Nº d'ordre: 307

50376 1982 50376 1982 81

# **THÈSE**

présentée à

# L'UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

pour obtenir le titre de

## **DOCTEUR-INGENIEUR**

Mention "SPECTROCHIMIE"

par

Eric JOOS

## **TELEDETECTION** A COURTE ET MOYENNE DISTANCES DE GAZ PRESENTS DANS L'ATMOSPHERE PAR LIDAR RAMAN



Soutenue le 13 juillet 1982 devant la Commission d'Examen :

Membres du Jury:

F. WALLART, M.

Président

M. J.P. BONNELLE,

Examinateur

M. G. LEPOUTRE,

Examinateur

M. B. DE BETTIGNIES, Rapporteur

M. R. CAPITINI. Membre Invité

J. DUBOIS. M.

Membre Invité

M. D. RENAUT. Membre Invité

#### DOYENS HONORAIRES DE l'ANCIENNE FACULTE DES SCIENCES

MM. R. DEFRETIN, H. LEFEBVRE, M. PARREAU.

PROFESSEURS HONORAIRES DES ANCIENNES FACULTES DE DROIT ET SCIENCES ECONOMIQUES, DES SCIENCES ET DES LETTRES

MM. ARNOULT, Mme BEAUJEU, BONTE, BROCHARD, CHAPPELON, CHAUDRON, CORDONNIER, CORSIN, DECUYPER, DEHEUVELS, DEHORS, DION, FAUVEL, FLEURY, P. GERMAIN, GLACET, GONTIER, HEIM DE BALSAC, HOCQUETTE, KAMPE DE FERIET, KOURGANOFF, LAMOTTE, LASSERRE, LELONG, Mme LELONG, LHOMME, LIEBAERT, MARTINOT-LAGARDE, MAZET, MICHEL, PEREZ, ROIG, ROSEAU, ROUELLE, SAVARD, SCHILTZ, WATERLOT, WIEMAN, ZAMANSKI.

#### PROFESSEUR EMERITE

M. A. LEBRUN.

ANCIENS PRESIDENTS DE L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

MM. R. DEFRETIN, M. PARREAU, J. LOMBARD, M. MIGEON.

PRESIDENT DE L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

M. J. CORTOIS.

#### PROFESSEURS - CLASSE EXCEPTIONNELLE

M. DURCHON Maurice Biologie expérimentale
M. GABILLARD Robert Electronique

M. GABILLARD Robert Electronique
M. HEUBEL Joseph Chimie minérale

M. MONTREUIL Jean Biochimie
M. PARREAU Michel Analyse

M. TRIDOT Gabriel Chimie appliquée
M. VIVIER Emile Biologie cellulaire

M. WERTHEIMER Raymond Physique atomique et moléculaire

## PROFESSEURS - 1ère CLASSE

M. BACCHUS Pierre Astronomie

M. BEAUFILS Jean Pierre Chimie physique

M. BIAYS Pierre Géographie

M. BILLARD Jean Physique du solide

M. BOILLY Bénoni Biologie

M. BONNOT Ernest Biologie végétale

Μ. BOUGHON Pierre

Μ. BOURIQUET Robert

CELET Paul Μ.

CHAMLEY Hervé Μ.

Μ. COEURE Gérard

CONSTANT Eugène Μ.

CORDONNIER Vincent Μ.

DEBOURSE Jean Pierre Μ.

DELATTRE Charles Μ.

ESCAIG Bertrand Μ.

FAURE Robert Μ.

FOCT Jacques Μ.

Μ. FOURET René

Μ. GRANELLE Jean Jacques

Μ. GRUSON Laurent

Μ. GUILLAUME Jean

**HECTOR** Joseph Μ.

LABLACHE COMBIER Alain Μ.

LACOSTE Louis Μ.

LAVEINE Jean Pierre Μ.

LEHMANN Daniel

Mme LENOBLE Jacqueline

LHOMME Jean

LOMBARD Jacques Μ.

Μ. LOUCHEUX Claude

LUCQUIN Michel

Μ. MAILLET Pierre

Μ. PAQUET Jacques

POUZET Pierre

Μ. PROUVOST Jean

SALMER Georges

SEGUIER Guy

STANKIEWICZ François Μ.

Μ. TILLIEU Jacques

VIDAL Pierre Μ.

ZEYTOUNIAN Radyadour

Algèbre

Biologie végétale

Géologie générale

Géotechnique

Analyse

Electronique

Informatique

Gestion des entreprises

Géologie générale

Physique du solide

Mécanique

Métallurgie

Physique du solide

Sciences économiques

Algèbre

Microbiologie

Géométrie

Chimie organique Biologie végétale

Paléontologie

Géométrie

Physique atomique et moléculaire

Chimie organique biologique

Sociologie

Chimie physique

Chimie physique

Sciences économiques

Géologie générale

Analyse numérique

Minéralogie

Electronique . Electrotechnique

Sciences économiques

Physique théorique

Automatique

Mécanique

## PROFESSEURS - 2ème CLASSE

Μ. AL FAKIR Sabah

ALLAMANDO Etienne

ANCIAN Bernard

ANTOINE Philippe

BART André Μ.

Mme BATTIAU Yvonne

BEGUIN Paul

Μ. BELLET Jean

Μ. BERZIN Robert

BKOUCHE Rudolphe

BODARD Marcel

BOIVIN Jean Claude

BONNELLE Jean Pierre

BOSCQ Denis

BOUQUELET Stéphane

BRASSELET Jean Paul Μ.

BREZINSKI Claude Μ.

BRIDOUX Michel

Electronique et électrotechnique

Spectrochimie

Analyse

Biologie animale

Géographie

Mécanique

Physique atomique et moléculaire

Analyse

Algèbre

Biologie végétale

Chimie minérale

Catalyse

Probabilités Biochimie structurale

Géométrie et topologie

Analyse numérique

Chimie physique

.../...

BRUYELLE Pierre Géographie Μ. Μ. CAPURON Alfred Biologie animale Informatique CARREZ Christian Μ. CHAPOTON Alain Electronique Μ. Psychophysiologie COOUERY Jean Marie Paléontologie Mme CORSIN Paule CORTOIS Jean Physique nucléaire et corpusculaire COUTURIER Daniel Chimie organique CRAMPON Norbert Hydrogéologie et environnement Electronique CROSNIER Yves Mile DACHARRY Monique Géographie DAUCHET Max Informatique Μ. DEBRABANT Pierre Géologie appliquée Μ. DEGAUQUE Pierre Electronique Μ. DELORME Pierre Physiologie animale Sociologie DEMUNTER Paul Μ. Informatique DENEL Jacques Μ. DE PARIS Jean Claude Analyse Μ. DEPREZ Gilbert Physique du solide et cristallographie DERIEUX Jean Claude Microbiologie MILE DESSAUX Odile Spectroscopie de la réactivité chimique DEVRAINNE Pierre Chimie minérale Μ. DHAINAUT André Biologie animale Μ. Mme DHAINAUT Nicole Biologie animale Sciences économiques DORMARD Serge DOUKHAN Jean Claude Physique du solide Μ. Μ. DUBOIS Henri Spectroscopie hertzienne DUBRULLE Alain Spectroscopie hertzienne Spectrométrie des solides Μ. DUBUS Jean Paul DYMENT Arthur Mécanique Mme EVRARD Micheline Chimie appliquée Dynamique des cristaux Μ. FONTAINE Hubert FONTAINE Jacques Electronique, électrotechnique, automatique Μ. Biochimie structurale FOURNET Bernard Μ. FRONTIER Serge Ecologie numérique Μ. GAMBLIN André Géographie urbaine, industrielle et démographie Μ. GERVAIS Michel M. Gestion Physique moléculaire et rayonnements atmosphé-GLORIEUX Pierre riques GOBLOT Rémi Μ. Algèbre GOSSELIN Gabriel Sociologie GOUDMAND Pierre Chimie Physique Μ. Μ. GREMY Jean Paul Sociologie GREVET Patrick Sciences économiques Μ. GUILBAULT Pierre Physiologie animale Μ. HENRY Jean Pierre Génie mécanique Μ. HERMAN Maurice Physique spatiale HOUDART René Physique atomique et moléculaire Μ. JACOB Gérard Informatique Μ. Probabilités et statistiques JACOB Pierre М. Gestion JACQUILLAT Bertrand Μ. JOURNEL Gérard Spectroscopie hertzienne KREMBEL Jean Biochimie Μ. LAURENT François Automatique Catalyse Mme LECLERCQ Ginette Petrologie M. LEFEVRE Christian

Algèbre

Algèbre

MIle LEGRAND Denise

Mile LEGRAND Solange

Mme LaHMANN Josiane Analyse M. LEMAIRE Jean Spectroscopie hertzienne Μ. LENTACKER Firmin Géographie LEROY Jean Marie Μ. Chimie appliquée LEROY Yves Μ. Electronique, électrotechnique, automatique Μ. LESENNE Jacques Electrotechnique Μ. LEVASSEUR Michel Sciences économiques Μ. LHENAFF René Géographie Μ. LOCQUENEUX Robert Physique théorique Informatique Μ. LOSFELD Joseph LOUAGE Francis Electronique М. MACKE Bruno Μ. Physique moléculaire et rayonnements atmosphé-Μ. MAHIEU Jean Marie Physique atomique et moléculaire. MAIZIERES Christian Automatique MIIe MARQUET Simone Probabilités MESMACQUE Gérard Génie mécanique Μ. Μ. MESSELYN Jean Physique atomique et moléculaire Μ. MESSERLIN Patrick Sciences économiques Μ. MIGNOT Fulbert Analyse numérique Μ. MONTEL Marc Physique du solide MONTUELLE Bernard Biologie et biochimie appliquées Mme N'GUYEN VAN CHI Régine Géographie NICOLE Jacques Chimie analytique NOTELET Francis Electronique, électrotechnique, automatique PARSY Fernand Μ. Mécanique MIle PAUPARDIN Colette Biologie physiologie végétales PECQUE Marcel Μ. Chimie organique PERROT Pierre Μ. Chimie appliquée Μ. PERTUZON Emile Physiologie animale PETIT Francis Μ. Chimie organique, minérale et analytique Μ. PONSOLLE Louis Chimie physique PORCHET Maurice Μ. Biologie animale POVY Lucien Automatique RACZY Ladislas Μ. Electronique RAOULT Jean François Géologie structurale Μ. RICHARD Alain Biologie animale RIETSCH François Μ. Physique des polymères ROGALSKI Marc Analyse Μ. Μ. ROUSSEAU Jean Paul Physiologie animale Μ. ROY Jean Claude Psychophysiologie Mme SCHWARZBACH Yvette Géométrie SCHAMPS Joël Spectroscopie moléculaire Μ. SIMON Michel Sociologie SLIWA Henri Chimie organique SOMME Jean Géographie MIle SPIK Geneviève Biochimie STERBOUL François Informatique Μ. TAILLIEZ Roger Génie alimentaire THERY Pierre Μ. Electronique, électrotechnique, automatique Μ. TOULOTTE Jean Marc Automatique Μ. TURREL Georges Spectrochimie Infrarouge et Raman Μ. VANDORPE Bernard Chimie minérale VAST Pierre Μ. Chimie inorganique VERBERT André Μ. Biochimie VERNET Philippe Μ. Génétique Μ. VILETTE Michel Résistance des matériaux

Spectrochimie Infrarouge et Raman

Chimie inorganique

Μ.

Μ.

WALLART Francis

WARTEL Michel

. . . . . . . .

M. WATERLOT Michel

M. WERNER Georges
M. WOSNIAK, Michel
Mme ZINN JUSTIN Nicole

Géologie générale Informatique fondamentale appliquée Hydrométallurgie Algèbre

Ce travail a été effectué à l'U.E.R. de Chimie de l'Université des Sciences et Techniques de Lille dans le laboratoire de Spectrochimie Infrarouge et Raman, dirigé par Monsieur le Professeur DELHAYE.

Qu'il me soit permis de lui exprimer ma sincère gratitude pour m'avoir accueilli dans son laboratoire.

Je remercie profondément le Professeur WALLART de m'avoir fait l'honneur d'accepter la présidence de mon jury. Toute ma reconnaissance lui est acquise pour les précieux conseils et les encouragements chaleureux qu'il m'a prodigués depuis mon arrivée au L.A.S.I.R.

Monsieur le Professeur BONNELLE et Monsieur le Professeur LEPOUTRE, dont j'ai pu apprécier à l'Université et à l'Ecole H.E.I. les qualités de pédagogues, ont accepté de juger ce travail. Je les prie d'accepter mes respectueux remerciements.

- B. DE BETTIGNIES a supervisé ce travail avec beaucoup d'efficacité. Je lui suis très reconnaissant de m'avoir fait bénéficier de son expérience et de son aide.
- D. RENAUT et R. CAPITINI ont, par leur grande compétence et leur gentillesse, rendu mon "séjour parisien" fructueux tant sur le plan professionnel qu'humain. Qu'ils trouvent ici l'expression et le témoignage de ma reconnaissance.

Je suis très flatté de la participation à mon jury de Monsieur J. DUBOIS, Chef de Division aux Etudes et Recherches de l'E.D.F. et le remercie vivement d'avoir accepté de juger ce travail.

Je ne saurais présenter ce travail sans avoir exprimé ma gratitude à toutes les personnes qui ont bien voulu m'apporter le concours de leur aide.

## SOMMAIRE

#### CHAPITRE I : RAPPELS SPECTROSCOPIQUES - DONNEES BIBLIOGRAPHIQUES

## I.- RAPPELS SPECTROSCOPIQUES

- A. L'effet Raman
- B. La fluorescence
- C.- Diffusion et fluorescence à l'approche de la résonance

#### II .- DONNEES SPECTROSCOPIQUES

- A.- Gaz présentant un effet Raman classique à 266 nm
  - 1) CO2
  - 2) SF<sub>6</sub>
  - 3) H<sub>2</sub>0
  - 4) N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>
- B.- Gaz excités à 266 nm dans une bande d'absorption
  - 1) 03
  - 2) SO<sub>2</sub>

# CHAPITRE II : LE LIDAR RAMAN DANS L'U.V. - EQUATION DU LIDAR CAUSES D'ERREUR DANS LA MESURE LIDAR- RAMAN

- I.- RAYONNEMENT DIURNE DU CIEL ET ATTENUATIONS ATMOSPHERIQUES DANS L'U.V. (250- 300 nm)
  - A. Rayonnement du ciel diurne dans l'U.V.
  - B.- Atténuation atmosphérique dans l'U.V.
    - 1) Facteurs d'atténuation (aérosols, 03, SO2, NO2)
    - 2) Modèles d'atmosphère claire (non polluée polluée)
    - 3) Modèle de panache

## II .- EQUATION DU LIDAR RAMAN

- A.- Etablissement de l'équation généralisée du lidar Raman. Cas d'un milieu absorbant
- B.- Utilisation de l'équation lidar
  - 1) Mesures en cuve à courte distance
  - 2) Gaz atmosphériques
    - . H<sub>2</sub>0
    - . 03
  - 3) Mesures dans un panache proche

#### III .- CAUSES D'ERREUR DANS LA MESURE LIDAR RAMAN

- A. Bruits optiques
  - 1) Les impulsions d'obscurité du détecteur
  - 2) La résolution insuffisante du spectromètre
  - 3) La réjection de la raie Rayleigh- Mie et l'élimination de la lumière parasite
  - 4) La fluorescence
  - 5) Le bruit statistique des photons
- B .- Autres sources d'erreur
  - 1) Erreurs dues à l'analyseur de transitoires
  - 2) Variations temporelles de la transmission atmosphérique

#### CHAPITRE III : EQUIPEMENT EXPERIMENTAL

#### I. - LE LASER

- A.- Présentation générale du laser YG 481 A QUANTEL
- B.- Caractéristiques techniques du laser
- C.- Limitations du laser utilisé

#### II. - LE TELESCOPE

- III .- LE SPECTROMETRE COUPLAGE AVEC LE TELESCOPE
- IV .- LE TUBE PHOTOMULTIPLICATEUR
- V.- LA CHAINE D'ACQUISITION ET DE TRAITEMENT DE DONNEES

- A.- Présentation du 7612 D et de l'amplificateur 7 A16P
- B.- Précision de la numérisation
- C.- Modes de déclenchement et commandes non résidentes du 7612 D
- D.- Programme d'acquisition de N raies Raman

#### VI .- LA CUVE DE SIMULATION

#### CHAPITRE IV : MESURES EXPERIMENTALES - DISCUSSION

- I.- ETUDE TELEMETRIQUE POUR LES COURTES DISTANCES
  - A.- Description de la télémétrie Application au lidar C.E.A.
  - 3.- Elargissement de l'impulsion rétrodiffusée Résolution en distance maximale du lidar
- II. DETECTION DE LA VAPEUR D'EAU ATMOSPHERIQUE
- III. DETECTION DE L'OZONE ET DU CO, ATMOSPHERIQUES
- IV .- DETECTION DE GAZ EN CUVE DE SIMULATION
  - A.- Etude de SF6
  - B. Etude de CO,
  - C.-Etude de SO,

## CHAPITRE V: AMELIORATIONS CONCERNANT LE SPECTROMETRE - SIMULATIONS EN ATMOSPHERES POLLUEES

- I.- LE PROBLEME DU DOUBLE MONOCHROMATEUR
  - A.- Intérêt de l'utilisation d'un double monochromateur
  - B.- Montage du H.R.D. Comparaison des montages CZERNY- TURNER et SERGENT- ROZEY
  - C.- Réseaux holographiques blazés
- II. UNE AMELIORATION AU LIDAR : LE SPECTROMETRE MULTICANAL
- III. SIMULATIONS SUR DES MODELES D'ATMOSPHERES POLLUEES

#### CONCLUSION

ANNEXE I .- PROGRAMMES DE TRAITEMENT DE DONNEES

ANNEXE II .- RAPPELS SUR LES MONOCHROMATEURS

ANNEXE III. - DIFFUSION DES AEROSOLS SOUS RAYONNEMENT LASER

#### INTRODUCTION

La technique de télédétection de gaz présents dans l'atmosphère par lidar Raman est apparue en 1967 (1). Bénéficiant de la grande souplesse de l'effet Raman (effet instantané indépendant de l'environnement - détection de plusieurs gaz avec une seule longueur d'onde excitatrice) elle s'est néanmoins trouvée limitée par la faiblesse de ce processus spectroscopique.

A la suite des progrès technologiques réalisés sur les lasers au cours de ces dix dernières années, cette méthode de contrôle à distance a bénéficié d'un "second souffle", avec en particulier des travaux américains (2), soviétiques (3) et français (4).

Le LASIR, un des premiers laboratoires en France à avoir réalisé une maquette de lidar Raman (5) s'intéressa de nouveau à cette technique, à laquelle l'apport de sa grande expérience dans l'instrumentation Raman pouvait se révéler précieuse. Aussi, au début de ce travail, nous avons rassemblé dans une bibliographie la plus complète possible les caractéristiques techniques et les résultats expérimentaux des lidars Raman réalisés entre 1970 et 1980 et, à partir de l'équation du lidar (cas du Raman ordinaire), nous avons simulé par le calcul la détection de gaz, en utilisant en particulier les caractéristiques les plus récentes de laser performant - YAG Quantel (6).

En 1979, le lidar Raman développé par CAPITINI au C.E.A. a été installé au Centre de Recherches de la Météorologie Nationale à Magny-les-Hameaux. La mise au point de l'appareil et son passage à l'état opérationnel ont été réalisés par CAPITINI et RENAUT (Météo). Une collaboration a donc été établie entre ces deux organismes et le laboratoire du Professeur DELHAYE, se traduisant par ma présence à Magny tout au long de l'année 1981 et du premier semestre 1982, et ma participation à la plupart des travaux concernant le lidar Raman.

Le travail présenté ici est issu directement de cette collaboration.

- Les rappels spectroscopiques et les données bibliographiques concernant les gaz étudiés sont rassemblés dans le premier chapître. Une part importante y est faite à la fluorescence.
- Dans le deuxième chapître, nous justifions l'intérêt de l'emploi d'un laser émettant dans le proche U.V. et nous présentons des calculs de transmittances atmosphériques dans cette région spectrale (<300 nm) à partir de différents modèles d'atmosphères. Après avoir établi l'équation généralisée du lidar Raman, nous étudions son utilisation dans les divers cas rencontrés expérimentalement. Enfin, nous passons en revue les différentes sources d'erreur dans la mesure du lidar Raman.
- L'installation d'un nouveau laser et d'un analyseur de transitoires en Janvier 1981 devait accroître de façon très nette les capacités de la station. Aussi, dans le troisième chapître, détaillons-nous d'avantage ces deux appareils, les autres éléments de la station étant également passés en revue.
- Le quatrième chapître regroupe les résultats expérimentaux obtenus durant cette période à Magny-les-Hameaux, ainsi que les commentaires qu'ils appellent et les conclusions qu'ils impliquent.

Il faut noter que, depuis deux ans, en ce qui concerne la télédétection d'espèces mineures dans l'atmosphère par lidar Raman, seuls nos travaux ont été communiqués (7, 8), les autres équipes semblant s'intéresser davantage au D.I.A.L. (lidar à absorption différentielle ) dont le principe est exposé au début du premier chapître.

Enfin, dans un cinquième chapître - plus prospectif - des améliorations concernant le spectromètre sont proposées et des simulations de détection en atmosphères polluées sont présentées.

Dans ce dernier chapître nous envisageons également l'intérêt pour le lidar Raman de l'emploi d'un spectromètre multicanal.

#### INTRODUCTION: REFERENCES

- 1 D.A. LEONARD: Nature, 216, 142, (1967)
- 2 S.K. POULTNEY, M.L. BRUMFIELD, J.H. SIVITER: Appl. Opt., 16, 3180, (1977)
- 3 YU.G VAINER, M. YA. KUZIN, L.P. MALYAVKIN: Sov. J. Quant. Electron, 9, 296, (1979)
- 4 D. RENAUT, J.C. POURNY, R. CAPITINI: Optics Letters, Vol. 5, 233, (1980).
- 5 B. de BETTIGNIES, P. DHAMELINCOURT, J.C. MERLIN: Foire Internationale de Lille, Mai 1973.
- 6 E. JOOS: D.E.A. Spectrochimie et Méthodes d'Analyse Université de Lille 1 (Septembre 1980).
- 7 R. CAPITINI, E. JOOS, D. RENAUT: Communication à la 3ème IAMAP Session Lidar, Hambourg (1981).
- 8 R. CAPITINI, E. JOOS, D. RENAUT: Communication à la llème ILRC, Madison (1982).

## CHAPITRE I

RAPPELS SPECTROSCOPIQUES

DONNÉES BIBLIOGRAPHIQUES

#### CHAPITRE I

## RAPPELS SPECTROSCOPIQUES - DONNÉES BIBLIOGRAPHIQUES

Sous irradiation laser, les constituants de l'atmosphère présentent plusieurs types d'interaction (tableau l) : l'absorption, la diffusion élastique, la diffusion inélastique (diffusion Raman) et l'émission (fluorescence). Ces deux dernières seront présentées par la suite.

La diffusion Mie par les aérosols, et la diffusion Rayleigh par les molécules constituent la diffusion élastique. La longueur d'onde diffusée étant identique à la longueur d'onde excitatrice, ces processus ne permettent pas une détection quantitative directe de gaz présents dans l'atmosphère. Par contre, associés à l'absorption du rayonnement incident par les molécules d'un gaz atmosphérique, ils rendent possible la mesure de concentration de ce gaz. En effet, l'émission à deux longueurs d'onde proches, l'une étant absorbée par le constituant l'autre non, et la comparaison des échos rétrodiffusés élastiquement (diffusion Rayleigh-Mie), permet de déterminer par application de la loi de Beer-Lambert le profil du constitu ant recherché ; c'est le principe du D.I.A.L. ou lidar à absorption différentielle. Cette méthode a été appliquée en France par l'équipe lidar du Service d'Aéronomie (1). Comme le lidar D.I.A.L. mesure la diffusion élastique, il est plus sensible que le lidar Raman et paraît mieux adapté aux mesures à longue distance. En revanche, la méthode pose de sérieux problèmes spectroscopiques - choix de raies d'absorption indépendantes de la température emploi d'une raie d'émission très fine et très précise de l'ordre de 5 pm et nécessite l'emploi de lasers accordables, asservis en longueur d'onde.

Les diffusions Rayleigh et Mie sont des facteurs limitatifs dans le cas du lidar Raman. L'absorption d'un gaz peut au contraire provoquer une augmentation de l'intensité Raman mais peut également impliquer une fluorescence.

Aussi, avant de donner les principales données spectroscopiques des gaz étudiés, nous allons dans une première partie nous intéresser au comportement de la molécule à l'approche de la résonance en effectuant tout d'abord quelques rappels sur l'effet Raman et la fluorescence.

PROCESSUS DE DIFFUSION APPLICABLES A LA TELEDETECTION

LASER DES CONSTITUANTS ATMOSPHERIQUES

Processus	Caractéristiques
Diffusion élastique - Rayleigh - Mie	$\lambda$ reception = $\lambda$ emission $\sigma \sim 10^{-27} \text{ cm}^2 (\lambda^{-4})$ $\sigma \sim 10^{-10} \text{ cm}^2$
Diffusion résonnante	$\lambda$ réception = $\lambda$ émission $\sigma \sim 10^{-12} \text{ cm}^2 \text{ (atomes)}$ $\sigma \sim 10^{-17} \text{ cm}^2 \text{ (molécules)}$
Fluorescence	$\lambda$ réception $\neq \lambda$ émission $\sigma \sim 10^{-18}~{ m cm}^2$
Diffusion Raman	$\lambda$ réception $\neq \lambda$ émission $\sigma \sim 10^{-30}~{ m cm}^2$
<u>Diffusion Raman</u> <u>résonnante</u>	$\lambda$ réception $\neq \lambda$ émission $\sigma \sim 10^{-27} \text{ cm}^2$



#### I - RAPPELS SPECTROSCOPIQUES

#### A - L'effet Raman

La diffusion Raman est le processus impliquant l'échange d'une quantité significative d'énergie entre le photon diffusé et la molècule diffusante : absorption du photon incident et ré-émission d'un photon d'énergie différente. La diffusion Raman anti-Stokes correspondant à une transition vibrationnelle d'un état intermédiaire à l'état fondamental, son intensité sera plus faible à température ambiante que la diffusion Raman' Stokes, transition de l'état fondamental à un état intermédiaire, car la plupart des molécules se trouvent dans leur niveau énergétique le plus bas.

En général, la diffusion d'un rayonnement par des molécules ou des particules n'est pas isotrope. On emploie alors des sections efficaces différentielles par unité d'angle solide. La puissance totale diffusée  $P_{\Omega,j}$  par unité d'angle solide pour une bande correspondant au jième mode de vibration de la molécule est liée à l'irradiance incidente  $I_{0}$  (puissance par unité de surface) par la relation :

$$P_{\Omega,j} = (d \sigma_j / d\Omega) I_o$$

Selon la théorie de la polarisabilité de Placzek (2), les sections efficaces différentielles de rétrodiffusion pour les transitions de vibration - rotation sont généralement fournies par l'expression suivante, lorsque la diffusion Raman est observée dans une direction perpendiculaire à la direction de polarisation de la lumière incidente linéairement polarisée :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{Ram}}^{\text{T}} = \frac{(2\Pi)^{4} b_{j}^{2} (\nu_{o} - \nu_{j})^{4}}{1 - \exp(-hc \nu_{j}/kT)} \cdot g_{j} (\hat{i}_{j}^{2} + \frac{7}{45} \hat{a}_{j}^{2})$$

où  $\nu_j$  est la fréquence en cm<sup>-1</sup> du jième mode de vibration,  $b_j = (h/8\pi^2 \text{ c } \nu_j)$  est l'amplitude vibrationnelle du point zéro de ce mode,  $g_j$  est la dégénérescence du jième mode de vibration,  $\hat{i}_j^2$  et  $\hat{a}_j^2$  sont les parties isotrope et anisotrope du tenseur de polarisabilité associé à la coordonnée normale  $Q_j$ , et T est la température ábsolue. Les autres symboles ont leur signification

habituelle. La section efficace ci-dessus est la section efficace totale de rétrodiffusion incluant la branche principale Q et les branches adjacentes correspondant à des transitions de vibration-rotation. Cette équation n'est valable que si la fréquence excitatrice est nettement inférieure à la fréquence de transition entre les états électroniques de la molécule. L'intensité de la diffusion Raman varie en fonction de la fréquence excitatrice ( $e^{\nu}$ ). La durée de vie de l'état intermédiaire est très faible  $(10^{-12}-10^{-13}~\rm s)$  et l'addition de gaz étrangers n'a pas d'influence. Les harmoniques sont trop faibles pour être observées. La section efficace pour la diffusion Raman est habituellement plus petite que celle de la diffusion Rayleigh dans un rapport  $10^3$  environ.

#### B - La fluorescence

Une molécule soumise à une radiation de fréquence appropriée peut présenter une absorption correspondant à une transition de son état fondamental au premier état électronique excité. Bien qu'à température ambiante la plupart des molécules soient dans leur état vibrationnel fondamental, il n'en est pas de même après l'excitation où elles peuvent atteindre des états vibrationnels différents dans l'état électronique excité.

Pour une molécule, le temps requis pour aller d'un état électronique à un autre est très rapide ( ~ 10<sup>-15</sup> s). Ce temps est court par rapport aux temps de tous les autres processus électroniques et des mouvements du noyau. Cela signifie qu'immédiatement après l'excitation, une molécule a la même géométrie et se trouve dans le même environnement qu'à l'état fondamental. Dans cette situation deux choses peuvent se produire : l'émission d'un photon à partir du niveau vibrationnel d'arrivée et un retour à l'état électronique fondamental, ou un changement de niveau vibrationnel précédant l'émission d'une radiation par une transition électronique.

Pour une molécule isolée en phase gaz, la seule manière de perdre de l'énergie vibrationnelle est d'émettre un photon infrarouge, ce qui est moins probable qu'un retour à l'état fondamental par une transition électronique. Si la molécule du gaz n'est plus isolée (présence d'autres molécules identiques ou de gaz étrangers) il peut alors y avoir une relaxation thermique

de la molécule excitée, par un transfert rapide d'énergie vibrationnelle intermoléculaire. La transition électronique vers l'état fondamental s'effectuera donc aussi à partir d'un niveau de vibration de l'état excité plus bas que le niveau de vibration initial.

De même, le retour à l'état fondamental peut avoir lieu à des niveaux vibrationnels plus ou moins excités et un phénomène de relaxation peut là encore se produire. Ces possibilités sont schématisées sur la figure 1.

On appelle fluorescence le retour de la molécule excitée à l'état électronique fondamental, processus accompagné de l'émission d'un photon.

On appelle fluorescence résonnante le processus produisant un photon de même énergie que le photon absorbé.

L'émission de fluorescence ne se produit qu'entre états électroniques de même multiplicité, l'émission entre états de spins électroniques différents étant la phosphorescence.

Le processus de fluorescence se compose donc de :

- 1) l'absorption du photon incident
- 2) la ré-émission du photon diffusé.

Ces deux processus sont indépendants et la durée de vie de l'état intermédiaire est très variable  $(10^{-12} \ \text{à}\ 10^{-4}\ \text{s})$ .

Une molécule dans un état excité n'émet pas nécessairement une radiation. Plusieurs processus provoquant une perte d'énergie existent, pouvant entrer en compétition avec la fluorescence. Le transfert d'énergie sans radiation le plus important dans le cas des gaz est le "quenching" collisionnel, qui est un processus bimoléculaire nécessitant que le temps de vie de l'état excité soit supérieur à 10<sup>-9</sup>s. Son mécanisme peut s'écrire ainsi:

$$F + h\nu \rightarrow F^{*}$$

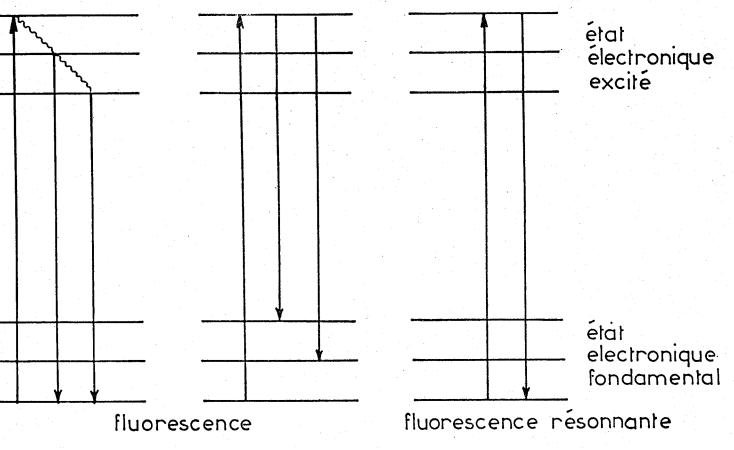


Fig. 1: Fluorescence et fluorescence résonnante

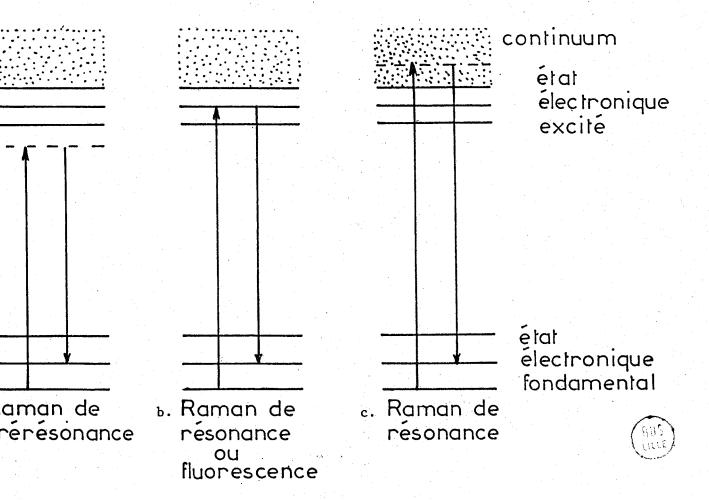


Fig. 2: Raman de pré-résonance, Raman de résonance et fluorescence

Quenching 
$$\begin{cases} F^{*} + F & \longrightarrow & 2 \ F \\ F^{*} + Q & \longrightarrow & F + Q \end{cases}$$

F et Q étant deux molécules différentes.

Un autre transfert d'énergie sans émission de radiation est "l'intersystem crossing", passage de l'état singulet excité à un état triplet, faiblement peuplé par une absorption directe, et ceci pour de nombreuses molécules. Ce mécanisme implique des couplages vibrationnels entre état triplet et singulet.

## C - Diffusion et fluorescence à l'approche de la résonance (3, 4)

Lorsque la fréquence excitatrice  $\nu_{o}$  approche d'une bande d'absorption électronique de la molécule diffusante, l'intensité Raman peut croître d'une manière importante : c'est l'effet Raman de pré-résonance (figure 2.a). Cet accroissement peut être encore plus net lorsque la fréquence excitatrice coïncide avec une fréquence comprise dans une bande (large) permise d'absorption de la molécule. En effet, dans ce cas de résonance deux effets peuvent se produire : l'effet Raman de résonance et la fluorescence - ou la fluorescence de résonance (figure 2.b,c).

La mécanique quantique donne d'ailleurs la même expression pour la section efficace de ces deux processus.

L'effet Raman résonnant est caractérisé par un accroissement énorme de l'intensité d'une raie particulière avec une apparition d'harmoniques d'intensité comparable à celle de la raie fondamentale. Le tableau 2 donne les différences observées entre les spectres Raman de résonance et ceux de fluorescence d'halogènes (d'après (4)).

TABLEAU 2

DIFFERENCES ENTRE LES SPECTRES RAMAN DE RESONANCE
ET CEUX DE FLUORESCENCE DES GAZ D'HALOGENES

Critère	Fluorescence de résonance	Effet Raman de résonance
Structure des bandes	Doublet de raies très fines à basse pression	Branche Q large avec raies de rotation
Structure des harmoniques	Intensités des harmoniques variables ; certaines sont absentes	Elargissement continu de la branche Q et diminu- tion progressive de l'intensité du pic avec le nombre quantique de vibration.
Facteur de dépolarisation	Dépolarisé	Les bandes dont on attend la polarisation dans l'effet normal sont polarisées
Comportement lorsque la pression croît	L'intensité décroît (quen- ching). La structure de doublet se transforme en multiplet	L'intensité croît. Le profil des raies est inchangé
Action d'un gaz étranger	Même comportement que précédemment	Aucune influence sensible

Le problème est de savoir quand il y a Raman de résonance et quand il y a fluorescence.

Dans un cas idéalisé la réponse semble dépendre de la séparation entre la fréquence laser et la fréquence de résonance. Le retard temporel  $\Delta t$  entre l'absorption de l'impulsion laser et la ré-émission est donné par le principe d'incertitude d'Heisenberg  $\Delta t \cdot \Delta \omega = 1$ .

Aussi, si l'éloignement de la résonance est plus grand que, par exemple,  $10^{10}$  Hz (équivalent à environ 0,01 Å dans le visible), alors la

Lorsqu'on se trouve en situation de fluorescence ou de fluorescence résonnante sur une raie de la bande d'absorption d'une molécule, une diffusion Raman due aux bandes adjacentes peut avoir lieu mais elle est intrinsèquement plus faible que la fluorescence. Si d'autre part, une bande vibronique large est excitée, seule une partie de cette bande est en résonance, donnant lieu à une émission beaucoup plus réduite. La partie de la bande qui n'est pas en résonance, ainsi que les autres bandes de la configuration électronique, donnent naissance à une diffusion Raman de prérésonance.

A la limite, si les bandes vibroniques individuelles disparaissent dans un continuum sans structure on a affaire à un effet Raman de résonance. L'intensité de résonance Raman est alors la somme des intensités de la fluorescence et de la pré-résonance Raman.

La section efficace de fluorescence, dans le cas d'un gaz, peut être exprimée sous la forme  $\sigma_{\rm f} \simeq \sigma_{\rm a} \, \mu/$  4  $\pi$  , où  $\sigma_{\rm a}$  est la section efficace d'absorption et  $\mu$  le rendement quantique de fluorescence.

Cette approximation implique que la fluorescence est supposée isotrope, d'où le facteur 4  $\pi$  . Si la radiation incidente est monochromatique,  $\sigma_a$  et  $\sigma_f$  sont fonctions du décalage par rapport à la résonance. Lorsque la pression des autres gaz présents augmente, la raie d'absorption, caractérisée par  $\sigma_a$ , s'élargit, si bien que l'absorption au centre de la raie diminue mais l'absorption sur les ailes augmente. Simultanément  $\mu$  diminue à cause de l'augmentation de l'amortissement de la fluorescence due aux collisions. A une longueur d'onde située hors du centre de la raie, l'augmentation de  $\sigma_a$  peut contrebalancer la diminution de  $\mu$ , de sorte que la fluorescence par molécule peut rester constante sur un intervalle appréciable de pression. Cependant, un accord laser très précis est nécessaire pour obtenir cette insensibilité à la pression.

Dans certaines molécules la fluorescence est amortie par un processus interne tel que la dissociation, avant que les collisions n'aient eu le temps d'exercer un effet appréciable. Dans ce cas, la fluorescence présente les propriétés de la diffusion, c'est-à-dire son instantanéité et son insensibilité à l'environnement. Nous verrons que c'est le cas de l'ozone excité à 266 nm.

ré-émission a lieu trop rapidement pour causer des erreurs dans la localisation par lidar ou pour permettre des collisions aux taux de collisions atmosphériques habituels ( $\stackrel{\sim}{<} 10^{10}~{\rm sec}^{-1}$ ). Dans ce cas, nous pouvons appeler ce processus diffusion. Si l'on approche encore plus près de la résonance, la ré-émission présente un temps de retard caractéristique du temps de vie du niveau intermédiaire, et devient donc de la fluorescence.

On peut dire que la diffusion et la fluorescence ne sont pas deux processus séparés mais plutôt que les propriétés de la diffusion se fondent progressivement dans celles de la fluorescence, au fur et à mesure que la lumière incidente est accordée sur la résonance.

Cependant, dans un gaz réel l'élargissement Doppler et l'amortissement dû aux rencontres entre molécules proches peuvent déplacer les fréquences de résonance de molécules par rapport à d'autres, de sorte que certaines peuvent être en résonance et d'autres non. Dans de tels cas, la fluorescence et la diffusion Raman peuvent être observées simultanément mais chacune émane d'un ensemble différent de molécules.

Pour une molécule, une transition électronique est divisée en un grand nombre de transitions rotationnelles et vibrationnelles. Ce phénomène réduit l'augmentation potentielle de l'intensité de la diffusion à l'approche de la résonance avec une raie unique pour deux raisons :

- 1) Seules quelques molécules sont dans les états initiaux contribuant à l'absorption de cette raie particulière.
- 2) La force de l'absorption est partagée entre toutes les transitions vibrationnelles/rotationnelles permises, seule une d'elles étant vraisemblablement en résonance.

