 120 μW . La fréquence émise s'accorde sur ce mode à un taux de $25\text{ cm}^{-1}/\text{A}$.

Nous nous plaçons dans les conditions expérimentales résumées dans le tableau suivant :

Température DL	92.6 K	Temps d'intégration	3 s
Courant DL	1000 mA	Temps d'acquisition	6 s
Etendue balayage	14 mA	Temps total	13×2 min
Photo-courant	- 200 μA	Pression flamme	175 torr
Polarisation mélangeur	-1.8 V	Débit CH_4	0.33 g/min
Bande d'analyse	700 MHz	Débit air	2.2 g/min
Nb de points	128×2	Débit SO_2	0.08 g/min

Via le module d'absorption directe présent sur le banc d'expérimentation, nous commençons par enregistrer un spectre d'absorption du dioxyde de soufre contenu dans la cuve de 20 cm, sous une pression de 0.5 torr dans la zone spectrale de travail choisie. Puis nous enregistrons le spectre d'émission hétérodyne correspondant. Les spectres sont présentés sur la figure 3.2.10, le spectre hétérodyne de cette figure est le cumul de deux spectres

enregistrés. Le spectre hétérodyne présente des lobes d'émission coïncidant avec les raies de dioxyde de soufre. Ces dernières sont élargies, à la fois du fait de la pression importante régnant dans le brûleur, et du fait de la largeur de la fonction appareil. Nous verrons juste après un modèle décrivant globalement ces lobes d'émission. Quoiqu'il en soit, entre la zone où le dioxyde de soufre ne possède aucune raie spectrale et la zone où ces raies existent, l'instrument fournit un contraste de 1 μV qui rend le polluant parfaitement détectable.

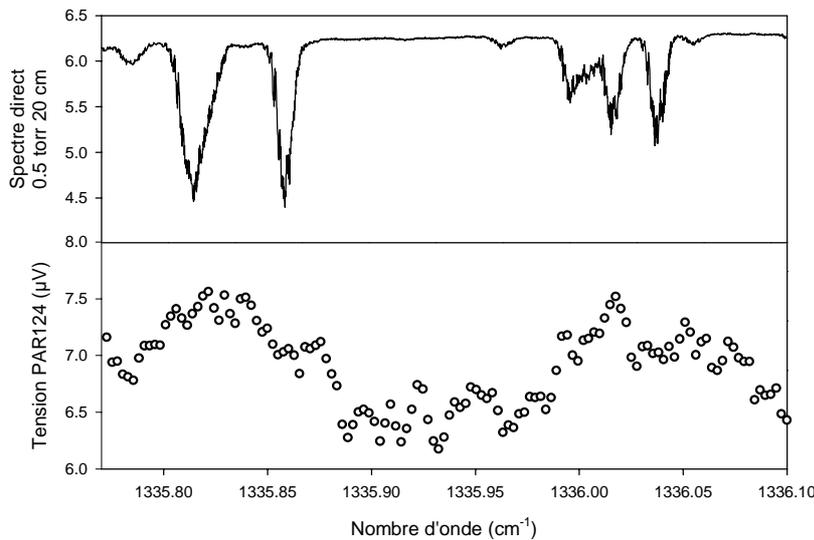


Figure 3.2.10
Spectre d'absorption directe de SO_2 et spectre hétérodyne d'émission correspondant

3.3. Modèle d'émission

Afin d'ébaucher une approche quantitative et de simuler de manière plus fine les spectres expérimentaux, nous allons présenter un modèle simple du flux émis dans le brûleur. Ce modèle a pour base la résolution de l'équation de transferts radiatifs dans notre milieu, dont nous reprendrons la description en trois couches déjà évoquée dans la troisième partie. Sur cette base, le modèle peut alors être affiné, car le modèle en trois couches reste somme toute très grossier.

3.3.1. Equation de transferts radiatifs

Commençons par exposer les hypothèses de travail. Le milieu est constitué de gaz à l'équilibre thermodynamique local, les lois de Planck et Kirschoff sont applicables. De plus, le milieu est supposé non diffusant. L'équation de transfert s'écrit alors :

$$\frac{dL_v(s, \Omega)}{ds} = -K(\lambda) \cdot L_v(s, \Omega) + K(\lambda) \cdot L_v^0 [T(s)], \quad (3.3.1)$$

où $L_v(s, \Omega)$ est la luminance du milieu à l'abscisse curviligne s dans la direction Ω . $K(\lambda)$ est le coefficient d'absorption du milieu qui a été défini dans la première partie, $T(s)$ sa température à l'abscisse s . Rappelons que L_v^0 est la luminance de Planck. Pour une couche de longueur ℓ de gaz, la résolution en géométrie unidimensionnelle donne :

$$L_v(\ell) = L_v(0) \cdot e^{-K(\lambda) \cdot \ell} + K(\lambda) \int_0^\ell L_v^0 [T(x)] \cdot e^{-K(\lambda) \cdot (\ell-x)} dx . \quad (3.3.2)$$

Ceci est une expression générale pour une couche de gaz. Il faut alors préciser la géométrie de notre problème.

3.3.2. Géométrie et photométrie

Nous reprenons le modèle en trois couches de la troisième partie. La figure 3.3.1 précise ce dernier. Entre les abscisses 0 et L_1 nous avons la première couche froide, entre L_1 et L_2 la couche chaude, et entre L_2 et L_3 la seconde couche froide.

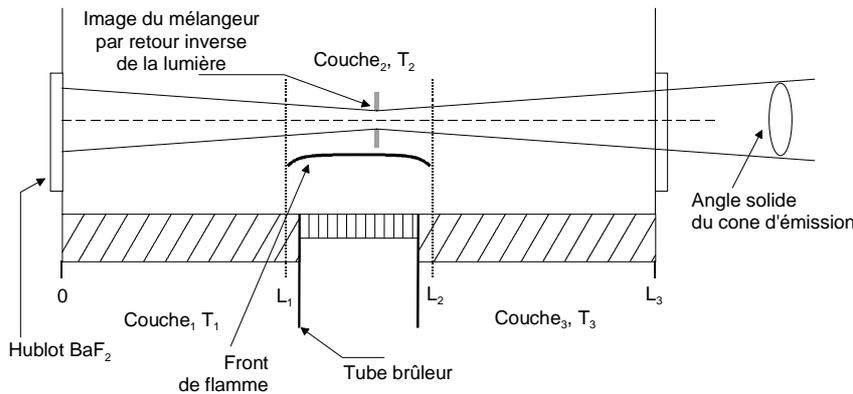


Figure 3.3.1
Géométrie d'émission dans le brûleur.

Etant donné que par hypothèse, nous faisons l'approximation que ces couches sont isothermes, les luminances aux différentes abscisses remarquables s'écrivent :

$$L_v(L_1) = L_v^0(T_1)(1 - e^{-K(\lambda, T_1) \cdot L_1}) + L_v(0) \cdot e^{-K(\lambda, T_1) \cdot L_1} , \quad (3.3.3)$$

$$L_v(L_2) = L_v^0(T_2)(1 - e^{-K(\lambda, T_2) \cdot (L_2 - L_1)}) + L_v(L_1) \cdot e^{-K(\lambda, T_2) \cdot (L_2 - L_1)} , \quad (3.3.4)$$

$$L_v(L_3) = L_v^0(T_3)(1 - e^{-K(\lambda, T_3) \cdot (L_3 - L_2)}) + L_v(L_2) \cdot e^{-K(\lambda, T_3) \cdot (L_3 - L_2)} . \quad (3.3.5)$$

Nous connaissons ainsi la luminance au niveau du hublot de sortie (en L_3) et sous réserve que la couche d'atmosphère traversée jusqu'au mélangeur soit totalement transparente, nous connaissons aussi la luminance incidente sur le mélangeur. Notons que nous avons réintroduit la dépendance en température du coefficient d'absorption.