Aussi, afin d'obtenir un accroissement significatif par une prérésonance avec une raie moléculaire, il faut se placer beaucoup plus près de celle-ci que dans le cas d'un atome, car de nombreux spectres moléculaires sont composés de raies très proches (ex: SO<sub>2</sub>). Néanmoins, on augmente la possibilité que les collisions provoquent alors un amortissement caractéristique de la fluorescence. Enfin, dans certains cas, l'avantage d'un accroissement d'intensité dû à la résonance peut être atténué par l'absorption, si celle-ci réduit l'intensité des radiations excitatrice et diffusée.

#### II - DONNEES SPECTROSCOPIQUES

#### A - Gaz présentant un effet Raman classique à 266 nm

 $1 - \underline{co}_2$ 

La molécule de  ${\rm CO}_2$  est linéaire et symétrique; aussi la règle d'exclusion joue : tout mode actif en Raman est inactif en infrarouge et viceversa. Théoriquement, un seul mode fondamental est actif en Raman, le mode  $\nu_1$ . En fait, le spectre Raman de  ${\rm CO}_2$  montre, pour une résolution suffisante, la présence de deux raies à 1285 et 1388 cm produites par une résonance de Fermi (5) entre la raie  $\nu_1$  et la raie 2  $\nu_2$ .

Les deux niveaux vibrationnels du même état électronique correspondant à ces raies ayant pratiquement la même énergie, il en résulte une forte perturbation des niveaux énergétiques se traduisant par une combinaison des fonctions propres : chaque niveau réel est en fait un mélange des deux. Aussi, expérimentalement on ne peut pas désigner une raie comme étant la raie de vibration  $\nu$  et l'autre comme étant la 2  $\nu$  2.

Néanmoins, par commodité nous appellerons par la suite  $\nu$  la raie à 1388 cm  $^{-1}$  et 2  $\nu$  2 la raie à 1285 cm  $^{-1}$  .

La section efficace de rétrodiffusion Raman de CO<sub>2</sub> n'a pas été mesurée à 266 nm.

Inaba et al (6) ont obtenu expérimentalement les valeurs suivantes à 337,1 nm:

$$(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\nu_{\parallel}} = 1,3$$
 pour la raie totale  
 $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\nu_{\parallel}} = 1,1$  pour la raie totale

Murphy et al. (26) ont obtenu expérimentalement :

$$(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{\nu_1}$$
 = 1,4 pour la raie totale  
 $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{2\nu_2}$  = 0,9 pour la raie totale

ces sections efficaces étant données pour la même longueur d'onde de 337,1 nm.

Toutes ces sections efficaces sont rapportées à celle de l'azote.

$$2 - \underline{SF}_6$$

La molécule de SF<sub>6</sub> est octaédrique (groupe de symétrie  $0_h$ ). Elle possède 15 degrés de liberté de déformation se répartissant en six modes de symétrie respectivement :  $\nu_1(a_{1g})$ ,  $\nu_2(e_g)$ ,  $\nu_3(f_{1u})$ ,  $\nu_4(f_{1u})$ ,  $\nu_5(f_{eg})$  et  $\nu_6(f_{2u})$ .

La molécule est invariante par inversion, les modes sont de parité bien définie et la règle d'exclusion joue là encore. Seuls les modes  $\nu_1$ ,  $\nu_2$  et  $\nu_5$  sont actifs en Raman , leur déplacement Raman étant respectivement (8) 773,5 cm<sup>-1</sup>, 641,7 cm<sup>-1</sup> et 525 cm<sup>-1</sup>. Le spectre Raman de SF<sub>6</sub> à pression atmosphérique excité à 266 nm par un laser à N<sub>d</sub> YAG pulsé est présenté figure 3 (9). Aucune fluorescence n'a été remarquée.

Pour la détection de SF $_6$  par lidar nous utiliserons donc la raie correspondant à la vibration  $\nu$   $_1$ .

La section efficace de rétrodiffusion Raman de SF<sub>6</sub> n'a pas été mesurée à 266 nm. A 337 nm elle est de (6) : 3,3, si on rapporte sa valeur à celle de l'azote.

La molécule  ${\rm H_2O}$  est symétrique et appartient au groupe  ${\rm C_{2v}}$ : il existe un plan de symétrie perpendiculaire au plan de la molécule.

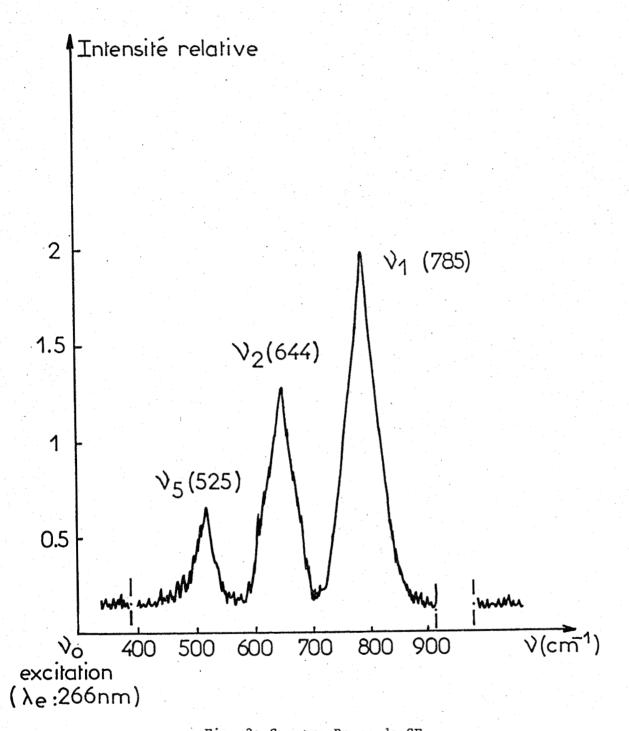


Fig. 3: Spectre Raman de  $SF_6$ 



De ses trois modes fondamentaux un seul est actif en Raman, le mode  $\nu$  , son déplacement Raman étant de 3654 cm  $^{-1}$  .

La raie Raman de la vapeur d'eau a été étudiée en laboratoire par Penney (10) : la raie a une largeur à mi-hauteur d'environ 7 cm<sup>-1</sup> ; la contribution des ailes de rotation est négligeable.

Pourny et al (17) ont mesuré à 266 nm la section efficace de rétrodiffusion Raman de  $\rm H_2O$ . Le tableau 3 donne les sections efficaces normalisées sur  $\rm N_2$ , de  $\rm O_2$  et  $\rm H_2O$  et le tableau 4 les sections efficaces adoptées par ces auteurs pour une excitation à 266 nm ainsi que les rapports de dépolarisation.

	o <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>	н <sub>2</sub> о
Valeur mesurée	2,1	1. 1.	3,1
Erreur ex- périmentale	5 %	t. Cart.	20 %

Molécule	Section efficace adoptée à 266 nm (m².str <sup>-1</sup> )	rapport de dépolarisa- tion
02	2,0.10 <sup>-33</sup> (total)	0,17*
N <sub>2</sub> ·	9,7.10 <sup>-34</sup> (total)	0,05 <sup>*</sup>
н <sub>2</sub> о	3,0.10 <sup>-33</sup>	0,06 <sup>**</sup>

TABLEAU 3 : SECTIONS EFFICACES
NORMALISEES SUR N<sub>2</sub>

TABLEAU 4: SECTIONS EFFICACES ADOPTEES

POUR UNE EXCITATION

A 266 nm

\* d'après Holzer (7) \*\* d'après Penney (10)

 $4 - \underline{0}_{2^2} \underline{N}_2$ 

La structure fine des bandes de vibration-rotation de 0<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> qui se trouvent à des déplacements Raman respectifs de 1556 cm<sup>-1</sup> et 2330 cm<sup>-1</sup>, montre l'existence d'une intense raie centrale dite branche Q et d'un ensemble de raies de vibration-rotation beaucoup plus faibles distribuées des deux côtés, dites branches 0 et S. La branche Q correspond à une transition de vibration dans laquelle le nombre quantique de rotation est inchangé.

Les branches 0 et S correspondent à une transition avec variation du nombre quantique de rotation. La largeur totale de l'ensemble atteint 400 cm<sup>-1</sup>.

La section efficace de rétrodiffusion Raman pour 0<sub>2</sub>, mesurée par Pourny et al. (17), se trouve dans le tableau 3.

La section efficace de  $N_2$  figurant dans ce tableau est issue de la référence (6).

### B - GAZ EXCITES A 266 nm DANS UNE BANDE D'ABSORPTION

#### 1 - L'ozone

L'ozone est une molécule triangulaire du groupe de symétrie  $^{\rm C}_{2{
m v}}$ . Elle possède trois modes vibrationnels fondamentaux. Le mode  $^{\rm v}$  , actif en Raman correspond à un déplacement de 1110 cm $^{-1}$ .

## a - Le spectre d'absorption de l'ozone - Photodissociation de l'ozone

Sous une longueur d'onde excitatrice inférieure à 310 nm l'ozone se dissocie suivant une réaction, correspondant à un mécanisme permis par les règles de sélection, qui conduit à deux états excités  $O(^1D)$  et  $O_2(a^1\Delta g)$  constituant l'absorption continue dans la bande de Hartley.

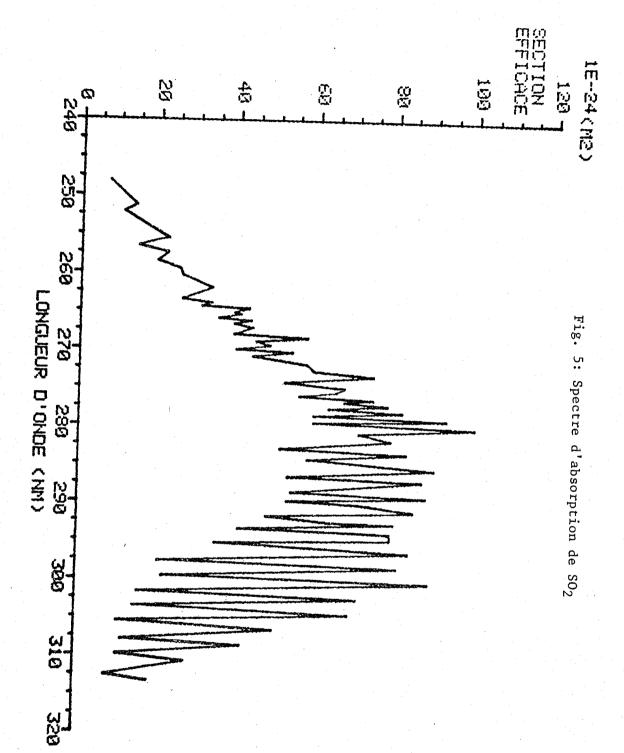
$$o_3 + h \nu (\lambda < 310 \text{ nm}) \longrightarrow o_2 (a^1 \Delta g) + o(^1 D)$$
 (1)

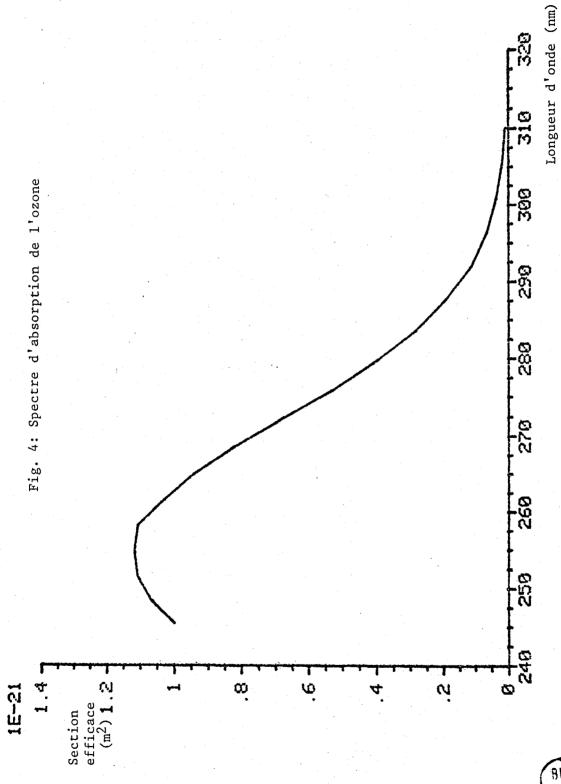
Cette absorption conduit donc à la photodissociation directe de l'ozone dans toute la bande spectrale débutant à 310 nm jusqu'au delà du maximum d'absorption à 250 nm.

Un deuxième processus de photodissociation se produit également :

$$o_3 + h \nu (\lambda < 1175 \text{ nm}) \longrightarrow o_2 (x^3 \Sigma_g^-) + o(^3P)$$
 (2)

Ce processus qui conserve la règle du spin est le mécanisme essentiel de photodissociation de l'ozone dans le visible (bande de Chappuis).





La figure 4 montre la variation de la section efficace d'absorption  $\sigma_{0_3}$  avec la longueur d'onde entre 250 et 310 nm (11) ; cette section efficace varie peu avec la température.

D'après Fairchild (12) le rendement quantique pour la formation de 0 (<sup>3</sup>P) est de 0,1 à 274 nm. Sparks et al. (13) ont étudié ces deux processus à 266 nm et ont confirmé le résultat de Fairchild : à 266 nm la réaction (1) est quasiment la seule.

La cinétique de cette réaction s'écrit :

$$\frac{dN_{03}}{N_{03}} = -\sigma \cdot I(t) \cdot dt$$
 (3)

où  $\sigma$  est la section efficace d'absorption de l'ozone à 266 nm (9,1.10<sup>-22</sup> m<sup>2</sup>) et I(t) le flux instantané laser (photons. $\bar{m}^2$ .s<sup>-1</sup>).

Les produits de la dissociation sont dans des états excités et peuvent réagir de nouveau ; on peut ainsi avoir les réactions :

$$o(^{1}D) + o_{3} \stackrel{k_{4}}{\longrightarrow} 2 o_{2}$$
 (4)

et 
$$0_2(^1\Delta g) + 0_3 \stackrel{k_5}{\longrightarrow} 2 0_2 + 0$$
 (5)

Ces réactions ont un coefficient cinétique respectif (14) :

$$k_4 = 3.5.10^{-16} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$$

$$k_5 = 3.8.10^{-21} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$$

Si l'on tient compte de ces deux réactions supplémentaires, l'évolution de la concentration en ozone s'écrit :

$$\frac{dN_{03}}{dt} = -N_{03} \left[ \sigma I(t) + k_4 N_{0(1D)} + k_5 N_{02(1} \Delta_g) \right]$$

En fixant une concentration maximale avant irradiation de  $N_{03}$  = 100 ppb, et en prenant cette valeur comme limite supérieure des concentrations  $N_{0(^1D)}$  et  $N_{02(^1\Delta_g)}$ , on trouve :

$$k_4 N_{O(1D)} < 10^3 s^{-1}$$

$$^{k}_{5} \, ^{N}_{0_{2}}(^{1}\Delta_{g}) < 10^{-2} \, s^{-1}$$

or  $\sigma.I(t)$  peut être estimé dans le cas du laser employé à  $2.10^6$  photons.s<sup>-1</sup>. Ce terme domine les deux autres ce qui implique que, pendant l'éclairement laser, la réaction (1) est à peu près la seule.

Durant l'irradiation laser, on a la fois photodissociation de l'ozone, donc diminution de la concentration suivant (3), et diffusion Raman résonnante. Nous montrons au chapitre II, en appelant  $\mathcal{F}_0$  le flux intégral diffusé s'il n'y avait pas de photodissociation et  $\mathcal{F}$  le flux intégral réel, que  $\mathcal{E} = \mathcal{F}_0 = 0,9$  On peut donc considérer que toutes les molécules d'ozone excitées diffusent.

## b. - Section efficace résonnante de rétrodiffusion Raman

La bande d'absorption de Hartley est une bande large présentant une faible structure à haute résolution. Une approximation de la section efficace de ré-émission peut être obtenue de la manière suivante (15).

La section efficace d'absorption au sommet de la bande de Hartley est de  $1,12.10^{-21}\ \mathrm{m}^2$  à pression et température standards.

La section efficace différentielle de ré-émission peut, comme nous l'avons vu dans la partie I, se mettre sous la forme :

$$\left(\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}\Omega}\right)_{\mathrm{em}} = \frac{1}{4\pi} \sigma_{\mathrm{abs}} P \cdot \Phi$$

où P est la probabilité de désexcitation par ré-émission et  $\phi$  la fraction de la ré-émission ayant lieu dans la raie observée :

$$P = \frac{\gamma r}{\gamma_r + \gamma_{dis}}$$

où  $\gamma_{\rm r}$  est le taux de désexcitation par radiation et  $\gamma_{
m diss}$  par dissociation.

On suppose que  $\gamma_{\rm diss}$  est beaucoup plus grand que les taux de désexcitation par collisions. En première approximation, à partir de la relation ci-dessus, on peut donc écrire :

$$(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{em} \propto \sigma_{abs} (\lambda_{o})$$

Penney (16) en utilisant une longueur d'onde excitatrice de 286,6 nm a mesuré, pour la raie fondamentale située à environ 1100 cm de l'excitatrice, une section efficace  $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{286,6} = 1,1.10^{-30} \text{ m}^2 \text{ str}^{-1}$ , ce qui est 600 fois plus fort que la section efficace de rétrodiffusion Raman de l'oxygène excité à la même longueur d'onde. Or la section efficace d'absorption de l'ozone à 286,6 nm est de  $2,2.10^{-22}$  m²; le coefficient de proportionnalité vaut donc  $5.10^{-9}$ . Cette proportionnalité semble vérifiée par Penney sur une partie du spectre.

La section efficace d'absorption de l'ozone à 266 nm étant de  $9,1.10^{-22}$  m<sup>2</sup>, la relation de proportionnalité donne donc une section efficace de rétrodiffusion Raman résonnante de  $4,5.10^{-30}$  m<sup>2</sup>.str<sup>-1</sup>.

Pourny et al. (17) ont mesuré en laboratoire cette section efficace en utilisant une excitation à 266 nm. Pour la raie fondamentale correspondant à une longueur d'onde de 274,4 nm ils trouvent :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{0_3} = 2,4.10^{-30} \text{ m}^2.\text{str}^{-1}$$

Cette valeur expérimentale, plus faible d'un facteur 2 environ que la valeur calculée, est celle que nous utiliserons par la suite.

$$2 - so_2$$

La molécule SO<sub>2</sub> est une molécule tri-atomique non linéaire appartenant au groupe  $C_{2v}$ . Elle présente trois vibrations fondamentales, toutes actives en Raman : la  $\nu_1$  à 1151 cm<sup>-1</sup>, la  $\nu_2$  à 519 cm<sup>-1</sup> et la  $\nu_3$  à 1361 cm<sup>-1</sup>.

La raie de la vibration  $\nu_l$  étant la plus intense, elle est habituellement utilisée pour la détection de cette molécule.

## a. - Spectre d'absorption de SO2

Entre 240 et 320 nm la molécule de dioxyde de soufre présente une bande d'absorption assez forte qui correspond à la transition électronique  $^{1}B_{1}$   $^{1}A_{1}$ ,  $^{1}A_{1}$  étant le niveau électronique fondamental,  $^{1}B_{1}$  étant le premier état singulet excité, situé au-dessus d'un état excité triplet  $^{3}B_{1}$ .

Cette bande possède une structure vibrationnelle très marquée.

Nous avons représenté sur la figure 5 la variation de la section efficace d'absorption  $\sigma_{SO_2}(\lambda)$  obtenue d'après les mesures de Warneck et al. (18) et Rigaud (19).

Notons que la plupart des mesures récentes de sections efficaces d'absorption de SO<sub>2</sub> ont été faites, avec une résolution pouvant atteindre 0,05 nm, sur l'intervalle 290 - 315 nm, où le spectre présente une série de pics bien définis et espacés de ~ 2 nm, particulièrement intéressante pour la télédétection par DIAL. En effet, la différence des sections efficaces d'absorption du pic et du creux adjacent est maximale vers 300 nm et permet donc la mesure de concentration la plus précise.

## b. - Résonance de SO<sub>2</sub> - Fluorescence

Ainsi que nous l'avons soulignédans la partie I, la différence entre l'effet Raman de résonance lié à des niveaux d'absorption discrets et la fluorescence est très faible.

L'irradiation de SO<sub>2</sub> à une longueur d'onde située dans la bande d'absorption donne ainsi des résultats assez différents suivant la longueur d'onde utilisée, mais on peut d'ores et déjà dire que dans la majorité des cas une fluorescence a été observée.

METTEE (20) a excité SO<sub>2</sub> à six longueurs d'ondes : 2650, 2750, 2850, 2960, 3020 et 3130 Å. Il a observé dans chaque cas une fluorescence correspondant à  $\tilde{A}^{1}B_{1} - X^{1}A_{1}$ , pour une gamme de pression 0-1000  $\mu$ Hg.

#### Il a constaté que :

- la distribution de la fluorescence reste pratiquement indépendante de la pression ou de la longueur d'onde excitatrice. Plus précisément, elle commence à la longueur d'onde excitatrice et a son maximum aux alentours de 3400 Å;
- suivant la longueur d'onde, on passe d'un continuum de fluorescence (2650 Å) à l'apparition de bandes de résonance qui deviennent nombreuses et intenses pour les longueurs d'onde excitatrices 2960 et 3020 Å. Ces bandes semblent correspondre à celles de l'absorption. L'importance du fond continu augmente lorsque l'on se dirige vers les courtes longueurs d'onde. Ainsi, aucune bande de résonance n'est distinguable avec une longueur d'onde excitatrice de 2650 Å. De plus, l'intensité relative des bandes de résonance dépend de la longueur d'onde excitatrice mais pas de la pression.

Notons que METTEE a également mis en évidence une phosphorence qui apparaît sous forme de raies intenses à des longueurs d'onde élevées (> 3700 Å) sur la "queue" de la fluorescence. Cette phosphorescence est due à des transitions  ${}^3B_1 \longrightarrow {}^1A_1$ .

Nous ne nous intéresserons pas à ce processus qui n'apparaît pas dans la gamme spectrale nous concernant.

SIDEBOTTOM et al. (21) ont excité SO $_2$  par laser à 266 nm à des pressions inférieures à  $80\,\mu$  de Hg . La fluorescence qu'ils ont observée confirme ainsi celle observée par METTEE.

La cinétique de ce mécanisme impliquant l'état singulet  $^{1}\mathrm{SO}_{2}$  peut s'écrire (22) :

$$so_2 + h\nu \rightarrow {}^1so_2 \tag{I}$$

$$^{1}\text{so}_{2} + \text{so}_{2} \xrightarrow{k_{1}} (^{2}\text{so}_{2})$$
 (1)

$$\frac{k_2}{2}$$
  $^3$ SO<sub>2</sub> + SO<sub>2</sub> (2)

$$^{1}\text{SO}_{2} \xrightarrow{k_{3}} \text{SO}_{2} + h \nu$$
 (3)

$$\stackrel{k_4}{\longrightarrow} (SO_2) \tag{4}$$

$$\stackrel{k_5}{\longrightarrow} {}^3SO_2 \tag{5}$$

La réaction (4) est un processus de conversion interne et (5) est un processus d'intersystem crossing.

Les réactions (1) et (2) correspondent à un mécanisme de quenching.  $(^2\mathrm{SO}_2)$  et  $(\mathrm{SO}_2)$  désignent des espèces mal définies, soit des états excités n'émettant pas de radiation ou à temps de vie très long, soit des produits autres que  $\mathrm{SO}_2$ , soit  $\mathrm{SO}_2$  à l'état fondamental .  $^3\mathrm{SO}_2$  représente l'état triplet  $^3\mathrm{B}_1$ .

Le mécanisme précédent implique un seul état singulet excité  $^1\mathrm{SO}_2$  responsable de l'émission de radiation. En fait Brus et Mc Donald (23) ont mis en évidence l'existence de deux états singulets excités de  $\mathrm{SO}_2$ , peuplés par absorption directe dans la bande permise de  $\mathrm{SO}_2$ , l'un de ces états ayant une durée de vie beaucoup plus courte que l'autre. Néanmoins, les espèces excitées à plus courte durée de vie, qui pourraient résulter d'une transition  $^1\mathrm{A}_2$   $^{-1}\mathrm{A}_1$  induite par couplage vibronique (23), ne provoquent que quelques pourcents de la fluorescence obtenue par une excitation à 266 nm. Elles interviennent de manière plus nette à des longueurs d'onde excitatrices supérieures à 2800 Å mais à des pressions très faibles, inférieures à l  $\mu$  Hg.

Le temps de vie le plus long a été estimé à  $\tau_0$  = 36  $^{\pm}$  4  $\mu$  sec par Sidebottom et al. (21) pour une excitation laser à 2662 Å. Ce résultat est en bon accord avec celui de Greenough et Duncan (24) qui ont obtenu un temps  $\tau_0$  = 42  $\mu$ s en utilisant une excitation en bande large par flash. Brus et Mc Donald trouvent un temps supérieur à 2617 Å : 79  $^{\pm}$  30  $\mu$  sec. Ils attribuent ce temps à des hybrides singulets résultant d'une importante perturbation du type Renner entre l'état  $^{1}$ B, et l'état fondamental  $^{1}$ A, (23).

Aussi, en ne considérant que ce type de molécules comme responsables de la fluorescence on peut écrire, à l'aide du mécanisme précédent, la relation classique de Stern Volmer en régime permanent :

$$\frac{1}{\phi_f} = \left[ SO_2 \right] x \frac{k_1 + k_2}{k_3} + \frac{k_3 + k_4 + k_5}{k_3}$$
 (1)

 $\phi_{\mathrm{f}}$  : rendement quantique de fluorescence.

A 2660 Å  $k_3$  /( $k_3 + k_4 + k_5$ )  $\approx 1$  et (1) peut s'écrire :  $\frac{1}{\phi_f} = \frac{k_1 + k_2}{k_3} \left[ SO_2 \right] + 1 \tag{2}$ 

Nous adoptons pour la constante de quenching  $(k_1 + k_2)$  à 2660 Å la valeur  $k_1 + k_2 = 3,8.10^{10} \, \text{l.}$  mole -1. s -1 (21), et pour  $\frac{k_1^2 + k_2}{k_3}$  la valeur  $3,3.10^6 \, \text{l.}$  mole -1 (21), ce qui donne :  $k_3 = 1,15.10^{+4} \, \text{s}^{-1}$ .

Le temps de vie de l'état excité varie avec la concentration de  $\mathbf{S0}_2$  suivant la relation :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} + (k_1 + k_2) \left[ SO_2 \right]$$

Les valeurs des constantes expérimentales données ci-dessus ont été établies pour des pressions de SO<sub>2</sub> inférieures à 1 mm Hg et à une température de 25°C.

Enfin il faut mentionner les travaux de Penney qui a excité  $\mathrm{SO}_2$  à une longueur d'onde plus élevée que la nôtre mais a travaillé à une pression totale d'environ l atm, se plaçant ainsi dans des conditions proches de celles rencontrées par le lidar. Penney (15) a observé une fluorescence particulièrement intense, en excitant  $\mathrm{SO}_2$  à 299,96 nm, avec une forte réémission dans la raie  $\nu_1$ . Lorsque  $\mathrm{N}_2$  est introduit dans la cellule de diffusion, produisant une pression totale proche d'une atmosphère, l'intensité de cette raie est nettement réduite mais reste encore bien supérieure à la fluorescence de fond , ainsi que le montre la figure 6. Une courbe de Stern-Volmer de la variation d'intensité de la raie  $\nu_1$  en fonction de la pression de  $\mathrm{N}_2$  est présentée figure 7. La pression partielle de  $\mathrm{SO}_2$  est de l torr.

La relation linéaire de Stern Volmer établie précédemment pour les basses pressions est donc également valable à pression atmosphérique.

De cette étude Penney a déduit, pour  $SO_2$  dans  $N_2$  à 700 torr de pression totale, une section efficace de fluorescence de  $IO^{-29}$  m².str<sup>-1</sup> avec une précision de l'ordre d'un facteur 2.

Il semble que seul El Naby (25) ait observé une résonance Raman en excitant SO<sub>2</sub> avec un laser à colorant dans le domaine 2920-2980 Å, la longueur d'onde coïncidant avec les maximums et les minimums du spectre d'absorption.

La section efficace de rétrodiffusion Raman mesurée est environ  $(1,5 \pm 0,3)$   $10^{-30}$  m<sup>2</sup>/str ce qui donne une section efficace de plus de 2000 fois celle de l'azote à la même longueur d'onde.

Nous avons cité les travaux de Penney et de El Naby pour illustrer le fait qu'avec des longueurs d'onde excitatrices proches on peut avoir fluorescence ou résonance Raman. Mais ce sont surtout au travaux de Mettee et Sidebottom que nous nous référerons pour l'interprétation des résultats expérimentaux.

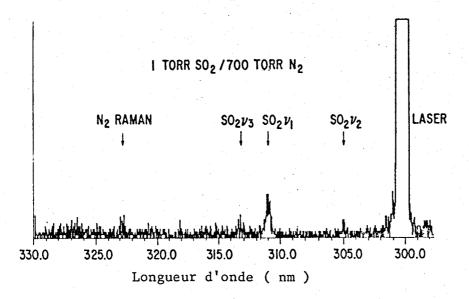


Fig. 6: Spectre de fluorescence de SO<sub>2</sub> dans N<sub>2</sub>

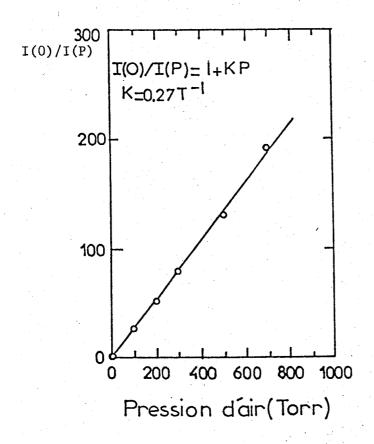


Fig. 7: Courbe de STERN-VOLMER de la fluorescence de SO<sub>2</sub> obtenue en utilisant l'intensité de la raie vl

#### CHAPITRE I - REFERENCES

- 1 C. CAHEN, C.R. Acad. de Paris, t. 292 (1981)
- 2 G. PLACZEK, MARX, Handb. d. Radiologie, Vol. 6, 2, p. 205 (1934)
- 3 C.M. PENNEY, 8 Conférence Internationale Laser Radar (I.L.R.C.)
  Université de Drexel Philadelphie (1977).
- 4 R.J.H. CLARK, Advances in Raman Spectrocospy, Vol. 1, HEYDEN, Londres 1975, p. 143.
- 5 G. HERZBERG, Infrared and Raman Spectra of Polyatomic molecules, Van Nostrand, Princeton, N.J., 1945, p. 217.
- 6 H. INABA, T. KOBAYASHI, Opt. Electron 4, 101 (1972).
- 7 W. HOLZER, W.F. MURPHY, H.J. BERNSTEIN, J. Chem. Phys. 52, 399 (1970).
- 8 H.H. CLAASSEN, G.L. GOODMAN, J.H. HOLLOWAY, H. SELIG, J. Chem. Phys., 53, 341 (1970).
- 9 R. CAPITINI, Bulletin d'Informations Scientifiques et Techniques (C.E.A.) n° 230-231, p. 101 (1978).
- 10 C.M. PENNEY, M. LAPP, J. Opt. Soc. Am. 66, 422 (1976).
- 11 A. ACKERMAN dans "Mesospheric Models and Related Experiments", Reidel, Dordrecht, 1971, p. 149.
- 12 C.E. FAIRCHILD, E.J. STONE, G.M. LAWRENCE, J. Chem. Phys., Vol 69, 8, 3632 (1978).
- 13 R.K. SPARKS, L.R. CARLSON, K. SHOBATAKE, M.L. KOWALCZYK, Y.T. LEE, J. Chem. Phys., Vol 72, 2, 1401 (1980).
- 14 G. MOREELS Cours de D.E.A. de Physique de l'Atmosphère, Université de Paris VI (1974).
- 15 C.M. PENNEY dans Laser Raman Gas Diagnostics, Plenum Press, 1974.
- 16 C.M. PENNEY, J. Quant. Electr. QE-11, 36 D (1975)
- 17 J.C. POURNY, D. RENAUT, J. ENGLENDER, Compte Rendu Final Convention 8/77

  Météorologie Nationale Ecole Polytechnique.

- 18 P. WARNECK, F. MARMO, J. SULLIVAN, J. Chem. Phys. 40, 1132 (1964).
- 19 P. RIGAUD et al., Etudes Optiques de certains composés minoritaires de la stratosphère, compte rendu D.G.R.S.T. (1980).
- 20 H.D. METTEE, J. Chem. Phys. 49, 1784 (1968).
- 21 H.W. SIDEBOTTOM, K. HOTSUKA, A. HOROWITZ, J.G. CALVERT, B.R. RABE, E.K. DAMON, Chem. Phys. Letters 13, 337 (1972).
- 22 J.G. CALVERT, Chem. Phys. Letters, vol. 20, 5, 484 (1973).
- 23 L.E. BRUS, J.R. Mc DONALD, Chem. Phys. Letters, 21, 283 (1973).
- 24 K.F. GREENOUGH, A.B.F. DUNCAN, J. Am. Chem. Soc. 83, 555 (1961).
- 25 S.H. EL NABY, Thèse Université Paris-Sud Centre d'Orsay (1980).
- 26 W.F. MURPHY, W. HOLZER, H.J. BERNSTEIN, Appl. Spectros., 23, 211, (1969)

#### CHAPITRE II

LE LIDAR RAMAN DANS L'U.V. — ÉQUATION DU LIDAR CAUSES D'ERREUR DANS LA MESURE LIDAR RAMAN

#### CHAPITRE II

**រាស់វិទិទ្**ប់ខេស្សីពី និង១៦ ១៦១៦ ១៦

HEROTE E EMEG TOTAL PRODUCTION

using of each list

# CAUSES D'ERREUR DANS LA MESURE LIDAR RAMAN

La mesure par lidar Raman peut s'effectuer de jour.

Dans la première partie nous rappelons la raison pour laquelle une mesure diurne est possible en considérant le rayonnement du ciel dans le proche U.V.

Nous examinons ensuite les différents facteurs atmosphériques d'atténuation dans le domaine spectral retenu. Pour cela deux modèles d'atmosphère claire et un modèle de panache sont utilisés.

La deuxième partie traite de l'équation lidar. Après avoir établi l'équation généralisée du lidar Raman, nous montrons comment l'utiliser pour une mesure quantitative dans les différents cas que nous avons ou que nous aurions pu (cas d'un panache) aborder expérimentalement.

Certaines erreurs sont inhérentes à la mesure, d'autres peuvent être atténuées. Leurs causes sont présentées dans la troisième partie.

I - RAYONNEMENT DIURNE DU CIEL ET ATTENUATIONS ATMOSPHERIQUES DANS L'U.V. (250-300 nm.)

#### A - Rayonnement diurne du ciel dans l'U.V. (250-300 nm)

La lumière solaire est diffusée dans l'atmosphère par les aérosols et les molécules. Ce rayonnement diffus constitue pour les mesures lidar un bruit de fond qui peut masquer totalement les signaux; c'est en particulier le cas lorsque l'émission laser a lieu dans le visible ou le proche U.V. Cependant, dans l'U.V., pour des longueurs d'onde inférieures à 320 mm, la

brillance du ciel diurne diminue fortement ; ceci est dû à l'absorption par l'ozone stratosphérique dans la bande de Hartley (200-300 nm) ; l'oxygène complète l'extinction de ce rayonnement pour des longueurs d'onde inférieures à 250 nm.

Le bruit de fond apporté par le rayonnement du ciel dans la mesure lidar peut être estimé d'après la relation suivante :

$$S_b(\lambda) = \frac{B(\lambda)}{h \cdot \nu} \cdot A \cdot \Omega \cdot b \cdot z \cdot \eta$$

où  $S_b(\lambda)$  est le signal parasite exprimé en photoélectrons par seconde,  $B(\lambda)$  la brillance spectrale énergétique du ciel,  $h.\nu$  le quantum d'énergie, A la surface du récepteur optique,  $\Omega$  l'angle solide de son champ de réception, L b sa bande passante optique, L sa transmission et L l'efficacité quantique du détecteur.

A titre d'exemple RENAUT et al (1) ont évalué ce bruit de fond pour le lidar Raman de l'E.E.R.M.. Ce lidar émet à 347 nm et les raies Raman sont diffusées dans l'intervalle 370-400 nm. Le signal diurne du ciel est estimé à 4.10 photoélectrons/seconde, ce qui correspond au signal Rayleigh-Mie diffusé à une distance d'environ 3 km. Ils ont vérifié expérimentalement cette correspondance. Pour détecter dans les mêmes conditions la diffusion Raman de la vapeur d'eau à 3 km, il faut réduire le rayonnement parasite du ciel par un facteur 4000 environ. Ceci peut être obtenu :

- en réduisant la bande passante optique b ; la limite inférieure est imposée par la largeur de la branche Q Raman. Par exemple, dans le cas de la vapeur d'eau cette valeur est de 10 cm<sup>-1</sup> ou 0,15 nm ;
- en réduisant le champ de réception ; la limite inférieure est imposée par la divergence des lasers : les meilleurs lasers sont de ce point de vue limités par la diffraction et ont des divergences de l'ordre de 10<sup>-4</sup> radians. Dans ces conditions, l'angle solide de réception peut être ramené à 10<sup>-7</sup> stéradians. Ceci impose cependant des contraintes techniques importantes : réglage du lidar très critique, stabilité mécanique parfaite, filtrage optique thermostaté, ..., ceci signifiant un lidar difficile d'emploi et de moins grande fiabilité.

L'autre solution pour éviter le rayonnement du ciel est d'émettre dans l'U.V. plus lointain de façon à détecter les raies Raman en dessous de 300 nm.

A l'aide du récepteur optique du lidar du C.E.A. (cf. chapître III : Equipement expérimental) RENAUT et al (4) ont analysé la brillance du ciel diurne dans l'intervalle spectral 200-400 nm. La lumière collectée par le télescope est filtrée par un monochromateur double équipé de fentes de 10 mm, ce qui correspond à une bande passante de 1,8 nm. Le détecteur est un PM RTC 56 DUVP dont le gain est étalonné en fonction de la tension d'alimentation. Le courant d'anode du PM dépend linéairement du flux de photons reçu par la photocathode, tant que ce courant reste faible ( < 0,2 nA). Aussi, devant la grande dynamique du signal obtenu lorsque la longueur d'onde varie, faute d'atténuateur optique, on procède par variation de gain du photomultiplicateur. On obtient une variation de brillance de 6 ordres de grandeur entre 400 et 300 nm (fig. 1). Le bruit d'obscurité du PM (1000 cpps) limite les mesures à 295 nm.

Cette expérience confirme qu'en dessous de 300 nm, on se trouve dans des conditions comparables à celles existant de nuit. On met donc à profit cette situation en utilisant un laser YAG quadruplé en fréquence, qui émet à 266 nm et pour lequel l'ensemble des raies Raman-Stokes est diffusé en dessous de 300 nm (la plus lointaine étant la raie Raman de H<sub>2</sub> à 299,1 nm).

#### B - Atténuation atmosphérique dans 1'U.V.

#### 1 - Facteurs d'atténuation

Les coefficients d'atténuation définis par la suite ne sont valables qu'au niveau du sol.

Nous considérons l'atténuation d'un faisceau de lumière U.V. par les basses couches de l'atmosphère ; en dessous de 250 nm l'oxygène l'absorbe fortement (continuum de Herzberg) ce qui limite très sérieusement sa propagation (par exemple on a une atténuation de 40 % à 210 nm pour un trajet de 100 m).

L'intervalle spectral disponible pour des mesures à distance, de jour, en diffusion Raman, se situe donc dans la gamme 250-300 nm; les facteurs essentiels d'atténuation dans ce domaine sont :

### a) L'absorption moléculaire par l'ozone

Comme nous l'avons vu dans le chapître I, la molécule d'ozone présente une absorption continue intense (bande de Hartley) qui correspond à une photodissociation. La section efficace varie peu avec la température et le coefficient d'atténuation peut s'écrire :

$$\alpha_{03}(\lambda) = 2,55.10^{16} \cdot \sigma_{03}(\lambda) \cdot N_{03}$$

où No $_3$  est la concentration de l'ozone exprimée en ppb,  $\sigma_{o_3}(\lambda) \text{ est la section efficace d'absorption de l'ozone.}$ 

#### b) La diffusion moléculaire

La diffusion Rayleigh par les molécules provoque également une atténuation de la lumière. Au niveau du sol, on peut la considérer en première approximation comme indépendante des conditions météorologiques.