Pour alors connaître le flux total reçu par le mélangeur il nous reste à considérer les grandeurs photométriques qui interviennent. Puisque nous sommes dans le cadre de la détection hétérodyne du flux, l'étendue géométrique de détection est fixée par le théorème de l'antenne que nous avons vu précédemment. L'étendue hétérodyne est très faible, les surfaces intervenant sont au pire de l'ordre de $150\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$ (image du détecteur dans la région des gaz brûlés par retour inverse de la lumière), nous nous placerons donc systématiquement dans l'approximation des petits angles. L'expression générale du flux spectral émis étant :

$$\Phi_v = \iint_{S \Omega} L_v \cdot \cos(\theta) \cdot dS \cdot d\Omega , \quad (3.3.6)$$

le flux total quittant le hublot et détecté dans la bande d'analyse sera avec nos approximations :

$$\Phi^T = \lambda^2 \int_{\bar{\nu}_{OL} - \frac{B}{2}}^{\bar{\nu}_{OL} + \frac{B}{2}} L_\nu(L_3) \cdot d\nu \approx \lambda^2 \cdot B \cdot L_\nu(L_3). \quad (3.3.7)$$

A partir de ces notions, nous avons écrit un programme en C nous permettant de calculer des spectres d'émission dans le cas de la géométrie de notre brûleur.

3.3.3. Exemple et comparaison

Reprenons le spectre hétérodyne expérimental de la figure 3.2.7. Nous allons dans un premier temps extraire à partir de la méthode des deux raies, présentée dans la troisième partie, une estimation de la température à partir des données spectroscopiques fournies par Hitemp96. Ces dernières sont données dans le tableau suivant pour les raies apparaissant sur le spectre expérimental.

Fréquence (cm ⁻¹)	Force de raie (cm ⁻¹ /molecule.cm ⁻²)	Energie du niveau inférieur (cm ⁻¹)	J'' (inf.)
1305.488100	2.004E-20	2225.4690	9
1305.488100	6.664E-21	2225.4690	9
1305.703061	1.210E-21	3391.1310	13
1305.739657	3.638E-21	3391.1260	13

Table 3.3.1 : Données spectroscopiques issues de Hitemp96 des raies d'eau apparaissant sur la figure 3.3.2, pour une température de référence de 1000 K

La méthode nous fournit l'estimation d'une température rotationnelle de 1885 K. Il s'agit d'une estimation car cette méthode ne prend pas en compte les profils de température ou de concentration existant dans le brûleur. On remarque que cette température déduite est plus élevée que ce que donnent les mesures de température au thermocouple (environ 1300 K), mais plus proche de la température théorique de réaction CH₄/air (2200 K).

Nous allons calculer le spectre théorique correspondant à partir du modèle présenté ci-dessus. Les paramètres utilisés pour le calcul sont résumés dans le tableau suivant.

Température chaude	2200 K	Pression d'eau	30 torr
Température froide	800 K	Pression d'air	65 torr
L _v (0)	L _v ⁰ (300)	Bande d'analyse	180 MHz

Les températures de couches sont, comme nous l'avons indiqué dans la troisième partie, des températures effectives moyennées sur le profil réel de température des couches. Pour la couche chaude, nous utilisons la température théorique de la réaction de combustion CH₄/air. Pour la couche froide, nous ajustons une température effective qui prend en compte l'existence d'un profil de température et l'existence d'un profil de concentration. Les pressions d'air et d'eau sont extraites des données provenant des débitmètres et manomètres de contrôle du brûleur et de la stœchiométrie de la réaction de combustion. Notons que ce que nous appelons de l'air ne l'est pas rigoureusement, puisque le mélange gazeux environnant

l'eau de combustion est sans oxygène mais très riche en dioxyde de carbone. Enfin, nous avons considéré que la luminance à l'origine est le rayonnement de corps noir à la température ambiante pénétrant dans le brûleur par le hublot arrière.

La figure 3.3.2 superpose le spectre expérimental et le spectre calculé. On constate que la raie d'émission la plus intense devrait l'être encore plus. En effet, notre modèle n'a pas pris en compte un élément concernant cette raie : à cette fréquence une légère absorption atmosphérique à température ambiante persiste. Par conséquent, une partie de la puissance émise par la source est absorbée, ainsi qu'une partie de la puissance émise par l'oscillateur local. Ceci entraîne que le niveau de signal en sommet de raie calculée est surestimé.

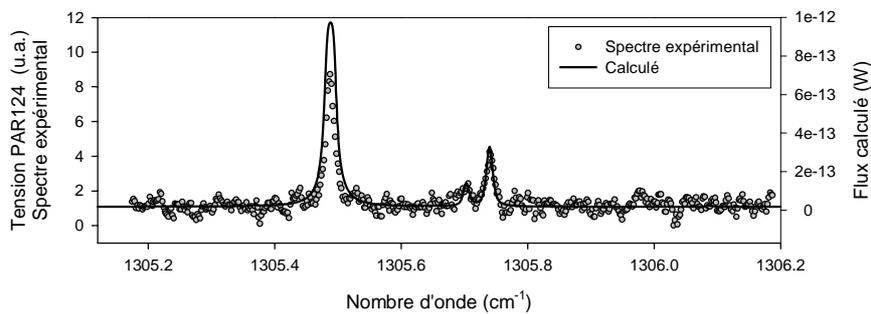


Figure 3.3.2
Spectre hétérodyne
d'émission de l'eau de
combustion

Dans les conditions expérimentales bien précises de l'enregistrement de ce spectre, nous sommes également renseignés sur la limite de détection de notre instrument. La deuxième raie spectrale en partant de la gauche sort à peine du bruit, en son sommet le flux est de l'ordre de $1.3 \cdot 10^{-13}$ W (Température équivalente de corps noir 450 K). Nous pourrions ainsi comparer avec les niveaux de signal prévus par le modèle dans le cas du SO_2 . D'autre part ce niveau de détection peut être comparé au niveau théorique de détection dans l'hypothèse où seul le bruit de grenaille limite l'instrument. Ce dernier est de $7 \cdot 10^{-16}$ W (Température équivalente de corps noir 200 K), où l'on voit apparaître l'influence des dégradations décrites précédemment !

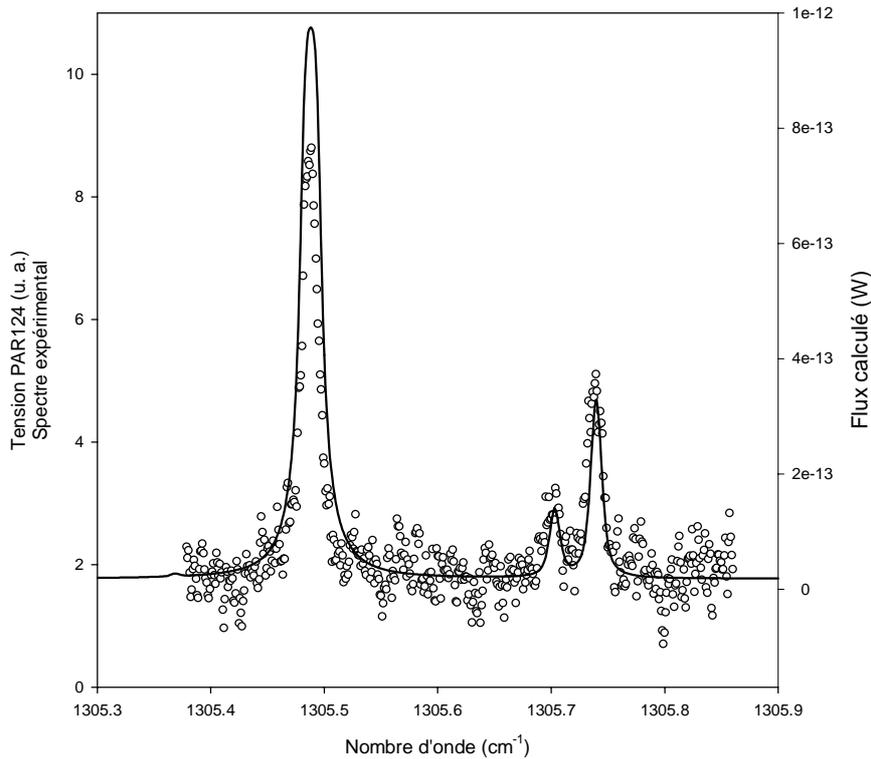


Figure 3.3.3
Autre spectre hétérodyne
expérimental.

La figure 3.3.3 est un autre spectre expérimental montrant plus précisément les raies d'émission. Nous avons comparé le spectre calculé brut et le spectre calculé puis ensuite convolué par la fonction appareil de l'instrument. On constate que cette dernière n'intervient quasiment pas.

Enfin, en ce qui concerne l'émission du dioxyde de soufre, le spectre expérimental est comparé au spectre calculé sur la figure 3.3.4. Les paramètres utilisés pour le calcul sont donnés dans le tableau suivant :

Température chaude	1300 K	Pression SO ₂	5.3 torr
Température froide	550 K	Pression d'air	170 torr
L _v (0)	L _v ⁰ (300)	Bande d'analyse	700 MHz

où les températures sont reprises des mesures expérimentales par spectroscopie d'absorption directe présentées dans la troisième partie. Pour cette simulation le spectre d'émission théorique a été convolué à la fonction appareil du radiomètre correspondant à la réponse du détecteur, puisque aucun filtre passe bas ne limite la bande d'analyse (cf. figure 3.1.13).

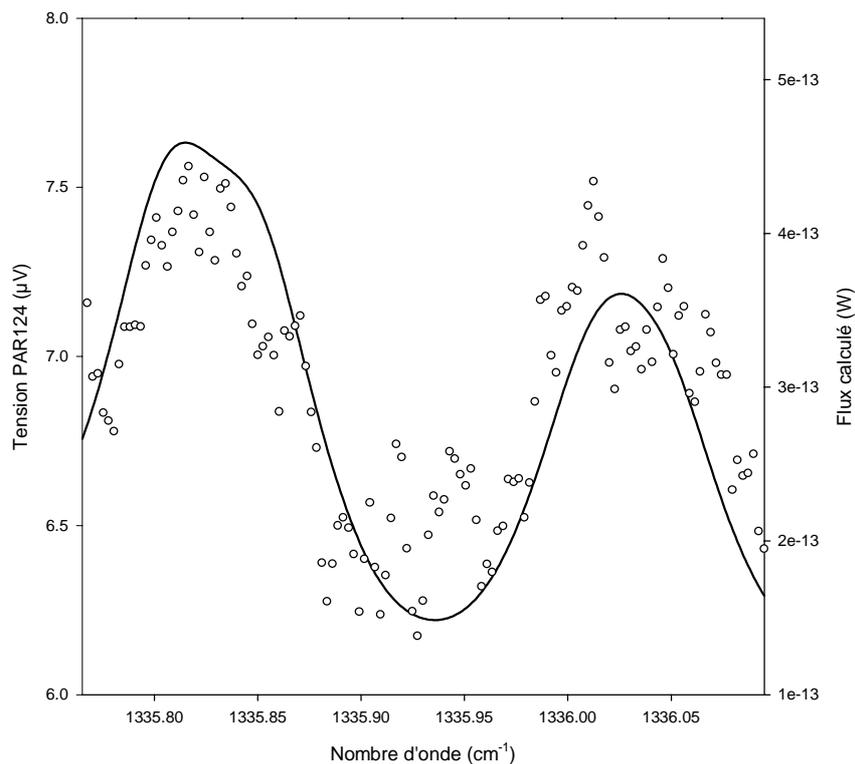


Figure 3.3.4
Spectre hétérodyne
d'émission de SO₂

L'instrument est donc capable de détecter la présence de polluant dans la flamme, bien que celui-ci soit très peu émetteur, et en dépit d'un oscillateur local très imparfait. Cette détection se révèle de plus, contrairement aux techniques radiométriques large bande (comme une caméra infrarouge par exemple) sélective quant au composé moléculaire sondé.

3.3.4. Pistes pour l'amélioration de l'instrument

Dans un premier temps, le facteur restreignant la limite de détection du radiomètre est, nous l'avons déjà dit, la médiocrité de l'oscillateur local. Une première solution serait donc de réitérer ces expériences avec une diode laser à sels de plomb d'excellente qualité munie d'un isolateur optique.

Toujours pour pallier les lacunes de l'oscillateur local, une autre solution est de changer la nature de ce dernier et d'utiliser une diode à cascade quantique. Ce dernier composant offre certes des taux d'accord réduits, mais en contrepartie les puissances émises sont très élevées, les qualités spectrales très bonnes puisqu'on peut atteindre une largeur spectrale de 0.5 MHz [66]. G. Sonnabend et al. ont largement amélioré la sensibilité d'un spectromètre hétérodyne infrarouge par l'utilisation d'un laser à cascade quantique comme oscillateur local [67].

Enfin, on peut jouer sur la source d'émission. Les luminances émises dépendent du parcours optique dans le milieu à sonder. Un brûleur de plus grande dimension permettrait d'augmenter le flux émis par le SO₂ chaud. De plus si cette source se situe dans l'atmosphère, avec pour fond ambiant le ciel, l'utilisation du modulateur à miroir permet alors d'augmenter

largement le contraste thermique, et par suite, du dioxyde de soufre à 300 K sur fond de ciel est parfaitement détectable.

3.3.5. *Discussion sur une méthode d'inversion quantitative*

Quelles sont les informations que l'on peut espérer tirer, avec suffisamment d'acuité, des spectres d'émission enregistrés avec le radiomètre hétérodyne ? L'ensemble des paramètres nécessaires aux simulations montre qu'une bonne connaissance du milieu environnant l'espèce moléculaire demeure indispensable.

Imaginons que le radiomètre est pointé sur un nuage de gaz chaud atmosphérique. L'enregistrement de spectres d'émission pourra permettre dans un premier temps l'identification du ou des gaz. Ensuite l'extraction d'une information quantitative sur la concentration impose d'autres mesures. Il faut connaître la température du gaz. Il n'y a aucune raison que le nuage soit isotherme, ce qui implique la connaissance de son profil de température dans la direction de visée du radiomètre. La méthode des deux raies, vue dans la troisième partie, peut être employée, si la région spectrale de travail le permet, pour mesurer à distance la température. Ensuite, pour remonter à la concentration à partir des formes de raie, il faut connaître les autres gaz constituant le milieu ainsi que leurs proportions car ceux-ci contribuent à l'élargissement des raies d'émission de l'espèce à caractériser. Il faut également quantifier la taille du nuage.

Si le radiomètre travaille toujours sur le même milieu, un simple étalonnage suffit.

4. Conclusion

Cette dernière partie nous a permis de développer l'ensemble des notions attachées à la radiométrie hétérodyne. Avant d'introduire les résultats de nos expériences, nous avons exposé l'ensemble des concepts physiques liés à la technique hétérodyne. L'analyse des facteurs de dégradation susceptibles d'intervenir sur un tel instrument est de première importance pour la compréhension d'un instrument réel.

Nous avons alors exposé la conception et la réalisation du radiomètre prototype, et présenté les résultats obtenus. Dans un premier temps, nous avons montré la possibilité d'enregistrer des spectres d'eau à haute température, cette dernière étant produite par la réaction de combustion elle-même. Pour les raies d'eau provenant de bandes chaudes et n'interférant pas avec l'eau atmosphérique, notre instrument peut être appliqué à la télédétection passive et la caractérisation in situ d'un propulseur méthane/oxygène.

Puis, par l'enregistrement de spectres d'émission de dioxyde de soufre, volontairement injecté dans la chambre de combustion, nous avons montré que les polluants issus de réactions de combustion peuvent être détectés et mesurés.

Ces résultats, sur un radiomètre hétérodyne prototype perfectible, tendent à montrer qu'un tel instrument est très utile dans le champs d'application des diagnostics de combustion. L'avènement d'une nouvelle génération de laser à semi-conducteurs tels que les lasers à cascades quantiques, relance les applications d'un radiomètre hétérodyne. Ces lasers procureront en effet un oscillateur local accordable et d'excellente qualité fonctionnant à température ambiante.