Les coefficients d'atténuation au sol correspondants tabulés par PENNDORF (2) figurent dans le tableau 1. En utilisant ces valeurs le coefficient d'atténuation peut s'écrire :

$$a_{\text{mol}}(\lambda) = 2,41.10^{-4} \left(\frac{270}{\lambda}\right)^{4,4}$$

#### c) La diffusion Mie

La diffusion Mie est une des causes essentielles de l'atténuation; comme elle dépend fortement des conditions météorologiques, l'usage est de la paramétrer par la visibilité au sol V.

Pour l'U.V., des mesures de transmission de l'atmosphère ont été faites par GOODWIN (3) à 266 nm à diverses visibilités V:

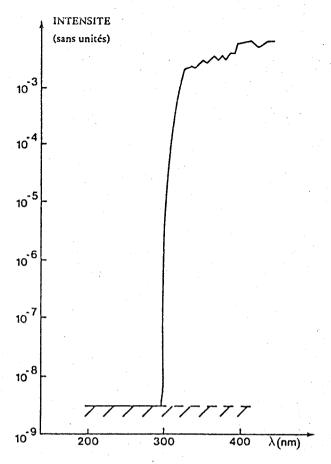
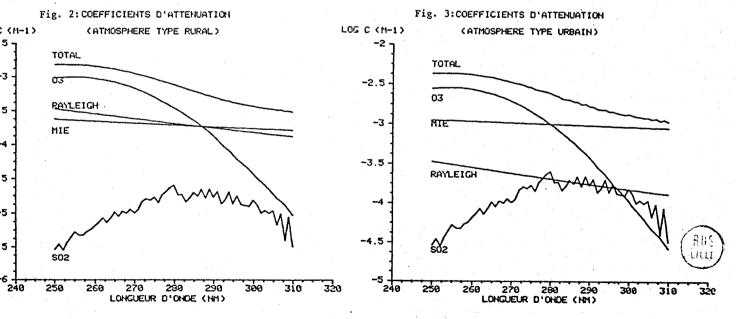


Fig. 1: Analyse spectrale de l'intensité lumineuse diffusée par le ciel de jour en été (à 30° de la direction du soleil).



λ (nm)	RAYLEIGH	MIE V = 25km	MIE V=10km	MIE V=5km
200	9,54.10-4	3,40.10	7,60.10-4	1,40.10 <sup>-3</sup>
210	7,53	3,13	7,10	1,35
220	6,03	2,89	6,70	1,30
230	4,93	2,69	6,40	1,25
240	4,06	2,50	6,00	1,20
250	3,38	2,33	5,70	1,15
260	2,84	2,20	5,45	1,10
270	2,41	2,05	5,20	1,05
280	2,05	1,93	5,00	1,00
290	1,76	1,81	4,80	0,95
300	1,52	1,71	4,60	0,90

Tableau 1: Coefficients d'atténuation Rayleigh et Mie au sol (  $m^{-1}$  )



$$V = 25 \text{ km}$$
  $\alpha_{\text{Mie}} = 0,21.10^{-3} \text{ m}^{-1}$   
 $V = 10 \text{ km}$   $\alpha_{\text{Mie}} = 0,53.10^{-3} \text{ m}^{-1}$   
 $V = 5 \text{ km}$   $\alpha_{\text{Mie}} = 1,06.10^{-3} \text{ m}^{-1}$ 

En se fondant sur la loi empirique de variation avec la longueur d'onde généralement adoptée, ces mesures donnent un coefficient d'atténuation de la forme :

$$\alpha_{\text{aer}}(V, \lambda) = \frac{5.3.10^{-3}}{V} \left(\frac{266}{\lambda}\right)^{0.585.V^{1/3}}$$
 (voir tableau 1)

## d) L'absorption moléculaire par le dioxyde de soufre

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, la molécule de dioxyde de soufre présente, entre 240 et 320 nm, une bande d'absorption assez forte qui correspond à une transition électronique, avec une structure vibration-nelle très marquée. Le coefficient d'atténuation s'écrit :

$$\alpha_{SO_2}(\lambda) = 2,55.10^{16} \cdot \sigma_{SO_2}(\lambda) \cdot N_{SO_2}$$

où  $\sigma_{\mathrm{SO}_2}$  (  $\lambda$ ) est la section efficace d'absorption de  $\mathrm{SO}_2$  à la longueur d'onde  $\lambda$  ,

 $^{
m N}$ SO $_2$  est la concentration de SO $_2$  en ppb.

#### e) L'absorption moléculaire par le dioxyde d'azote

La molécule de dioxyde d'azote présente, pour une longueur d'onde inférieure à 398 nm, une bande d'absorption correspondant à la photodissociation suivant la réaction :

$$NO_2 + h \nu \longrightarrow NO(^2\Pi) + O(^3P)$$

on peut négliger la dépendance de cette section efficace avec la température (5).

er ay to the second

Le tableau 2 présente les coefficients d'extinction de  $NO_2$  à 298°K entre 266 et 287 nm (6).

Nous avons vérifié que les autres constituants susceptibles de se trouver en quantité notoire dans l'atmosphère  $(N_2, O_2, H_2O, CO_2, CO, NO, N_2O...)$  n'absorbent pas dans cette région du spectre (7).

#### 2 - Modèles d'atmosphère claire (non polluée et polluée)

Les quantités d'aérosols, de  $\mathrm{SO}_2$ , de  $\mathrm{NO}_2$  et de  $\mathrm{O}_3$  dans les basses couches varient fortement suivant le lieu et l'heure, les conditions météorologiques et le niveau de pollution.

Nous reprenons les deux modèles extrêmes d'atmosphère définis par RENAUT et al (4) ; les concentrations en  $0_3$  et  $S0_2$  sont citées comme typiques par le rapport MITRE (8) :

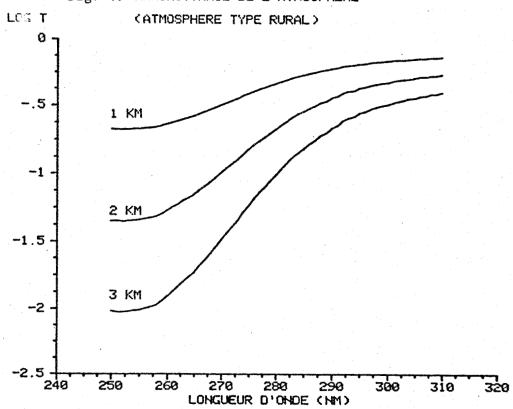
- atmosphère rurale (non polluée) V = 25 km,  $N_{03} = 35 \text{ ppb}$ ,  $N_{S0} = 10 \text{ppb}$
- atmosphère urbaine (polluée)  $V = 5 \text{ km}, N_{03} = 100 \text{ ppb}, N_{SO_2} = 100 \text{ ppb}$

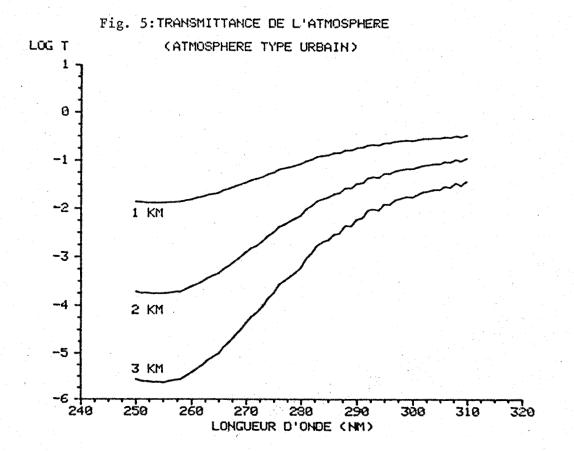
L'absorption par  ${\rm NO}_2$  n'a pas été prise en compte, la section efficace d'absorption de  ${\rm NO}_2$  étant environ 10 fois plus faible que celle de  ${\rm SO}_2$  pour des concentrations du même ordre de grandeur.

Pour les deux modèles, les contributions des divers facteurs d'atténuation ainsi que leur somme ont été calculées par RENAUT, en fonction de la longueur d'onde, en prenant un pas de 1 nm (fig. 2 et 3).

On observe que l'ozone est le facteur d'atténuation prépondérant jusqu'à 290 nm; au delà la diffusion des aérosols devient la plus importante. La diffusion Rayleigh n'est notoire que dans le cas de l'atmosphère rurale; en revanche l'absorption de SO<sub>2</sub> introduit sur le spectre total un effet de variation rapide dans le cas de l'atmosphère polluée. Ce dernier effet sérait encore plus net si le pas de calcul était plus petit.

Fig. 4: TRANSMITTANCE DE L'ATMOSPHERE







λ	ε	λ	ε	λ	ε
266.000	.64	272.500	.86	279.500	1.50
266.125	.58	272.625	.89	279.625	1.47
		272.750	.89	279.750	1.55
<b>266.2</b> 50	0.50	272.875	1.00	279-875	1.48
266.375	.56	273.000	1.02	202 202	• 40
266.500	.60	273.125	.99	280.000	1.49
266.625	.53	273,250	.98	280.125	1.41
266.750	.59	273.375	1.02	280.250 280.375	1.49 1.42
266.875	.69	273.500	1.00	280.500	1.43
256.000	.65	273.625	98	280.625	1.47
267.125 267.250	.68 .67	273.750	1.02	280.750	1.42
267.230	.75	273.875	1.05	280.875	1.44
201,515	.13	274.000	.98	281.000	1.50
267.500	.65	274.125	1.05	281.125	1.48
267.625	.64	274.250	1.08		
267,750	.68	274.375	1.03	281.250	1.52
267.875	.67	274.500	1.03	281.375	1.52
268.000	.64	274.625	1.08	281.500	1.59
263.125	.63	274.750	1.03	281.625	1.55
268.250	.71	274.875	1.13	281.750	1.52
268.375	.75			281.875	1.47
268.500	.75	275.000	1.08	282.000	1.44
268.625	75	275.125	1.09	282.125 282.250	1.41 1.49
		275.250	1.09	282.375	1.47
268.750	.77	275.375	1.08	202.31.)	1.41
268.875	.72	275.500	1.11	282.500	1,43
269.000	.75	275.625	1.10 1.07	282.625	1.43
269.125 269.250	.84 .81	275.750 275.875	1.06	282.750	1.49
269.230	.80	276.000	1.06	282.875	1.45
269.500	.77	276.125	1.07	283.000	1.50
269.625	.80	2.020		283.125	1.54
269.750	.78	276.250	1.11	283.230	1.60
269.875	.82	276.375	1.10	283.375	1.60
		276.500	1.12	283.500	1.65
270.000	.84	276.625	1.14	283.625	1.72
270.125	.84	276.730	1.10	283.750	1.67
270.250	.80	276.875	1.19	283.875	2.04
270.375	.85	277.000	1.14	284.000	1.68
270.500 270.625	.80	277.125 277.250	1.15 1.13	284.125	1.77
270.025 270.750	.82 .80	277.375	1.19	284.250	1.76
270.730 270.875	.73	211,313	1.17	284.375	1.81
271.000	.82	277.500	1.15	284.500	1.82
271.125	.85	277.625	1.15	284.625	1.83
		277.750	1.23	284.750	1.85
271.250	.84	277.875	1.20	281.875	1.88
271.375	.76	278.000	1.29	285.000	1.88
271.500	.76	278.125	1.26	285.125	1.86
271.625	.78	278.250	1.31	285.250	-1.94
271.750	.78	278.375	1.21	285.375	1.91
271.875	.81	278.500	1.31	285.500	1.95
272.000	.83	278.625	1.29	285.625	1.97
272.125	.85	270 770	1 -10	285.750	1.95
272.250	.79	. 278.750 278.875	1.28 1.40	285.875	2.01
272.375	.92	279.000	1.35	286.000	1.96
		279.125	1.32	286.125	2.05
		279.250	1.41	286.250	2.05
		279.375	1.48	286.375	2.06
		2.7.0.0		286.500	2.02
				286.625	1.98
				286.750	2.00
				286.875	1.97
				287.000	1.98
				287.125	1.93
		•		287.250	1.93
				287.375	2.01



Tableau 2: Coefficients d'extinction  $\epsilon$  de NO $_2$  à 298 K en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ (nm). $\epsilon$  est en cm $^{-1}$ (atm à 273 K) $^{-1}$ .

En supposant l'atmosphère homogène, hypothèse plausible pour des parcours de la lumière sur un trajet horizontal ou sur un trajet vertical court, la transmittance sur un trajet de longueur L s'écrit :

q(
$$\lambda$$
,L) = exp  $\left[-L(\alpha_{aer} + \alpha_{mol} + \alpha_{0_3} + \alpha_{S0_2})\right]$ 

Les figures 4 et 5 montrent les transmittances calculées sur des parcours de 1, 2 et 3 km pour les deux types d'atmosphères. On observe que l'atténuation reste faible en atmosphère rurale (10 % de transmission pour L = 3 km et  $\lambda$  = 280 nm); en revanche, elle est très forte en atmosphère polluée (0,1 % de transmission pour L = 3 km et  $\lambda$  = 280 nm). Dans ce cas la portée du lidar est sérieusement limitée.

## 3 - Modèle de panache

Une des applications essentielles du lidar Raman réside dans la détection de polluants gazeux dans les panaches de cheminée d'usine. Afin d'évaluer par des calculs a priori les possibilités d'investigation du lidar à l'intérieur d'un panache à faible distance de la cheminée ( < 500 m) il faut connaître assez précisément les concentrations des polluants dans le panache (gaz et aérosols).

Des mesures de concentrations dans des fumées d'usine figurent dans la littérature (9) mais elles sont souvent incomplètes – seuls quelques polluants sont considérés – et elles sont effectuées à plusieurs km de la cheminée, distances supérieures à la "portée efficace" du lidar Raman. Pour avoir des valeurs plausibles de concentrations nous avons utilisé un modèle de dispersion atmosphérique.

#### a) Le modèle de dispersion atmosphérique de PASQUILL-GIFFORD (10).

Le modèle de dispersion continue, bi-normale, de panache de PASQUILL-GIFFORD ne s'applique qu'à un panache inerte, les constituants ne prenant part à aucune réaction chimique.

De plus, les aérosols doivent avoir au plus 20 microns de diamètre afin que l'on puisse considérer qu'ils restent en suspension dans l'air sur de longues périodes de temps.

La concentration X en un point de coordonnées (x,y,z) de gaz ou d'aérosols provenant d'une source continue de hauteur effective d'émission H (figure 6) est donnée par l'équation :

$$\chi(x,y,z,H) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{y}{\sigma y}\right)^2\right] \left\{ \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z-H^2}{\sigma z}\right)^2\right] + \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{z+H}{\sigma z}\right)^2\right] \right\}$$
(1)

H est la hauteur de l'axe central du panache lorsque celui-ci se stabilise en altitude. Il est la somme de la hauteur de la cheminée h et de l'élévation du panache  $\Delta$  H à partir de la sortie de cette dernière.

Les hypothèses suivantes sont faites :

- l'étalement du panache a une distribution gaussienne à la fois verticalement (axe des z) et horizontalement (axe des y). Les écarts-type des distributions verticale et horizontale des noucentrations dans le panache sont respectivement  $\sigma_z$  et  $\sigma_y$ :
  - u est la vitesse moyenne du vent provoquant la dilution du panache,
  - le taux uniforme d'émission des polluants est Q,
  - une réflexion totale du panache a lieu à la surface du sol, c'està-dire qu'il n'y a ni déposition ni réaction à la surface du sol.

Les unités utilisées sont :

X: g.m<sup>-3</sup>  
Q: g.s<sup>-1</sup>  
u: g.s<sup>-1</sup>  
$$\sigma_y, \sigma_z$$
, A, X, Y et Z: m

L'équation (1) n'est valable que si la diffusion dans la direction de transport du panache - direction des X - peut être négligée, ce qui est le cas lorsque l'émission est continue.

Les valeurs de  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$  varient avec la structure turbulente de l'atmosphère, la hauteur considérée, le relief du sol (montagne, bâtiments proches de la cheminée), le temps d'intégration sur lequel la concentration est estimée, la vitesse du vent et la distance par rapport à la source.

Pour un ensoleillement modéré et une vitesse du vent de 5 m.s $^{-1}$ , la surface du sol étant relativement dégagée, les valeurs de  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$  sont celles du tableau 3 en fonction de la distance par rapport à la source. Elles correspondent à un temps d'intégration de 10 minutes.

L'élévation du panache  $\Delta$  H au-dessus de la cheminée est donnée par l'équation de HOLLAND (10) :

$$\Delta H = \frac{V_s d}{u} (1,5 + 2,68.10^{-3} P \frac{T_s - T_a}{T_s} d)$$
 (2)

avec

V<sub>s</sub>: vitesse de sortie des effluents de la cheminée en m.s<sup>-1</sup>

d : diamètre intérieur de la cheminée en m

u : vitesse du vent en m.s

P: pression atmosphérique en mb

 $T_s$ : température des effluents en  $^{\circ}K$ 

T<sub>a</sub> : température de l'air en °K.

#### b) Résultats

Les données nécessaires pour alimenter le modèle de PASQUILL-GIFFORD ont été fournies par le rapport final de la campagne de télédétection à TURBIGO (13). Elles, se trouvent rassemblées d'une part dans le tableau 4 où figurent les taux d'émission en g.s<sup>-1</sup> des différents gaz sortant de la cheminée ainsi que des aérosols, et d'autre part dans le tableau 5 où sont rassemblées les autres données indispensables. L'usine considérée est une centrale thermoélectrique d'une puissance de 260 MW, fonctionnant au fuel.

TABLE 3 : Paramètres de dispersion  $\sigma$  et  $\sigma$  z en fonction de la distance par rapport à la source X

X (m)	σ <sub>y</sub> (m)	σ <sub>z</sub> (m)
100	8	4.6
150	11.8	6.6
200	15.2	8.5
250	19	10.2
300	22	12
350	25.5	13.8
400	29	15.4
450	32.5	17
500	35.5	18.5
600	42.5	21.5
700	49	24
.800	55.5	26.5
900	62	29
1000	68	31.5
1500	100	41
2000	130	50
# 1 Contraction of the Contracti		

TABLEAU 6 : Concentrations des différents composés dans le panache au point A

Composé	Concentration
CO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> O SO <sub>2</sub> O <sub>2</sub> N <sub>2</sub> NO x O <sub>3</sub> aerosols	3 860 ppm 10 000 ppm 47 ppm 204 600 ppm 778 970 ppm 7 ppm 100 ppb 4,9.10 g.m -3



Composé	Taux d'émission g.s-l
co <sub>2</sub>	48 200
со	- : · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
н <sub>2</sub> о	17 700
so <sub>2</sub>	940
02	6 300
N <sub>2</sub>	186 500
NO <sub>x</sub>	101
Aérosols	19

# TABLEAU 4:

Taux d'émission des gaz et aérosols (d'après (13))

Valeur
96 m
15,5 m.s <sup>-1</sup>
5,8 m
5 m.s <sup>-1</sup>
1013 mb
433°K
288°K

# TABLEAU 5:

Autres données nécessaires pour le modèle



Sur la figure 6 nous avons représenté les axes (1) et (2) le long desquels les concentrations et atténuations ont été calculées.

La hauteur effective de la cheminée  $H = h + \Delta H$ ,  $\Delta H$  étant calculé d'après (2), est d'environ 200 m.

La figure 7 regroupe les distributions de concentrations de  $SO_2$  le long des axes (1) et (2) .

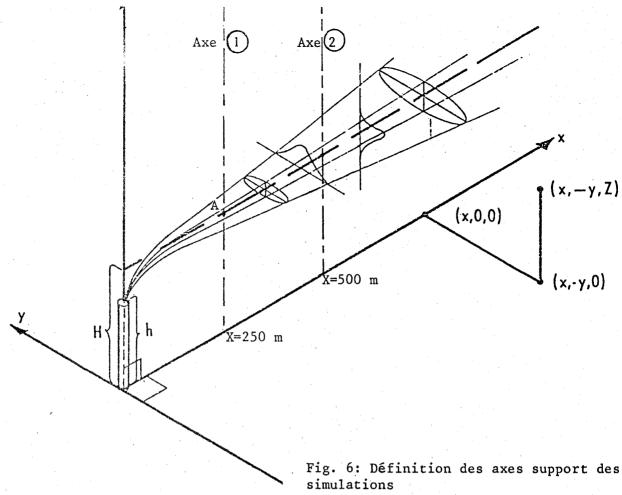
Le tableau 6 présente les concentrations des différents composés présents dans le panache au point A.

Le calcul de la dispersion est effectué sur des points distants de 2,5 m, résolution maximale en distance du lidar ; nous avons supposé que la dilution des effluents s'opérait dans une atmosphère de type urbain, modèle défini précédemment.

A titre d'exemple nous avons calculé l'atténuation dans le panache pour  $\lambda = 266~\mathrm{nm}$ .

La section efficace de diffusion des aérosols à 266 nm, nécessaire pour ce calcul, a été obtenue en utilisant la théorie Mie et les tables de Mc Cormick pour une monodispersion de particules sphériques ayant un rayon de  $0.5\,\mu$ , une densité de  $10^{-12}\,\mathrm{g}\cdot\mu\,\mathrm{m}^{-3}$  et un indice de réfraction de 1,5. En prenant cet indice réel nous supposons que les aérosols n'absorbent pas et donc que la partie imaginaire de l'indice de réfraction est nulle. De telles hypothèses sont nécessaires pour simplifier les calculs ; ces valeurs tiennent cependant compte des résultats expérimentaux trouvés dans la littérature sur les aérosols dans les panaches de fumée d'usine (11). Les extraits des tables de Mc Cormick utilisés et les relations permettant d'en déduire les sections efficaces de diffusion et de rétrodiffusion à différentes longueurs d'onde sont présentés dans l'annexe III.

La figure 8 montre les divers coefficients d'atténuation à 266 nm dans le panache le long de l'axe (1) en valeurs logarithmiques et linéaires;



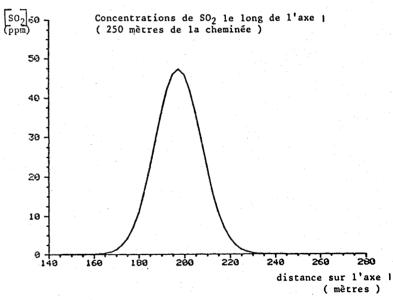


Fig. 7: Concentrations de  $SO_2$  le long des axes 1 et 2

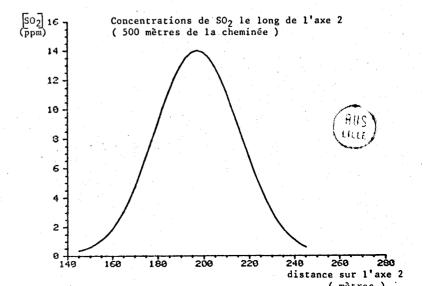
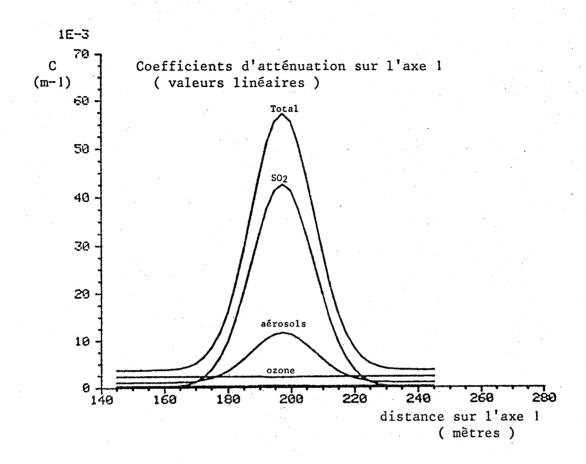
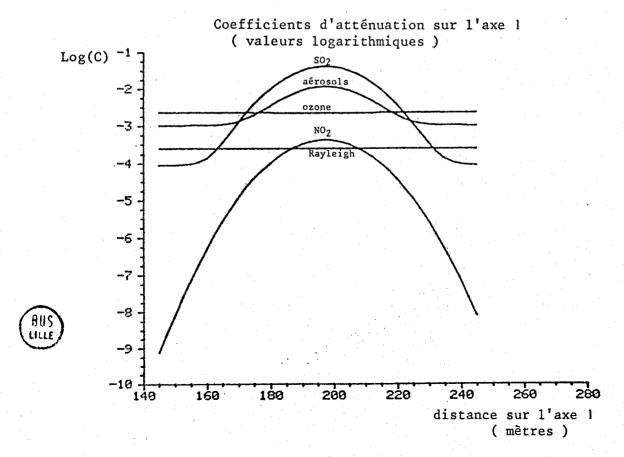


Fig. 8: Coefficients d'atténuation à 266 nm dans le panache, le long de l'axe 1 ( 250 m de la cheminée )





le coefficient d'atténuation total à 266 nm est également présenté. Les facteurs d'atténuation prépondérants sont  $SO_2$  et les aérosols, ces derniers ayant un coefficient d'atténuation environ 4 fois plus faible que celui de  $SO_2$ . L'absorption de  $NO_2$  à 266 nm est négligeable dans le cas étudié.

Nous avons supposé que le  $\mathrm{SO}_2$  émis demeurait inchangé, le taux de conversion de  $\mathrm{SO}_2$  par des réactions chimiques étant de quelques pourcents au bout de plusieurs heures (9). Par souci de simplification nous avons d'autre part supposé que les  $\mathrm{NO}_{\mathrm{x}}$  émis étaient uniquement sous forme  $\mathrm{NO}_2$  et qu'ils ne participaient à aucune réaction chimique.

Le coefficient d'atténuation total à la longueur d'onde diffusée par SO<sub>2</sub> (274,4 nm) est peu différent du coefficient d'atténuation total à 266 nm. On peut donc considérer que le coefficient d'atténuation aux longueurs d'onde excitatrice et diffusée par SO<sub>2</sub> est le double du coefficient d'atténuation à 266 nm.

#### II - EQUATION DU LIDAR RAMAN

#### A - Etablissement de l'équation du lidar Raman - Cas d'un milieu absorbant

Pour faciliter l'établissement de l'équation du lidar Raman nous faisons les hypothèses simplificatrices suivantes :

- la tache laser est circulaire. La répartition énergétique est uniforme ;
- un seul constituant moléculaire diffuse ;
- l'impulsion laser est rectangulaire. Elle ne subit pas de déformation temporelle au cours de sa propagation aller et retour;
- le spectromètre isole parfaitement la raie de vibration du gaz diffusant. Il n'y a pas de contribution des ailes de rotation ni d'autres raies.

On considère une tranche d'espace d'épaisseur dR telle que dR < cr, cr étant la longueur de l'impulsion. La puissance rétrodiffusée par l'élément

de volume dV situé à la distance R, dans un angle solide unité est donnée par (figure 9) :

$$dP = F_0 \cdot N(R) \cdot \sigma \cdot dV$$

avec Fo : flux incident

N(R): concentration volumique du corps diffusant

σ : section efficace de rétrodiffusion Raman du gaz (branche Q)

$$dV = S(R) \cdot dR$$

avec S(R): surface de la tache laser à la distance R.

Le flux incident :

$$F_o = \frac{E_o}{\tau} \cdot q (\lambda_o, R)/S(R)$$

avec  $E_o$ ,  $\tau$  : énergie et durée de l'impulsion laser  $q(\lambda_o,R)$  : transmittance sur la distance R à la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_o$ 

d'où  $dP = \frac{E_o}{\tau} \cdot q (\lambda_o, R) \cdot N(R) \cdot \sigma \cdot dR$ 

La puissance rétrodiffusée dans l'angle solide vu par le télescope

est:

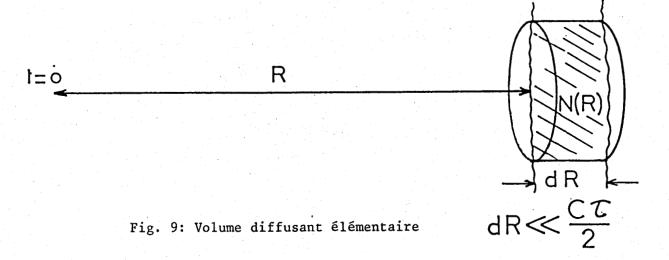
$$dP = \frac{E_o}{\tau} \cdot q (\lambda_o, R) \cdot N(R) \cdot \sigma \cdot \frac{A}{R^2} dR$$

avec A: surface du télescope.

La puissance recueillie par le télescope et parvenant au photomultiplicateur :

$$dP(R) = k \cdot \frac{E_o}{\tau} \cdot q(\lambda_o, R) \cdot q(\lambda_r, R) \cdot N(R) \cdot \frac{\sigma}{R^2} \cdot dR$$

avec q( $\lambda_r$ ,R): transmittance sur la distance R à la longueur d'onde rétrodiffusée  $\lambda_r$ .



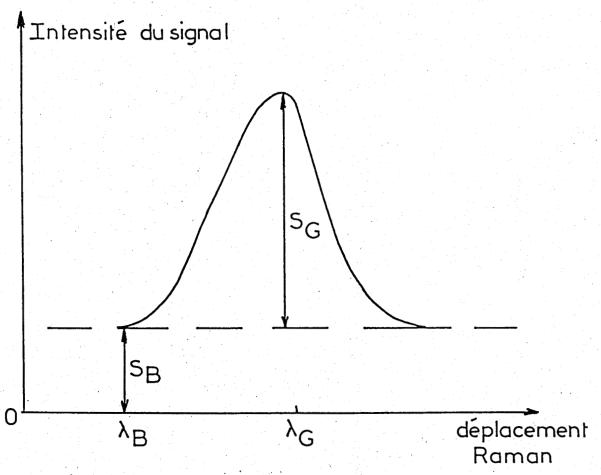


Fig. 10: Spectre Raman préliminaire du gaz G dans la cuve

k : constante d'appareillage

$$k = A \cdot \xi \cdot F$$

 $\xi$  : transmission optique du spectromètre

F: facteur géométrique de recouvrement des champs d'émission et de réception.

A l'instant t on reçoit la puissance provenant d'un intervalle de distance  $\left[\begin{array}{c} c & (t-\tau) \\ \hline 2 \end{array}\right]$ , en prenant le temps 0 à la sortie du front de l'impulsion.

La puissance provenant de cette zone est donc :

$$P(t) = \int_{c}^{ct/2} dP(R)$$

soit 
$$P(t) = k \frac{E_o \sigma}{\tau} \int_c^{ct/2} q(\lambda_o, R) \cdot q(\lambda_r, R) \frac{N(R)}{R^2} dR$$
 (1)

La relation (1) constitue l'équation généralisée du lidar.

Si on suppose que, sur la longueur de l'impulsion ( $\sim$  2,5 m), la concentration du gaz diffusant N(R) est constante, ce qui sera toujours le cas dans les applications considérées, (l) devient :

$$P(R_o) = k \cdot \frac{E_o}{\tau} \cdot \sigma \cdot \frac{N(R_o)}{R_o^2} \int_{R_o - \Delta R}^{R_o} q(\lambda_o, R) q(\lambda_r, R) dR$$

avec 
$$R_0 = ct/2$$
  
 $\Delta R = c\tau/2$ 

La puissance P parvenant au photomultiplicateur correspond à un nombre de photons par unité de temps.

Le signal S fourni par le photomultiplicateur est un nombre de photoélectrons par seconde :

$$S = \frac{P\lambda}{hc}$$
 .  $\eta$ ;  $\eta$  étant l'efficacité quantique du PM.

Pour un gaz x nous avons donc :

$$S_{x}(R_{o}) = \frac{\lambda_{x}}{hc} A \xi \eta \frac{E_{o}}{\tau} . \sigma_{x} . \frac{N_{x}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \int_{R_{o}-\Delta R}^{R_{o}} q(\lambda_{o}, R) q(\lambda_{x}, R) dR$$
(2)
$$q(\lambda_{o}, R) = \exp \left[ - \int_{o}^{R} \alpha(r, \lambda_{o}) dr \right]$$

$$q(\lambda_{x}, R) = \exp \left[ - \int_{o}^{R} \alpha(r, \lambda_{x}) dr \right]$$

avec  $\alpha$  (r,  $\lambda_0$ ) et  $\alpha$  (r,  $\lambda_x$ ) les coefficients d'atténuation à la distance r et aux longueurs d'onde  $\lambda_0$  et  $\lambda_x$ .

En posant  $\alpha(r, \lambda_0) = \alpha_1(r)$  et  $\alpha(r, \lambda_x) = \alpha_2(r)$ , on peut écrire :

$$q(\lambda_0, R) q(\lambda_x, R) = \exp \left[-\int_0^R \left[\alpha_1(r) + \alpha_2(r)\right] dr\right]$$

avec  $R_o < R < R_o + \Delta R$ 

$$\int_{0}^{R} \left[\alpha_{1}(r) + \alpha_{2}(r)\right] dr = \int_{0}^{R_{0}} \left[\alpha_{1}(r) + \alpha_{2}(r)\right] dr + \int_{R_{0}}^{R} \left[\alpha_{1}(r) + \alpha_{2}(r)\right] dr$$

 $\alpha_1(r)$  et  $\alpha_2(r)$  ne variant pas sur  $\Delta R$ 

$$\int_{R_o}^{R} \left[\alpha_1(r) + \alpha_2(r)\right] dr = \left[\alpha_1(R_o) + \alpha_2(R_o)\right] (R-R_o)$$

d'où 
$$q(\lambda_o, R) q(\lambda_x, R) = q(\lambda_o, R_o) q(\lambda_x, R_o) \cdot \exp \left[-\left[(\alpha_1 + \alpha_2)(R_o)\right] \cdot (R - R_o)\right]$$

En reportant cette expression dans (2), il vient :

$$S_{\mathbf{x}}(R_{o}) = \frac{\lambda \mathbf{x}}{hc} \mathbf{A} \mathcal{E} \eta \frac{E_{o}}{\tau} \sigma_{\mathbf{x}} \frac{N_{\mathbf{x}}(R_{o})}{R_{o}^{2}} q(\lambda_{o}, R_{o}) q(\lambda_{\mathbf{x}}, R_{o}) \int_{R_{o} - \Delta R}^{R_{o}} \exp \left[ -\left[ (\alpha_{1} + \alpha_{2})(R_{o})\right] .(R - R_{o}) \right] dR$$

En posant  $f = \alpha_1 + \alpha_2$  et en effectuant dans l'intégrale un changement de variable  $u = R-R_0$ , on obtient après intégration et retour à la variable d'origine :

$$S_{x}(R_{o}) = \frac{\lambda_{x}}{hc} A \xi \eta \frac{E_{o}}{\tau} . \sigma_{x} \frac{N_{x}(R_{o})}{R_{o}^{2}} q(\lambda_{o}, R_{o}) . q(\lambda_{x}, R_{o}) . \frac{1 - e^{-f(R_{o}) . \Delta R}}{f(R_{o})}$$

 $f(R_0) = (\alpha_1 + \alpha_2)(R_0)$  est le coefficient d'atténuation à la distance  $R_0$ .

En posant  $K = \frac{A \mathcal{E} \eta F}{h}$  il vient :

$$\widetilde{S}_{x}(R_{o}) = \frac{K}{c\tau} \cdot \lambda_{x} \cdot \sigma_{x} \cdot \frac{N_{x}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \cdot q(\lambda_{o}, R_{o}) \cdot q(\lambda_{x}, R_{o}) \cdot \frac{1 - e}{f(R_{o})}$$

où  $S_{x}(R_{o})$  désigne le signal normalisé par l'énergie.

Un cas limite de cette équation, souvent rencontré, est donné par  $f(R_{_{O}}).\Delta R \ll l, \text{ on a alors :}$ 

$$\widetilde{S}_{x}(R_{o}) = \frac{K}{c\tau} \cdot \lambda_{x} \cdot \sigma_{x} \cdot \frac{N_{x}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \cdot q (\lambda_{o}, R_{o}) \cdot q(\lambda_{x}, R_{o}) \cdot \Delta R$$

or 
$$\Delta R = \frac{c \tau}{2} d'o\tilde{u}$$
:

$$\tilde{S}_{x}(R_{o}) = K \cdot \lambda_{x} \cdot \sigma_{x} \cdot \frac{N_{x}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \cdot q(\lambda_{o}, R_{o}) \cdot q(\lambda_{x}, R_{o})$$
 (4)

en incluant le facteur 2 dans la constante K.

 $f(R_0)$ .  $\Delta R = 0,22$  est une limite supérieure de  $f(R_0)$ .  $\Delta R \ll 1$  pour que les équations (3) et (4) ne diffèrent pas de plus de 10 %;  $\Delta R$  étant égal à 2,5 m, cela donne :

$$f(R_0) = 0.09 \text{ m}^{-1}$$

L'équation (4) sera utilisable lorsque la somme des coefficients d'atténuation à la longueur d'onde excitatrice et à la longueur d'onde diffusée sera inférieure à 0,09 m<sup>-1</sup>.

#### B - Utilisation de l'équation du lidar Raman

#### l - Mesure en cuve à courte distance

Une cuve a été installée à courte distance ( ~ 100 m) pour des mesures de sections efficaces de rétrodiffusion Raman. Le gaz à mesurer dilué dans N<sub>2</sub> est introduit dans celle-ci, le rapport de dilution étant déterminé par spectrométrie de masse sur un échantillon prélevé dans la cuve. Ce rapport permet d'obtenir les concentrations du gaz et de l'azote, la pression totale étant d'une atmosphère. L'azote est donc le gaz de référence.

On peut supposer que la concentration du gaz diffusant est uniforme dans la cuve, le débit du gaz étant constant.

Le signal lidar S provenant de la cuve à la longueur d'onde Raman  $\lambda_G$  d'un gaz G correspond à la somme du signal Raman  $S_G$  et d'un bruit continu  $S_B$  dû à la lumière parasite dans le monochromateur, à une réjection imparfaite de la raie Rayleigh et/ou à la proximité d'une autre raie Raman. La mise en évidence de ce bruit est obtenue par l'acquisition préliminaire d'un spectre Raman du gaz présent dans la cuve (figure 10).

Ce spectre permet de déterminer une longueur d'onde  $\lambda_B$  où l'on pourra mesurer  $S_B$ , celui-ci étant ultérieurement retranché de S pour obtenir  $S_G$ .

# a) Cas d'un gaz non absorbant (CO<sub>2</sub>, SF<sub>6</sub>)

 $R_{_{O}}$  est la distance à laquelle se trouve l'entrée de la cuve, la sortie étant située à  $R_{_{O}}+\Delta R$ . Aucune atténuation n'ayant lieu dans la cuve l'équation (4) est donc applicable. La distance  $R_{_{O}}$  étant inférieure à 100 mètres les transmittances sont égales à l.

L'élimination de la constante K s'obtient par l'expression :

$$\frac{\widetilde{S} - \widetilde{S}_{B}}{\widetilde{S}_{N_{2}}} = \frac{\lambda_{G}}{\lambda_{N_{2}}} \cdot \frac{\sigma_{G}}{\sigma_{N_{2}}} \cdot \frac{N_{G}}{N_{N_{2}}}$$
 (5)

avec  $-\widetilde{S}$ ,  $\widetilde{S}_B$ ,  $\widetilde{S}_{N2}$ : signaux rétrodiffusés provenant de la cuve, normalisés par l'énergie de l'impulsion - ou par l'énergie moyenne si plusieurs tirs sont moyennés - aux longueurs d'onde du gaz, du bruit et de l'azote.

-  $N_G$ ,  $N_{N_2}$  : concentration volumique du gaz et de l'azote dans la cuve.

-  $\sigma_{\rm G}/\sigma_{\rm N_2}$  : section efficace relative de rétrodiffusion Raman du gaz par rapport à l'azote.

-  $\lambda_G^{}, \lambda_{N_2}^{}$  : longueur d'onde diffusée du gaz et de l'azote ;  $\lambda_G^{}/\lambda_{N_2}^{} \simeq 1 \, .$ 

La mesure de  $\widetilde{S}$ ,  $\widetilde{S}_B$ ,  $\widetilde{S}_{N2}$  et la détermination en laboratoire du rapport des concentrations  $N_G/N_{N2}$  par spectrométrie de masse sur des échantillons permettent de déduire  $\sigma_G/\sigma_{N2}$  de la relation (5).