5. Références

- 1 J. L. Hogan, The heterodyne receiving system, and notes on the recent Allington-Salem Tests, Proceedings of the I.R.E., **1**, 75-102, 1913
- 2 E. H. Armstrong, A new system of short wave amplification, Proceedings of I.R.E., **9**, 3-27, 1921
- 3 G.W. Schwaab, Heterodyne spectrometers, Infrared Physics & Technology, **40**, 207-218, 1999.
- 4 A. T. Forrester, R. A. Gudmundsen, P. O. Johnson, Photoelectric mixing of incoherent light, Physical Review, **99**, 6, 1691-1700, 1955.
- 5 A. T. Forrester, Photoelectric mixing as a spectroscopic tool, Journal of the optical society of America, **51**, 3, 253-259, 1961.
- 6 M. C. Teich, R. J. Keyes, R. H. Kingston, Optimum heterodyne detection at 10.6 μm in photoconductive Ge:Cu, Applied Physics Letters, **9**, 10, 357-360, 1966.
- 7 R. T. Menzies et M. S. Shumate, Air pollution: Remote detection of several pollutant gases with a laser heterodyne radiometer, Science, **184**, 570-571, 1974
- 8 S. R. King, D. T. Hodges, T. S. Hartwick et D. H. Barker, High resolution atmospheric transmission measurement using a laser heterodyne radiometer, Applied Optics, **12**, 6, 1106-1107, 1973
- 9 R. K. Seals et B. J. Peyton, Remote sensing of atmospheric pollutant gases using an infrared heterodyne spectrometer, Annals No 75CH1004-1 10-5 of the institute of Electrical and electronics Engineers, 1-6, 1976
- 10 C. Thiébeaux, D. Courtois, A. Delahaigue, H. Le Corre, J. C. Mouanda et A. Fayt, Dual beam laser heterodyne spectrometer : ethylene absorption spectrum in the 10 μm range, Applied Physics, **B47**, 4, 313-318, 1988
- 11 S. L. Jain, Laser heterodyne system for measurement of minor constituents in the atmosphere, Indian Journal of Radio & Space Physics, **25**, 309-317, 1996
- 12 M. A. Frerking, D. J. Muehlner, Infrared heterodyne spectroscopy of atmospheric ozone, Applied Optics, **16**, 3, 526-528, 1977
- 13 J. M. Hoell, C. N. Harward et W. Lo, High resolution atmospheric spectroscopy using a diode laser heterodyne spectrometer, Optical Engineering, **21**, 2, 320-326, 1982

-
- 14 D. Glenar, T. Kostiuk, D. E. Jennings, D. Buhl et M. J. Mumma, Tunable diode laser heterodyne spectrometer for remote observations near 8 μm , *Applied Optics*, **21**, 2, 253-259, 1982
- 15 H. Fukunishi, S. Okano, M. Taguchi et T. Ohnuma, Laser heterodyne spectrometer using a liquid nitrogen cooled tunable diode laser for remote measurements of atmospheric O_3 and N_2O , *Applied Optics*, **29**, 18, 2722-2728, 1990
- 16 B. Parvitte, C. Thiebeaux et D. Courtois, Tunable heterodyne spectrometer in the 9 μm range with selected lead-salt diodes, *Spectrochimica Acta Part A-Molecular Spectroscopy*, **55A**, 10, 2027-2037, 1999.
- 17 T. Kostiuk, M. J. Mumma, Remote sensing by IR heterodyne spectroscopy, *Applied Optics*, **22**, 17, 2644-2654, 1983
- 18 A. L. Betz, M. A. Johnson, R. A. McLaren et E. C. Sutton, Heterodyne detection of CO_2 emission lines and wind velocities in the atmosphere of Venus, *Astrophysical Journal*, **208**, L141-L144, 1976
- 19 J. H. McElroy, Infrared heterodyne solar radiometry, *Applied Optics*, **11**, 7, 1619-1622, 1972
- 20 F. Schmülling, B. Klumb, M. Harter, R. Schieder, B. Vowinkel et G. Winnewisser, High sensitivity mid-infrared heterodyne spectrometer with a tunable diode laser as a local oscillator, *Applied Optics*, **37**, 24, 5771-5776, 1998
- 21 S. Y. Tochitsky et R. J. Butcher, Precise measurements of line broadening and line shifts in low pressure gases using a heterodyne CO_2 laser spectrometer: applications to C_2H_4 and CH_3OH , *Journal of Optical Society of America B*, **15**, 4, 1392-1398, 1998
- 22 J. J. Hillman, D. E. Jennings et J. L. Faris, Diode laser CO_2 laser heterodyne spectrometer: measurement of $2sQ(1,1)$ in $2v_2-v_2$ of NH_3 , *Applied Optics*, **18**, 11, 1808-1811, 1979
- 23 M. D. Levenson, B. A. Paldus, T. G. Spence, C. C. Harb, J. S. Harris, R. N. Zare, Optical heterodyne detection in cavity ringdown spectroscopy, *Chemical Physics Letters*, **290**, 335-340, 1998
- 24 J. R. Kerr, P. J. Titterton, A. R. Kraemer, C. R. Cooke, Atmospheric optical communications systems, *Proceedings of the IEEE*, **58**, 10, 1691-1709, 1970.
- 25 U. H. P. Fischer et C. von Helmolt, Scanning heterodyne spectrometer with different local oscillator laser types, *Journal of Optical Communication*, **15**, 1, 13-15, 1994
- 26 J. W. Foreman, E. W. George, J. L. Jetton, R. D. Lewis, J. R. Thornton, H. J. Watson, 8C_2 -Flow measurements with a laser doppler velocimeter, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **QE-2**, 8, 260-266, 1966
- 27 A. Abdullah, A. Drobnik, G. Owczarek et L. Wolf, Local to signal beam ratio of the heterodyne spectrometer, *Optical Engineering*, **32**, 6, 1384-1386, 1993

-
- 28 M. C. Teich, Field – theoretical treatment of photomixing, *Applied Physics Letters*, **14**, 6, 201-203, 1969
- 29 L. Mandel et E. Wolf, Coherence properties of optical fields, *Review of Modern Physics*, **37**, 2, 1965
- 30 M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, Oxford, 1980.
- 31 H. Z. Cummins et H. L. Swinney, Light beating spectroscopy, *Progress in Optics*, Volume VIII, North-Holland, 1970
- 32 L. Mandel et E. Wolf, *Optical coherence and quantum optics*, Cambridge University Press, 1995.
- 33 O. Andrade et B. J. Rye, Tolerances in optical mixing, *Journal of Physics D: Applied Physics*, **7**, 280-291, 1974
- 34 L. Mandel et E. Wolf, Spectral coherence and the concept of cross spectral purity, *Journal of the Optical Society Of America*, **66**, 529-535, 1976
- 35 L. Mandel, Concept of cross-spectral purity in coherence theory, *Journal of the Optical Society of America*, **51**, 12, 1342-1350, 1961
- 36 E. Wolf, A macroscopic theory of interference and diffraction of light from finite sources, *Proceedings of the Royal Society, Series A*, **230**, 1181, 246-265, 1955
- 37 R. J. Glauber, *Optical coherence and photon statistics*, Quantum Optics and Electronics, Les Houches 1964, Gordon & Breech, New York, 1965
- 38 J. J. Degnan, Design considerations for optical heterodyne receivers: a review, *Heterodyne systems and technology part II*, 461-486, NASA conference publication 2138, 1980.
- 39 B. J. Rye, Antenna parameters for incoherent backscatter heterodyne lidar, *Applied Optics*, **18**, 9, 1390-1398, 1979
- 40 R. H. Kingston, *Detection of optical and infrared radiation*, Springer-Verlag, Berlin; 1978
- 41 M. E. Faye, *Analyse radiofréquence acousto-optique, application à la spectrométrie hétérodyne*, Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, 1999
- 42 M. J. Mumma, T. Kostiuik, D. Buhl, G. Chin et D. Zipoy, Infrared heterodyne spectroscopy, *Optical Engineering*, **21**, 2, 313-319, 1982
- 43 C. Thiébeaux, *Spectrométrie laser hétérodyne*, Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, 1987

- 44 C. Thiébeaux, A. Delahaigue, D. Courtois et J. C. Mouanda, Heterodyne spectra analysis, *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, **12**, 5, 759-767, 1992
- 45 R. Schieder, High resolution diode laser and heterodyne spectroscopy with applications toward remote sensing, *Infrared Physics & Technology*, **35**, 2/3, 477-486, 1994
- 46 K. Rohlf, T. L. Wilson, *Tools of Radio Astronomy*, Springer-Verlag, Berlin, 1999
- 47 T. G. Blaney, Signal to noise ratio and other characteristics of heterodyne radiation receivers, *Space Science Reviews*, **17**, 691-702, 1975
- 48 R. W. Boyd, *Radiometry and the detection of optical radiation*, John Wiley & Sons, New York, 1983
- 49 H. Levinstein, Extrinsic detectors, *Applied Optics*, **4**, 6, 639-647, 1965
- 50 M. M. Abbas, M. J. Mumma, T. Kostjuk et D. Buhl, Sensitivity limits of an infrared heterodyne spectrometer for astrophysical applications, *Applied Optics*, **15**, 2, 427-436, 1976
- 51 A. E. Siegman, The antenna properties of optical heterodyne receivers, *Proceedings of the IEEE*, **54**, 10, 1350-1356, 1966
- 52 A. Waksberg, Field of view increase for optical heterodyne receivers, *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, **20**, 6, 1059-1071, 1999
- 53 S. C. Cohen, Heterodyne detection: phase front alignment, beam spot size, and detector uniformity, *Applied Optics*, **14**, 8, 1953-1959, 1975
- 54 K. Tanaka et N. Ohta, Effects of tilt and offset of signal field on heterodyne efficiency, *Applied Optics*, **26**, 4, 627-632, 1987
- 55 D. Fink, Coherent detection signal to noise, *Applied Optics*, **14**, 5, 689-690, 1975
- 56 M. Siriex, *Propriétés des photodiodes au tellure de mercure - tellure de cadmium, application aux télécommunications à 10.6 μm, thèse de doctorat, Faculté des sciences d'Orsay, Université de Paris, 1971.*
- 57 J. Y. Coester et H. Hofheimer, Selecting HgCdTe Photodiodes, *Optical Spectra*, 55-59 Novembre 1978.
- 58 C. T. Elliott, N. T. Gordon, D. J. Wilson, C. L. Jones, C. D. Maxey, N. E. Metcalfe, A. Best, A high performance CO₂ laser heterodyne detector operating at 250 K, *Journal of Modern Optics*, **45**, 8, 1601-1611, 1998
- 59 M. B. Siriex, H. Hofheimer, Conceptual design and applications of HgCdTe infrared photodiodes for heterodyne systems, *Heterodyne systems and technology*, NASA CP2138, 281-295, Williamsburg, 1980

-
- 60 R. M. Madden, Detector preamp frequency: the interface problem, *Optical Spectra*, 51-54, November 1978
- 61 S. J. Katzberg, H. R. Kowitz et C. R. Rowland, Noise effects in an optical heterodyne spectrometer using tunable diode lasers, *Applied Physics Letters*, **39**, 9, 688-690, 1981
- 62 C. N. Harward et B. D. Sidney, Excess noise in $Pb_{1-x}Sn_xSe$ semiconductor lasers, *Heterodyne systems and technology*, NASA CP2138, 129-142, Williamsburg, 1980
- 63 F. Allario, S. J. Katzberg et J. C. Larsen, Sensitivity studies and laboratory measurements for the laser heterodyne spectrometer experiment, *Heterodyne systems and technology*, NASA CP2138, 221-240, Williamsburg, 1980
- 64 D. L. Fried, Atmospheric modulation noise in an optical heterodyne receiver, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **QE-3**, 6, 213-221, 1967
- 65 B. Parvitte, Réalisation d'un récepteur hétérodyne accordable dans la fenêtre atmosphérique à 10 μm , Thèse de doctorat, université de Reims Champagne-Ardenne, 1997
- 66 H. Ganser, B. Frech, A. Jentsch, M. Mürtz, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, W. Urban, Investigation of the spectral width of quantum cascade laser emission near 5.2 μm by a heterodyne experiment, *Optics Communications*, 197, 127-130, 2001
- 67 G. Sonnabend, D. Wirtz et R. Schieder, THIS-Infrared remote sensing with a tuneable and transportable heterodyne spectrometer, Poster B13, 3^{ème} conférence internationale sur Tunable diode laser spectroscopy, 8-12 juillet 2001, Zermatt, Suisse.

Symboles utilisés dans la 4^{ème} partie

$ i\rangle$	Etat quantique initial
$ f\rangle$	Etat quantique final
φ	Retard de phase
ν	Fréquence d'un rayonnement monochromatique
η	Grandeur proportionnelle au rendement quantique du détecteur
ρ	Opérateur densité
Ω	Angle solide d'émission
Φ_ν	Flux spectral
$\Pi(\omega)$	Fonction porte
$\varepsilon(\sigma)$	Emissivité
$\Gamma^{(1)}(r, \tau)$	Fonction de cohérence temporelle
$\Gamma^{(2)}(r, r', \tau)$	Fonction de cohérence spatio-temporelle d'ordre deux
$\Gamma(r, r', \tau)$	Fonction de cohérence mutuelle
η_d	Rendement quantique du détecteur
τ_d	Temps de réponse du détecteur
η_{eff}	Rendement quantique effectif du mélangeur
φ_i	Retard de phase de la composante i d'une source polychromatique
ω_{OL}	Pulsation de l'onde oscillateur local
Ω_R	Angle solide de réception
ω_S	Pulsation de l'onde source
ω_{Si}	Pulsation de la composante i d'une source polychromatique
Φ^T	Flux total émis
A	Potentiel vecteur
a	Constante de proportionnalité du détecteur RF
A_R	Surface de l'optique de réception
B	Largeur de la bande de détection hétérodyne
C_d	Capacité de jonction d'une photodiode
E	Signal analytique complexe associé au champ électrique
E^-	Opérateur annihilation d'un photon
E^+	Opérateur création d'un photon
E_{OL}	Champ électrique oscillateur local
E^r	Champ électrique réel
E_{Si}	Composante i d'une onde polychromatique source
F	Facteur de bruit
$G^{(1)}(r, r', t, t')$	Fonction de corrélation quantique du premier ordre
$G(r, r', \omega)$	Densité spectrale de puissance croisée
G_d	Conductance de fuite d'une photodiode
I	Intensité d'un rayonnement
i_{batt}	Courant de battement
i_j	Courant généré par le bruit Johnson
I_{OL}	Intensité de l'oscillateur local
I_{ph}	Photo-courant
I_{ph-f}	Photo-courant filtré
I_S	Intensité de la source

i_s	Courant généré par le bruit de grenaille
I_{sat}	Courant de saturation d'une photodiode
$J(r,r')$	Fonction d'intensité mutuelle
$K(\lambda,T)$	Coefficient d'absorption
$L_\lambda(s,\Omega)$	Luminance
$L_\lambda^0(T)$	Luminance de corps noir
L_s	Inductance série d'une photodiode
m	Masse de l'électron
M	Paramètre de désaccord d'impédance
N	Nombre d'ouverture
p	impulsion
P_B	Puissance du fond continu
P_{ex}	Puissance équivalente de bruit d'excès
$P_i(\omega)$	Spectre de puissance du photo-courant
$P_{i,batt}(\omega)$	Spectre de puissance du courant de battement
$P_{i,g}$	Contribution du bruit de grenaille au spectre de puissance
P_{OL}	Puissance du champ oscillateur local
P_S	Puissance du champ source
r_0	Rayon du détecteur
R_A	Résistance de charge des amplificateurs
R_M	Résistance de charge du mélangeur
R_s	Résistance série d'une photodiode
RSB	Rapport signal sur bruit
RSB_P	Rapport signal sur bruit en puissance
RSB_V	Rapport signal sur bruit en tension
s	Abscisse curviligne
S_1, S_2, S_3, S_4	Spectre du photo-courant aux différents étages du récepteur hétérodyne
T_A^0	Température de référence
T_A	Température de bruit des amplificateurs
T_{eq}	Température de corps noir équivalent
T_M	Température de bruit du mélangeur
V	Perturbation électromagnétique
W	Probabilité d'émission d'un photo-électron
w	Gorge d'un faisceau gaussien
$W_{i \rightarrow f}$	Probabilité d'absorption d'un photon

CONCLUSION GENERALE

Ce travail présente la réalisation d'un radiomètre hétérodyne fonctionnant dans le moyen infrarouge. Ses traits marquants sont d'une part l'utilisation de diodes laser à hétérojonction fonctionnant à la température de l'azote liquide comme oscillateur local, ce qui confère à l'instrument la propriété d'accordabilité continue en fréquence. D'autre part, l'instrument a été appliqué à la télédétection d'espèces moléculaires présentes dans la zone des gaz brûlés d'une chambre de combustion basse pression.