# b) Cas d'un gaz absorbant : SO2

On injecte dans la cuve un mélange de  ${\rm SO}_2$  et de  ${\rm N}_2$ . Le coefficient d'atténuation dans la cuve dû à l'absorption par  ${\rm SO}_2$  est donné par :

$$f(R_0) = 2,55.10^{19} \cdot N_{SO_2}(R_0) \cdot (\sigma_1 + \sigma_2)$$

avec  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  les sections efficaces d'absorption à la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_1$  et diffusée par SO $_2$   $\lambda_2$ 

 $N_{SO_2}(R_0)$ : concentration de  $SO_2$  dans la cuve en ppm.

$$\lambda_1 = 266 \text{ nm}$$
 ;  $\sigma_1 = 35, 3.10^{-24} \text{ m}^2$   
 $\lambda_2 = 274, 4 \text{ nm}$  ;  $\sigma_2 = 54, 2.10^{-24} \text{ m}^2$ 

Nous avons vu que l'équation (4) n'était utilisable que pour f(R $_{\rm o}$ ) < 0,09 m $^{-1}$  ce qui, compte tenu des valeurs de  $\sigma_{\rm l}$  et  $\sigma_{\rm 2}$ , donne N $_{\rm SO_2}$  < 40 ppm.

Comme les concentration expérimentales de SO<sub>2</sub> sont toujours supérieures à cette valeur, nous employons l'équation (3), les transmittances étant peu différentes de l :

$$\widetilde{S}_{SO_2}(R_o) = \frac{K}{c\tau} \lambda_2 \cdot \sigma_{SO_2} \frac{N_{SO_2}(R_o)}{R_o^2} \frac{1 - \exp\left[-(\sigma_1 + \sigma_2)\frac{c\tau}{2}N_{SO_2}(R_o) \cdot 2,55.10^{19}\right]}{N_{SO_2}(R_o) \cdot (\sigma_1 + \sigma_2)}$$

Comme pour un gaz non absorbant,  $\widetilde{S}_{SO_2} = \widetilde{S} - \widetilde{S}_B$ . Il convient donc de faire un spectre préliminaire pour déterminer  $\lambda_B$ .

Le signal rétrodiffusé par l'azote présent dans la cuve est donné par :

$$\widetilde{S}_{N_{2}}(R_{o}) = \frac{K}{c \tau} \lambda_{3} \cdot \sigma_{N_{2}} \cdot \frac{N_{N_{2}}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \cdot \frac{1 - \exp\left[-(\sigma_{1} + \sigma_{3}) \cdot \frac{c\tau}{2} N_{SO_{2}}(R_{o}) \cdot 2,55.10^{19}\right]}{N_{SO_{2}}(R_{o}) \cdot (\sigma_{1} + \sigma_{3})}$$

avec  $\sigma_3$  : section efficace d'absorption de SO $_2$  à la longueur d'onde diffusée par l'azote  $\lambda_3$ .

 $\sigma_{\rm N_2}$  : section efficace de rétrodiffusion Raman de l'azote.

 $N_{N_2}(R_o)$  : concentration de l'azote dans la cuve en ppm.

d'où:

$$\frac{\tilde{S} - \tilde{S}_{B}}{\tilde{S}_{N_{2}}} = \frac{\lambda_{SO_{2}}}{\lambda_{N_{2}}} \frac{\sigma_{SO_{2}}}{\sigma_{N_{2}}} \frac{N_{SO_{2}}^{(R_{o})}}{N_{N_{2}}^{(R_{o})}} \frac{1 - \exp\left[-(\sigma_{1} + \sigma_{2}) \frac{c\tau}{2} N_{SO_{2}}(R_{o}) \cdot 2,55.10^{19}\right]}{1 - \exp\left[-(\sigma_{1} + \sigma_{3}) \frac{c\tau}{2} N_{SO_{2}}(R_{o}) \cdot 2,55.10^{19}\right]}.$$

$$\frac{\sigma_{1} + \sigma_{3}}{\sigma_{1} + \sigma_{2}} (6)$$

La mesure de  $\widetilde{S}$ ,  $\widetilde{S}_B$  et  $\widetilde{S}_{N2}$  par la station lidar, la détermination en laboratoire des concentrations  $N_{SO_2}$  et  $N_{N_2}$  par spectrométrie de masse sur des échantillons - en sachant que  $P_{N_2}$  +  $P_{SO_2}$  = 1 atm - et la connaissance de  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$  permettent, en utilisant la relation (6), de déduire  $\sigma_{SO_2}$   $\widetilde{N}_2$ .

# 2 - Mesure de concentrations de gaz atmosphériques : H20, 03

#### a) Mesure de profils de vapeur d'eau (4)

L'atmosphère étant considérée comme homogène sur une longueur égale à celle de l'impulsion laser, et les atténuations dues aux différents facteurs étant négligeables sur une telle longueur, l'équation (4) peut être utilisée.

La distance  $R_0$  pouvant être de plusieurs km, les transmittances sont très variables et très différentes de l. Pour s'en affranchir, on rapporte le signal de la vapeur d'eau à celui de l'azote. On peut, en première approximation, et pour des parcours inférieurs à 3 km, écrire que le rapport  $\delta_1$  des transmittances sur la distance  $R_0$  aux longueurs d'onde diffusées par l'eau et l'azote n'est dû qu'à l'absorption par l'ozone :

$$\delta_{1}(R_{o}) \simeq \exp \left[-\Delta \sigma_{1} \cdot C(R_{o})\right]$$
où
$$\Delta \sigma_{1} = \sigma_{0_{3}} (\lambda_{H_{2}0}) - \sigma_{0_{3}} (\lambda_{N_{2}})$$

 $\sigma_{0_3}(\lambda_{\rm H_20})$ ,  $\sigma_{0_3}(\lambda_{\rm N_2})$  étant les sections efficaces d'absorption de l'ozone aux longueurs d'onde diffusées par  $\rm H_20$  et  $\rm N_2$ ,

 $C(R_o)$  est le contenu intégré en ozone le long du trajet optique  $C(R_o) = \int_0^{R_o} N_{03}(z) dz$ .

La détermination du profil de la vapeur d'eau nécessite de connaître le contenu intégré en ozone. Celui-ci peut être obtenu à partir des signaux Raman de l'azote et de l'oxygène.

Il est donné par la relation :

$$C(R_o) = -\frac{1}{\Delta \sigma_2} \cdot Ln \left[ \frac{\widetilde{s}_{N_2}(R_o)}{\widetilde{s}_{O_2}(R_o)} \right] + cte$$

où 
$$\Delta \sigma_2 = \sigma_{0_3}(\lambda_{N_2}) - \sigma_{0_3}(\lambda_{0_2})$$

 $\sigma_{0_3}(\lambda_{N_2})$ ,  $\sigma_{0_3}(\lambda_{0_2})$  étant les sections efficaces d'absorption de l'ozone aux longueurs d'onde diffusées par  $N_2$  et  $0_2$ .

Le rapport de mélange de la vapeur d'eau  $r(R_{_{\scriptsize O}})$ , masse de vapeur d'eau/masse d'air sec, est donné par la relation :

$$r(R_o) = K \left[ \frac{\widetilde{S}_{0_2}(R_o)}{\widetilde{S}_{N_2}(R_o)} \right]^{\gamma} \cdot \frac{\widetilde{S}_{H_2O}(R_o)}{\widetilde{S}_{N_2}(R_o)}$$
 (7)

K est une constante dépendant des trois longueurs d'onde et des sections efficaces de rétrodiffusion Raman des trois composés  $O_2$ ,  $N_2$  et  $H_2O$ :

$$\gamma = \Delta \sigma_1 / \Delta \sigma_2 = 1.06$$

La détermination de r nécessite la mesure de trois signaux enregistrés aux longueurs d'onde diffusées par  $0_2$ ,  $N_2$  et  $H_2O$ , ces signaux étant normalisés à énergie constante.

## b) Mesures de profils d'ozone

Pendant l'éclairement laser, on a à la fois dissociation de l'ozone et diffusion Raman résonnante. La dissociation de l'ozone s'effectue presque uniquement (voir chapître I) par la réaction:

$$0_3 + h\nu \longrightarrow 0 (^1D) + 0_2 (^1\Delta g)$$

La cinétique de cette réaction s'écrit :

$$\frac{dN_{O_3}}{N_{O_3}} = -\sigma I(t) \cdot dt$$

où  $\sigma$  est la section efficace d'absorption de l'ozone à 266 nm (9,1.10<sup>-22</sup> m<sup>2</sup>) et I(t) le flux instantané laser (en photons.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>).

Si on pose φ le flux laser intégral (φ = ∫ I(t) dt)

G le flux diffusé intégral

G le flux diffusé intégral s'il n'y avait pas de photo-dissociation.

Ces trois flux sont liés par la relation suivante (12) :

$$\xi = \frac{\mathcal{G}}{\mathcal{G}_0} = \frac{1 - \exp\left[-\sigma\phi\right]}{\sigma\phi}$$

A 100 m, pour une impulsion laser rectangulaire de 50 mJ et de 15 ns, et une tache laser de 5 cm de diamètre  $\phi$  = 3,4.10 photons m<sup>-2</sup>.

$$\Rightarrow \xi = 0.98$$

Nous négligerons donc par la suite la photodissociation, en considérant que toutes les molécules d'ozone excitées diffusent.

Les hypothèses concernant l'homogènèité de l'atmosphère et la faiblesse des diverses atténuations sur la longueur de l'impulsion étant toujours valables, nous pouvons donc utiliser l'équation (4).

Pour s'affranchir des transmittances, on rapporte le signal de l'ozone à celui de l'oxygène. En effet, les longueurs d'onde de rétrodiffusion Raman de l'ozone et de l'oxygène étant proches (respectivement 274 nm et 277,6 nm) le rapport des transmittances est  $\simeq$  l pour  $R_{_{\scriptsize O}}$  inférieur à 1000 m. En faisant le rapport des signaux normalisés à énergie constante, il vient directement :

$$\frac{\widetilde{S}_{03}(R_0)}{\widetilde{S}_{02}(R_0)} = \frac{\sigma_{03}}{\sigma_{02}} \cdot \frac{N_{03}(R_0)}{N_{02}(R_0)} \cdot \frac{\lambda_{03}}{\lambda_{02}}$$

L'ozone étant en faible quantité, sa détection demande une tension PM plus élevée que pour l'acquisition du signal  $0_2$ . Il faut donc écrire ( $\lambda_{03}/\lambda_{02} \simeq 1$ 

$$\frac{\tilde{S}_{O_3}(R_0)}{\tilde{S}_{O_2}(R_0)} = \frac{\sigma_{O_3}}{\sigma_{O_2}} \cdot \frac{N_{O_3}(R_0)}{N_{O_2}(R_0)} \cdot \frac{G_{O_3}}{G_{O_2}}$$

où  $\tilde{S}_{0_3}$  et  $\tilde{S}_{0_2}$  sont des signaux en volts,  $G_{0_3}$  et  $G_{0_2}$  sont les gains du PM lors de la détection de  $G_{0_3}$  et  $G_{0_2}$ .

Si l'on veut exprimer la concentration d'ozone en ppb :

$$C_{03}^{(ppb)} = 10^{9} \cdot \frac{^{N}O_{3}}{^{N}air} = 10^{9} \cdot \frac{^{N}O_{3}}{^{N}O_{2}} \cdot \frac{^{N}O_{2}}{^{N}air} = 10^{9} \times \frac{^{N}O_{3}}{^{N}O_{2}} \times 0,21$$

$$C_{03}^{(ppb)} = 10^{9} \times 0,21 \times \frac{^{G}O_{2}}{^{G}O_{3}} \times \frac{\overset{N}O_{2}}{\sigma_{03}} \times \frac{\overset{N}O_{3}}{\overset{N}O_{2}} \times 0,21$$
(8)

La mesure de  $\widetilde{S}_{03}$  et  $\widetilde{S}_{02}$ , la connaissance de  $\sigma_{03}/\sigma_{02}$  et de  $G_{03}$  et  $G_{02}$  permet, à partir de (8), de déduire la concentration d'ozone.

#### 3 - Mesures dans un panache proche

Bien que nous n'ayons pas procédé à des mesures dans un panache, il nous a paru intéressant d'envisager l'application de l'équation lidar pour un tel type de mesure. Les axes définis sur la figure 6 sont les axes de visée du lidar.

Si nous considérons l'axe  $\bigcirc$ 1 de la figure 6, à 250 m de la cheminée, le signal rétrodiffusé par  $\mathrm{SO}_2$ , dans une tranche de 2,5 m d'épaisseur située à une distance  $\mathrm{R}_0$  le long de cet axe, est donné par l'équation (3) :

$$S_{SO_{2}}(R_{o}) = \frac{K}{c\tau} \cdot \lambda_{SO_{2}} \cdot \sigma_{SO_{2}} \cdot \frac{N_{SO_{2}}(R_{o})}{R_{o}^{2}} \cdot q (\lambda_{o}, R_{o}) \cdot q (\lambda_{SO_{2}}, R_{o}) \frac{-f(R_{o}) \Delta}{f(R_{o})}$$

Nous avons vu que le coefficient d'atténuation total aux longueurs d'onde excitatrice et diffusée dépassait 0,09 m<sup>-1</sup> sur la partie centrale du panache, aussi pour pouvoir utiliser l'équation (4) nous devons considérer une tranche située sur le bord du panache. D'autre part, seuls  $SO_2$  et les aérosols, facteurs prépondérants d'atténuation, interviennent dans le rapport des transmittances  $q(\lambda_0, R_0)/q(\lambda_{SO_2}, R_0)$ .

Le signal rétrodiffusé par l'azote provenant de cette même tranche de panache est donné par :

$$\tilde{S}_{N_2}(R_o) = K \cdot \lambda_{N_2} \cdot \sigma_{N_2} \cdot \frac{N_{N_2}(R_o)}{R_o^2} \cdot q(\lambda_o, R_o) \cdot q(\lambda_{N_2}, R_o)$$

Les sections efficaces de diffusion des aérosols étant peu différentes à 274,4 nm ( $\lambda_{\rm SO_2}$ ) et 283,6 nm ( $\lambda_{\rm N_2}$ ) (voir annexe III), en faisant le rapport des deux équations il vient :

$$\frac{\widetilde{S}_{SO_{2}}^{(R_{o})}}{\widetilde{S}_{N_{2}}^{(R_{o})}} = \frac{\lambda_{SO_{2}}}{\lambda_{N_{2}}} \cdot \frac{\sigma_{SO_{2}}}{\sigma_{N_{2}}} \cdot \frac{N_{SO_{2}}^{(R_{o})}}{N_{N_{2}}^{(R_{o})}} \cdot \exp\left[-\Delta\sigma \int_{o}^{R_{o}} N_{SO_{2}}^{(R)} dR\right] (9)$$

$$\Delta \sigma = \sigma_1 - \sigma_2$$

avec  $\sigma_1$ : section efficace d'absorption de SO<sub>2</sub> à 274,4 nm

 $\sigma_2$  : section efficace d'absorption de SO $_2$  à 283,6 nm.

Une telle équation peut se résoudre par discrétisation puis par intégration par parties.

La détermination de la concentration de tout autre constituant du panache se fait par une équation similaire à l'équation (9) où figure un terme  $\int_{SO_2}^{R} (R) \ dR \ d\hat{u} \ a \ l'absorption par SO_2 \ dans le panache. Elle nécessite donc que (9) soit d'abord résolue et que la distribution de concentration de SO_2 soit connue jusqu'à la distance <math>R_O$  avant de pouvoir détecter un autre gaz se trouvant à cette distance.

Cependant l'équation (9) fait intervenir la section efficace de rétrodiffusion Raman de  ${\rm SO}_2$ ; aussi elle n'est résolvable que si  ${\rm SO}_2$  présente un effet Raman de résonance à 266 nm.

#### III - CAUSES D'ERREURS DANS LA MESURE LIDAR-RAMAN

L'erreur dans la mesure par lidar Raman résulte essentiellement de la présence du bruit. Le bruit peut être défini comme étant le signal originaire d'une autre source que celle dont on veut mesurer le signal.

Les différentes sources de bruit, ainsi que les autres sources d'erreur sont passées en revue. Leur contribution quantitative sera chiffrée dans le chapître III.

## A - Les bruits optiques

## l - Les impulsions d'obscurité du détecteur

Cette source de bruit résulte de l'émission thermique provenant de la photocathode du photomultiplicateur. Cette émission produit des impulsions qui ne peuvent pas être facilement séparées des impulsions du signal. Le bruit d'obscurité est proportionnel à la surface efficace de la photocathode et est très sensible aux variations de température de la cathode. Dans la mesure de faibles intensités lumineuses ce bruit intervient dans l'incertitude de la mesure. Ce bruit peut être diminué par refroidissement de la photocathode.

## 2 - La résolution insuffisante du spectromètre

Le spectromètre utilisé doit avoir une résolution spectrale suffisante pour détecter une raie Raman de faible intensité proche d'une raie Raman beaucoup plus forte. La mesure lidar sur cette raie n'est rendue possible que par un compromis entre la résolution et la largeur de fente qui doit être suffisante pour assurer un niveau de signal détectable, sans être obligé de moyenner un nombre exagéré de tirs.

Aussi, lorsqu'une raie faible se trouve sur le flanc d'un pic intense il faut tenir compte de la contribution de ce dernier, lors de toute mesure lidar sur la raie faible

## 3 - <u>Réjection de la raie Rayleigh-Mie et élimination de la lumière</u> parasite

La diffusion Rayleigh par les molécules et la diffusion Mie par les aérosols donnent une raie globale intense (voir chapître I). Le spectromètre utilisé doit être conçu pour permettre la détection d'une raie Raman à quelques centaines de cm de la raie de diffusion élastique, avec des fentes larges de plusieurs mm. Ceci suppose, d'une part une réjection suffisante de la raie Rayleigh-Mie, mais également un bon taux d'élimination de la lumière parasite.

Dans un spectromètre la lumière parasite liée à la rétrodiffusion laser a plusieurs origines :

- diffusion de la lumière sur les particules de poussière présentes sur les pièces optiques du monochromateur,
- diffusion de la lumière, produite par les imperfections à la surface des réseaux,
- réflexion de la lumière sur certaines pièces à l'intérieur du monochromateur. La lumière peut ainsi atteindre la fente de sortie suivant divers chemins dans l'appareil.

A cette lumière parasite non périodique, il convient d'ajouter les images parasites (ghosts) provoquées par des défauts périodiques du tracé des traits du réseau. Ces "ghosts" ont une intensité beaucoup plus faible depuis que le tracé s'effectue sous contrôle interférométrique. Les réseaux holographiques (voir chapître V) ne présentent pas de "ghosts" et ont un niveau de lumière parasite beaucoup plus bas que les réseaux gravés.

## 4 - La fluorescence

La diffusion Mie des aérosols peut s'accompagner de fluorescence à large bande pouvant interférer avec les raies Raman. La fluorescence peut également être due aux gaz présents dans le volume sondé.

## 5 - Le bruit dû à la statistique des photons

Les signaux lidar-Raman étant très faibles, ils présentent des fluctuations d'ordre statistique dues à la nature quantique de la lumière. Ce "bruit de photons", directement lié au signal, limite la portée du lidar-Raman.

On suppose que le nombre de photons rétrodiffusés, mesuré pendant l'intervalle d'analyse  $\tau$ , est une variable aléatoire dont la probabilité suit une loi de Poisson.

Si, pour la mesure, on moyenne P signaux l'idar, on peut montrer que pour une détection analogique du signal, en négligeant les fluctuations de gain du PM, le rapport signal-bruit s'écrit :

$$\frac{S}{B} = S \cdot (P \cdot \tau)^{1/2} (S + 2 S_b)^{-1/2}$$

- où S est le signal lidar, pour un tir laser unique, exprimé en photoélectrons par seconde,
  - S<sub>b</sub> le signal dû aux différentes sources de bruit (courant d'obscurité du PM, brillance du ciel, fluorescence, etc...).

#### B - Les autres sources d'erreur

## l - Erreurs dues à l'analyseur de transitoires

La numérisation consiste à remplacer la valeur exacte d'un signal analogique par une valeur choisie parmi n valeurs quantifiées avec  $n=2^N$ , N étant le nombre de bits de numérisation. En appelant q le niveau élémentaire de quantification ou quantum, on peut tracer l'allure du signal de sortie lorsque le signal d'entrée varie et celle de l'erreur de quantification (figure 11).

- Soit q le quantum, l'erreur quadratique moyenne absolue vaut q/ $\sqrt{12}$ .
- Soit M le maximum du signal et N le nombre de bits efficaces (variable avec la fréquence), on a q  $\simeq \frac{M}{2^N}$ .

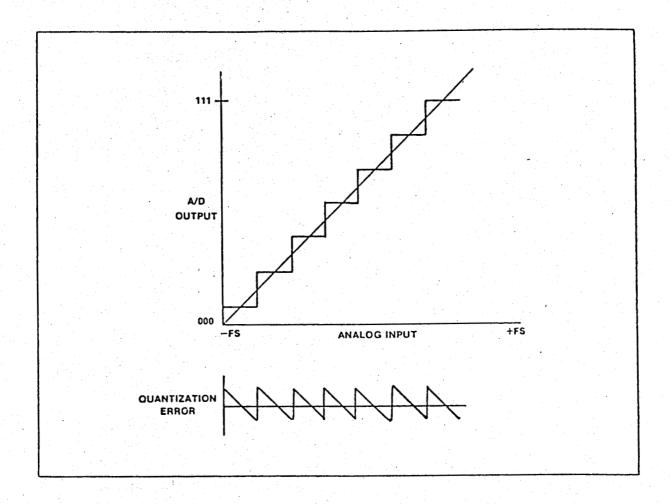


Fig. 11: Signal de sortie numérisé et erreur de quantification



- Pour une valeur quelconque m du signal, l'erreur relative vaut :

$$\xi = \frac{q}{\sqrt{12}} \frac{1}{m} = \frac{M}{m} \frac{1}{\sqrt{12} \cdot 2^{N}}$$

D'autre part la précision dynamique N diminue avec la fréquence d'échantillonnage. En effet, pour des fréquences d'échantillonnage élevées le numériseur se comporte, du point de vue de la précision de la numérisation, comme s'il avait un nombre de bits inférieur au nombre maximum (voir chapître III, V, § B).

Enfin la ligne de base de l'analyseur, à cause de la numérisation, présente des irrégularités qui, bien que très faibles, se révèlent gênantes lors de la recherche du zéro signal.

## 2 - <u>Variations temporelles de la transmission atmosphérique</u>

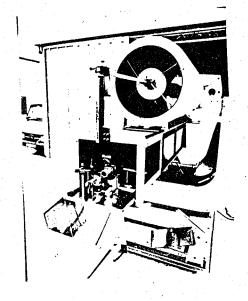
Une mesure quantitative par lidar nécessitant le moyennage de deux ou trois séries de tirs à des longueurs d'onde différentes, les conditions atmosphériques peuvent changer entre deux enregistrements successifs (passage de brume, d'aérosols) provoquant une variation de la transmission atmosphérique. Cette erreur peut être supprimée par l'emploi d'un spectromètre multicanal (voir chapître V).

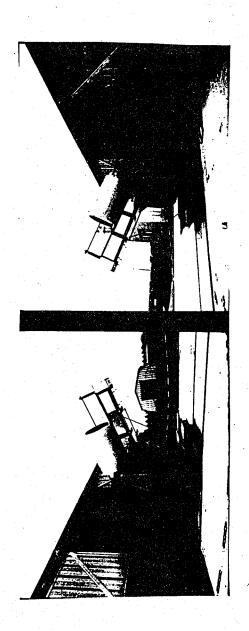
#### CHAPITRE II: REFERENCES

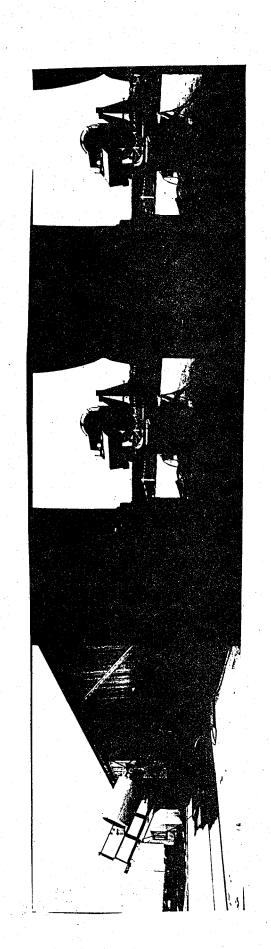
- 1 D. RENAUT, C. BRUN, J.L. GAUMET, J. BONNET, Note EERM n° 94 (1981)
- 2 R. PENNDORF : J. Opt. Soc. Am., Vol. 47, n° 2, p. 176 (1957)
- 3 D.W. GOODWIN, A.J. LINDOP: Opt.Act. Vol. 23, n° 4, p.257-263, (1976)
- 4 D. RENAUT, R. CAPITINI et J.C POURNY: La Météorologie, VI<sup>e</sup> série, n° 25 (1981).
- 5 P. RIGAUD et al.: dans Etude optique de certains composés minoritaires de la strastosphère Compte rendu D.G.R.S.T. (1980).
- 6 A.M. BASS, A.E. LEDFORD, A.H. LAUFER: J. Research N.B.S., Vol. 80 A, n° 2, p. 143. (1981)
- 7 B.A. THOMPSON, P. HARTECK, R.R. REEVES: J. Geoph. Res. 68, 6431 (1963).
- 8 Rapport MITRE: Compte rendu au MECV, projet N° 1586.
- 9 L.W. RICHARDS, J.A. ANDERSON, D.L. BLUMENTHAL, A.A. BRANDT, J.A. Mc DONALD, M. WATERS, E.S. MACIAS, P.S. BHARDWAJA: Atm. Envir., Vol.:15, n° 10-11, p. 2111 (1981).
- 10 D.B. TURNER: Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates, Environmental Protection Agency. Publication n° AP-26 (1970).
- 11 E.E. UTHE, W.E. WILSON: Atm. Envir., Vol. 13, n° 10, p. 1395 (1979).
- 12 J.C. POURNY, D. RENAUT, J. ENGLENDER: Compte Rendu Final Convention 8/77-Météorologie Nationale - Ecole Polytechnique.
- 13 A. LONGHETTO et al.: Final Report on the Remote Sensing Exercise at Turbigo (1979).

CHAPITRE III

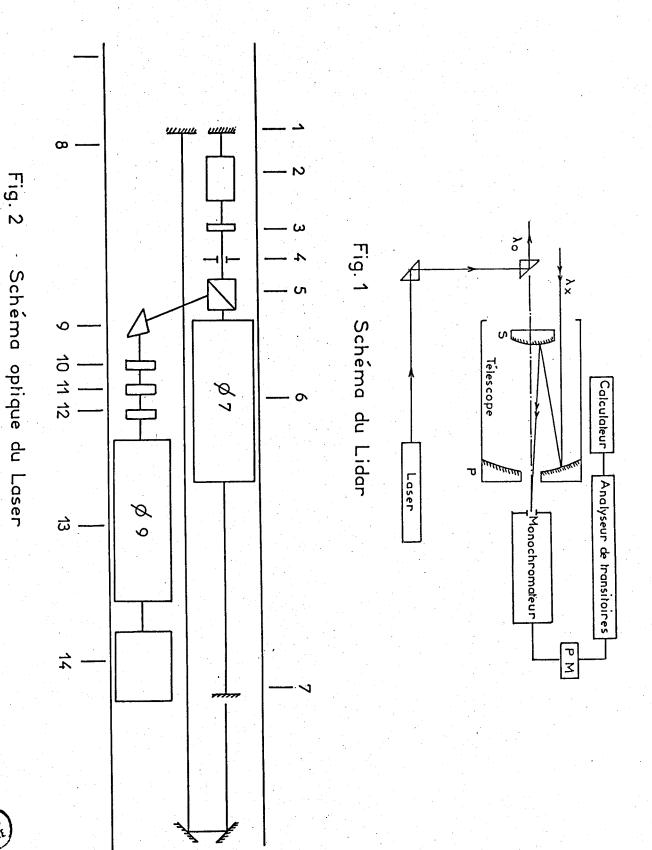
ÉQUIPEMENT EXPÉRIMENTAL











#### CHAPITRE III

#### **EQUIPEMENT EXPERIMENTAL**

La station lidar du C.E.A. implantée à Magny-les-Hameaux a bénéficié de l'arrivée de deux appareils qui ont permis un accroissement sensible des performances : le laser à fréquence de tir 10 Hz et l'analyseur de transitoires programmable : nous les détaillerons donc plus particulièrement tout en présentant les autres éléments de l'équipement expérimental.

La figure 1 présente le diagramme synoptique du système lidar.

#### I - LE LASER

Le laser est un  $N_d$  YAG Quantel à fonctionnement déclenché, quadruplé en fréquence. Le matériau amplificateur utilisé dans ce laser est un cristal de YAG, constitué par la matrice  $Y_3$  Al $_5$  O $_{12}$ , dopée par des ions  $N_d$  qui se substituent aux ions  $Y^{3+}$ . L'émission laser se fait selon le processus d'un laser à quatre niveaux à la longueur d'onde de 1,064 $\mu$ .

#### A - Présentation générale du laser YG 481 C Quantel

Le laser est essentiellement constitué d'un oscillateur déclenché, d'un système préamplificateur (procédé Polarex) et d'un étage amplificateur.

Le schéma du montage est donné sur la figure n° 2.

La cavité oscillatrice comporte un miroir concave  $R_{\text{max}}$  1,064 $\mu$  (1), une cellule de Pockels (2), une lame quart d'onde (3), un diaphragme (4), un polariseur du type Glan Thompson (5), un milieu amplificateur (6), un miroir de sortie constitué par une lame quart d'onde (7) et le miroir divergent (8) qui permet de réinjecter sur toute la surface l'énergie extraite de l'oscillateur en TEMoo.

La cellule de Pockels est sans tension à ses bornes, le laser ne peut pas fonctionner. La présence du miroir divergent de renvoi et de la lame quart d'onde en sortie associés au polariseur de Glan ne permet pas de réinjecter de l'énergie dans la cavité du laser. Lorsque la tension de la cellule est appliquée brutalement, le laser émet un faisceau. L'oscillateur est rendu monomode transverse (TEMoo) par l'interposition d'un diaphragme dans la cavité ( $\emptyset$  = 2,5 mm). Une première amplification de l'énergie de sortie de l'oscillateur est obtenue par le procédé Polarex dont le principe est le suivant : le faisceau monomode transverse qui sort de la cavité oscillatrice est agrandi par le miroir divergent. Sa polarisation a tourné de  $\pi/2$  puisqu'il est passé deux fois à travers une lame quart d'onde. La courbure du miroir est adaptée pour exploiter sur toute la surface le milieu amplificateur. Aussi, le faisceau réinjecté dans la cavité oscillatrice occupe spatialement la totalité du volume du barreau amplificateur. En traversant celui-ci il est nettement amplifié puisqu'il rencontre un volume où existe une inversion de population, notamment à la périphérie du barreau.

Le faisceau amplifié a une polarisation croisée par rapport à celle de l'oscillateur et est donc extrait de la cavité par le prisme de Glan (séparateur de polarisation). Un prisme d'injection à réflexion totale  $1,064\mu$  (9), deux lames quart d'onde (10 et 11), une lentille sphérique (12), une tête amplificatrice SF 410.09 (Ø 9 mm) (13) et les générateurs de fréquence, doubleur (14) et quadrupleur complètent le laser décrit précédemment.

Les quarts d'onde placées entre le prisme et la lentille permettent d'obtenir, avant amplification, une lumière polarisée linéairement pour la conversion en fréquence.

Les pièces optiques fonctionnant en transmission (polariseur, prisme, lentilles, lames quart d'onde) ont subi un traitement anti-reflet 1,064  $\mu$  .

Notons que la baie d'électronique complétant la source laser contient :

- l'alimentation électrique du laser,
- le groupe de refroidissement des têtes amplificatrices.

## B - Caractéristiques techniques du laser

## 1 - Caractéristiques en sortie dans l'infrarouge

L'oscillateur délivre une impulsion d'environ 15 ns à mi-hauteur. La lumière infrarouge issue de l'oscillateur est polarisée linéairement grâce aux deux lames quart d'onde qui sont placées à l'entrée de l'amplificateur. La direction du champ électrique est horizontale.

L'énergie de l'impulsion laser est de 1200 mJ dans l'infrarouge.

## 2 - Caractéristiques après doublement et quadruplement de fréquence

Les générations d'harmoniques 2 et 4 sont faites par des cristaux de KDP deutérés dont l'accord de phase se fait par orientation angulaire.

La lumière sortant du doubleur de fréquence comprend de la lumière verte (532 nm) et de l'infrarouge initial non modifié (1,06 $\mu$ ). La majeure partie de cet infrarouge résiduel est éliminée à l'aide d'une lame dichroïque séparatrice dont le facteur de réflexion à 532 nm est égal à 99 % et le facteur de transmission à 1,06 $\mu$  est de 95 %.

L'infrarouge transmis est capté dans un piège à lumière. Après réflexion sur une seconde lame dichroïque identique à la précédente, la lumière verte passe dans le cristal quadrupleur. A la sortie du quadrupleur, une lame dichroïque séparatrice dont le facteur de réflexion à 266 nm est de 99 % et le facteur de transmission à 532 nm est de 95 % permet d'éliminer une grande partie de la lumière verte.

La lumière verte est polarisée linéairement. La direction du champ électrique est verticale. La lumière ultraviolette a son champ électrique polarisé horizontalement.

Dans la chronométrie d'un tir laser, l'origine des temps est le signal (+ 24 V, 0 V) dont la durée est d'environ 30  $\mu$ s. Lorsque le fonctionnement du laser est automatique le signal de synchronisation fait environ 15 V et possède un temps de montée d'environ 20 ns sur 50  $\Omega$ .

La forme et la durée de l'impulsion laser ont été déterminées avec précision à l'aide d'une photodiode RTC type XA 1002, qui permet la détection de l'impulsion laser à 532 nm, et de l'analyseur de transitoires TEKTRONIX R 7912 (bande passante : 350 MHz, 9 bits de résolution verticale et horizontale). L'impulsion est présentée figure 3. Sa largeur équivalente à mi-hauteur est de 16 ns et, malgré la forme non gaussienne de sa distribution temporelle, cette valeur de largeur sera celle que nous utiliserons par la suite.

La lumière UV (et de la lumière verte résiduelle) est envoyée verticalement sur un prisme à réflexion totale qui permet de rendre l'axe du faisceau laser coaxial avec celui du télescope. Une faible partie de la lumière est réfléchie par ce prisme vers un détecteur pyroélectrique (Laser Précision Corporation RJP 735) qui, après étalonnage, donne une mesure de l'énergie laser à chaque tir. Ce mesureur d'énergie peut moyenner 10 ou 100 tirs.

L'énergie de l'impulsion laser, les réglages étant optimisés, est de 500 à 550 mJ dans le vert et de 100 à 110 mJ après quadruplement de fréquence, ce qui correspond à un rendement global de 8 à 9 %. Le taux de répétition peut être de 1, 5 ou 10 Hz.

La divergence du faisceau laser dans l'ultraviolet a été mesurée en relevant la dimension de la tache laser à 100 m. Elle est de 0,5 mrad plein angle.

## C - Limitations du laser utilisé

Tout au long du premier semestre 1981 des mesures ont été effectuées en utilisant le signal de synchronisation à 15 V pour déclencher la base de temps de l'analyseur de transitoires. Or, nous nous sommes rendus compte que l'utilisation de ce signal présentait quelques inconvénients sérieux.

D'une part, il ne fonctionnait pas toujours régulièrement et des "ratés" ne permettaient pas une bonne correspondance entre le signal moyenné et l'énergie moyennée, le moyenneur se déclenchant sur l'émission laser.

D'autre part, il semble que cette synchro interne, par les parasites qu'elle engendrait, ait dégradé rapidement les transistors à avalanche de la carte d'alimentation H.T. de la Pockels; cette carte a dû être changée deux fois au cours de ce semestre 1981. Cette détérioration avait pour conséquence une chute de l'énergie laser ( < 30 mJ par pulse à 266 nm).

Depuis septembre 1981 le déclenchement de la base de temps du 7612 D se fait par photodiode ce qui a permis d'avoir une énergie moyenne d'environ 70 mJ.

Néanmoins, l'énergie maximale de 100 mJ est rarement atteinte. Cela est dû à un effet systématique de déréglage provoqué par les contraintes thermiques et mécaniques du support laser qui influent sur le "bras Polarex" et sur la cavité.

Le fait d'avoir thermostaté le support du laser avec des rubans chauffants a permis de minimiser l'influence des contraintes thermiques.

De plus, l'adoption d'un nouveau procédé de préamplification supprimant le bras Polarex et raccourcissant la cavité, permettrait d'atténuer l'influence des contraintes mécaniques. Ce procédé, proposé par Quantel, devrait être adapté prochainement au laser de Magny.

L'utilisation de la cavité laser en monomode transverse implique que l'on utilise la cellule de Pockels dans un faible volume. Aussi, en raison de la forte densité locale de puissance, on constate une détérioration rapide des propriétés optiques de la Pockels. Le changement de celle-ci s'effectue tous les 4 millions de tirs alors que la durée de vie des lampes à éclairs d'excitation est supérieure à 8 millions de tirs.

Le quadrupleur de fréquence pose un problème car il nécessite une optimisation continue et donc la présence permanente d'une personne. En effet, les impuretés contenues dans le cristal présentent une absorption à 266 nm et provoquent, par l'échauffement résultant, un dérèglement angulaire qu'il faut constamment corriger.

Mentionnons enfin quelques pannes gênantes dans le tiroir de commande et la sécurité d'alimentation d'eau.

#### II - LE TELESCOPE

Le télescope, du type Cassegrain, a été développé par la société REOSC et présente les caractéristiques suivantes :

- diamètre du miroir primaire : 60 cm
- focale résultante
- : 2,82 m
- ouverture relative du foyer Cassegrain F/4,7
- champ maximum de 5,3 mrad pour une image au foyer de diamètre 15 mm.

La surface utile du miroir est de  $0,22 \text{ m}^2$ . Cette légère diminution est due à l'obturation par le miroir secondaire.

L'optique du télescope a été optimisée pour corriger les aberrations à 266 nm. Elle comprend :

- le miroir sphérique primaire concave taillé dans du verre SCHOTT ZKN 7 et traité d'une couche AMPLIVEX UV de chez MTO;
- un miroir sphérique convexe de diamètre 28 cm en ZKN 7, traité AMPLIVEX UV ;
- des lentilles en silice fondue, pour assurer un bon stigmatisme du télescope.

La monture mécanique comporte un barillet qui permet la translation du miroir secondaire ; la mise au point peut ainsi être réglée pour un objet éloigné depuis 100 m jusqu'à l'infini. Une visée réflex escamotable permet de régler la direction du télescope sur une cible.

Le télescope est solidaire d'une monture mécanique orientable en site et en azimut, réalisée par les ateliers du C.E.N. Saclay. Cette monture porte également le laser et le monochromateur.

Un dispositif télémétrique permet de faire coıncider le champ éclairé par le laser avec le champ d'observation. Le résidu de l'émission à 532 nm est utilisé pour ce réglage.

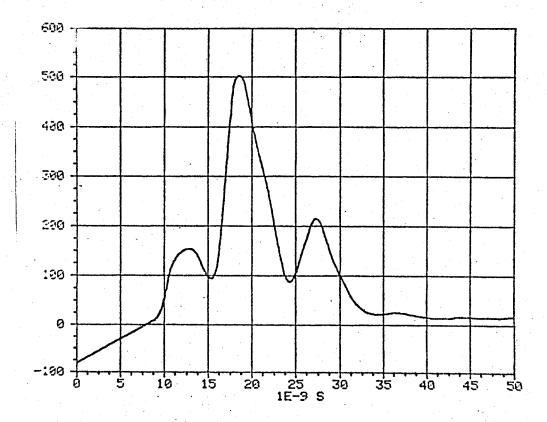


Fig. 3: Impulsion laser détectée à 532 nm par la photodiode et numérisée par l'analyseur R 7912

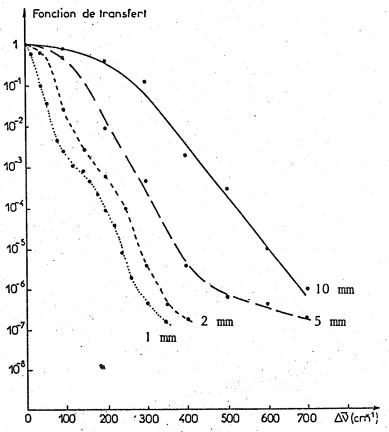


Fig. 4 Fonction de transfert du HRD en fonction de l'écart à la fréquence d'excitation (0 cm<sup>-1</sup>) (pour diverses largeurs de fentes)



#### III - LE SPECTROMETRE - COUPLAGE AVEC LE TELESCOPE

Le spectromètre est un double monochromateur HRD Jobin Yvon. C'est un montage Czerny Turner de 600 mm de focale et d'ouverture F/9. Il est équipé de deux réseaux holographiques plan de 3600 tr/mm traités Mg  $F_2$ . La dispersion linéaire est de 0,18 nm/mm et le domaine spectral couvert est compris entre 250 et 400 nm. La transmission optique est de 15 % environ. Les fentes ont une hauteur de 15 mm et les largeurs peuvent être choisies entre 1, 2, 5 et 10 mm. Les taux de réjection ont été mesurés sur l'aile de la raie Rayleigh rétrodiffusée, pour les diverses largeurs de fentes (figure 4). Ainsi, par exemple, une réjection de  $10^{-7}$  environ est obtenue à 400 cm de la raie excitatrice pour une fente de 2 mm.