La spécificité des lasers à semi-conducteurs se répercute sur les propriétés du radiomètre hétérodyne. Nous avons donc abordé en détail la physique des phénomènes gouvernant ces lasers. Nous avons insisté sur les phénomènes opérant le processus d'accord continu de la fréquence d'émission, tant par le courant d'injection que par la température. Il apparaît alors qu'accorder le composant en température est bien plus avantageux que d'utiliser la traditionnelle rampe de courant. Ces dernières conclusions ont été validées expérimentalement par l'enregistrement de spectres d'absorption directe du dioxyde de soufre. Afin de garantir une excellente qualité d'émission nous avons réalisé notre propre cryostat – d'une grande stabilité thermique – destiné à recevoir le composant.

Les bruits intrinsèques à ce type de laser sont un autre point crucial abordé ici. Nous avons vu dans quelle mesure ils peuvent limiter les performances de la détection hétérodyne. Pour ces composants, la matière condensée constitue l'amplificateur optique, et l'interaction au niveau de la zone active d'une population électronique et d'une population photonique induit un comportement singulier comparé aux lasers à gaz.

Afin d'appliquer notre instrument aux diagnostics de combustion, nous avons réalisé un brûleur de laboratoire. Ce système, produisant des flammes plates à basse pression à partir d'un mélange de méthane et d'air, permet de générer dans la région des gaz brûlés un gaz de molécules échauffé émettant pour partie dans l'infrarouge moyen. Par l'adjonction de dioxyde de soufre dans le mélange de réactifs, nous avons simulé un dispositif de combustion générateur de pollution. Dans un premier temps, ce type de source a été caractérisé par le biais de la spectroscopie d'absorption haute résolution par diode laser, et cette méthode s'est révélée pertinente pour la mesure optique de température et de concentration dans la chambre de combustion, mais elle reste une méthode active de détection.

L'ensemble des notions physiques impliquées par la détection hétérodyne a été détaillé, suivi de la caractérisation précise de notre instrument ; ceci afin d'atteindre une connaissance poussée d'un système plutôt ardu à maîtriser.

Trois conditions fondamentales sont à réunir pour l'utilisation de notre spectromètre hétérodyne : une diode laser suffisamment puissante, une émission monomode de celle-ci, et que ses fréquences émises soient en coïncidence avec les spectres ro-vibrationnels des molécules présentes dans le brûleur. Nous avons alors enregistré par spectrométrie hétérodyne un spectre d'émission de l'eau produite par la réaction de combustion ainsi qu'un spectre d'émission de dioxyde de soufre injecté en faible quantité pour simuler une combustion polluante.

Ces derniers résultats montrent que, en dépit de sévères handicaps imposés par les diodes à sels de plomb, l'utilisation d'un radiomètre hétérodyne se révèle adéquate pour la détection passive de sources chaudes distantes. A fortiori, la constante amélioration des composants laser accordables dans le moyen infrarouge laisse augurer une relance d'intérêt pour ce type d'instrument. L'application aux diagnostics de combustion in situ est alors prometteuse, notamment dans deux applications reines. D'une part, dans le cadre d'une politique globale des pays industrialisés visant à la réduction des émissions polluantes, un tel instrument procurerait un contrôle efficace des combustions industrielles. D'autre part, l'instrument peut permettre un contrôle sur les moteurs de propulsion à réaction. Mais beaucoup d'autres applications peuvent être imaginées dès lors qu'un nuage de gaz moléculaire émetteur est impliqué.

L'instrument que nous avons mis au point ici reste prototypique et par suite relativement lourd. Encore une fois, la diode à cascade quantique fonctionnant à température ambiante, alliée à un mélangeur de qualité, autoriserait le développement de radiomètres hétérodynes compacts et légers, et donc embarquables pour des missions de terrain.

ANNEXE

1. Calculs intermédiaires

Calcul intermédiaire entre 2.2.5 et 2.2.6 (4ème partie)

$$i_{ph}(t) = \frac{\eta \cdot e}{h \cdot \nu} \left[\frac{P_{OL} + P_S}{2} + \left\langle \begin{aligned} & \sum_i E_{OL} \cdot E_{Si} (\cos[(\omega_{OL} + \omega_{Si})t + \varphi_i] + \cos[(\omega_{OL} - \omega_{Si})t - \varphi_i]) \\ & + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{E_{Si} E_{Sj}}{2} \left(\cos[(\omega_{Sj} + \omega_{Si})t + \varphi_i + \varphi_j] \right. \right. \\ & \left. \left. + \cos[(\omega_{Sj} - \omega_{Si})t + \varphi_i - \varphi_j] \right) \right\rangle_{\tau_d} \right]$$

Développement de $\Gamma^{(2)}(r, r', t)$ dans (2.3.9) (4ème partie)

$$\begin{aligned} & \langle E_S^*(r, t) E_S(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \langle E_S^*(r, t) E_S(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_S^*(r, t) E_S(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle E_S^*(r, t) E_S(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_{OL}^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \langle E_{OL}^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_{OL}^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle E_{OL}^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_S^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \langle E_S^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_S^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle E_S^*(r, t) E_{OL}(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_{OL}^*(r, t) E_S(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle + \langle E_{OL}^*(r, t) E_S(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_{OL}^*(r, t) E_S(r, t) E_S^*(r', t + \tau) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle E_{OL}^*(r, t) E_S(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) E_S(r', t + \tau) \rangle \end{aligned}$$

ce qui se réécrit :

$$\begin{aligned} & \Gamma_{OL}^{(2)}(r, r', \tau) + \Gamma_S^{(2)}(r, r', \tau) + \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t + \tau) \rangle + \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_S(r', t + \tau) \rangle + \\ & \langle E_{OL}(r, t) E_{OL}^*(r', t + \tau) \rangle \langle E_S^*(r, t) E_S(r', t + \tau) \rangle + \langle E_{OL}^*(r, t) E_{OL}(r', t + \tau) \rangle \langle E_S(r, t) E_S^*(r', t + \tau) \rangle \end{aligned}$$

En terme de fonctions de cohérence ceci devient :

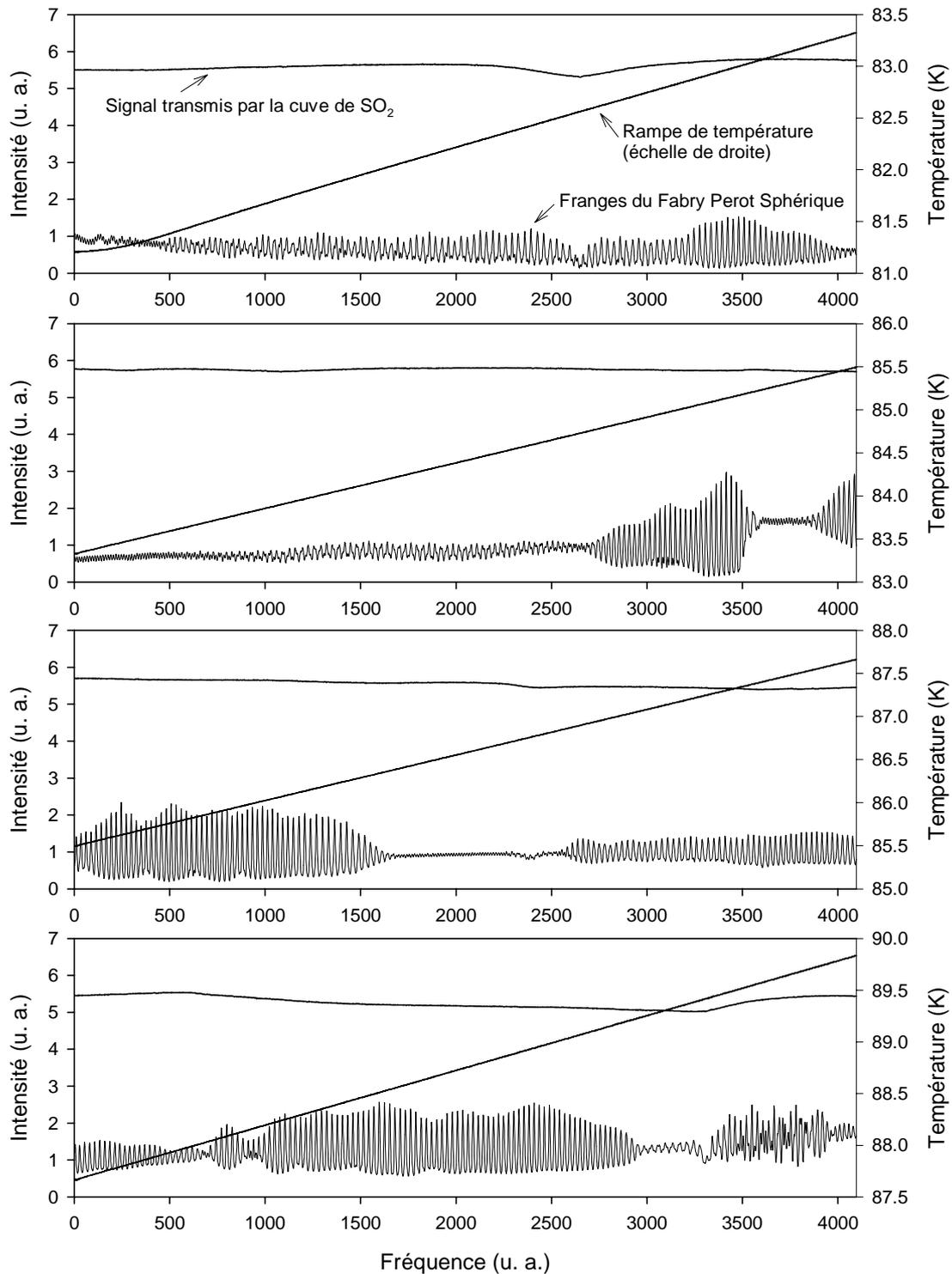
$$\begin{aligned} & \Gamma_{OL}^{(2)}(r, r', \tau) + \Gamma_S^{(2)}(r, r', \tau) + \Gamma_S^{(1)}(r, 0) \Gamma_{OL}^{(1)}(r', 0) + \Gamma_{OL}^{(1)}(r, 0) \Gamma_S^{(1)}(r', 0) + \Gamma_S(r, r', \tau) \Gamma_{OL}^*(r, r', \tau) + \\ & \Gamma_S^*(r, r', \tau) \Gamma_{OL}(r, r', \tau) \end{aligned}$$

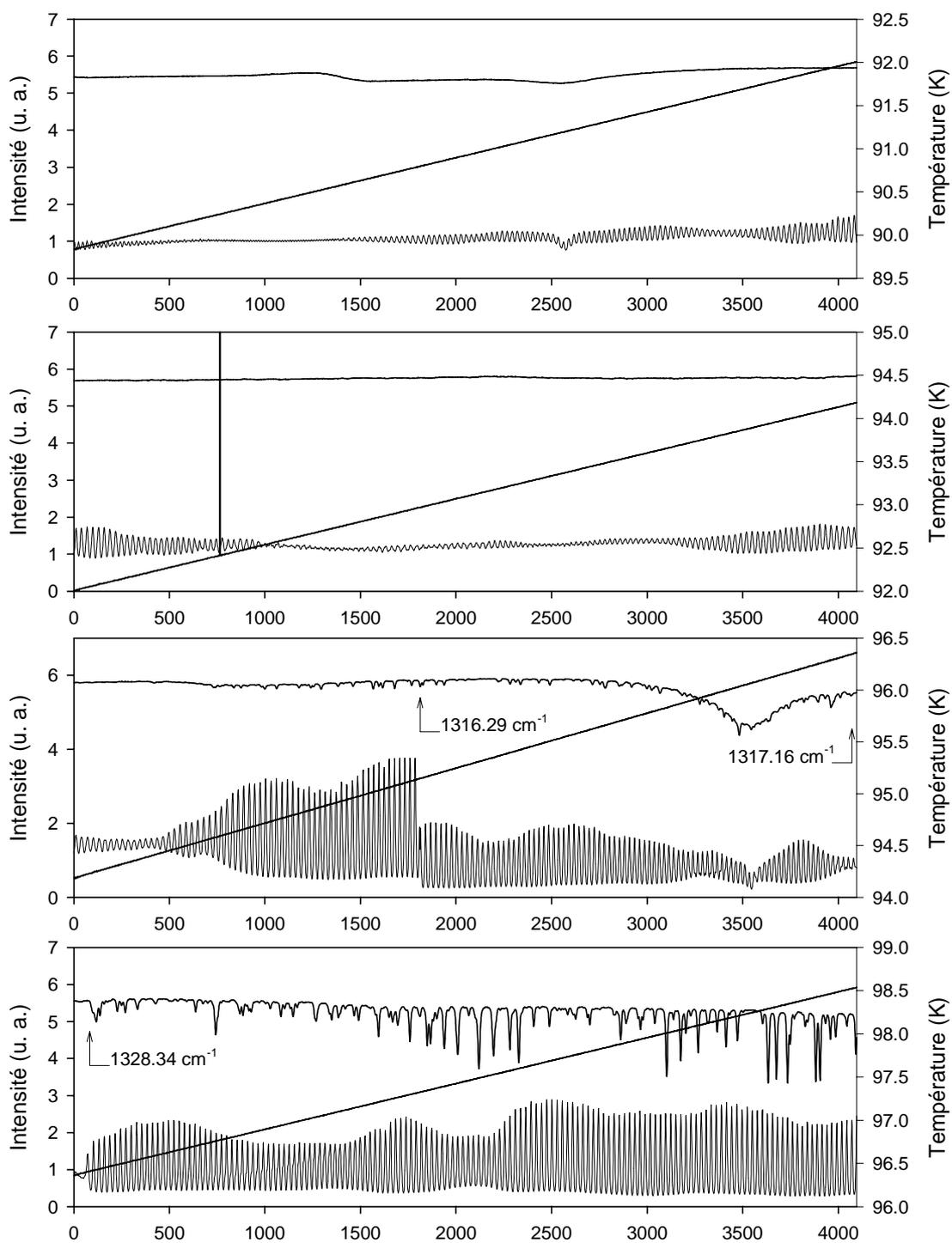
Expression du spectre de photo-courant sans l'approximation $I_S \ll I_{OL}$