Le fait qu'on ne puisse pas obtenir des taux de réjection inférieurs à  $10^{-7}$  est dû à une élimination insuffisante de la lumière parasite.

Nous avons évalué l'incertitude de fixation du nombre d'onde due à l'erreur de lecture et au léger jeu dans la commande de rotation des réseaux; elle est inférieure à 10 cm<sup>-1</sup>.

Le couplage optique avec le télescope est réalisé grâce à une lentille convergente en Suprasil de focale 160 mm, utilisée avec un grandissement de 2. Cette configuration oblige à reculer le monochromateur de 74 cm, ce qui limite l'inclinaison de la station à 45°.

Le champ réel du télescope est différent du champ maximum. Il résulte de la conjugaison de la fente d'entrée avec le télescope par l'intermédiaire de la lentille.

Lorsque le télescope est réglé à l'infini, la divergence du laser étant de 0,5 mrad, le signal rétrodiffusé se trouve donc, au foyer du télescope, contenu dans une tache circulaire d'environ 1,5 mm de diamètre - 15 mm de diamètre correspondant à une divergence de 5,4 mrad - et donc de 3 mm de diamètre dans le plan de la fente d'entrée du monochromateur. Ne disposant que de quatre largeurs de fente, nous devons prendre des fentes de 5 mm pour analyser tout le signal utile.

En fait, lorsque sur un même signal on utilise les quatre largeurs disponibles, les intensités obtenues se présentent dans les rapports suivants :

$$\frac{I_{5mm}}{I_{10mm}} = 0.8$$
;  $\frac{I_{2mm}}{I_{10mm}} = 0.3$ ;  $\frac{I_{1mm}}{I_{10mm}} = 0.15$ 

Le gain de signal obtenu par l'utilisation d'une fente de 10 mm de largeur s'explique, d'une part par un alignement coaxial imparfait et d'autre part, par un couplage légèrement incorrect dû à une incertitude de positionnement de la lentille.

#### IV - LE TUBE PHOTOMULTIPLICATEUR

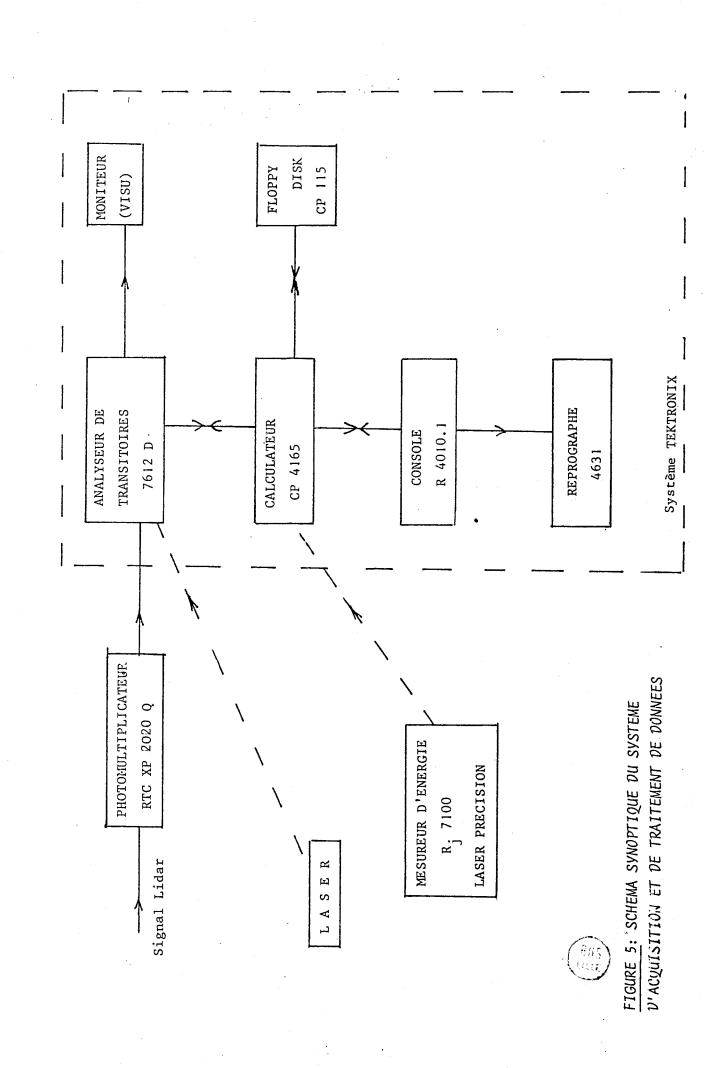
Le photomultiplicateur RTC est du type XP2020Q, de diamètre utile 44 mm, possédant une photocathode semi-transparente frontale, bialcaline, et un photomultiplicateur 12 étages à structure linéaire focalisée. Sa fenêtre en silice fondue étend sa réponse spectrale, par rapport au XP2020, dans l'ultraviolet jusqu'à 160 nm.

La photocathode a une efficacité quantique de 25 % à 300 nm. Le gain est 3.10 à 2200 V et, pour cette tension, le courant d'obscurité est de 7 nA ce qui correspond à 1000 photoélectrons.s (phe.s).

Nous avons étalonné le gain du PM de manière relative pour diverses tensions d'alimentation (tableau 1).

TABLEAU 1 - VARIATION DU GAIN PM AVEC LA TENSION D'ALIMENTATION

Tension d'alimentation (V)	Gain relatif
1200	1.1
1800	70
2200	600
2700	5000



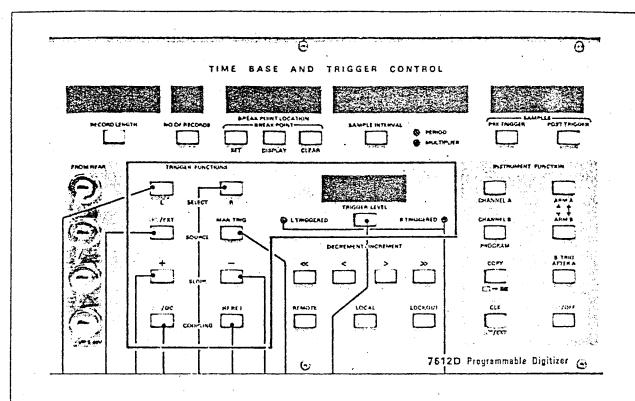


Fig. 6: Panneau avant du 7612 D



Le tableau 2 fournit le bruit d'obscurité en phe/ms en fonction de la tension d'alimentation.

TABLEAU 2 - BRUIT D'OBSCURITE DU PM EN FONCTION DE LA TENSION D'ALIMENTATION

Tension d'alimentation (V)	Bruit d'obscurité (phe.ms <sup>-1</sup> )
1500 <sub>,</sub> 1800	1
2200	4

Le bruit d'obscurité à 2200 V est égal à 4000 photoélectrons.s -1 ce qui est supérieur d'un facteur 4 au chiffre du constructeur.

Le PM étant dans sa position de fonctionnement sur le lidar, un bruit de fond de 20 photoélectrons.ms a été mesuré à 1800 V. Cette valeur importante s'explique essentiellement par une mauvaise étanchéité du double monochromateur à la lumière provenant du ciel à laquelle nous avons remédié en partie.

#### V - LA CHAINE D'ACQUISITION ET D'EXPLOITATION DES DONNEES

Dans cette chaîne, dont le schéma synoptique est présenté figure 5, l'élément principal est l'analyseur de transitoires TEKTRONIX 7612 D. Les caractéristiques techniques de cet analyseur, la souplesse d'emploi offerte par ses instructions programmables en font un appareil performant.

Le système comporte en outre :

#### - un calculateur type CP 4165:

Ce calculateur a une mémoire de 32 K mots de 16 bits. Le logiciel est un langage BASIC évolué appelé "TEK SPS BASIC".

Le logiciel TEK SPS BASIC comprend :

- un moniteur,
- un interpréteur BASIC,
- un logiciel modulaire.

Ces commandes ou modules peuvent être résidents (en mémoire centrale) ou non résidents (en mémoire de masse).

Le moniteur est une collection de routines stockées en mémoire centrale. Il coordonne les différentes activités du logiciel et de l'électronique des interfaces. Il permet l'accès au programme utilisateur et l'entrée/sortie en mémoire centrale des modules non résidents.

L'interpréteur exécute les commandes en langage évolué; il est interactif et édite facilement un programme. Il autorise l'utilisation en mode immédia

Le moniteur et l'interpréteur sont chargés et ne peuvent être enlevés.

Les modules non résidents peuvent être chargés dans la mémoire centrale ou enlevés de celle-ci pour permettre à l'utilisateur de disposer du maximum de place pour ses programmes.

Il y a trois types de modules :

- les drivers d'instruments,
- les drivers de périphériques,
- les commandes non résidentes.

Pour charger les modules, deux solutions sont possibles :

- soit utiliser deux instructions pour charger puis supprimer ce module,
- soit le chargement automatique, pour les commandes non résidentes uniquement.

<sup>\*</sup> Ce mot anglais que nous garderons peut se traduire par "logiciel conducteu

Le logiciel TEK SPS BASIC est spécialement conçu pour l'acquisition et le traitement des signaux.

- une mémoire de masse à disques souples (Floppy disk) CP 115 :

  Ce lecteur a deux disques souples ; l'un d'eux contient le logiciel BASIC,

  l'autre les programmes ou les données. Chaque disque souple est divisé en

  480 blocs, chaque bloc représente 256 mots de 16 bits.
- une console de visualisation alphanumérique-graphique R 4010-1 permet l'entrée des programmes et la sortie numérique ou graphique des résultats des mesures lidar.
- un reprographe 4631 permet de reproduire sur papier l'image de l'écran cathodique de la console.

# A - Présentation du 7612 D et de l'amplificateur 7A16P - Caractéristiques techniques

#### 1 - Le 7612 D

L'analyseur de transitoires 7612 D possède deux canaux programmables. Sa bande passante est de 90 MHz et il numérise à une fréquence d'échantillon-nage maximale de 200 MHz.

Les données digitalisées sont stockées dans une mémoire locale à haute vitesse d'accès de 4 K mots (2048 mots par canal), chaque mot ayant une taille de 8 bits.

Ces données peuvent être alors affichées sur un moniteur ou transférées par l'intermédiaire du bus IEEE-488-1978. Le 7612 D est entièrement programmable au moyen de ce bus.

La face avant du 7612 D munie de 2 tiroirs d'amplification 7A16P est montrée sur la figure 6. Elle permet un contrôle total de l'instrument en mode local. Le contrôle par mode programmé et la sortie des données par le bus informatique sont simplifiés par le système à microprocesseur. Des "mnémoniques" de haut niveau permettent de communiquer avec l'instrument

à travers le bus. De plus, le 7612 D est conçu de façon à pouvoir agir comme interface avec des appareils programmables tel que l'amplificateur 7A16P.

Deux bases de temps numériques indépendantes (une par canal) peuvent être individuellement programmées pour diviser les 2 K mots de mémoire de données qu'elles contrôlent en 1 à 8 enregistrements de même longueur ayant 256 (8 enregistrements), 512 (4), 1024 (2) ou 2048 points. Les deux canaux étant indépendants, les données numérisées peuvent être lues à partir d'un canal tandis que des données sont en cours d'acquisition sur l'autre. Chaque enregistrement nécessite un déclenchement séparé pour initialiser l'acquisition.

Les enregistrements peuvent être à leur tour divisés en 1 à 14 segments, chacun de ces segments ayant un intervalle d'échantillonnage programmable.

Les limites de ces segments sont marquées par des "breakpoints", multiples de 8 compris entre 16 et un huitième de la longueur de l'enregistrement. La localisation des breakpoints et les intervalles d'échantillonnage sont les mêmes pour tous les enregistrements dans le canal choisi.

L'intervalle d'échantillonnage peut être choisi de 5 ns à 1 s grâce à une horloge interne de 200 MHz.

La figure 7 montre deux exemples d'utilisation de la mémoire de données du 7612 D.

Le premier exemple montre 4 enregistrements de 512 points chaque. Ces enregistrements sont de plus divisés en trois segments, chacun ayant un intervalle d'échantillonnage indépendant. Le second exemple montre 4 enregistrements de 256 points chaque. Aucun breakpoint n'est fixé et la mémoire restante est inutilisée.

## 2 - L'amplificateur programmable 7A16P

Le 7A16P a été conçu par TEKTRONIX pour pouvoir s'adapter à des analyseurs comme le 7612 D. Celui-ci peut recevoir deux 7A16P, un par canal d'acquisition. LE 7A16P est un amplificateur à large bande, 90 MHz, lorsqu'il est couplé au 7612 D. Cette bande peut être limitée à 20 MHz, ce qui a pour conséquence d'effectuer un premier lissage sur le signal d'entrée avant tout traitement. Cet avantage sera en particulier exploité dans les sondages vapeur d'eau. Le facteur d'échelle verticale peut varier de 10 mV/div à 5 V/div et l'impédance d'entrée peut être de 50  $\Omega$  ou 1 M  $\Omega$ .

Les fonctions du 7A16P peuvent être contrôlées (fixées ou lues) au moyen de commandes envoyées par le bus IEEE 488 et décodées par le microprocesseur du 7A16P. Comme pour le 7612 D, on peut fixer directement les paramètres de fonctionnement du 7A16P en mode local.

L'état local ou programmé du 7A16P est dépendant de l'état local ou programmé du 7612 D dans lequel il est installé. Celui-ci doit être en état programmé pour pouvoir contrôler à distance le 7A16P et il doit être en état local pour pouvoir contrôler le 7A16P manuellement.

## B - Précision de la numérisation

#### 1 - Précision dynamique

Ainsi que nous l'avons souligné dans le chapitre II, la précision de la numérisation diminue lorsque la fréquence d'échantillonnage augmente. La plupart des paramètres caractéristiques des convertisseurs analogique-numérique sont difficiles à mesurer précisément à des fréquences supérieures à 10 MHz. Afin de pouvoir définir précisément les performances du 7612 D pour les hautes fréquences, on préfère utiliser un rapport signal/bruit.

Ce paramètre comprend toutes les erreurs du convertisseur analogiquenumérique (à l'exclusion des erreurs de gain et d'offset de l'amplificateur). Toute différence entre le signal d'entrée et le signal numérisé de sortie peut être considérée comme du bruit.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre II (II § B.2) un convertisseur idéal présente une erreur quadratique moyenne  $\xi = \frac{q}{\sqrt{12}}$  où q est le niveau élémentaire de quantification.

Le rapport signal/bruit d'un convertisseur idéal utilisant N bits pour une sinusoïde occupant la pleine échelle est, d'après le constructeur:

$$\frac{S}{B} = \frac{2^{N} \sqrt{6}}{2}$$

$$\frac{S}{B} = 20 \log \frac{2^{N} \sqrt{6}}{2} = 6 N + 1.8$$

ou en dB:

où N est la résolution du convertisseur en nombre de bits.

Si un convertisseur réel présente un rapport signal/bruit inférieur au rapport idéal, ses performances peuvent être exprimées en terme de convertisseur idéal ayant  $N_1$  bits effectifs de résolution.

Par exemple, si un convertisseur 8 bits a un rapport S/B de 43,8 dB à 10 MHz il se comporte comme une convertisseur idéal de 7 bits.

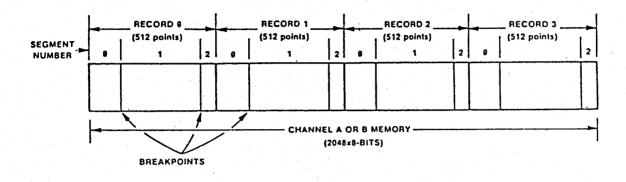
En ce qui concerne le convertisseur du 7612 D, le constructeur donne les rapports S/B et le nombre correspondant de bits pour diverses fréquences du signal à numériser, celui-ci étant une sinusoïde idéale.

Fréquence	Rapport S/B	Bits effectifs
300 kHz	48,8 dB	7,8
20 MHz	37,8 dB	6,0
80 MHz	25,8 dB	4,0

TABLEAU 3 - PRECISION DYNAMIQUE DU CONVERTISSEUR DU 7612 D

## 2 - Erreur sur la recherche du zéro-signal

Après leur acquisition les signaux lidar sont recalés afin que la ligne de base corresponde au zéro-signal. 200 points de pré-déclenchement, qui permettent une recherche statistique de ce zéro-signal, sont utilisés.



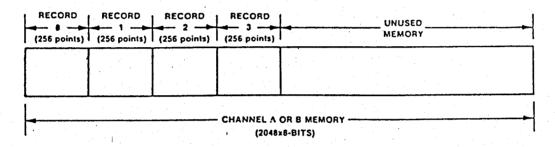


Fig. 7 2 exemples de répartition de la mémoire de données.

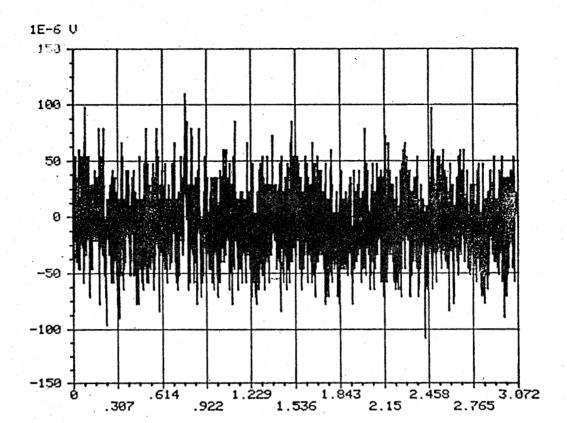


Fig. 8: exemple de ligne de base après correction statistique

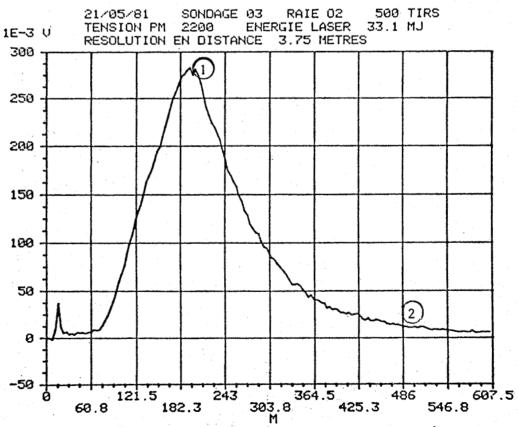


Fig. 9: Signal utilisé pour le calcul de l'erreur due à la recherche du zéro et de l'erreur due à la numérisation

BUS

Afin de déterminer l'erreur sur cette recherche, nous avons procédé, en l'absence de tout signal, à une étude de la ligne de base en fonction du facteur d'échelle verticale (sensibilité en volt/div) et de la position de la trace de l'écran du 7612 D (basse - moyenne - haute).

Pour cela, nous avons utilisé 2048 points du canal d'acquisition choisi avec 200 points de pre-trigger. Après moyennage de 100 lignes de base avec un intervalle d'échantillonnage de 10 ns nous avons effectué une recherche du zéro et un recalage de la ligne de base de la manière suivante : sur 100 points de la zone de pré-déclenchement nous avons calculé la moyenne arithmétique :

$$M = \frac{1}{100} \sum_{i} S_{i}$$

où S est l'intensité du "signal" en niveaux de numérisation (0 à 256) au point i, i  $\epsilon$  [0, 99].

Puis chacune des intensités est corrigée de la moyenne :

$$S_i = S_i - M$$

L'erreur quadratique moyenne est alors calculée  $\xi = \sqrt{\frac{1}{100} \sum_{i} \tilde{S}_{i}^{2}}$ .

Enfin, après avoir éliminé tous les points dont la valeur absolue de l'intensité corrigée  $|\widetilde{S}_i|$  est supérieure à  $\mathcal{E}$  (impulsions dues à des parasites électriques par exemple), on calcule la moyenne  $\widetilde{M}$  des  $S_i$  restants. La correction des données s'effectue en retranchant  $\widetilde{M}$  de l'intensité en chaque point de l'enregistrement. Les signaux obtenus sont transformés en volt en utilisant la sensibilité fixée pendant l'acquisition.

La figure 8 montre un exemple de ligne de base après correction statistique. Sur les 100 points de la zone de pré-déclenchement 31 ont été éliminés lors de l'opération décrite précédemment.

A partir d'une telle ligne de base, on calcule la moyenne arithmétique sur 2048 points et l'erreur quadratique moyenne en volts :

## ξ = erreur quadratique moyenne en volt sensibilité

Ainsi, pour l'exemple précédent, la moyenne est égale à -6,7.10<sup>-6</sup> volt et l'erreur  $\xi = 3.10^{-5}$  volt.

En effectuant cette série de calculs pour 27 cas (9 sensibilités x 3 positions de la ligne de base) nous trouvons que  $\xi$  est à peu près constant et égal à 0,032 quantum d'échantillonnage. La moyenne est toujours inférieure à  $\xi$ ;  $\xi$  donne donc l'erreur maximale sur la mesure du zéro.

A chaque acquisition de signal, la mesure du zéro est faite dans les mêmes conditions.

Soit S(z) le signal moyen provenant de la distance z en quanta d'échantillonnage, on a sur chaque point une erreur relative :

$$\frac{\Delta S}{S} = \frac{0.032}{S(z)}$$

Nous allons chiffrer sur un exemple l'erreur relative  $\xi_1$  de numérisation tenant compte de la précision dynamique de l'analyseur et l'erreur relative  $\xi_2$  due à la recherche du zéro-signal.

Le signal présenté figure 9 a été enregistré avec une bande passante limitée à 20 MHz qui donne donc un nombre de bits effectifs égal à 6. La sensibilité maximale est de 0,400 volt.

Nous considérons les deux points indiqués sur la figure.

Au sommet 1 l'erreur due à la numérisation est, d'après la partie III du chapitre II :

$$\xi_1 = \frac{0.4}{0.27} \times \frac{1}{\sqrt{12}} \times \frac{1}{2^6} \simeq 7.10^{-3}$$

Le signal en 🕕 est de 170 quanta d'où :

$$\xi_2 = \frac{0.032}{170} \simeq 2.10^{-4}$$

en (1) 
$$\xi = \xi_1 + \xi_2$$
, soit  $\xi \simeq 1 \%$ .

En 2 le signal vaut environ 12.10<sup>-3</sup> volt, soit 8 quanta

d'où:

$$\xi_1 = \frac{400.10^{-3}}{12.10^{-3}} \times \frac{1}{\sqrt{12}} \times \frac{1}{2^6} = 13,5.10^{-2}$$

$$\xi_2 = \frac{0.032}{8} = 4.10^{-3}$$

donc en 
$$\bigcirc$$
  $\mathcal{E} = 15 \%$ 

La grande dynamique du signal lidar provoque une augmentation rapide de  $\boldsymbol{\xi}_1$  et  $\boldsymbol{\xi}_2$ . Il faut cependant souligner que les calculs précédents ne tiennent pas compte du moyennage des signaux qui limite l'importance de  $\boldsymbol{\xi}_1$ . Afin que l'erreur  $\boldsymbol{\xi}_2$  ne devienne pas trop importante, il convient d'acquérir le signal sur deux parties successives, la seconde ayant une sensibilité supérieure à la première.

## C - Modes de déclenchement et commandes non résidentes du 7612 D

## 1 - Modes de déclenchement post et pre-trigger

Le 7612 D a deux canaux indépendants pour le déclenchement. Les paramètres de déclenchement tels que le niveau, la pente, la source et le couplage peuvent être individuellement programmés pour chaque canal. Le déclenchement peut être effectué d'une manière interne, externe ou manuelle.

Il est souvent nécessaire d'acquérir une partie du signal étudié avant l'instant du déclenchement. Le mode pre-trigger permet au 7612 D de mettre en mémoire un nombre programmé d'échantillons avant le déclenchement. La figure 10 illustre ce mode.

Grâce à ce mode, le 7612 D commence l'acquisition des données dès que la base de temps est armée. Ces données sont continuellement acquises jusqu'à ce qu'un déclenchement se produise. Les données sont alors acquises pour chacun des segments de l'enregistrement avec l'intervalle d'échantillonnage désiré. L'acquisition s'arrête lorsque le nombre fixé d'échantillons précédant le trigger et d'échantillons acquis après remplissent l'enregistrement comme dans la figure 10.

<sup>\*</sup> Nous employons indifféremment le mot français et le mot anglais trigger.

Si le signal intéressant se présente nettement après l'instant du déclenchement le mode post-trigger peut être utilisé pour retarder le départ de l'acquisition, à partir du déclenchement.

Dans ce mode, un nombre programmé d'échantillons est ignoré avant que la mise en mémoire des données ne commence. La figure 11 illustre l'acquisition avec un tel mode.

Le mode post-trigger peut être utilisé uniquement avec un nombre d'enregistrements égal à 1, les données étant acquises avec l'intervalle d'échantillonnage du premier segment.

#### 2 - Commandes spéciales d'acquisition (non résidentes)

La communication avec le 7612 D est rendue possible au moyen du bus IEEE par l'utilisation d'un driver spécifique permettant la gestion de l'interface 7612 D/bus IEEE. Comme nous l'avons souligné, ce driver doit être préalablement chargé à partir de la mémoire de masse dans la mémoire du calculateur avant tout travail avec le 7612 D. Il permet de lire des données à partir du 7612 D et de les contrôler en utilisant les commandes standards de l'instrument "PUT" et "GET". Cependant, les données sont habituellement lues à partir d'un seul canal à la fois et dans un format entier (16 bits) qui doit être converti en format "virgule flottante" avant que les commandes de traitement du signal ne puissent être utilisées. Aussi, des lectures multiples du canal de données requièrent des routines BASIC très longues, occupant une place mémoire importante et d'exécution plus lente qu'une commande non résidente.

En effet, deux commandes spéciales non résidentes fournissent un moyen plus rapide et plus efficace d'acquérir des données sur le 7612 D. Ces commandes arment l'appareil et lisent une série de signaux numérisés, ces opérations s'effectuant à haute vitesse sur un ou deux canaux.

La commande "DAVG" arme et lit le ou les canaux spécifiés du 7612 D le nombre de fois indiqué, et retourne alors dans un tableau (un par canal) la valeur moyenne en chaque point, dans un format virgule flottante.

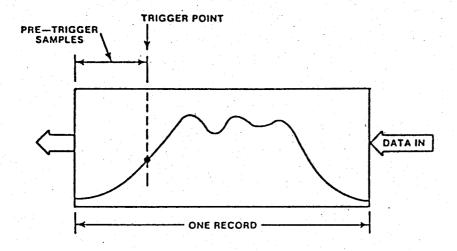


Fig. 10 Mode pretrigger

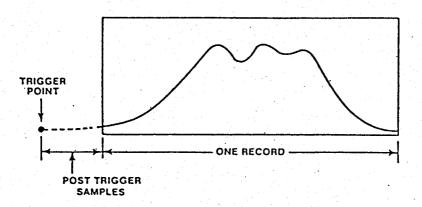


Fig. 11 Mode post-trigger

La commande "DLOG" arme et lit le ou les canaux spécifiés le nombre de fois indiqué, et écrit le contenu de ces canaux dans un fichier sur disque souple, dans un format entier pour un éventuel traitement ultérieur.

La vitesse d'exécution de la commande DAVG dépend de plusieurs facteurs incluant le calculateur, la taille du canal (des canaux) et le nombre de lectures. Cette vitesse permet de moyenner au maximum deux canaux de 1024 points à 10 Hz (fréquence de tir du laser).

La vitesse d'exécution de la commande DLOG dépend du calculateur, de la mémoire libre disponible, de la taille du canal (des canaux) et du type d'appareil périphérique dans lequel l'écriture s'effectue. La chaîne d'acquisition de Magny permet par cette commande l'acquisition et l'écriture sur disque souple à la fréquence de 2 Hz, un seul canal de 1024 points étant utilisé.

### D - Programme d'acquisition de N raies Raman

Dans l'organigramme présenté figure 12 nous décrivons les différentes phases d'un programme d'acquisition de N raies Raman utilisé pour effectuer des sondages sur un gaz (3 raies maximum) ou pour établir des spectres Raman (plusieurs raies).

#### . Recherche du zéro et correction des données :

Sur le canal d'acquisition du 7612 D, 200 points de pre-trigger sont fixés par programme. 100 points de la zone de signal nul ainsi obtenue sont utilisés pour la recherche statistique du zéro de la manière décrite dans le § B.2.

#### . Types d'acquisition utilisés :

Deux types d'acquisition, utilisant la mémoire de données de façon différente, ont été utilisés.

Dans le premier type une seule voie est utilisée; le nombre de points, l'intervalle d'échantillonnage et la bande passante de l'amplificateur

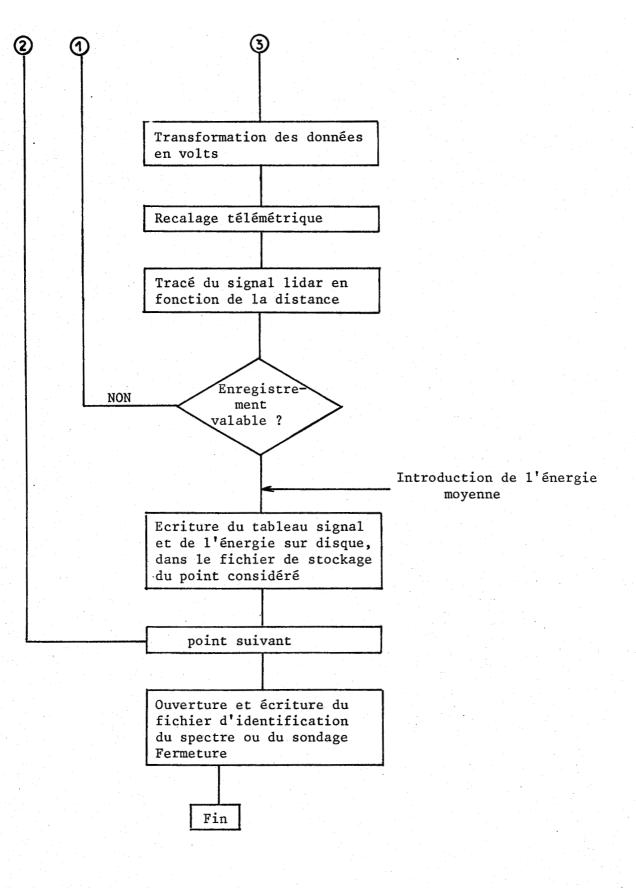
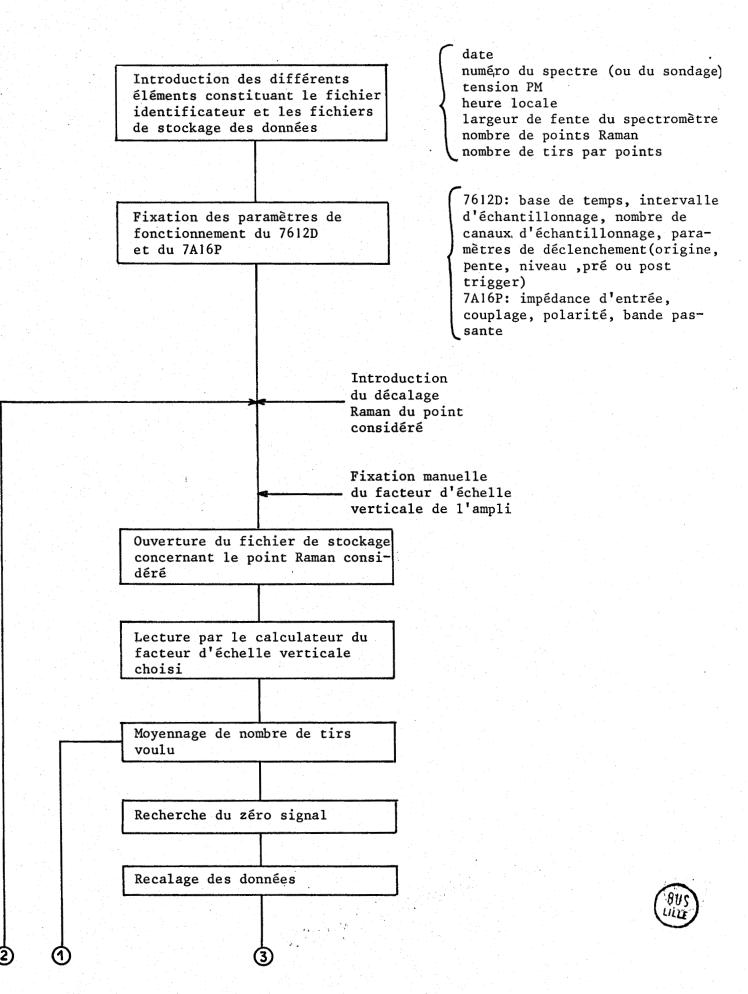


FIGURE 12 : ORGANIGRAMME DU PROGRAMME D'ACQUISITION DE N RAIES RAMAN





#### dépendant de la cible. Ainsi :

- pour un tir sur cuve :
  - . 256 points d'échantillonnage
  - . intervalle d'échantillonnage 5 ns
  - . bande passante maximale.
- pour un tir sur atmosphère :
  - . 1024 ou 2048 points d'échantillonnage (figure 13 (a)
  - . intervalle d'échantillonnage 10 ns
  - . bande passante limitée.

200 points de pré-déclenchement sont utilisés pour la recherche du zéro-signal.

La figure 13 (a) illustre cette acquisition monovoie avec 2048 points d'échantillonnage.

Si l'intervalle d'échantillonnage est de 10 ns la correction télémétrique est de 215 points. Celle-ci est déterminée au chapitre IV, partie I.

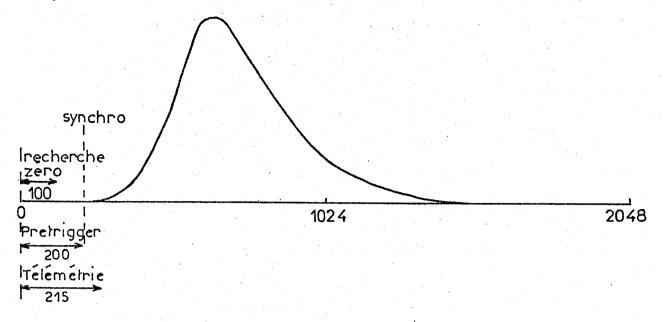
Après recalage le signal utile se trouve sur 2048 - 215 = 1833 points, soit 2750 mètres.

Dans le second type d'acquisition deux voies sont utilisées pour l'enregistrement successif à deux sensibilités différentes, chacune des voies ayant 1024 points. Les deux bases de temps se déclenchent sur le même trigger. Comme 200 points de pré-déclenchement sont fixés sur la voie A, on doit fixer 824 points de post-déclenchement sur la voie B afin de ne déclencher l'acquisition sur cette voie qu'à la fin de l'acquisition sur la voie A.

La figure 13 (b) illustre cette acquisition double voie.

L'utilisation de breakpoints sur la voie B et d'une base de temps plus élevée permet une recherche du zéro sur un signal provenant de plus de 3 km et donc quasiment nul. Cependant, ces breakpoints modifient la ligne de base,

# a: acquisitio monovoie





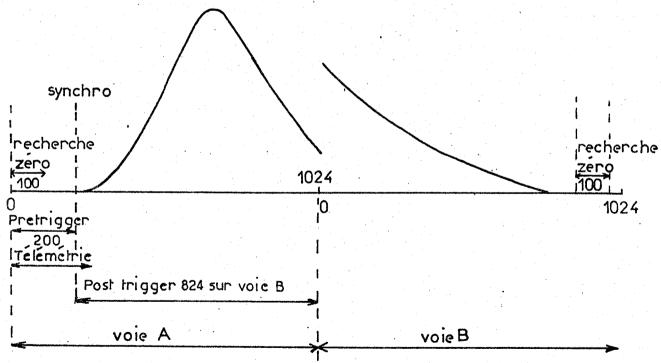


Fig. 13 Types d'acquisition

introduisant ainsi des erreurs trop importantes dans la correction de l'intensité du signal lidar. La recherche du zéro sur la voie B s'opère sur les points 920 à 1019 de la même façon que sur la voie A, sur un signal pas tout à fait nul. Afin d'obtenir une télémétrie correcte un décalage de 215 points est réalisé, si l'intervalle d'échantillonnage est de 10 ns. Après cette correction le signal utile se trouve sur 1024 - 215 points sur la voie A. Sur la voie B, seuls les 824 premiers points sont pris afin de ne pas avoir un signal trop faible qui corrigé du zéro signal pourrait donner un signal négatif. Donc, pour l'ensemble des deux voies 1633 points représentent le signal utile soit une portée de 2450 m.

L'acquisition est faite à 10 Hz. Le programme met plus d'une minute pour corriger et sauvegarder les données moyennées et l'énergie moyenne correspondant à une raie, avant de passer à la suivante. Pour un sondage  $\rm H_2^{00}$  comprenant 1000 tirs sur  $\rm O_2$ , 1000 tirs sur  $\rm N_2$  et 2000 tirs sur  $\rm H_2^{00}$ , il faut :

400 s + 180 s = 580 s, soit 10 minutes environ par sondage.

#### VI - LA CUVE DE SIMULATION

Pour les mesures à courtes distances sur des gaz tels que  ${\rm CO}_2$  et  ${\rm SF}_6$  une cuve a été utilisée.

Elle consiste en un cylindre d'inox de 2 mètres de long et de 15 m de diamètre dont les extrémités ont été taillées de façon à ce que les fenêtres qui s'y adaptent se présentent au faisceau laser sous incidence de Brewster.

La cuve est d'autre part munie d'ouvertures permettant une circulation continue du gaz et de prises d'échantillons.

Les fenêtres sont en quartz traité (Tétrasil) présentant un minimum de fluorescence dans l'ultraviolet.

Les échantillons prélevés sont ensuite analysés par spectrométrie de masse dans les laboratoires du C.E.N. Saclay.

## CHAPITRE IV

MESURES EXPÉRIMENTALES — DISCUSSION

#### CHAPITRE IV

#### MESURES EXPÉRIMENTALES - DISCUSSION

#### I - ETUDE TELEMETRIQUE POUR LES COURTES DISTANCES

Si pour les mesures météorologiques une résolution en distance égale à quelques dizaines de mètres est satisfaisante, il n'en est plus de même pour les mesures à courte distance (à quelques centaines de mètres). Dans ce cas une télémétrie avec une précision de l'ordre du mètre est indispensable.

Cette étude vise donc à examiner les facteurs qui interviennent dans la télémétrie et à apprécier la précision qu'on peut en attendre.

Nous étudierons tout d'abord les retards introduits par l'appareillage afin d'en tenir compte dans la télémétrie.

Après avoir vérifié expérimentalement à l'aide d'une cible la validité de cette télémétrie nous déterminerons la résolution maximale en distance, donnée par l'écho lidar, pour l'appareil.

Utilisant les données fournies par PENNDORF (1) nous avons calculé l'erreur sur la détermination de la distance, due à la variation de l'indice de réfraction avec les conditions atmosphériques (pression, température).

En prenant la valeur de l'indice de réfraction correspondant à une atmosphère standard (t =  $15^{\circ}$ C, P = 1013 mb) pour une longueur d'onde égale à  $0,27 \,\mu$  l'erreur maximale commise est de 0,4 cm à 100 m.

En prenant l'indice de réfraction du vide cette erreur est de 3,4 cm à 100 m.

Ces écarts sont négligeables par rapport aux erreurs dues à l'appareillage que nous examinerons plus loin.

Nous travaillerons donc avec la vitesse de la lumière dans le vide.

De la même façon, pour des distances de quelques centaines de mètres nous pouvons négliger la réfraction et la turbulence atmosphérique.

#### A - Description de la télémétrie - Application au lidar CEA

#### 1 - Principe de la télémétrie

Rappelons que le lidar, appareil de télédétection, permet de déterminer la position des cibles diffusantes (molécules, aérosols) en connaissant le temps mis par l'impulsion laser pour accomplir un aller-retour entre le lidar et la cible dans l'atmosphère.

Afin de réaliser une télémétrie précise, on place une cible à une distance d du plan origine des distances. On prend pour origine le plan passant par le prisme du renvoi coaxial perpendiculaire à l'axe télescope - laser (plan 0).