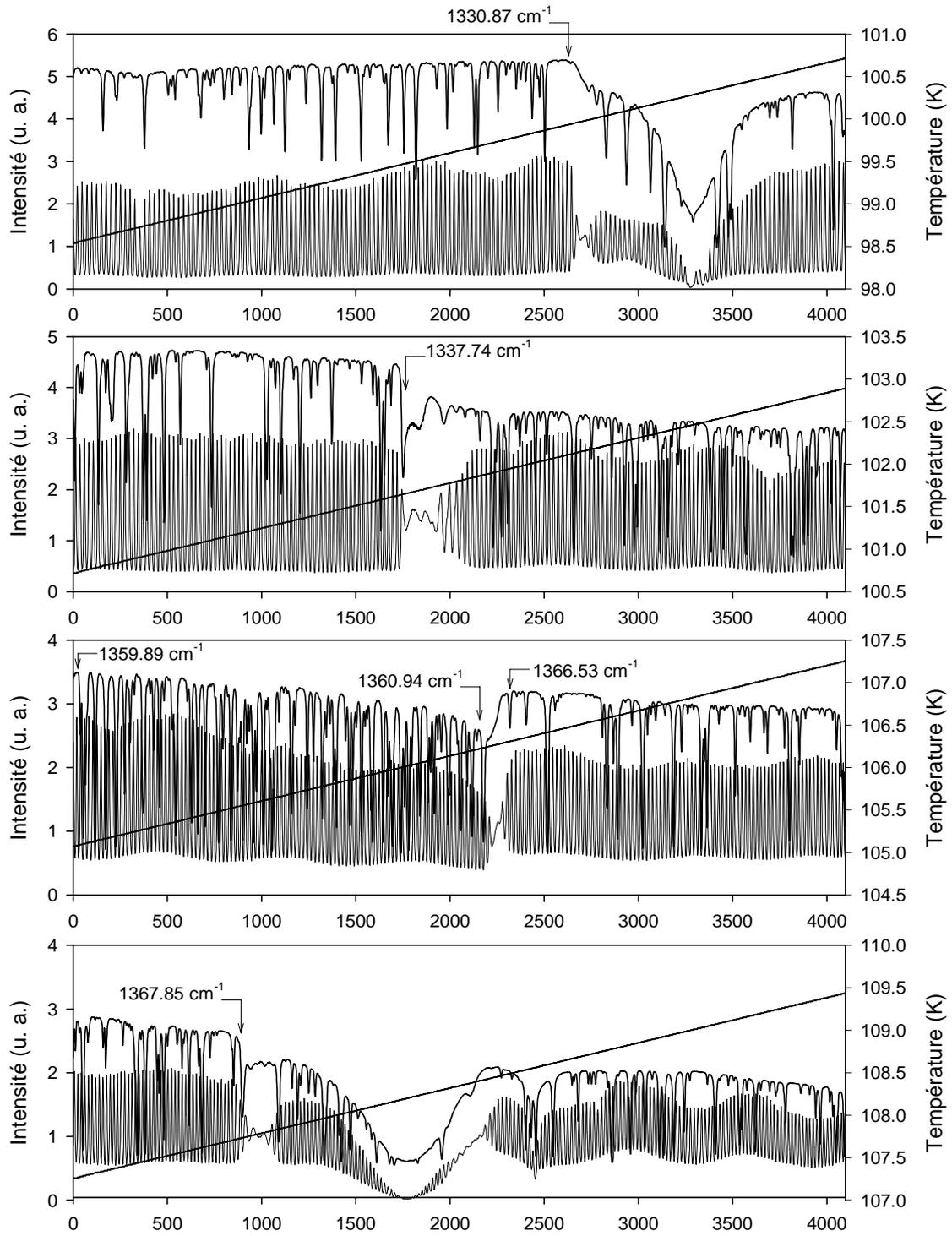
$$\begin{aligned} P_i(\omega) &= \frac{e^2}{2\pi} \int \eta(r) [\langle I_{OL}(r, t) \rangle] \cdot dr + \frac{e^2 \cdot \delta(\omega)}{2\pi} \int \int \eta(r) \eta(r') \left[\langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle + \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_S(r', t) \rangle \right. \\ & \left. + \langle I_S(r, t) \rangle \langle I_{OL}(r', t) \rangle + \langle I_{OL}(r, t) \rangle \langle I_S(r', t) \rangle \right] \cdot dr dr' + \\ & \frac{e^2}{2\pi} \int \int dr dr' \int G_S(r, r', \Omega) \cdot G_S(r, r', \omega + \Omega) \cdot d\Omega + \frac{e^2}{\pi} \text{Re} \left[\int \int dr dr' \int G_S(r, r', \Omega) \cdot G_{OL}(r, r', \omega + \Omega) \cdot d\Omega \right] \end{aligned}$$

2. Exemple d'enregistrement de caractérisation de diode laser

Ces spectres d'absorption directe destinés à la caractérisation d'une diode laser ont été enregistrés par balayage de température dans les conditions suivantes : $I = 1300$ mA, 1 torr SO_2 , rampe de 3K/min, diode 63HV-1-103. On distingue sur les graphiques suivants : le signal de transmission à travers la cuve à gaz, le signal issu du Fabry-Pérot, et la rampe de température.







RADIOMETRIE HETERODYNE INFRAROUGE PAR DIODE LASER ACCORDABLE

Damien WEIDMANN

Résumé

Ce travail présente l'étude, la réalisation complète et la caractérisation d'un radiomètre hétérodyne infrarouge. Un tel radiomètre allie sensibilité et sélectivité spectrale. Ce dernier, pour être accordable continûment en fréquence, utilise comme oscillateur local des diodes lasers à hétérostructure de sels de plomb. Un tel système s'applique notamment à la télédétection passive de signatures moléculaires ; ici il s'agit de démontrer l'efficacité de l'instrument à détecter des espèces moléculaires provenant d'une réaction de combustion.

Les lasers à semi-conducteurs bipolaires émettant dans le moyen infrarouge restent très éloignés du laser idéal. Pour cette raison, nous avons abordé l'ensemble des propriétés de ce type de laser, celles ci gouvernant principalement les performances de l'instrument. Nous avons insisté sur les mécanismes physiques d'accord continu en fréquence, puisque ceux ci sont l'avantage inégalable que procure une diode laser.

L'instrument a été validé sur une source de combustion que nous avons conçue. Il a permis l'enregistrement de spectres d'émission de molécules présentes dans une chambre de combustion méthane/air, à savoir la vapeur d'eau et le dioxyde de soufre, polluant de combustion notoire.

Ces mesures montrent qu'en dépit de l'utilisation d'un oscillateur local imparfait car peu puissant, un radiomètre hétérodyne accordable est un outil puissant pour les diagnostics de combustion, notamment pour la détection à longue portée de combustions polluantes. L'intérêt de ce type d'instrument est relancé par l'avènement de nouvelles sources laser infrarouges accordables émettant dans le moyen infrarouge telles que les lasers à cascade quantique.

Mots clefs

Détection hétérodyne, détection cohérente, radiométrie, infrarouge moyen, diode laser, sels de plomb, spectrométrie d'émission, flamme, télédétection, mesures optique, diagnostics de combustion, dioxyde de soufre.

Abstract

This thesis work presents the study, the whole conception, and the characterization of an infrared heterodyne radiometer. Such a system holds two advantages: sensitivity and high spectral selectivity. We use lead chalcogenide heterostructure lasers as local oscillator, which confers the radiometer the advantage of continuous frequency tunability. The main application of such an instrument is the passive remote sensing of molecular gases. The aim of this work is to demonstrate the efficiency of heterodyne radiometry in detecting molecules stemming from a combustion reaction.

Bipolar semiconductor lasers, emitting in the middle infrared region of the spectrum, are far from an ideal laser. In this work we focus on this kind of laser drawbacks and how they affect heterodyne radiometer performances. In addition, we insist on frequency tuning mechanisms since tunability is the great advantage of such a laser component.

To validate our prototype, we apply it to combustion diagnostics. For this purpose, we designed a specific burner producing methane/air premixed flat flame. From this source, we record emission spectra of water vapor and of an important combustion pollutant, viz. sulfur dioxide.

These measurements prove that, in spite of a low quality laser as local oscillator, heterodyne radiometry is a powerful tool for combustion diagnostics and the combustion pollutant detection. In the future, the interest for such an instrument will be increased with quantum cascade lasers which offer a very good quality tunable middle infrared laser.

Keywords

Heterodyne detection, coherent detection, radiometry, middle infrared, diode laser, lead chalcogenide, emission spectroscopy, flame, remote sensing, optical measurements, combustion diagnostics, sulfur dioxide.