La mesure obtenue directement par le lidar est une intensité en volts en fonction du temps. Cette mesure est fournie par l'analyseur de transitoires grâce à son horloge interne qui lui permet d'échantillonner le signal sortant du PM avec un intervalle d'analyse > 5 ns.

La mesure télémétrique correspond au temps s'écoulant entre le départ de l'échantillonnage et l'échantillonnage du sommet de l'écho lidar de la cible. Appelons ce temps  $\Delta$  T. Pour que la télémétrie soit correcte, et en appelant  $\Delta$ t le temps mis par l'impulsion lumineuse pour accomplir le trajet aller-retour plan 0 - cible, il faut que  $\Delta$  T, corrigé des différents retards apportés par l'appareillage, soit égal à  $\Delta$ t. On peut alors convertir l'échelle relative des temps en une échelle absolue des distances.

La carte électronique du laser commande l'ouverture de la cellule de Pockels et délivre au même instant un signal de synchronisation vers l'utilisateur. Ce signal est utilisé pour synchroniser la base du temps du 7612 D. On emploie le mode de pré-déclenchement qui permet de faire partir l'acquisition un certain temps  $\Delta t_6$  avant l'arrivée du signal de synchronisation

Ceci permet d'avoir avant l'arrivée de l'écho lidar une zone de signal nul utilisée pour faire la recherche du "zéro signal" (fig. 1).

# 2 - Etude des retards optiques et électriques

La figure 2 présente un schéma du lidar où figurent les retards introduits par les différentes parties de l'appareil décrites précédemment. Nous prenons comme origine des temps l'instant de départ du signal de synchronisation. Nous pouvons écrire :

- $\Delta t_0$ : intervalle de temps entre l'émission de la synchronisation et l'émission de l'impulsion laser prise à son maximum.
- $\Delta t_1$ : retard dû au parcours de la lumière entre la sortie du laser et le plan 0 (passage par les lames dichroïques, le cristal quadrupleur et le renvoi coaxial).
- Δt<sub>2</sub>: retard dû au parcours de la lumière rétrodiffusée entre le plan 0 et la photocathode du photomultiplicateur. Ce trajet comprend le parcours optique dans le télescope et le monochromateur.
- $\Delta t_3$ : temps de transit du PM ; c'est le délai entre l'arrivée de l'impulsion lumineuse sur la photocathode et l'impulsion électrique de sortie prise à son maximum.
- Δt<sub>4</sub> : temps mis par l'impulsion électrique de l'anode pour parcourir le câble jusqu'à l'analyseur de transitoires.
- $\Delta t_5$ : temps nécessaire au signal de synchronisation pour parcourir le câble jusqu'à l'analyseur de transitoires.

Le signal de synchronisation est suivi d'une part de l'émission de l'impulsion laser qui après un aller-retour dans l'atmosphère parviendra à l'analyseur où elle sera échantillonnée. D'autre part, transmis à l'analyseur, il provoque le déclenchement. On peut donc écrire :

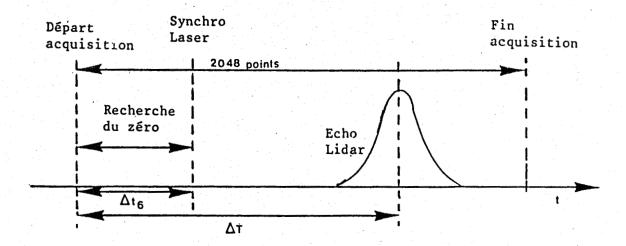


Fig. 1 : Chronologie de l'acquisition de l'écho lidar

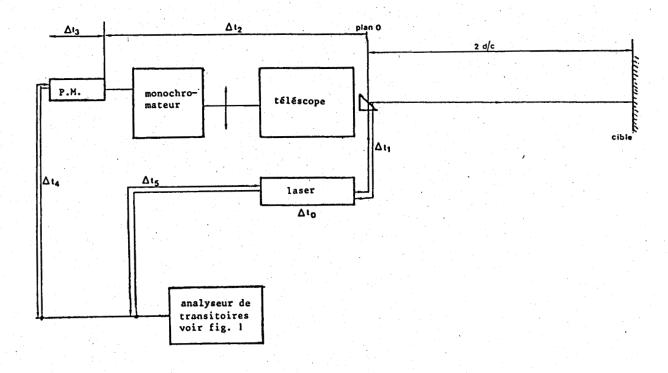


Fig. 2 : Schéma du lidar, retards optiques et électriques

$$\Delta t = \Delta T + \Delta t_5 - \Delta t_6 - \Delta t_1 - \Delta t_2 - \Delta t_3 - \Delta t_4 - \Delta t_0$$

avec  $\Delta t = \frac{2 d}{c}$ 

c: vitesse de la lumière

d: distance plan 0 - cible

Cette relation permet de connaître la distance d recherchée connaissant la mesure  $\Delta T$  et les divers retards d'appareillage  $\Delta t_i$ .

#### 3 - Mesure des retards

- Le tube photomultiplicateur est un RTC modèle XP 2020 Q. Le constructeur donne un temps de transit  $\Delta t_3$  = 30 ns.
- Les câbles sont des PERENA RG 58 CU ( $\emptyset$  6 mm) en polyéthylène. La vitesse de propagation V = 0,66 c (c : vitesse de la lumière). Le câble transmettant la synchro fait 7,50 m d'où  $\Delta t_5$  = 38 ns. Le câble transmettant le signal fait 8,50 m d'où  $\Delta t_4$  = 43 ns.
- $\Delta$ t<sub>2</sub> est le retard dû au parcours de la lumière entre le plan 0 et la photocathode du photomultiplicateur. Ce parcours P peut être décomposé en trois parcours :
  - P<sub>1</sub>: parcours plan 0 foyer du télescope (passage par les miroirs primaires et secondaires).
  - P<sub>2</sub> : parcours foyer du télescope fente d'entrée du monochromateur.
  - ${\bf P_3}$  : parcours fente d'entrée photocathode PM (passage par les deux étages du monochromateur).

La mesure directe donne :  $P_1 = 4,80 \text{ m}$   $P_2 = 0,74 \text{ m}$  $P_3 = 4,60 \text{ m}$ 

Donc 
$$\Delta t_2 = \frac{10,14}{c} = 34 \text{ ns}$$

La mesure  $\Delta t_1$  donne un parcours de 1 m soit 3,3 ns.

La mesure  $\Delta t_0$  a été faite à l'aide d'une photodiode rapide mesurant la diffusion à 532 nm de l'impulsion laser avant quadruplement de fréquence. Le signal électrique obtenu est transmis au l<sup>er</sup> tiroir du 7612 D. Le signal de synchronisation est envoyé sur le second tiroir. Comparant ces deux signaux moyennés sur 200 tirs on obtient le résultat présenté figure 3.

Notons que l'écart entre les deux signaux est stable ce qui permet d'utiliser le signal de synchronisation pour déclencher la base du temps du 7612 D. En tenant compte des retards apportés par le câble amenant le signal de synchronisation à l'analyseur (38 ns) et par le câble joignant la photodiode à l'analyseur (23 ns) on obtient en définitive  $\Delta t_0$  = 78 ns.

Finalement la relation télémétrique appliquée au lidar est :

$$\Delta t(s) = \Delta T - \Delta t_6 - 150 \cdot 10^{-9}$$
 (1)

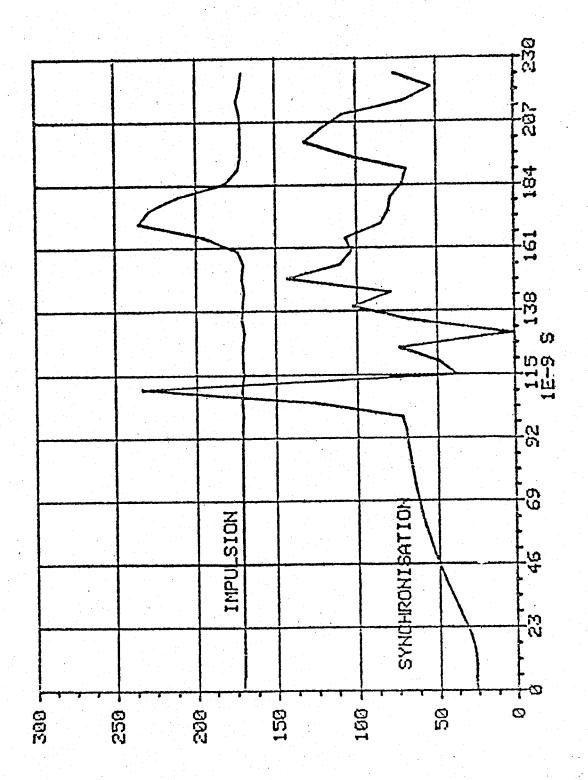
$$d(m) = \frac{c}{2} (\Delta T - \Delta t_6) - 22,5$$
 (2)

# 4 - Vérification expérimentale

Nous avons utilisé une cible de bois mobile que nous avons placée à quatre positions différentes. Pour chacune de ces positions une série de 50 tirs a été enregistrée à l'aide de l'analyseur, celui-ci échantillonnant à 5 ns avec sa bande passante maximale. Puis, par programme, le temps  $\Delta T$  correspondant au maximum de l'écho lidar a été déterminé (on a mesuré la valeur moyenne sur 50 tirs et l'écart-type). En appliquant la relation (2) nous avons obtenu la distance "lidar". Nous avons relevé à l'aide d'un décamètre pour chacune des positions la distance réelle par rapport au plan 0.

Ces 8 points et leurs incertitudes permettent d'obtenir la figure 4.

Nous constatons que la concordance entre la distance lidar et la distance mesurée est très bonne (écart inférieur à 0,50 m) et que la stabilité de la mesure lidar sur 50 tirs successifs est meilleure que 0,80 m.



3 : Ecart entre l'impulsion laser et le signal de synchronisation Fig.



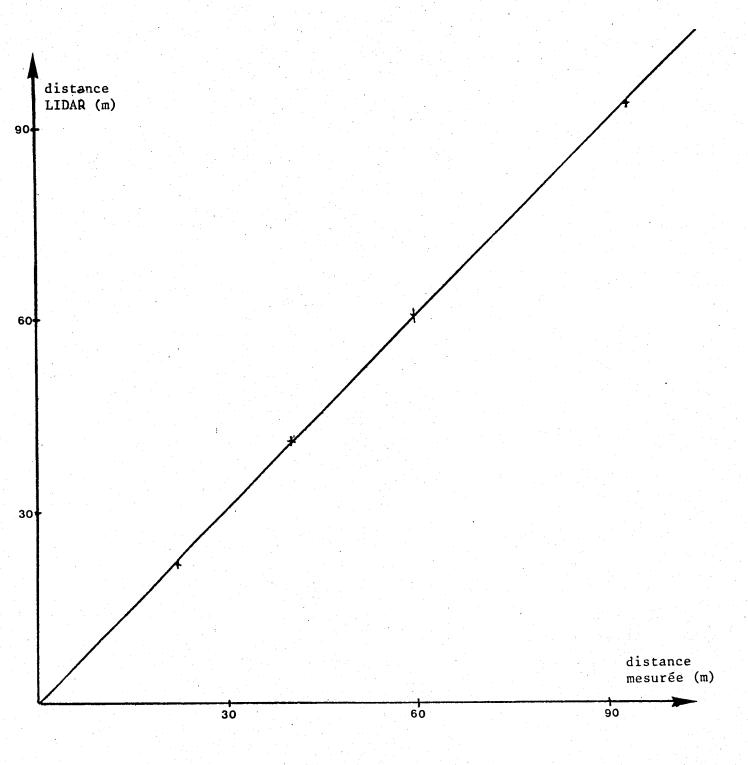


Fig. 4 : Comparaison distance LIDAR et distance mesurée.

# B - Elargissement de l'impulsion rétrodiffusée - Résolution en distance maximale du lidar

Ayant évalué les retards optiques et électriques et déterminé à l'aide d'une cible une origine des distances permettant une télémétrie précise, nous pouvons maintenant étudier la résolution en distance du lidar.

A tout instant t les signaux rétrodiffusés reçus par l'installation proviennent d'une portion de l'espace de longueur  $\frac{c\,\tau}{2}$ ,  $\tau$  étant la largeur temporelle de l'impulsion émise.

On ne peut donc distinguer dans un volume diffusant des concentrations différentes séparées de moins de cette distance, résolution du lidar. Cette longueur caractéristique peut être augmentée par l'élargissement de l'impulsion rétrodiffusée dû aux différents éléments du lidar.

Soit une cible parfaitement réfléchissante présentant une diffusion instantanée de l'impulsion laser (diffusion type Rayleigh ou Raman). Dans ce cas, après un parcours atmosphérique laser - cible - télescope, l'impulsion lumineuse présente toujours la même largeur temporelle. Si les éléments optiques (télescope, monochromateur) interviennent d'une manière négligeable dans l'élargissement de l'impulsion, les éléments électriques, par contre, ont une contribution dont il faut tenir compte.

En effet, le tube photomultiplicateur, les câbles coaxiaux et l'analyseur 7612 D agissent comme des filtres en fréquence, pouvant élargir une impulsion dont la durée n'est que de quelques nanosecondes.

Après avoir établi pour chacun de ces éléments la courbe de filtrage dans le domaine des fréquences nous ferons le produit de ces trois courbes. L'action du filtre résultant sur l'impulsion revenant de l'atmosphère sera obtenue en utilisant la transformée de Fourier. (Le logiciel BASIC TEKTRONIX comporte un programme transformée de Fourier rapide FFT).

#### 1 - Examen des filtrages introduits par l'appareillage

#### a) Filtrage en fréquence du PM

D'après la notice du constructeur une impulsion lumineuse de largeur à mi-hauteur 0,9 ns donne après passage dans le PM une impulsion électrique d'anode de largeur à mi-hauteur 2,5 ns. A partir de ces données on suppose que ces deux impulsions sont de forme gaussienne. Le rapport de leurs transformées de Fourier donne le filtre en fréquence équivalent du PM. La courbe de filtrage est traduite analytiquement puis tracée (Fig. 5).

#### b) Filtrage en fréquence du câble PM - Analyseur

Le constructeur fournit pour le câble le graphique de variation des affaiblissements (en dB/m) suivant la fréquence, courbe qu'on peut approximer par la droite :

$$log (\alpha dB/m) = a log (\nu Hz) + b$$

avec 
$$a = 0,621$$
  
 $b = -5,75$ 

d'où 
$$\alpha = \nu^a \cdot 10^b \cdot L$$

avec L longueur du câble (en m). Le filtrage F est donné par  $F = 10^{-\alpha/20}$  (Fig. 5).

#### c) Filtrage en fréquence de l'analyseur 7612 D

Le constructeur donne pour bande passante du 7612 D : 90 MHz à 3 dB. Cette valeur a été choisie afin que l'échantillonnage s'effectuant à une fréquence maximum de 200 MHz (intervalle d'échantillonnage de 5 ns) respecte le théorème d'échantillonnage de Shannon.

En l'absence d'autres renseignements, nous construisons une courbe de filtrage telle que l'atténuation soit égale à 0 dB jusqu'à 50 MHz, puis varie linéairement de 50 MHz (0 dB) à 90 MHz (3 dB) puis de 90 MHz (3 dB) à 120 MHZ (40 dB) (Fig. 5).

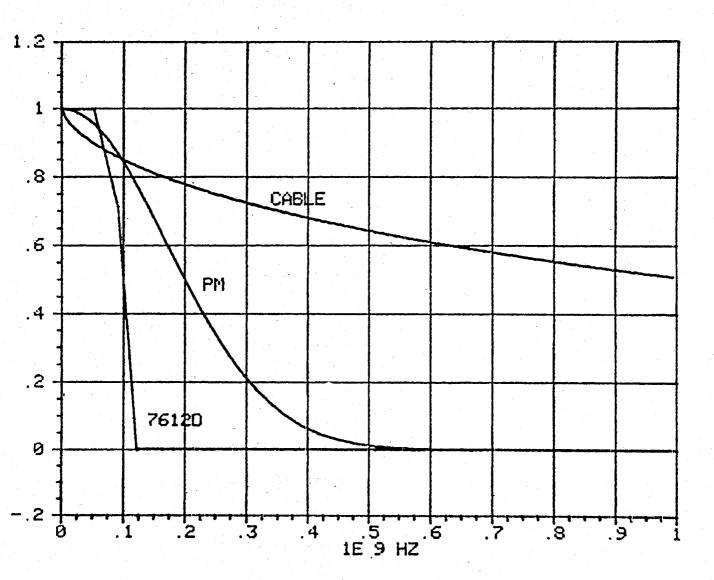


Fig. 5 : Filtrages en fréquence introduits par le PM, le cable, l'analyseur 7612 D

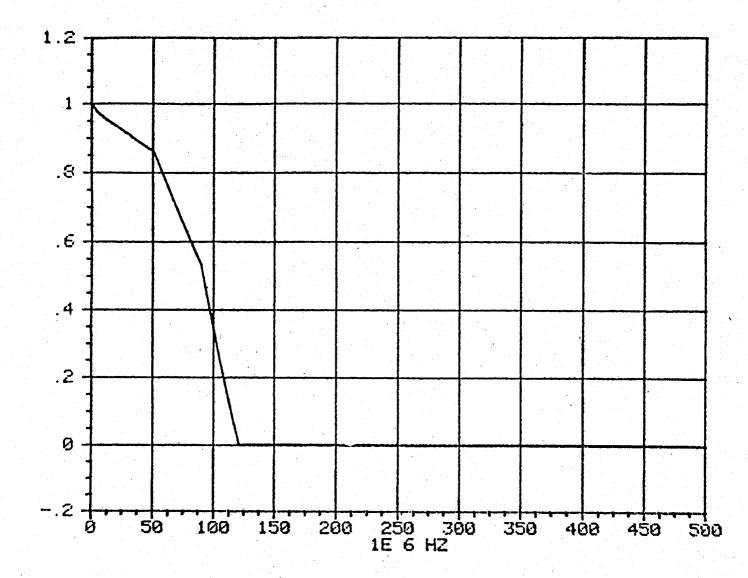


Fig. 6: Produits des filtrages PM Câble 7612 D



#### d) Produit des filtrages PM + câbles + analyseur

La figure 6 montre le produit des filtrages. Cette courbe présente une bande passante à mi-hauteur de 92 MHz, due pour la majeure partie au 7612 D.

# 2 - Application à l'impulsion rétrodiffusée

Nous supposons que l'impulsion laser est de forme gaussienne et de largeur à mi-hauteur 16 ns.

La transformée de Fourier de cette impulsion (en fait le module de la transformée de Fourier discrète) est multipliée par le filtrage en fréquence global. La courbe obtenue dans le domaine des fréquences est ramenée dans le domaine temporel, par une transformée de Fourier inverse, où elle se présente sous la forme d'une impulsion (Fig. 7) de largeur 16,5 ns (élargissement de 3 %).

La largeur de l'impulsion avant échantillonnage est pratiquement identique à celle de l'impulsion émise par le laser. C'est donc, dans notre cas, essentiellement le laser qui définit la résolution maximale du lidar. Cette résolution vaut :

$$d = 2.50 \text{ m}$$

Une amélioration en résolution pourrait-elle être obtenue en utilisant un laser à impulsions plus courtes ?

Envisageons un laser émettant une impulsion de l ns (largeur à mihauteur). Après un filtrage en fréquence on obtient avant échantillonnage une impulsion de largeur à mi-hauteur 6,5 ns. Cet élargissement important est dû au rôle, prépondérant cette fois, du filtrage en fréquence. Ceci implique qu'une impulsion encore plus courte donnerait le même résultat.

Donc, dans ce cas, la résolution maximale en distance du lidar serait limitée par les éléments électriques et égale à : La connaissance des retards optiques et électriques apportés par l'appareil nous donne la possibilité avec le lidar de "télémétrer" de manière absolue les cibles diffusantes. L'utilisation d'une cible de calibration nous a permis de vérifier expérimentalement la validité de cette télémétrie, à la fois en stabilité et en précision.

L'étude de la largeur de l'écho lidar nous a montré que la résolution maximale en distance est de 2,50 m.

Ces résultats prouvent que l'emploi du lidar convient parfaitement à la localisation précise des polluants à courte distance. On peut envisager de ce point de vue d'effectuer avec le lidar Raman des cartographies de polluants, par exemple à l'intérieur d'un hall d'usine, ou de localiser précisément des panaches de cheminées.

#### II - DETECTION DE LA VAPEUR D'EAU ATMOSPHERIQUE

L'intérêt de la mesure du profil de la vapeur d'eau dans les basses couches se situe à plusieurs niveaux :

- La meilleure compréhension de la couche limite et des flux dont elle est le siège est nécessaire pour améliorer les modèles de prévision numériques. La surveillance par lidar du profil de l'humidité, combinée avec celle du profil des aérosols, qui permet de mettre en évidence la stratification thermique, complèterait avantageusement les dispositifs expérimentaux actuels : radiosondage, avion, sodar.
- La teneur en vapeur d'eau influe sur l'indice de réfraction de l'atmosphère et modifie ainsi les conditions de propagation des ondes radar (phénomènes de "conduits"); la mesure du profil de l'humidité est donc nécessaire pour améliorer les pointages précis et les suivis par radar.

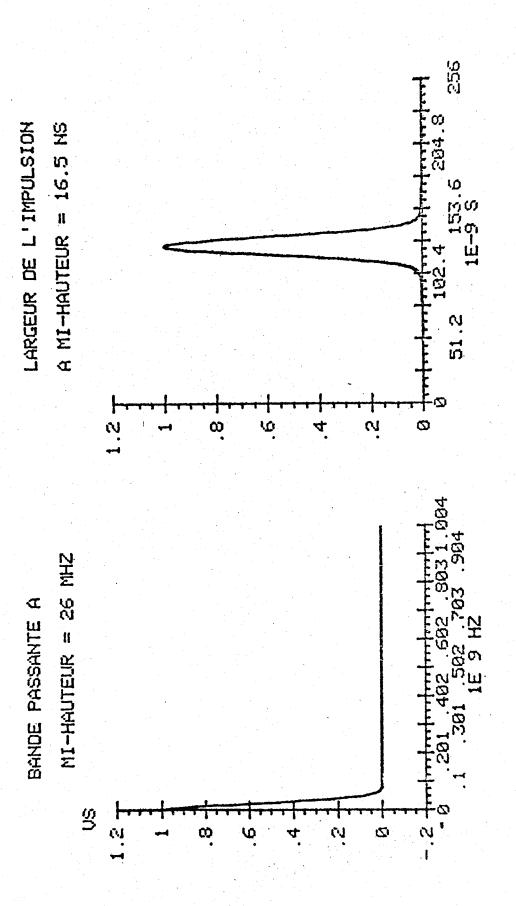
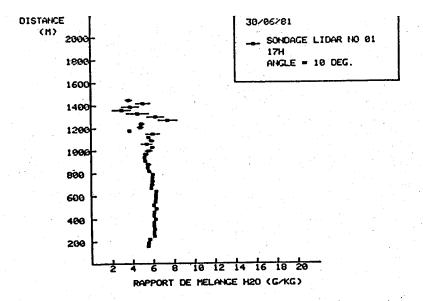
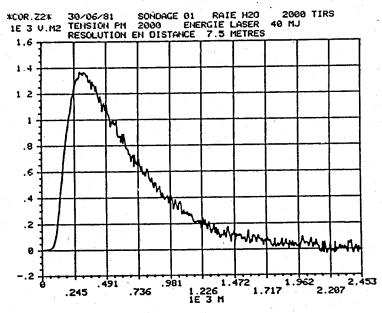


Fig. 7: Impulsion rétrodiffusée après filtrage par le câble et le7612 D a-domaine fréquentiel b-domaine temporel







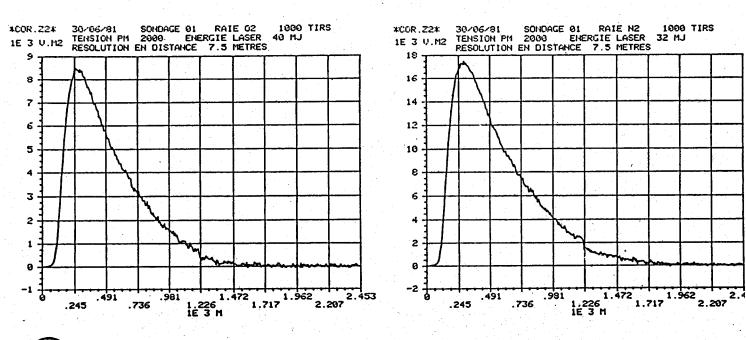


Fig. 8: Sondage vapeur d'eau du 30/06/81

- Le principe du lidar Raman permet de mesurer et de cartographier n'importe quel constituant en changeant simplement la longueur d'onde de réception. Les résultats obtenus sur H<sub>2</sub>O sont donc transposables à tout autre constituant en tenant compte de la section efficace, de la concentration et éventuellement d'une résonance à la longueur d'onde excitatrice.

Si les deux premiers points concernent d'avantage le domaine météorologique, le troisième nous intéresse plus particulièrement : d'une part l'acquisition de profils de vapeur d'eau doit nous permettre de prévoir les possibilités de surveillance de zones polluées à l'aide d'un appareil comparable à celui du C.E.A.; d'autre part l'étude des limites de cet appareil peut déboucher sur la proposition d'améliorations technologiques impliquant de meilleures performances.

Pour les sondages atmosphériques, le lidar est incliné à des sites compris entre 0 et 45° au maximum. Pour tous les sondages on emploie des fentes de 10 mm - ce qui donne une bande passante spectrale de 220 cm et des tensions PM de 2000 V pour les trois raies Raman.

Comme nous l'avons souligné dans le chapître consacré à l'équipement expérimental, l'utilisation de la photodiode pour déclencher la base de temps de l'analyseur et le fait de thermostater le laser ont permis depuis septembre 1981 de retrouver une énergie moyenne de 70-80 mJ. Néanmoins, avant ces modifications, de nombreux sondages ont été effectués avec une énergie inférieure à 40 mJ, la base de temps se déclenchant sur la synchro interne du laser.

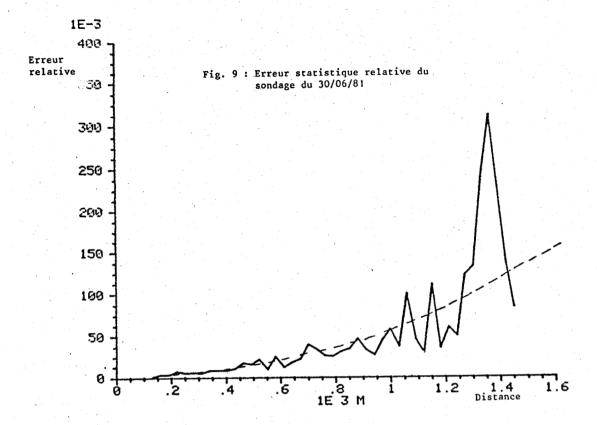
La figure 8 présente le sondage n° 1 du 30/06/81 tel que le fournit le programme de traitement : les signaux 0<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>0 corrigés en distance avec une résolution maximale en distance de 7,5 m, ainsi que le profil de vapeur d'eau obtenu à partir de ces signaux avec une résolution en distance de 30 m. Le carré noir représente le rapport de mélange r et la barre r - dr, r + dr ; dr étant l'erreur statistique absolue. 4000 tirs ont été nécessaires : 1000 pour 0<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>, 2000 pour H<sub>2</sub>O, soit un temps de sondage de 10 minutes. L'exploitation des signaux est possible jusqu'à 1500 mètres environ, distance au delà de laquelle le signal 0<sub>2</sub> est pratiquement nul et où l'erreur relative, due à la numérisation devient prépondérante.

La figure 9 montre l'erreur relative statistique, représentée en pointillés, du profil précédent en fonction de la distance. L'augmentation moyenne reste inférieure à 10 % jusqu'à 1200 mètres environ et à 15 % jusqu'à 1500 mètres. Les fluctuations de l'erreur autour de la valeur moyenne proviennent de l'estimation statistique de l'erreur.

Les programmes d'acquisition et de traitement de données ont été réalisés au cours du premier semestre 1981. Les sondages effectués au cours de cette période ont surtout eu pour but de tester et d'améliorer ces programmes. Ce n'est qu'au cours du dernier trimestre 1981 que RENAUT et CAPITINI ont procédé à une étude systématique de la vapeur d'eau avec le lidar du C.E.A. mais également avec le lidar de l'E.E.R.M. (émission à 347 nm - sondages de nuit). Cette campagne d'étude comprenait également des radiosondages et des relevés au sol permettant des comparaisons entre des mesures quasi simultanées (2). La figure 10 présente un profil de vapeur d'eau accompagné d'un radiosondage.

Au cours des nombreux sondages préliminaires deux problèmes essentiels sont apparus.

Le premier est lié à la détermination du zéro-signal. Comme nous l'avons vu dans le chapitre III, la recherche du zéro s'effectue grâce à une zone de signal nul obtenue avant le départ de l'impulsion laser. Il arrive qu'après cette correction le signal devienne négatif au cours de sa décroissance. La figure 11 montre 3 signaux 0<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>0 présentant ce défaut et le profil erroné obtenu. Les trois signaux présentent une intensité négativ de l.10<sup>-5</sup> V à 2200 mètres. Cette intensité est du même ordre de grandeur que l'erreur moyenne obtenue, aux sensibilités employées, lors de l'étude statistique de la ligne de base effectuée au chapître III. Cette erreur provoque parfois un mauvais raccord des deux voies, la recherche du zéro s'effectuant avant raccordement. Ceci est illustré par la figure 12 où, sur les signaux 0<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>0, on peut constater un décalage entre le signal moyenné directement jusqu'à une distance de 1226 mètres et le signal moyenné avec une mise en forme préalable à la numérisation à des distances supérieures. L'exploitation des signaux n'est donc possible que jusqu'à 1226 m.



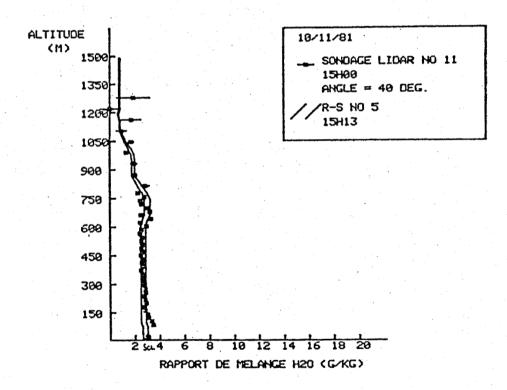
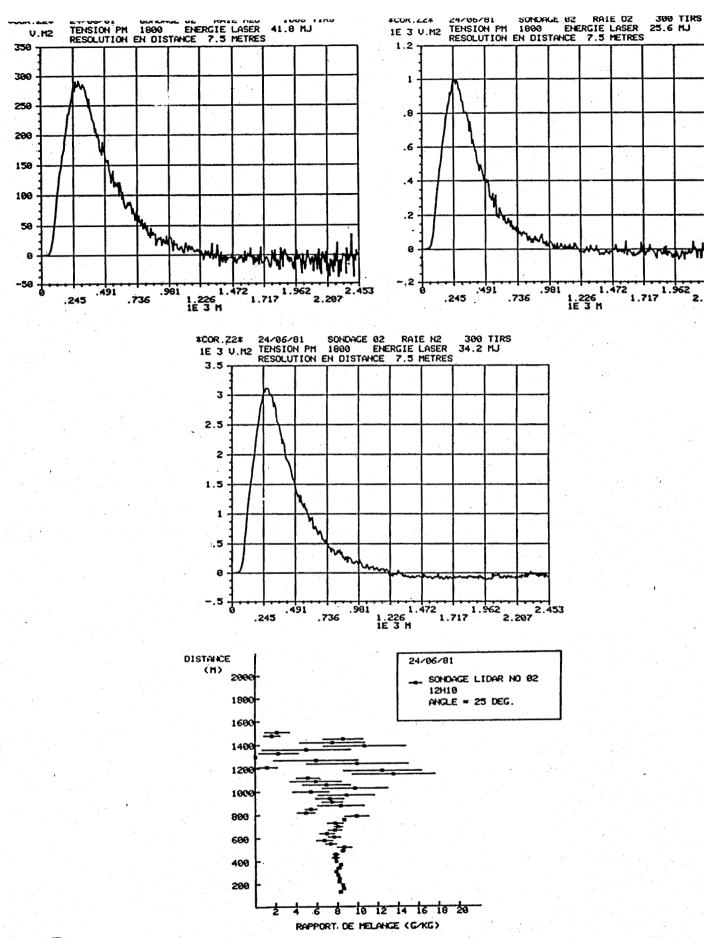


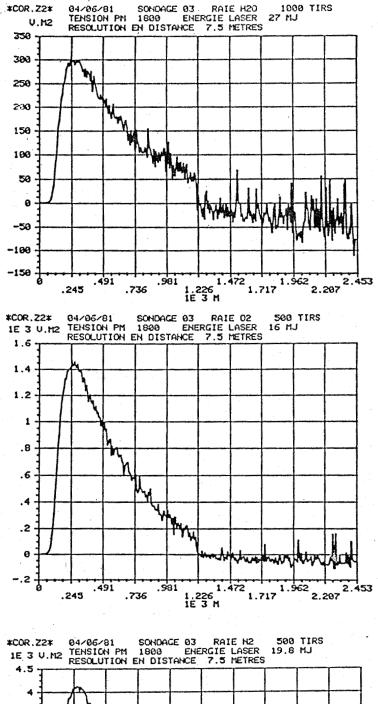
Fig. 10 : Comparaison d'un profil lidar et d'un radio-sondage



1.962 1.717 2.207



Fig. 11 : Exemple de correction du zéro incorrecte



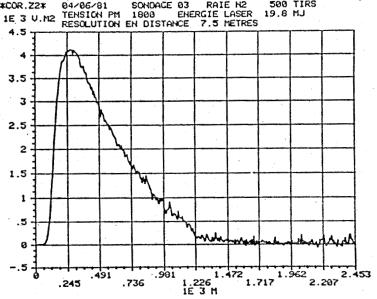


Fig. 12 : Exemple de mauvais raccord sur 3 signaux

BUS

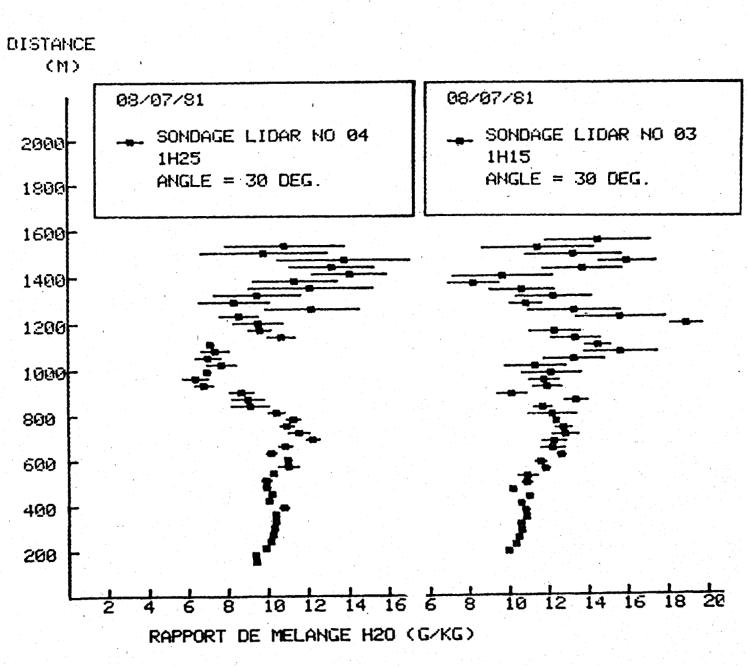


Fig. 13 : Comparaison de sondages 03 et 04 du 08/07/81

Le second problème provient de la modification de la transmission atmosphérique au cours d'un sondage. La figure 13 présente les profils des sondages 03 et 04 du 08/07/81, sondages séparés du temps minimal : 10 minutes (sondages de nuit). Si les deux profils donnent environ les mêmes valeurs de rapport de mélange jusqu'à 600 m de distance, il n'en est plus de même après, le sondage 03 se situant nettement à droite de la verticale r = 10 g.kg<sup>-1</sup>. La figure 14 compare les signaux H<sub>2</sub>O, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> des deux sondages, les signaux étant normalisés à l'unité afin de permettre une comparaison directe, la distance étant comprise entre 0 et 1200 mètres.

Nous avons vu que l'atténuation du signal rétrodiffusé est essentiellement due à l'ozone atmosphérique. A concentration d'ozone constante elle est plus forte à la longueur d'onde diffusée par  $0_2$  qu'à la longueur d'onde diffusée par  $1_2$ 0, l'atténuation à la longueur d'onde diffusée par l'azote se situant entre les deux. Les signaux normalisés du sondage 04 respectent cette importance relative des absorptions ; pour des signaux provenant d'une distance de 1200 m on constate que l'intensité diffusée par  $0_2$  est inférieure à celle diffusée par  $1_2$ 0. Il n'en est plus de même pour le sondage 03 où, pour les signaux provenant de la même distance, l'intensité diffusée par  $1_2$ 0 est plus faible que précédemment, et est du même ordre de grandeur que celle diffusée par  $1_2$ 0. Ceci peut s'expliquer par une diminution locale de la transmission atmosphérique au cours de l'acquisition sur la raie  $1_2$ 0 du sondage 03, due par exemple à un passage de brume, d'aérosols.

Dans la relation permettant de calculer le rapport de mélange :

$$r(z) = k \left[ \frac{S_{0_2}(z)}{S_{N_2}(z)} \right]^{1,06} \cdot \frac{S_{H_20}(z)}{S_{N_2}(z)}$$

le signal  $0_2$  rétrodiffusé par une tranche d'espace de 2,5 m (résolution maximale) intervient à la puissance 1,06 au numérateur, tandis que le signal  $N_2$  intervient au dénominateur à la puissance 2,06. Cela explique le fait que le rapport de mélange soit nettement plus élevé pour le sondage 03 que pour le sondage 04, alors qu'ils devraient être pratiquement identiques, comme l'indique la comparaison des signaux  $H_2O$ . Ainsi, à 1000 m r = 6,5 g.kg<sup>-1</sup> pour le sondage 04 et 11,5 g.kg<sup>-1</sup> pour le sondage 03.

La détermination de tout constituant atmosphérique nécessitant l'acquisition de signaux sur deux ou trois raies, le problème de la variation de la transmission atmosphérique au cours du sondage est toujours présent. Il peut être supprimé par l'utilisation d'un spectromètre multicanal qui permettrait d'effectuer simultanément l'enregistrement sur les raies, en étant donc dans les mêmes conditions atmosphériques. De plus, l'emploi d'un tel appareil diminuerait sensiblement le temps entre deux sondages successifs.

# III - DETECTION DE L'OZONE ET DU CO, ATMOSPHERIQUES (3)

L'utilisation du laser YAG 10 Hz permet de détecter en un temps relativement court le CO<sub>2</sub> et l'ozone atmosphériques. C'est la première fois que l'ozone atmosphérique est détecté et sa concentration mesurée par lidar en utilisant l'effet Raman de résonance.

La figure 15 montre le spectre atmosphérique obtenu le 15/05/81.

Ce spectre est en fait la réunion de deux spectres.

Dans le premier spectre CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> ont été détectés, la gamme spectrale couverte étant 1300-1730 cm<sup>-1</sup> avec un point tous les 30 cm<sup>-1</sup> et un cumul de 500 tirs par point. La tension PM est de 2200 V et le signal sortant du PM est directement envoyé sur l'analyseur.

Dans le second spectre s'étendant de 900 à 1300 cm<sup>-1</sup>, 0<sub>3</sub> et CO<sub>2</sub> ont été détectés avec 2000 tirs par point et un point tous les 30 cm<sup>-1</sup>. La tension PM est de 2700 V et les impulsions issues du PM sont préalablement mises en forme, grâce au générateur d'impulsion (Hewlett Packard), afin d'augmenter le rapport S/B de numérisation, avant d'être envoyées sur le 7612 D.

Le regroupement des deux spectres est rendu possible par la détermination du rapport (mesure analogique avec une tension PM de 2200 V/mesure par comptage avec une tension PM de 2700 V). Pour cela, 500 tirs ont été effectués aux déplacements 1300, 1330, 1360 et 1390 cm<sup>-1</sup> avec une tension PM de

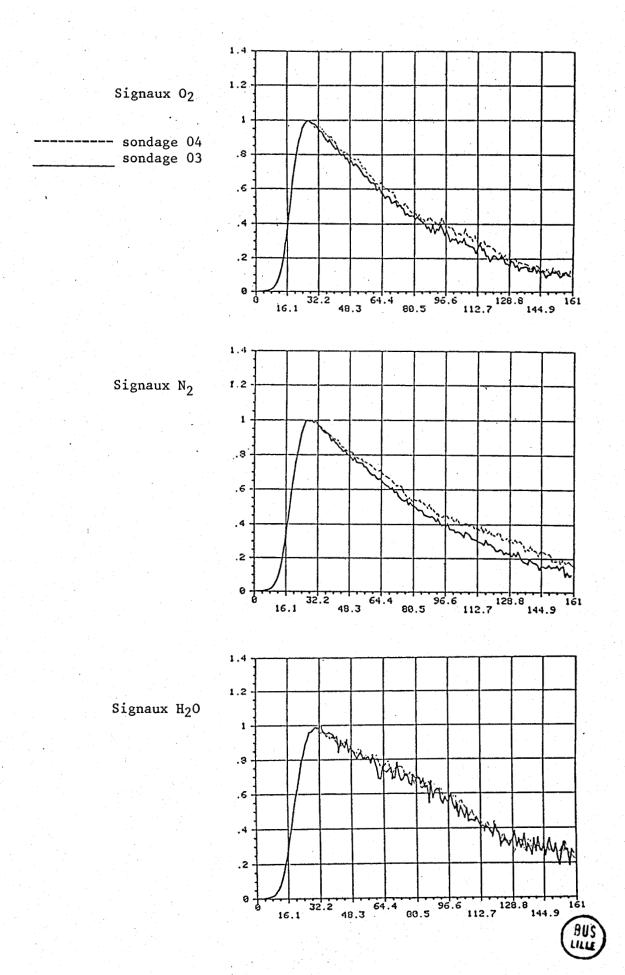
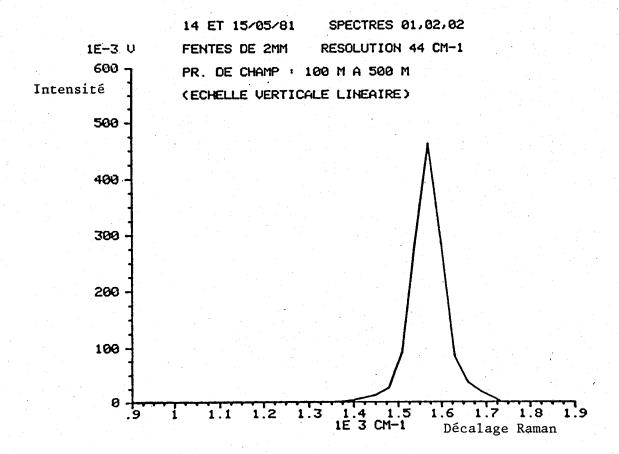


Fig. 14 : Comparaison des signaux  $\rm O_2$ ,  $\rm N_2$  et  $\rm H_2O$  des sondages  $\rm O_3$  et  $\rm O_4$  du  $\rm O_8/O_7/81$ 



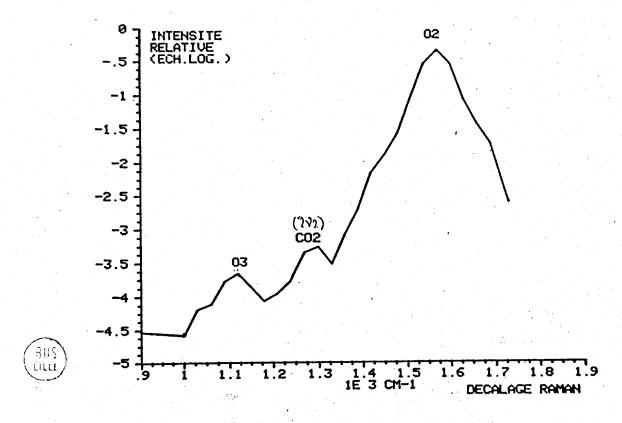


Fig. 15 : Spectre Raman atmosphérique (valeurs linéaires et logarithmiques)

2700 V et une mise en forme des impulsions. La comparaison directe des intensités ainsi obtenues avec les intensités correspondantes du premier spectre donnent la valeur du rapport : 1,9 .10<sup>-3</sup>. On peut multiplier alors les intensités du second spectre par cette constante. Le spectre global correspond donc à une tension PM de 2200 V.

Ce spectre résulte de signaux lidar provenant d'un volume diffusant compris entre 100 et 500 m. Le tableau l donne les valeurs des signaux en volts en fonction du déplacement Raman, pour une énergie moyenne dé 100 mJ. La valeur relative des signaux est telle que sur le spectre linéaire n'apparaît que l'oxygène. Il faut noter que la largeur à mi-hauteur de cette raie est de 80 cm<sup>-1</sup>, ce qui est un peu inférieur au double de la bande passante attendue avec des fentes de 2 mm (44 cm<sup>-1</sup>). Cet élargissement spectral est sans doute dû à un réglage légèrement incorrect d'un ou des deux monochromateurs.

Ce n'est que sur le spectre logarithmique que l'on peut constater la présence des trois raies Raman :  $0_2$  (  $1556~\rm cm^{-1}$ ),  $CO_2$  (2  $\nu_2$ ,  $1286~\rm cm^{-1}$ ) et  $0_3$  ( $\nu_1$ ,  $1100~\rm cm^{-1}$ ). La résolution spectrale n'est pas suffisante pour permettre de distinguer la raie  $\nu_1$  de  $CO_2$  à  $1388~\rm cm^{-1}$  masquée par l'aile de la raie de l'oxygène.

Une résolution meilleure obtenue par l'utilisation de fentes de l mm demanderait le moyennage d'un nombre de signaux beaucoup plus élevé pour avoir un rapport S/B correct sur les signaux très faibles (ozone), et donc un temps de sondage trop important. Les raies Raman du spectre comprennent, dans leur intensité apparente, le bruit de fond continu. Ce bruit est la somme de la lumière parasite présente dans le monochromateur et parfois de l'intensité restante d'une raie proche. Par exemple, la 2  $\nu_2$  de CO $_2$  se trouve sur le flanc de la raie de l'oxygène. Ayant vérifié que le rapport des aires sous pic est très proche du rapport des intensités maximales, et que les transmittances atmosphériques sont pratiquement les mêmes à  $\lambda_{\rm CO}$  et  $\lambda_{\rm O}$  pour des distances inférieures à 500 mètres nous avons :

TABLEAU 1 : Valeurs en volt des points du spectre atmosphérique

Déplacements Raman en cm <sup>-1</sup>	Intensité en volt
900	2,90.10 <sup>-5</sup>
1000	2,60.10 <sup>-5</sup>
1030	6,40.10 <sup>-5</sup>
1060	7,75.10 <sup>-5</sup>
1090	1,70.10 <sup>-4</sup>
, 1120	2,20.10 <sup>-4</sup>
1150	1,40.10 <sup>-4</sup>
1180	8,70.10 <sup>-4</sup>
1210	1,10.10-4
1240	1,70.10 <sup>-4</sup>
1270	4,60.10 <sup>-4</sup>
1300	5,50.10 <sup>-4</sup>
1330	3,00.10 <sup>-4</sup>
1360	8,30.10 <sup>-4</sup>
1390	1,97.10 <sup>-3</sup>
1420	7,00.10 <sup>-3</sup>
1450	0,0127
1480	0,027
1510	0,0919
1540	0,286
1570	0,462
1600	0,284
1630	0,084
1660	0,036
1690	0,0187
1730	2,52.10 <sup>-3</sup>



$$\frac{I_{CO_2} - I_B}{I_{O_2}} = \frac{\sigma(CO_2, 2\nu_2)}{\sigma_{O_2}} \cdot \frac{N_{CO_2}}{N_{O_2}}$$

avec  ${\rm I_{CO}}_2$ ,  ${\rm I_{O}}_2$  : les intensités maximales de la raie de  ${\rm O_2}$  et de la  ${\rm 2}~\nu_2$  de  ${\rm CO_2}$ 

 $I_B$ : l'intensité du bruit de fond continu  $\sigma$  (CO $_2$ , 2  $\nu$ 2),  $\sigma_{O_2}$ : les sections efficaces Raman  $^N$ CO $_2$ ,  $^N$ O $_2$ : les concentrations en ppm.

En fixant une concentration de 350 ppm pour  $\rm CO_2$  et de 21.10<sup>4</sup> ppm pour  $\rm O_2$ , et en prenant pour le bruit l'intensité à 1180 cm<sup>-1</sup>, il vient :

$$\frac{\sigma(\text{CO}_2, 2 \nu_2)}{\sigma_{0_2}} = 0,6$$

La section efficace de rétrodiffusion Raman de  $0_2$  par rapport à celle de l'azote est à 266 nm (4) : 2,1 d'où

$$\frac{\sigma\left(\text{CO}_{2}, 2 \nu_{2}\right)}{\sigma^{\text{N}_{2}}} = 1,26$$

D'autre part, le rapport (intensité CO<sub>2</sub>/bruit continu) = 6 est suffisant pour permettre des mesures quantitatives de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère, le rapport S/B statistique étant assez élevé.

Sur le spectre logarithmique de la figure 15, la valeur des intensités relatives de l'oxygène et de l'ozone confirme les mesures effectuées en laboratoire par Pourny et al. La raie de l'ozone est observée sur un fond comprenant la lumière parasite du spectromètre et l'intensité restante des raies de l'oxygène et du gaz carbonique.

En prenant la raie de  $0_2$  comme référence, l'intensité du bruit de fond continu à 900 cm $^{-1}$  et en raisonnant sur les maximums des raies, on a :

$$\frac{I_{O_3} - I_B}{I_{O_2}} = \frac{\sigma_{O_3}}{\sigma_{O_2}} \cdot \frac{N_{O_3}}{N_{O_2}}$$

En utilisant la valeur expérimentale  $\sigma_{0_3}/\sigma_{0_2}$  = 1200 il vient :

$$N_{O_3} = 73 \text{ ppb}$$

Cette valeur calculée, bien que non vérifiée par une mesure d'ozomètre, est tout à fait plausible (4).

La possibilité de détecter l'ozone atmosphérique par Raman de résonance est indiquée par le rapport (signal  $0_3$  à 1100 cm<sup>-1</sup>)/(bruit continu à 900 cm<sup>-1</sup>) = 7,5. Ce rapport S/B ainsi que le rapport S/B statistique sont suffisants pour effectuer des mesures de profil d'ozone jusqu'à 500 m de distance avec une résolution d'environ 100 m.

## Constante de calibration utilisée pour l'établissement du profil d'ozone

N'ayant pu effectuer suffisamment de mesures de concentrations d'ozone in situ qui nous auraient permis de déduire une constante de calibration expérimentale, nous avons utilisé une constante calculée de la façon suivante.

Entre les signaux normalisés par l'énergie rétrodiffusés par l'ozone et l'oxygène existe la relation :

$$\frac{\tilde{S}_{0_{3}}}{\tilde{S}_{0_{2}}} = \frac{G_{0_{3}}}{G_{0_{2}}} \times \frac{\sigma_{0_{3}}}{\sigma_{0_{2}}} \times \frac{\lambda_{0_{3}}}{\lambda_{0_{2}}} \times \frac{N_{0_{3}}}{N_{0_{2}}}$$
(1)

avec  $G_{0_3}$ ,  $G_{0_2}$ : gains PM fixés pour l'acquisition des signaux rétrodiffusés par  $O_3$  et  $O_2$ 

 $\sigma_{0_3}, \sigma_{0_2}$  : sections efficaces de rétrodiffusion Raman

 $\lambda_{0_3}$ ,  $\lambda_{0_2}$ : longueurs d'onde diffusées ;  $\lambda_{0_3}/\lambda_{0_2} \simeq 1$ 

 $N_{0_3}$ ,  $N_{0_2}$ : concentrations volumiques

D'autre part 
$$C_{0_3}(ppb) = 10^9 \cdot \frac{{}^{N}O_3}{{}^{N}O_2} \cdot 0,21$$
 (2)

En combinant (1) et (2) on obtient :

$$c_{0_3}^{(ppb)} = 10^9 \cdot \frac{\tilde{s}_{0_3}}{\tilde{s}_{0_2}} \cdot \frac{c_{0_2}}{c_{0_3}} \cdot \frac{\sigma_{0_2}}{\sigma_{0_3}} \cdot 0,21$$

$$\frac{G_{0_2}}{G_{0_3}} = 1/8$$
 et  $\frac{\sigma_{0_2}}{\sigma_{0_3}} = 1/200$ 

Finalement : 
$$C_{0_3}(ppb) = CA \times \widetilde{S}_{0_3}/\widetilde{S}_{0_2}$$

avec CA = 22 000

La précision sur cette constante est faible, environ 20 à 30 %.

La figure 16, publiée à Hambourg, présente un profil d'ozone atmosphérique obtenu avec un angle d'élévation de 10° et une résolution de 80 mètres. Ce profil est fourni par le programme de traitement adapté (cf. Annexe I) à partir des signaux moyennés sur la raie de 0<sub>2</sub> (500 tirs, tension PM 2200 V), la raie de 1'ozone (2000 tirs, PM: 2700 V) et la fréquence du bruit (1000 cm<sup>-1</sup>, 2000 tirs, PM: 2700 V). La largeur des fentes du spectromètre est la même que celle employée pour l'établissement du spectre: 2 mm. L'acquisition des signaux a été faite avec la bande passante de l'amplificateur limitée à 20 MHz, et la résolution en distance finale est de 80 m.

La mesure lidar présente un bon accord avec la mesure faite simultanément au sol grâce à un ozomètre fonctionnant par chimiluminescence (Bendix 8002).

La précision de la mesure et la distance maximale du sondage ont été limitées par la faiblesse de l'énergie laser par impulsion qui était de 20 mJ - le profil ayant été réalisé en Mai 1981 - et par la difficulté d'enregistrer les très faibles signaux aux longueurs d'onde de l'ozone et du bruit. Ces mesures pourraient être améliorées avec une énergie par impulsion plus élevée et une mise en forme des impulsions délivrées par le PM.

# IV - DETECTION DE GAZ EN CUVE DE SIMULATION SF<sub>6</sub>, CO<sub>2</sub>,SO<sub>2</sub> (3, 5)

Ainsi que nous l'avons vu dans le premier chapître,  $SF_6$  et  $CO_2$  sont tous les deux des gaz inertes à 266 nm, ne présentant ni transition électronique, ni photodissociation. Ils donnent donc lieu à un effet Raman normal et une étude quantitative sur une cuve de simulation placée à courte distance a permis la mesure de sections efficaces de rétrodiffusion. Notons que pour ces mesures la mise au point du télescope est au minimum ( $\sim$ 100 m).

# A - Etude de SF

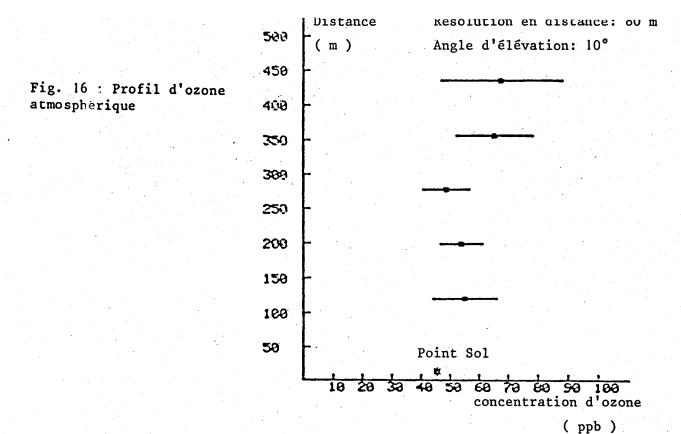
Afin de connaître précisément la longueur d'onde du maximum des raies Raman de  $SF_6$  et du gaz de référence  $N_2$ , et aussi de déterminer une longueur d'onde pour le bruit de fond continu sur lequel se trouvent ces raies, nous avons enregistré un spectre de ces gaz.

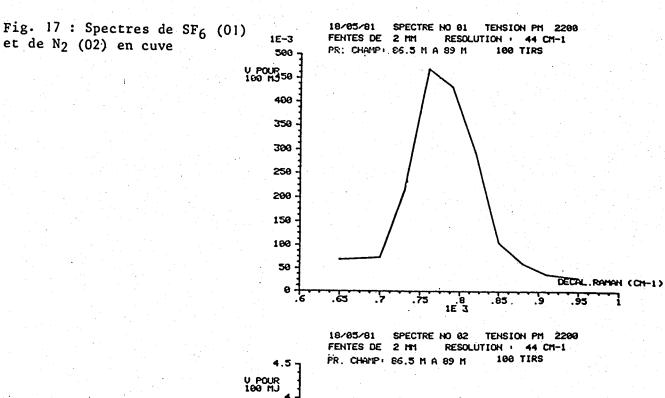
Pour cela nous faisons circuler dans la cuve un mélange d'azote et de  ${\rm SF}_6$ , la variation du débit relatif des deux gaz permettant d'obtenir des concentrations de  ${\rm SF}_6$  différentes.

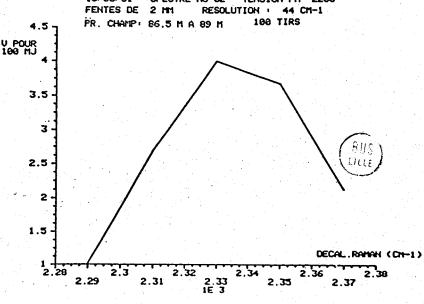
La figure 17 montre les spectres de  ${\rm SF}_6$  et de  ${\rm N}_2$ . Il points ont été enregistrés pour le premier, 5 pour le second, 100 tirs étant moyennés par point. La tension PM est de 2200 V et la pression partielle de  ${\rm SF}_6$  est de 0,3 atm pour une pression totale d'l atm.

Le volume diffusant est limité à la longueur de la cuve : 2 m.

Le maximum de la raie de SF<sub>6</sub> correspond à un déplacement Raman de 7.75 cm<sup>-1</sup> et la largeur à mi-hauteur est de 95 cm<sup>-1</sup> ce qui est plus de deux fois supérieur au 45 cm<sup>-1</sup> attendu et confirme ainsi le déréglage du spectromètre déjà observé sur le spectre atmosphérique. Le bruit continu sur les bords de la raie provient du spectre propre des fenêtres de la cuve, de la lumière parasite présente dans le spectromètre, mais surtout d'une réjection insuffisante de l'intense diffusion élastique provoquée par les fenêtres. Néanmoins, en prenant pour la longueur d'onde du bruit 950 cm<sup>-1</sup>, le rapport S/B est de 18-20 ce qui est nettement suffisant pour permettre des mesures précises, même en tenant compte de l'élargissement spectral des raies.







SF6/N2 (Lidar Raman)

0.5

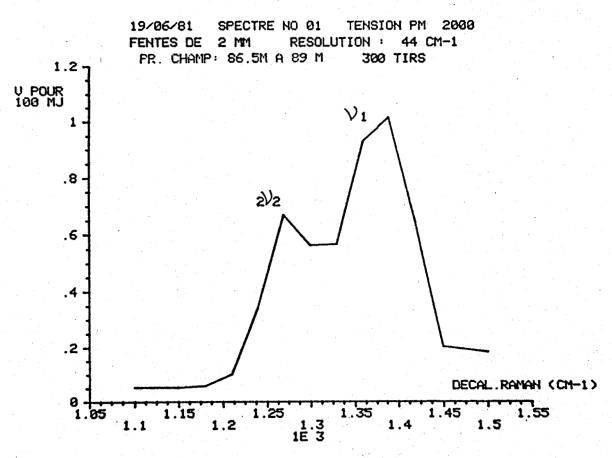
0.5

0.5

SF6/N2 (spectromètre de:

masse)

Fig. 18: Mesure de SF<sub>6</sub> dans la cuve; comparaison des mesures lidar et des mesures par spectrométrie de masse



(BUS)

Fig. 19: Spectre Raman de CO2 dans la cuve

Pour l'étude quantitative de  $SF_6$  on a pris la raie Raman de l'azote à 2340 cm<sup>-1</sup> comme référence et le bruit à 950 cm<sup>-1</sup>. Pour sept rapports de concentration différents  $N_{SF_6}/N_{N_2}$  et grâce au programme de traitement adapté, le rapport  $S_{SF_6}/S_{N_2}$  des signaux rétrodiffusés par les deux gaz présents dans la cuve et mesurés par lidar est déterminé. Entre le rapport des signaux et le rapport des concentrations nous avons la relation :

$$\frac{S_{SF6} - S_B}{S_{N2}} = \frac{\sigma_{SF6}}{\sigma_{N_2}} \times \frac{N_{SF6}}{N_{N_2}}$$

Les différents rapports de concentration sont déterminés par une analyse par spectrométrie de masse effectuée au C.E.A. sur des échantillons prélevés en série avec la cuve.

La cuve ayant une longueur de 2 m et l'intervalle d'échantillonnage de l'analyseur étant de 5 ns, ce qui correspond à une longueur analysée de 0,75 m, le rapport  ${\rm S_{SF_6}/S_{N_2}}$  est établi en faisant une moyenne sur les trois points qui donnent l'intensité rétrodiffusée par la cuve.

L'ajustement par la méthode des moindres carrés des couples de mesures correspondantes donne une droite présentée figure 18 où sont également représentés les points expérimentaux. Le coefficient de corrélation est correct et la pente de la droite donne la section efficace relative de SF<sub>6</sub> par rapport à l'azote. On trouve :

$$\frac{\sigma SF_6}{\sigma N_2} = 1,5$$

# $B - Etude de CO_2$ (5)

De la même façon que pour  $SF_6$  nous avons enregistré un spectre de  $CO_2$  pur circulant dans la cuve. Pour cela, nous avons moyenné 300 tirs sur 13 points (de 1100 à 1500 cm<sup>-1</sup>, un point tous les 30 cm<sup>-1</sup>) avec une tension PM de 2000 V et des fentes de 2 mm. Le spectre obtenu est présenté figure 19.

Les deux maximums correspondent à la raie de vibration  $\nu_1$  de  ${\rm CO_2}$  à 1388 cm<sup>-1</sup> et la raie de vibration 2  $\nu_2$  de  ${\rm CO_2}$  à 1286 cm<sup>-1</sup>. Les largeurs à mi-hauteur sont d'environ 100 cm<sup>-1</sup>.

De ce spectre nous pouvons déduire directement le rapport relatif des sections  $\sigma(\text{CO}_2, \nu_1)/\sigma(\text{CO}_2, 2 \nu_2)$  qui est égal au rapport des intensités (aires sous pics) dont nous faisons l'approximation par la moyenne des intensités du maximum de la rale et de ses deux points adjacents. En soustrayant aux intensités obtenues celle du bruit de fond continu on trouve :

$$\frac{\sigma(\text{CO}_2, \nu_1)}{\sigma(\text{CO}_2, 2 \nu_2)} = 1,6$$

Les mesures de sections efficaces Raman pour les raies  $\nu_1$  et  $^2$   $\nu_2$  de  $^{\rm CO}_2$  ont été effectuées grâce à un mélange  $^{\rm CO}_2$  +  $^{\rm N}_2$  introduit dans la cuve à une atmosphère de pression totale. Pour chacune des deux raies, la section efficace de rétrodiffusion Raman relative à celle de l'azote est donnée par :

$$\frac{\sigma_{\text{CO}_2}}{\sigma_{\text{N}_2}} = \frac{\widetilde{S}_{\text{CO}_2} - \widetilde{S}_{\text{B}}}{\widetilde{S}_{\text{N}_2}} \times \frac{N_{\text{N}_2}}{N_{\text{CO}_2}}$$

où  $\widetilde{S}_{CO_2}$ ,  $\widetilde{S}_{N_2}$ ,  $\widetilde{S}_B$  sont les signaux provenant de la cuve aux longueurs d'onde diffusées par  $CO_2$  et  $N_2$ , et à la longueur d'onde du bruit.

 $N_{N_2}$ ,  $N_{CO_2}$  : concentrations volumiques de  $N_2$  et  $CO_2$  dans la cuve.

D'après le spectre établi précédemment nous avons fixé  $\lambda_{\rm B}$  à 1150 cm $^{-1}$ .

Comme dans le cas de  ${\rm SF}_6$ , les signaux sont moyennés sur les trois points d'échantillonnage de l'analyseur correspondant à la cuve.

Le rapport des concentrations  $N_{N_2}/N_{CO_2}$  est déterminé par une analyse par spectrométrie de masse sur un échantillon.

On trouve:

$$\frac{\sigma(\text{CO}_2, 2\nu_2)}{\sigma_{\text{N}_2}} = 0,18$$

$$\frac{\sigma\left(\text{CO}_{2}, \nu_{1}\right)}{\sigma_{\text{N}_{2}}} = 0,24$$

d'où 
$$\frac{\sigma(CO_2, \nu_1)}{\sigma(CO_2, 2 \nu_2)} = 1,33$$

Le tableau 2 rassemble nos mesures de sections efficaces de rétrodiffusion Raman de SF<sub>6</sub> (cuve) et CO<sub>2</sub> (cuve + atmosphère) ainsi que celles de MURPHY et INABA présentées dans le chapître I, données ici pour une longueur d'onde de 266 nm.

Toutes ces sections efficaces sont rapportées à celle de l'azote à 266 nm.

Sections efficaces	Murphy	Inaba	Nos mesures
σSF <sub>6</sub>	3,1	3,2	1,5
$\sigma$ (co <sub>2</sub> , $\nu$ <sub>1</sub> )	1,4	1,3	0,24 (cuve)
$\sigma^{(CO_2, 2\nu_2)}$	0,9	1,1	0,18 (cuve) 1,3(atmosphère)
$\frac{\sigma(\text{CO}_2, \nu_1)}{\sigma(\text{CO}_2, 2\nu_2)}$	1,56	1,18	1,6

TABLEAU 2 : Comparaison des sections efficaces bibliographiques et des sections efficaces mesurées

Le rapport des sections efficaces  $\frac{\sigma(\text{CO}_2, \nu_1)}{\sigma(\text{CO}_2, 2\nu_2)}$  directement déduit du spectre établi lors des manipulations sur cuve est en excellent accord avec la valeur de MURPHY.

La section efficace  $\sigma$  (CO<sub>2</sub>,  $2\nu_2$ ) déterminée à partir du spectre atmosphérique est en bon accord avec la valeur d'INABA, en prenant une erreur relative totale de 20 %. Une telle erreur tient compte à la fois de l'erreur relative expérimentale dans la mesure lidar et de l'incertitude sur la valeur de la concentration de CO<sub>2</sub>, fixée à 350 ppm pour pouvoir déduire une section efficace du spectre atmosphérique.

Les sections efficaces relatives  $\sigma$  (CO<sub>2</sub>,  $\nu$ <sub>1</sub>) et  $\sigma$  (CO<sub>2</sub>, 2  $\nu$ <sub>2</sub>) mesurées en cuve sont beaucoup plus faibles que celles de la littérature, d'un facteur 5-6 environ.

La section efficace relative  $\sigma_{SF}^{}_{6}$  est elle aussi plus faible - d'un facteur 2 environ - que celle d'INABA ou de MURPHY.

Les raisons qui nous paraissent expliquer ces faibles valeurs sont, dans les deux cas, d'une part un brassage par diffusion insuffisant, provoquant dans la cuve des concentrations locales de  $\mathrm{CO}_2/\mathrm{SF}_6$  importantes et d'autre part le fait d'avoir placé la cellule d'échantillonnage sous la cuve, impliquant un prélèvement enrichi en  $\mathrm{CO}_2/\mathrm{SF}_6$  par rapport à la concentration moyenne de la cuve ; en effet  $\mathrm{CO}_2$  et  $\mathrm{SF}_6$  sont des gaz plus lourds que l'air et, par suite du mauvais brassage, ont tendance à se concentrer dans le fond de la cuve.

# C - Etude de SO<sub>2</sub>

#### 1 - Tir sur cuve à 100 m

Ainsi que nous l'avons vu dans le chapître II, le signal normalisé rétrodiffusé par SO, dans la cuve est donné par :

$$\widetilde{S}_{SO_2}(R_o) = \frac{K}{c\tau} \cdot \lambda_{SO_2} \cdot \sigma_{SO_2} \cdot \frac{N_{SO_2}(R_o)}{R_o^2} \cdot \frac{1 - \exp\left[-(\sigma_1 + \sigma_2) \cdot \frac{c\tau}{2} \cdot N_{SO_2}(R_o) \cdot 2,55 \cdot 10^{19}\right]}{N_{SO_2}(R_o) \cdot (\sigma_1 + \sigma_2)}$$

avec  $S_{S0_2}^{(R_o)}$ : signal en photoélectrons par seconde

R : distance de l'entrée de la cuve

 $\lambda_{SO_2}$ ,  $\sigma_{SO_2}$ : longueur d'onde diffusée par  $SO_2$  et section efficace de rétrodiffusion Raman à 266 nm

 $N_{SO_2}(R_0)$  : concentration de  $SO_2$  en ppm

 $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  : sections efficaces d'absorption de SO $_2$  à 266 nm et à  $\lambda_{\mathrm{SO}_2}$ .

$$K = \frac{A \cdot \xi \cdot \eta \cdot F}{h}$$

 $\xi$  : transmission optique du spectromètre

 $\eta$  : rendement quantique du PM

A : surface efficace du télescope

F: facteur géométrique.

En simplifiant, il vient:

$$\widetilde{S}_{SO_2}(R_o) = \frac{K}{c \tau} \lambda_{SO_2} \cdot \sigma_{SO_2} \cdot \frac{1 - \exp\left[-(\sigma_1 + \sigma_2) \cdot \frac{c\tau}{2} \cdot N_{SO_2}(R_o) \cdot 2,55.10^{19}\right]}{R_o^2 \cdot (\sigma_1 + \sigma_2)}$$

Cette équation montre que le signal rétrodiffusé tend vers une limite pour les fortes concentrations de SO<sub>2</sub> ainsi que le montre la courbe de la figure 20.

En effet, plus la concentration de SO<sub>2</sub> augmente, plus l'absorption aux longueurs d'onde excitatrice et diffusée augmente, et plus l'épaisseur efficace diffusante de la cuve diminue. La limite est donnée par :

$$\tilde{S}_{SO_2}(R_o) = \frac{K}{c \tau} \cdot \lambda_{SO_2} \cdot \sigma_{SO_2} \cdot \frac{1}{(\sigma_1 + \sigma_2)}$$

$$S_{SO_2}(volt) = S_{SO_2}(photoélectrons.s^{-1})$$
 . G . e . R

avec G: gain du PM

R: résistance de charge e: charge de l'électron

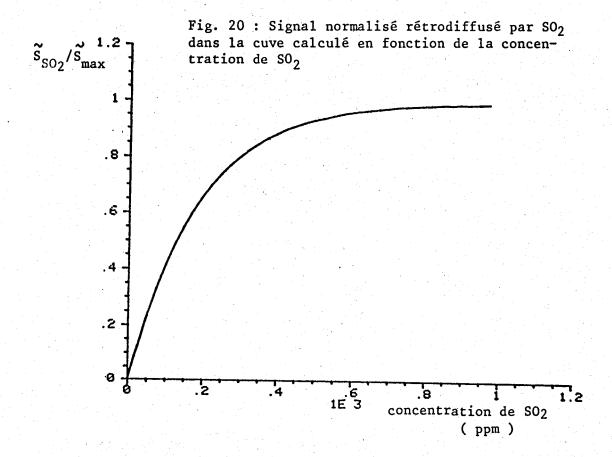
Nous avons calculé ce signal maximal en donnant aux divers paramètres les valeurs rassemblées dans le tableau 3, et en supposant pour SO<sub>2</sub> une section efficace de rétrodiffusion Raman de 100 fois celle de l'azote à la même longueur d'onde.

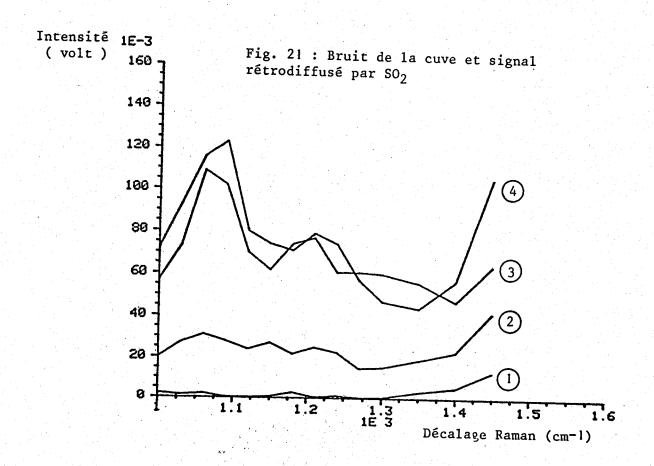
Paramètre	Valeur
A	0,22 m <sup>2</sup>
<b>ξ</b>	0,1
$oldsymbol{\eta}$	0,25
τ	16 ns
$\sigma_{_1}$	$3,53.10^{-23}$ m <sup>2</sup>
$\sigma_2$	$5,26.10^{-23}$ m <sup>2</sup>
$\lambda_{so_2}^2$	274,4 nm
G 2	3.10 <sup>7</sup>
R	50 Ω
$\mathbf{F}$	0,3

#### TABLEAU 3:

Valeurs des paramètres

On trouve  $S_{SO_2} \simeq 100 \text{ mV}$ .





BUSY

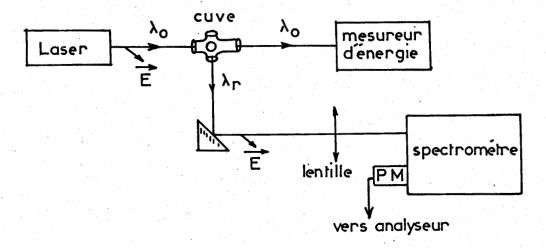
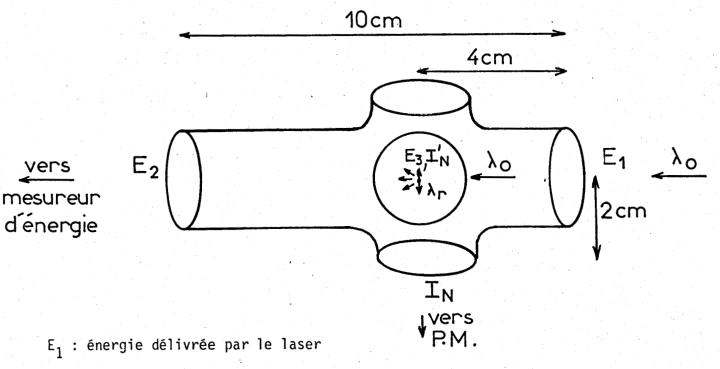


Fig. 22 : Montage de laboratoire



E<sub>2</sub> : énergie à la sortie de la cuve (mesureur d'énergie)

 ${\rm E}_3$  : énergie au centre de la cuve

 $I_{\rm N}$  : intensité recueillie par le PM

I'N : intensité diffusée au centre de la cuve à 90°, à la longueur

d'onde λr

BUS

Fig. 23: Schéma de la cuve

La cuve ne contenant que de l'air à pression atmosphérique, nous avons enregistré le spectre du signal rétrodiffusé dans trois cas :

- la cuve n'est munie d'aucune fenêtre (figure 21, (1))
- la cuve est munie de sa fenêtre arrière (figure 21, 2)
- la cuve est munie de ses deux fenêtres (figure 21, 3).

Ces spectres établis sur la zone 1000-1450 cm<sup>-1</sup>, un point tous les 30 cm<sup>-1</sup>, montrent l'importance du bruit de fond continu dû aux fenêtres de quartz. L'intensité totale du bruit est d'une centaine de mV à 1150 cm<sup>-1</sup>, déplacement où on attend une éventuelle résonance Raman de SO<sub>2</sub>.

La cuve étant remplie de  $SO_2$  pur, nous n'avons observé aucun signal supérieur à cet ordre de grandeur d'intensité (fig. 21, 4), le bruit continu de la cuve masquant une rétrodiffusion de  $SO_2$ .

Aussi, à l'aide du calcul précédent, et en s'accordant un facteur 2 tenant compte des approximations du calcul (rendement quantique du PM impossible à vérifier - transmission de l'optique de réception connue approximativement), il nous est possible de dire que la section efficace relative de rétrodiffusion Raman de SO<sub>2</sub> à 266 nm est inférieure à 200, si SO<sub>2</sub> présente une résonance Raman.

Si SO<sub>2</sub> fluoresce, sa section efficace de fluorescence à 1150 cm<sup>-1</sup> est inférieure à 200 fois la section efficace Raman de l'azote à 266 nm.

## 2 - Montage de laboratoire

Les tirs sur cuve placée à 100 m n'ayant pu nous donner qu'une limite supérieure approximative de la section de rétrodiffusion de SO<sub>2</sub> à 1150 cm<sup>-1</sup>, nous avons réalisé un montage de laboratoire présenté figure 22 afin de réduire au maximum les épaisseurs optiques sur lesquelles se produit l'absorption aux longueurs d'onde excitatrice et diffusée. Pour cela, une cuve schématisée sur la figure 23 a été réalisée au C.E.A., en employant le quartz

des fenêtres de la cuve placée à 100 m. Elle a été conçue pour que les trajets optiques soient faibles : 4 cm à la longueur d'onde excitatrice et 2 cm à la longueur d'onde diffusée.

De l'azote est tout d'abord introduit dans la cuve à pression atmosphérique donnant le spectre l présenté figure 24. 41 points ont été nécessaires pour l'établir, l'intervalle spectral étudié allant de 700 à 2700 cm<sup>-1</sup>, 100 tirs étant moyennés pour chaque point tous les 50 cm<sup>-1</sup>.

La tension PM est de 2000 V et la largeur de fentes est de 2 mm. Ces conditions expérimentales sont les mêmes pour les spectres suivants.

Dans le cas de l'azote pur (figure 23) l'énergie  $E_2$  donnée par le mesureur correspond à l'énergie au centre de la cuve  $E_3$  et à l'énergie délivrée par le laser :  $E_1 = E_2 = E_3$ . De même l'intensité diffusée à 90°,  $I'_N$ , ne subit aucune atténuation jusqu'à la fenêtre de sortie :  $I'_N = I_N$ . Normaliser cette intensité par  $E_2$  est donc correct.

Il n'en est plus de même lorsqu'on introduit un mélange  $SO_2 + N_2$ . L'absorption par  $SO_2$ , en général non négligeable, nécessite une correction de l'intensité et de l'énergie mesurée.

Soit  $I_N$  l'intensité normalisée fournie par le programme de traitement à une longueur d'onde diffusée  $\lambda$ . Le problème est de retrouver l'intensité normalisée  $I'_N$  au centre de la cuve.

D'après la figure 23 nous pouvons écrire :

$$I'_{N} \cdot E_{3} = I_{N} \cdot E_{2} \cdot \frac{1}{\exp(-0.02 \times C \times 2.55.10^{19} \times \sigma(\lambda))}$$

C étant la concentration de SO $_2$  dans la cuve en ppm et  $\sigma(\lambda)$  la section efficace d'absorption de SO $_2$  à la longueur d'onde diffusée  $\lambda$  .

On obtient  ${\bf E}_3$  à partir de  ${\bf E}_2$  en tenant compte de l'absorption par  ${\bf SO}_2$  à 266 nm sur 6 cm :

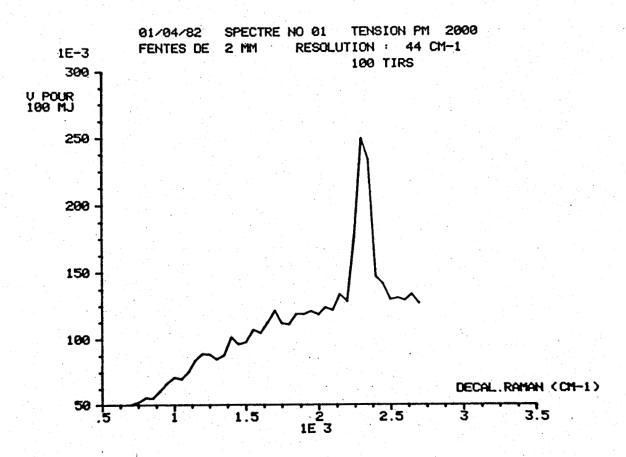
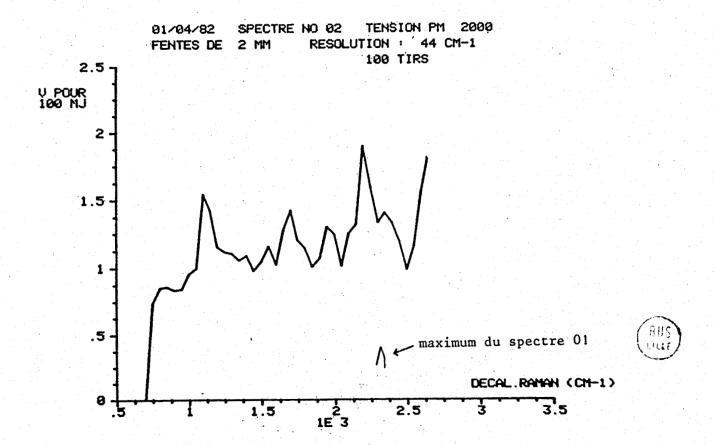


Fig. 25: Spectre 02: azote + SO<sub>2</sub>



$$E_3 = E_2 / \exp(-0.06 \times 3.5.10^{-23} \times C \times 2.55.10^{19})$$

 $3,53.10^{-23}$  m<sup>2</sup> étant la section efficace d'absorption de  $SO_2$  à 266 nm

d'où 
$$I'_{N} = I_{N} \times \exp \left[ 2,55.10^{19} \times C (0,02.\sigma(\lambda) - 0,06 \times 3,53.10^{-23}) \right]$$
 (1)

Le spectre 2 présenté sur la figure 25 est obtenu de la même manière que le spectre l, lorsqu'un mélange SO<sub>2</sub> + N<sub>2</sub> est introduit dans la cuve à pression atmosphérique. Il s'agit d'un spectre de fluorescence, celle-ci se produisant sur toute la zone spectrale étudiée avec une intensité normalisée avant correction 5 à 10 fois supérieure à l'intensité normalisée du spectre l. La faible résolution expérimentale ne nous permet pas une analyse spectrale de la fluorescence mais notre résultat semble confirmer la fluorescence en bande large observée par METTEE avec une excitation à 2650 Å, et par SIDEBOTTOM et al avec une excitation à 2660 Å pour des pressions inférrieures à l mm de Hg (cf. Chap. I).

Nous pouvons néanmoins obtenir une section efficace expérimentale de fluorescence de SO, à la longueur d'onde diffusée par l'azote.

Il faut dans un premier temps déterminer la concentration de  $\mathrm{SO}_2$  dans  $\mathrm{N}_2$ .

Appelons  $\langle E_1 \rangle$  la moyenne des énergies moyennes du spectre l  $(N_2 \text{ pur})$  et  $\langle E_2 \rangle$  la moyenne des énergies moyennes des points du spectre 2  $(N_2 + SO_2)$ . Une heure séparant l'enregistrement des deux spectres, on peut considérer que l'énergie laser est en moyenne la même pour les deux spectres. Cette énergie est  $\langle E_1 \rangle$ . L'erreur quadratique moyenne sur  $\langle E_1 \rangle$  est inférieure à 10 %; on peut donc considérer que  $\langle E_1 \rangle$  est une valeur significative de l'énergie moyenne laser. Nous avons la relation :

$$\langle E_2 \rangle = \langle E_1 \rangle \times \exp(-0.1 \times 3.53.10^{-23} \times 2.55.10^{19} \times C)$$
  
soit  $C = L_n (\langle E_2 \rangle / \langle E_1 \rangle) / (-0.1 \times 3.53.10^{-23} \times 2.55.10^{19})$ 

On trouve C = 47500 ppm

C'est une concentration moyenne dans le temps d'acquisition du spectre 2.

A partir de cette valeur, on corrige le spectre 2 comme indiqué précédemment et on trouve une intensité normalisée 2 à 4 fois supérieure à l'intensité normalisée du spectre 1. A 2330 cm<sup>-1</sup>, l'intensité normalisée diffusée par l'azote et l'intensité normalisée de fluorescence de SO<sub>2</sub> corrigée par la relation (1) sont liées par l'équation suivante :

$$\frac{I_{N_{fluo}}}{I_{N_{N_2}}} = \frac{\sigma}{\sigma_{N_2}} \cdot \frac{c_{SO_2}}{c_{N_2}}$$

avec :

 $\sigma_{\rm fluo}$  : section efficace de fluorescence de SO<sub>2</sub> à 2330 cm<sup>-1</sup>

 $\sigma_{\rm N_2}$  : section efficace de diffusion Raman de  $\rm N_2$ 

 $C_{N_2}$ : concentration de l'azote dans la cuve en ppm correspondant

au spectre l : azote pur

C<sub>SO<sub>2</sub></sub> : concentration de SO<sub>2</sub> dans la cuve en ppm correspondant

au spectre 2.

 $I_{N_{
m N_2}}$  est l'intensité diffusée à la longueur d'onde de l'azote moins l'intensité due à la cuve. Le spectre l nous montre que celle-ci peut être considérée comme égale à l'intensité diffusée à 2200 cm $^{-1}$ .

On trouve:

$$\frac{\sigma_{\text{fluo}} \text{ SO}_2}{\sigma_{\text{N}_2}} = 125 \text{ à } 2330 \text{ cm}^{-1}$$

Désirant confirmer ce résultat nous avons, quelque temps après, refait deux spectres dans les mêmes conditions :

- le spectre 3 avec N<sub>2</sub> pur, identique à moins de 10 % près au spectre 1,
- le spectre 4 avec un mélange à environ 5 % de  ${\rm SO}_2$  dans  ${\rm N}_2$  obtenu grâce à un débitmètre à bulle.

En utilisant comme précédemment les énergies mesurées et en corrigeant les intensités nous trouvons :

C = 57 500 ppm et 
$$\frac{\sigma_{\text{fluo}} \text{ SO}_2}{\sigma_{\text{N}_2}}$$
 = 115 à 2330 cm<sup>-1</sup>

Les deux valeurs de la section efficace de fluorescence sont pratiquement égales si on admet une erreur expérimentale relative de 10 % dans la détermination des concentrations et des intensités, ce qui est acceptable.

Notons qu'une tentative faite pour détecter la fluorescence avec un mélange à environ 1 % de SO<sub>2</sub> dans N<sub>2</sub> a donné un spectre identique aux spectres 1 et 3. La concentration calculée à partir des énergies moyennes a été trouvée égale à 4000 ppm, ce qui explique l'impossibilité de la détection, compte tenu de la section efficace de fluorescence trouvée.

Aucune différence dans la forme de la distribution temporelle de l'impulsion diffusée n'apparaît lorsqu'on passe de l'azote pur à pression atmosphérique au mélange azote + SO<sub>2</sub> à pression atmosphérique. Le temps de décroissance de la fluorescence est donc inférieur à 10-15 ns puisque l'impulsion fait 15 ns de largeur à mi-hauteur.

Une extrapolation à la pression atmosphérique du temps de vie de l'état excité, à partir des résultats obtenus par SIDEBOTTOM et al. (voir Chap. I) pour des pressions inférieures au mm de Hg, donne un temps de vie de 7 ns, ce qui confirme l'étude expérimentale.

L'intensité de la fluorescence augmentant avec le nombre d'onde , la valeur de la section efficace de fluorescence de SO<sub>2</sub> à 1150 cm<sup>-1</sup> relative à la section efficace de diffusion Raman de l'azote est inférieure à 115-125, ce qui explique les résultats trouvés lors de l'étude sur la cuve placée à 100 m.

La fluorescence que présente SO<sub>2</sub> excité à 266 nm au lieu de la résonance Raman rend pratiquement impossible toute détection quantitative de ce gaz par lidar Raman. De plus, cette fluorescence en bande large peut être un obstacle à la détection d'autres polluants, par exemple dans les panaches de fumées d'usine.

## CHAPITRE IV : REFERENCES

- 1 R. PENNDORF: J. Opt. Soc. Am. 47, 176 (1957)
- 2 D. RENAUT, C. BRUN, R.CAPITINI : 11ème I.L.R.C., Université de Madison, 1982
- 3 R. CAPITINI, E. JOOS, D. RENAUT: 3ème Session Lidar, IAMAP, Hambourg, 1981
- 4 D. RENAUT, R.CAPITINI, J.C. POURNY: La Météorologie, n° 25, 25 (1981)
- 5 R. CAPITINI, E. JOOS, D. RENAUT : 11ème I.L.R.C., Université de Madison, 1982

## CHAPITRE V

AMÉLIORATIONS CONCERNANT LE SPECTROMETRE
SIMULATIONS EN ATMOSPHERES POLLUÉES

#### CHAPITRE V

# AMÉLIORATIONS CONCERNANT LE SPECTROMETRE SIMULATIONS EN ATMOSPHERES POLLUÉES

Dans le chapître précédent, par les résultats obtenus, nous avons montré que le lidar Raman utilisé est performant et sans doute un des meilleurs existant actuellement.

Cependant cet appareil est perfectible, notamment sur un point de la chaîne de réception : le filtre optique c'est-à-dire le monochromateur.

Le double monochromateur équipant le lidar est du type monocanal ; il ne permet d'enregistrer qu'une bande spectrale réduite correspondant éventuellement à une raie Raman.

Dans une première partie, en partant des caractéristiques de cet appareil, nous passerons en revue ses défauts et insuffisances en proposant des améliorations.

Dans la deuxième partie, nous envisageons l'intérêt de l'adaptation au lidar d'un spectromètre multicanal et présentons les paramètres de construction et le type de montage que pourrait avoir un tel instrument pour s'adapter au lidar du C.E.A.

N'ayant pu étudier expérimentalement les possibilités de détection du lidar dans certaines circonstances, il nous a paru intéressant de le faire par le calcul. Aussi, dans la dernière partie, nous effectuons dans le cas de deux modèles d'atmosphère polluée (environnement urbain et panache) des simulations spectroscopiques, en tenant compte en particulier de la fluorescence de SO<sub>2</sub> excité à 266 nm.

#### I - LE PROBLEME DU DOUBLE MONOCHROMATEUR

Dans l'Annexe II nous effectuons quelques rappels sur les grandeurs mesurant la qualité d'un monochromateur. Les principales relations liées à la dispersion y sont également données.

#### A - Intérêt de l'utilisation d'un double monochromateur

Le taux de réjection de la lumière parasite est une caractéristique importante du monochromateur. La lumière parasite est provoquée par le retour Rayleigh-Mie diffusé et réfléchi par la surface des pièces optiques de l'appareil. En lidar, nous travaillons sur des signaux rétrodiffusés très faibles et un taux de réjection minimal de 10<sup>-7</sup> est souhaitable à 500 cm<sup>-1</sup> de la longueur d'onde excitatrice. Un simple monochromateur s'avère généralement insuffisant pour réduire la lumière diffuse dans cette proportion.

Lorsqu'on place deux monochromateurs en série pour réaliser un double monochromateur, on peut imaginer deux dispositions, l'une dite "montage additif" dans laquelle la dispersion des deux étages s'ajoutent, l'autre dite "montage soustractif" dans laquelle la dispersion des deux étages se retranchent. A encombrement égal, un montage additif permet d'obtenir une meilleure résolution en utilisant des miroirs de focale plus courte. A résolution égale, la luminosité est ainsi augmentée(cf. Annexe II : figure de mérite). L'expression de la figure de mérite discutée en annexe à propos de monochromateurs simples est également applicable aux doubles monochromateurs et montre que le montage additif accroît les dispersions angulaires et semble donc préférable.

L'inconvénient principal d'un double monochromateur par rapport à un simple vient d'une diminution de la transmission globale de l'appareil, due au plus grand nombre de surfaces optiques (2 réseaux et 4 à 6 miroirs suivant le montage). D'autre part, ces surfaces optiques et les poussières qui s'y déposent contribuent à augmenter le taux de lumière diffuse après plusieurs ouvertures de l'appareil.

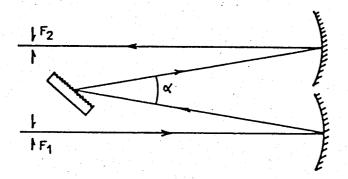
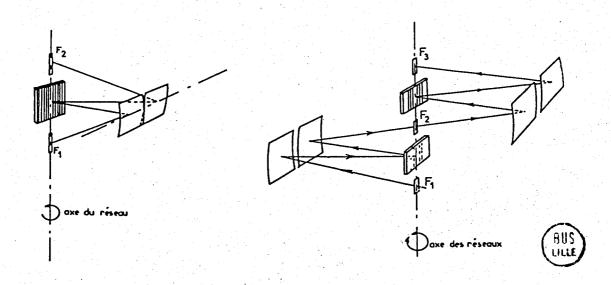


Fig. 2: Montage SERGENT ROZEY; monochromateur simple et double monochromateur ( montage additif )



#### B - Montage du HRD - Comparaison des montages CZERNY-TURNER et SERGENT-ROZEY

Le HRD est un double monochromateur additif, chaque monochromateur ayant un montage CZERNY - TURNER présenté figure l dans lequel deux miroirs séparés jouent le rôle de collimateur et d'objectif.

Dans le montage CZERNY-TURNER les images spectrales de la fente d'entrée peuvent se former sur le réseau et donc être à nouveau diffractées vers la fente de sortie. On observe alors des bandes parasites.

Bien que les appareils commercialisés soient pour la plupart du type CZERNY-TURNER ou EBERT-FASTIE, il nous a paru intéressant de rappeler l'intérêt du montage SERGENT-ROZEY. Dans ce montage (figure 2), utilisé au L.A.S.I.R. pour les triples monochromateurs, bien que les faisceaux incident et diffracté soient dans un même plan perpendiculaire aux traits du réseau, les miroirs d'entrée et de sortie sont inclinés pour que les fentes soient disposées au-dessous et au-dessus du réseau, dans la direction de l'axe de rotation de celui-ci.

Ce montage permet l'emploi de fentes droites disposées sur les focales sagittales qui sont des droites perpendiculaires à l'axe de chacun des miroirs. Dans un tel montage, les images spectrales se forment à côté du réseau et ne peuvent tomber sur sa surface. Il en résulte que le fond continu de l'enregistrement est plus stable et ne présente aucune fluctuation. De plus, la diffusion due aux aberrations est environ 2,5 fois plus faible que dans un montage classique:

- la fente est un axe de symétrie pour la tache comatique, ce qui n'est pas le cas pour un CZERNY-TURNER où la coma est très mal compensée;
- l'astigmatisme donne une image plus étendue mais pas plus large comme dans un CZERNY-TURNER où l'image est élargie et tourne sur la longueur de la fente.

Ainsi, en plus de la réduction de la lumière diffuse, la coma est beaucoup plus faible que dans un CZERNY-TURNER. Ceci conduit à un monochromateur plus résolvant et de plus grande luminosité. Les aberrations géométriques dues à l'emploi de miroirs sphériques utilisés hors d'axe sont causes d'élargissement de la fonction d'appareil. L'aberration de sphéricité entraîne une diffusion symétrique dans l'image, la coma une diffusion dissymétrique, ce dernier terme est donc le plus gênant.

Nous avons calculé l'angle entre le rayon incident (ou diffracté) sur le réseau et l'axe du monochromateur. Plus cet angle est grand, plus les aberrations évoquées précédemment sont importantes.

Le constructeur donne pour le HRD une dispersion linéaire réciproque de 1,8 Å/mm à 280 nm ce qui correspond à une dispersion linéaire réciproque de 3,6 Å/mm pour un étage. Les réseaux utilisés ont 3600 tr/mn et la focale f du miroir est de 600 mm. Or (cf. Annexe II) :

$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{1}{f} \frac{d\lambda}{d\theta} = \frac{\cos \theta}{fn}$$
 avec  $\theta$  l'angle de diffraction n nombre de traits par mm

$$\cos \theta = 3,6.10^{-7} \times 3600 \times 600 = 0,78$$

d'où 
$$\theta = 38,96^{\circ}$$

$$\sin i + \sin \theta = n\lambda$$
, d'où  $i = 22,29^{\circ}$ 

$$\alpha = \frac{\theta - i}{2} = 8,34^{\circ}$$

miroir, et de l'ouverture de l'instrument (principe de Cary).

Cet angle, qui est un paramètre fixé lors de la construction de l'appareil, est élevé dans le cas du HRD. 5 à 6° est une valeur raisonnable, un angle inférieur pouvant provoquer une multiplication de la lumière dispersée. Cette limite inférieure dépend de la position du réseau par rapport au

# C - Réseaux holographiques blazés

Le HRD est muni de deux réseaux holographiques. Ce type de réseau, de par leur méthode de fabrication présente un taux de "ghosts" nul, les ghosts étant des raies spectrales parasites provoquées par des imperfections périodiques sur le réseau.

De même, la lumière parasite due à des défauts aléatoires dans la position et la forme des traits n'existe pas. Ces deux avantages confèrent aux réseaux holographiques un rapport S/B plus élevé que celui de réseaux gravés.

L'efficacité d'un réseau holographique dépend de la grandeur  $\frac{\lambda}{a}$ , a étant le pas du réseau. Dans le cas présent  $\frac{\lambda}{a}$  = 2800 x 3600.10<sup>-7</sup> = 1,01 or pour 0,8  $\leq \frac{\lambda}{a} \leq$  1,7 l'efficacité est d'au moins 60 %.

Lorsque le domaine spectral étudié n'est pas trop large - ce qui est notre cas (250-300 nm)-on a intérêt à avoir recours à des réseaux blazés qui concentrent l'énergie spectrale dans un ordre choisi (effet de blaze) pour une longueur d'onde donnée, située en général au centre de l'intervalle spectral considéré et appelée longueur d'onde de blaze. Les paramètres angulaires d'un réseau blazé sont rassemblés figure 3.

 $\phi$ , l'angle entre l'élément réfléchissant et la surface du réseau dépend de la longueur d'onde de blaze considérée  $\lambda_B$ .  $\phi$  est également l'angle d'incidence avec lequel on doit travailler pour avoir l'effet de blaze. La relation entre  $\phi$  et  $\lambda$  est donc obtenue en appliquant la formule du réseau :

$$\sin \varphi + \sin \varphi = \frac{k \lambda_B}{a}$$
 a : pas du réseau k : ordre considéré

Dans le cas du lidar  $a = \frac{1}{3600} \text{ mm}$ ; k = 1

$$\lambda_B = 280 \text{ nm}$$

d'où 
$$\varphi = 30,26^{\circ}$$

L'efficacité d'un réseau blazé est maximale à la longueur d'onde de blaze. La figure 4 montre la variation de l'efficacité en fonction de la longueur d'onde. L'efficacité est au moins égale à 70 % de l'efficacité maximale dans l'intervalle :

$$\lambda_B - \frac{\lambda_B}{2} < \lambda < \lambda_B + \frac{\lambda_B}{2}$$

Dans notre cas, la gamme spectrale étant 250-300 nm et la longueur d'onde de blaze 280 nm, l'efficacité est peu différente de l'efficacité maximale etreste de toute façon supérieure à celle que donnerait un réseau non blazé.

En équipant le HRD de réseaux blazés à 280 nm, en travaillant sous incidence  $i=\varphi$  - nous sommes dans le cas du montage de Littrow  $i=\theta=\varphi$  - on obtient une dispersion linéaire réciproque :

$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{\cos \theta}{n \text{ F}} = \frac{\cos (30,26)}{3600.10^{-7} \text{ x } 600} = 4,00 \text{ A/mm pour un étage.}$$

Cette dispersion est un peu inférieure à celle d'un réseau non blazé (3,6 A/mm), mais le gain en efficacité compense largement cette perte.

L'utilisation d'un double monochromateur ayant un montage SERGENT-ROZEY et possédant des réseaux holographiques blazés à 280 nm permettrait, à résolution égale, d'obtenir une meilleure luminosité et d'accroître la transmission de l'appareil.

De plus, l'élimination de la lumière parasite, assez mauvaise dans le cas du H.R.D., serait améliorée.

#### II - UNE AMELIORATION AU LIDAR : LE SPECTROMETRE MULTICANAL

Dans la détermination de la concentration d'un gaz l'utilisation de deux gaz de référence permet d'éliminer par un rapport des signaux les constantes d'appareillage, l'intervention de l'ozone ou du bruit spectral continu, l'extinction due à la diffusion Rayleigh et l'extinction due à la diffusion Mie. Or, comme nous l'avons constaté dans la partie du chapître IV consacrée à la détection de la vapeur d'eau, au cours d'un sondage, une variation locale de la transmission atmosphérique, due à une modification de la concentration en aérosols (passage de brumes) pendant l'acquisition sur une raie, donne un profil erroné pour le gaz étudié.

L'enregistrement simultané par un spectromètre multicanal des signaux aux trois longueurs d'onde dans les mêmes conditions atmosphériques supprime

Fig. 3 : Paramètres angulaires d'un réseau blazé

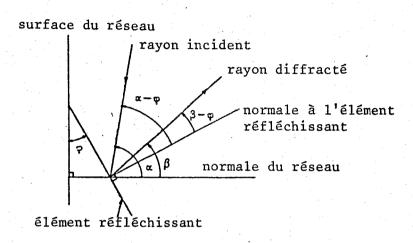
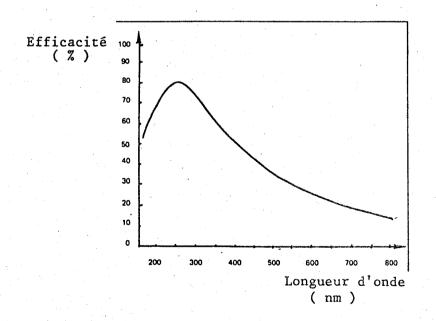


Fig. 4 : Courbe d'efficacité d'un réseau blazé ( 1200 tr/mm;  $\lambda_B$  = 250 nm )



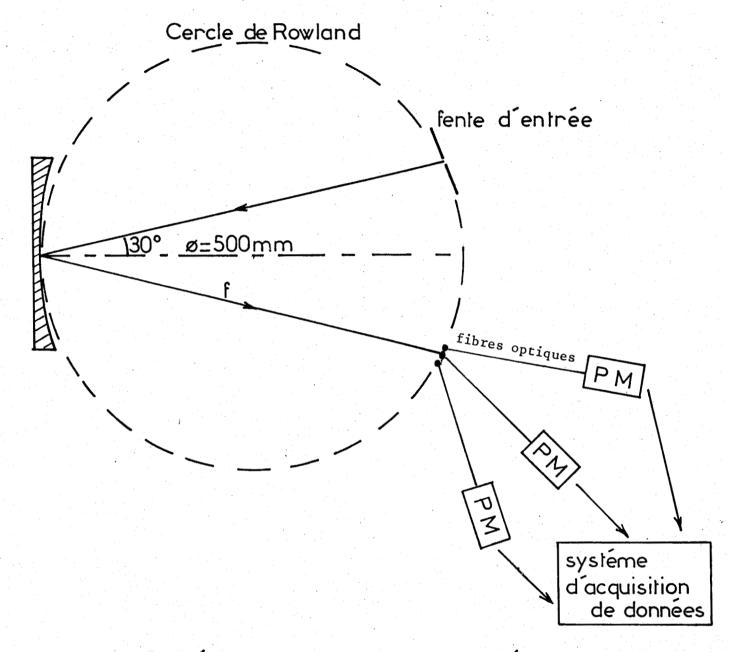


Fig. 5 Schéma possible du quantométre



cet inconvénient et diminue le temps s'écoulant entre deux sondages successifs.

Notons en outre que l'enregistrement simultané de plusieurs signaux diminue le nombre de tirs laser et augmente ainsi sa durée d'utilisation.

Nous allons tout d'abord examiner les paramètres géométriques fixés par le télescope et le laser.

Le télescope est ouvert à F/4,7. Il devra donc en être de même du quantomètre si on veut éviter l'utilisation d'une optique de couplage. La tache recueillie dans le plan focal est circulaire et a un diamètre de 15 mm lorsque le télescope est réglé à l'infini ; elle correspond alors à une divergence de 5,3 mrad.

Le montage laser-télescope est coaxial et la divergence du laser est de 0,5 mrad. Pour être certain de recueillir pratiquement tout le signal rétrodiffusé sur le passage du laser, on peut s'imposer une valeur de l mrad pour la divergence du volume analysé par le spectromètre. Au foyer du télescope la tache correspondant à ce volume sera un cercle de 3 mm de diamètre. La fente d'entrée du quantomètre doit donc être un carré de 3 mm de côté; il est inutile de prendre une hauteur de 15 mm, les 12 mm supplémentaires n'ayant pour conséquence que d'augmenter la lumière parasite.

Afin de réduire le nombre de pièces optiques au minimum, leur réflexion étant moins bonne dans l'U.V., l'emploi d'un réseau holographique concave semble indiqué, remplaçant ainsi les deux miroirs collimateur et objectif. Depuis quelques années, la firme Jobin Yvon commercialise des réseaux holographiques concaves corrigés de la plupart des aberrations.

La figure 5 présente un schéma possible du montage du quantomètre. La fente d'entrée est située sur le cercle de Rowland du réseau et fait un angle de 30° avec la normale du réseau.

Les images de la fente d'entrée sont focalisées par le réseau sur le cercle de Rowland ; chaque image "monochromatique" de la fente d'entrée est recueillie par un paquét de fibres optiques couvrant le plus complètement possible la surface de cette image. Le flux lumineux capté est transmis à un photomultiplicateur. On pourra par ce système, si l'on dispose de n photomultiplicateurs, enregistrer n raies spectrales.

Ainsi, dans le cas de la vapeur d'eau, trois raies rétrodiffusées par 0<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O sont analysées. Avec un réseau de 3600 traits/mm, pour un angle d'incidence de 30° l'application des relations :

$$\sin i + \sin \theta = n \lambda$$

et 
$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{\cos\theta}{n f}$$

donne une dispersion linéaire de 5,5 A/mm dans le plan focal soit 70 cm<sup>-1</sup> à 280 nm.

Chaque image de la fente d'entrée, ayant 3 mm de largeur si le grandissement du réseau est égal à l (bras égaux), couvre 210 cm environ. Cette résolution est acceptable, les raies  $0_2$ ,  $N_2$  et  $H_2$ 0 étant suffisamment éloignées l'une de l'autre. Il n'en serait plus de même pour, par exemple, la détection de  $\mathrm{CO}_2$ . Avec une telle bande passante même la 2  $\nu_2$  de  $\mathrm{CO}_2$  ne serait pas suffisamment résolue à cause de la proximité de la raie d'oxygène. Comme les résultats expérimentaux l'ont montré, une résolution maximale de 80 cm est suffisante. Il faut donc travailler avec des fentes de l mm environ de largeur.

Par rapport au double monochromateur, le quantomètre a une résolution beaucoup plus faible obligeant à travailler avec des fentes moins larges, ceci provoquant parfois une perte de signal. De plus, la couverture de l'image toujours imparfaite par les fibres optiques entraîne une perte de flux lumineux. Pour des raisons d'encombrement il n'est pas possible de placer des PM directement sur le lieu de focalisation des images.

Notons que le plan focal est courbe, mais l'arc sur lequel se trouvent les images (~ 20 mm) peut être assimilé à un segment de droite.

La réduction importante des pièces optiques donne une transmission globale ne dépendant que de l'efficacité du réseau et pouvant aller jusqu'à 60 % contre 20 % au maximum pour un double monochromateur.

## III - SIMULATIONS SUR DES MODELES D'ATMOSPHERES POLLUEES

N'ayant pu étudier expérimentalement qu'une atmosphère de type rural, nous avons voulu savoir quels résultats pourraient être obtenus avec le lidar du C.E.A. sur des atmosphères polluées. Pour cela, nous avons effectué des simulations spectroscopiques et des calculs de rapport S/B.

Les simulations spectroscopiques ont été faites en utilisant les taux de réjection de la raie Rayleigh-Mie du double monochromateur pour des fentes de 2 mm, puisqu'une telle largeur permet d'avoir une résolution suffisante pour détecter  $\rm CO_2$  et  $\rm O_3$ .

L'énergie laser est supposée infinie et seuls interviennent, outre le taux de réjection, la concentration et la section efficace du gaz considéré.

En tout point du spectre de déplacement Raman d, l'intensité I est égale à la somme des contributions  $c_j$  des j différentes raies situées aux déplacements  $d_j$ :

 $I = \sum_{j} c_{j}$   $c_{j} = \sigma_{j} \cdot N_{j} \cdot 2,55.10^{19} \cdot R_{j} (d - d_{j})$ 

avec

σ<sub>j</sub>, N<sub>j</sub>: section efficace de rétrodiffusion Raman pour la raie considérée et concentration en ppm,

R; (d-d;): réjection de la raie j au déplacement d

$$R_{j}(0) = 1$$
;  $R_{j}(\infty) = 10^{-7}$ 

Afin de vérifier que cette méthode donne des résultats corrects, nous avons calculé un spectre atmosphérique à l'aide des concentrations et sections efficaces relatives de rétrodiffusion Raman rassemblées dans le tableau l. Dans cette atmosphère de type rural, la contribution des aérosols est négligeable.

La figure 6 présente les spectres atmosphériques calculé et observé dans le domaine 900 cm $^{-1}$  - 1370 cm $^{-1}$ . L'allure de ces spectres et les rapports d'intensité des raies  $0_2$ ,  $0_2$  (2  $\nu_2$ ),  $0_3$  - incluant le bruit de fond dû à la limite de réjection de la raie Rayleigh - montrés dans le tableau 2 valident cette méthode de simulation spectroscopique. Le pas de calcul de l'intensité du spectre est de 5 cm $^{-1}$  et le pas de mesure 50 cm $^{-1}$ .

#### . Simulations dans un panache

Nous avons vu dans le chapître II, dans la partie consacrée à l'utilisation de l'équation lidar, que la détermination quantitative d'un gaz tel que  $\mathrm{CO}_2$  nécessite de connaître la distribution de concentration de  $\mathrm{SO}_2$  dans le panache afin de tenir compte de l'absorption de ce gaz. La fluorescence en bande large que présente  $\mathrm{SO}_2$  empêcherait de mesurer les concentrations de  $\mathrm{SO}_2$  dans le panache par lidar Raman.

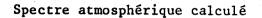
Nous avons cependant voulu savoir jusqu'à quel point cette fluorescence pouvait masquer les raies de CO<sub>2</sub> et NO<sub>2</sub> puisque seuls ces deux gaz polluants sont en quantité suffisante pour être détectés.

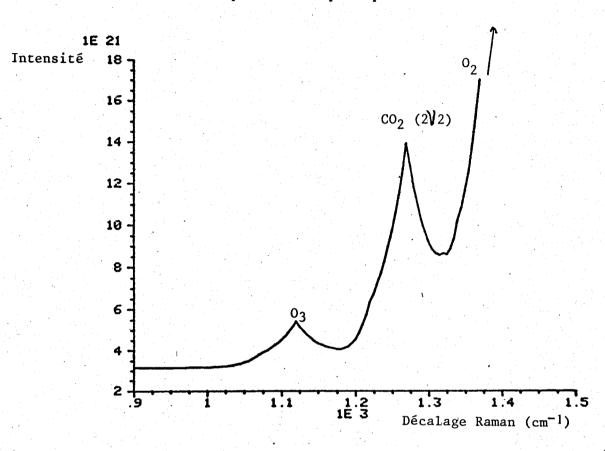
La figure 7 montre le spectre calculé pour la zone 700 cm<sup>-1</sup> - 1450 cm<sup>-1</sup> au centre du panache sur l'axe (1) défini dans le chapître II, à 250 m de la cheminée. Les concentrations et sections efficaces relatives sont indiquées dans le tableau 3.

La concentration de  ${\rm CO}_2$  est suffisament importante par rapport à celle de  ${\rm O}_2$  pour que la raie de vibration  $\nu$  , soit correctement résolue.

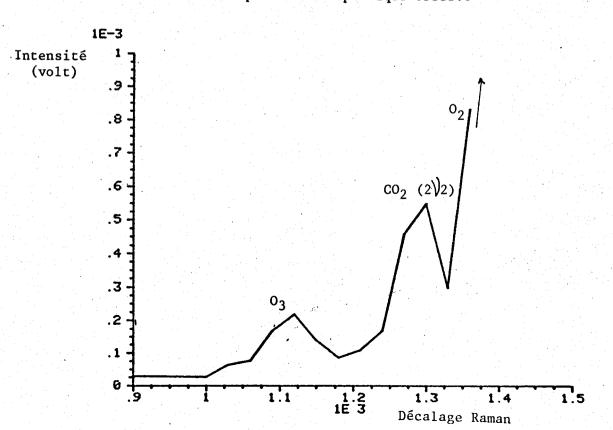
Cependant, l'intensité de la fluorescence est supérieure à celle de la raie de vibration de  $\mathrm{NO}_2$  et est du même ordre de grandeur que l'intensité des raies de  $\mathrm{CO}_2$ . Cette fluorescence de  $\mathrm{SO}_2$  empêche donc toute détection qualitative et quantitative de  $\mathrm{NO}_2$  ou  $\mathrm{CO}_2$  dans un panache par lidar Raman.

Fig. 6 : Spectres atmosphériques calculé et observé





# Spectre atmosphérique observé



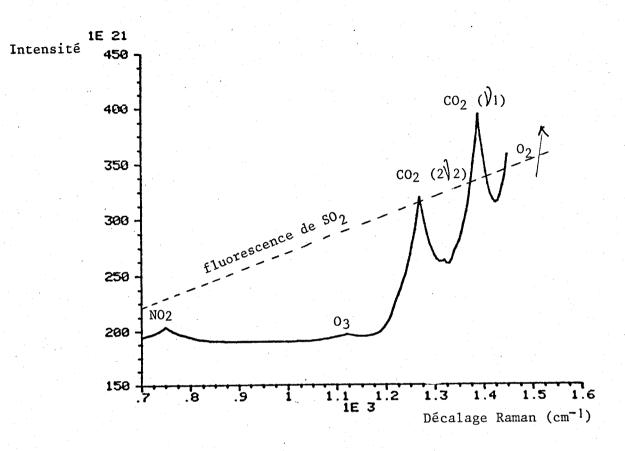
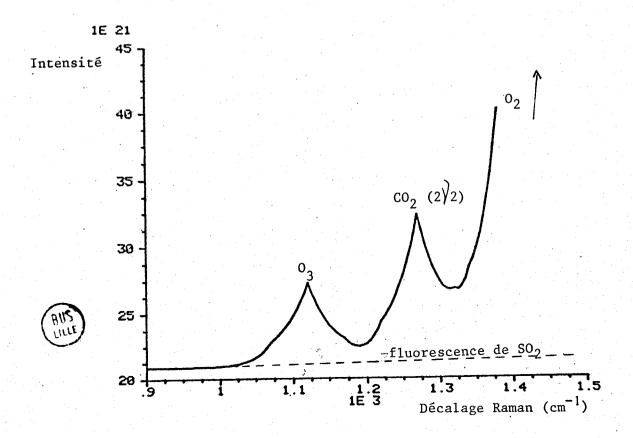


Fig. 8 : Spectre calculé pour un environnement urbain



Esp <b>è</b> ce diffusante	<u>σx</u>	N <sub>X</sub> ppm	
X	σN <sub>2</sub>		
o <sub>2</sub>	2,1	21.104	
03	2500	6,5.10 <sup>-2</sup>	
co <sub>2</sub>	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	350	
Molécules (diffusion (dayleigh)	1240	10 <sup>6</sup>	

	Io2/Ico2	Ico2/Io3
Spectre expérimental	840	2,50
Spectre calculé	810	2

FABLEAU 1 : Données nécessaires pour la simulation du spectre atmosphérique

TABLEAU 2 : Comparaison des spectres atmosphériques calculé et observé

Espèce diffusante X	<u>σχ</u> σ <sub>N2</sub>	Concentration de X dans le panache m <sup>-3</sup>	Concentration de X Environnement urbain -3 m
02	2,1	5,2.10 <sup>24</sup>	5,3.10 <sup>24</sup>
co <sub>2</sub>	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	9,8.10 <sup>22</sup>	8,4.10 <sup>21</sup>
so <sub>2</sub>	Fluorescence -1 ~ 120 à 2330 cm ~ 60 à 1300 cm	1,3.10 <sup>21</sup>	2,5.10 <sup>18</sup>
NO <sub>2</sub>	75	1,8.10 <sup>20</sup>	2,5.10 <sup>18</sup>
03	2500	2,5.10 <sup>18</sup>	2,5.10 <sup>18</sup>
aérosols (Mie)	3,9.10 <sup>20</sup>	5,0.10 <sup>9</sup>	4,6.10 <sup>8</sup>
molécules (Rayleigh)	1240	2,5.10 <sup>25</sup>	2,5.10 <sup>25</sup>

TABLEAU 3: Données nécessaires pour les simulations spectroscopiques d'atmosphères polluées.

La détermination de la concentration de  $\mathrm{SO}_2$  dans le panache en utilisant le signal de fluorescence par rapport au signal Raman de  $\mathrm{N}_2$  pourrait être envisagée. Il faudrait, dans des études préliminaires, mesurer la constante de quenching de la fluorescence de  $\mathrm{SO}_2$ , en présence de  $\mathrm{N}_2$ et  $\mathrm{O}_2$  à concentrations atmosphériques, la pression totale étant d'une atmosphère. De plus, il faudrait savoir dans quelles proportions  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}$ ,  $\mathrm{CO}_2$  et/ou les variations de température affectent la ré-émission.

### . Simulations dans un environnement urbain

Les concentrations des gaz de ce type d'atmosphère sont rassemblées dans le tableau 3. La concentration d'aérosols est déduite du coefficient d'atténuation Mie du modèle d'atmosphère urbaine présenté dans la chapître II et de la section efficace de diffusion des aérosols à 266 nm calculée dans l'annexe III.

La figure 8 montre le spectre calculé pour la zone 900 cm $^{-1}$  - 1370 cm $^{-1}$ . Le calcul de la fluorescence de  $\mathrm{SO}_2$  à une concentration de 100 ppb donne à 1300 cm $^{-1}$  une intensité de fluorescence 100 fois plus faible que l'intensité du spectre ; cette différence augmente pour les plus faibles déplacements. La "détection spectroscopique" de  $\mathrm{CO}_2$  et de  $\mathrm{O}_3$  est donc possible.

L'absorption de SO<sub>2</sub> à 100 ppb étant négligeable on peut calculer un rapport S/B en utilisant l'équation (4) du chapître II, en négligeant l'absorption par l'ozone pour des distances inférieures à 500 m.

En fixant une énergie par impulsion laser de 50 mJ, une distance de 500 mètres, une résolution de 30 mètres et un temps de mesure de 2 minutes, on trouve un rapport S/B de 10 pour la détection de 330 ppm de  $\rm CO_2$ , et un rapport S/B légèrement inférieur pour la détection de 100 ppb de  $\rm O_3$ . Ces conditions permettent donc une mesure de concentrations de  $\rm O_3$  et  $\rm CO_2$ .

#### CONCLUSION

Les expériences menées avec le lidar Raman du C.E.A. ont montré qu'il pouvait détecter, outre la vapeur d'eau, des espèces mineures telles que CO<sub>2</sub> et O<sub>3</sub> dans une atmosphère non polluée.

Les calculs sur modèles indiquent d'autre part que la mesure de polluants dans les panaches est impossible en raison de la fluorescence présentée par  $\mathrm{SO}_2$  à 266 nm. Ils permettent cependant d'envisager la détection de  $\mathrm{CO}_2$  ou de  $\mathrm{O}_3$  dans une atmosphère urbaine polluée.

Aussi convient-il de discuter de l'avenir du lidar Raman selon le type d'atmosphère qu'il devra contrôler.

La télédétection diurne par le lidar Raman d'espèces mineures nécessite une longueur d'onde excitatrice comprise dans un domaine de 250 à 300 nm.

Des gaz polluants présents dans le milieu physico-chimique complexe que constitue le panache d'une cheminée, seuls  $\mathrm{NO}_2$ ,  $\mathrm{SO}_2$  et  $\mathrm{CO}_2$  sont en quantité suffisante pour permettre leur détection par lidar à des distances inférieures à 500 mètres. Or l'atténuation du signal rétrodiffusé par ces molécules, due surtout à l'absorption par  $\mathrm{SO}_2$  et par les aérosols, empêche toute détection quantitative, à moins de connaître la distribution de concentration de  $\mathrm{SO}_2$  dans le panache.

Expérimentalement, en utilisant une longueur d'onde excitatrice de 266 nm, nous avons mis en évidence une fluorescence en bande large de SO<sub>2</sub> et mesuré une section efficace de fluorescence d'environ 120 fois la section efficace de rétrodiffusion Raman de l'azote. Cette fluorescence masque les intensités des raies de vibration de NO<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>. De plus, la fluorescence des aérosols, déjà constatée sur des aérosols atmosphériques au cours de sondage de vapeur d'eau, pourrait s'intensifier dans le cas du panache, la concentration d'aérosols étant plus élevée.

L'utilisation d'une longueur d'onde plus courte que 266 nm n'entraînerait aucune modification en ce qui concerne la fluorescence en bande large de SO<sub>2</sub>. De plus, elle aurait pour effet de renforcer la fluorescence des aérosols, celle-ci augmentant lorsque la longueur d'onde diminue.

Si l'on choisit une longueur d'onde excitatrice plus grande que 266 nm, la fluorescence devient structurée avec l'apparition de raies de résonance intenses. Le masquage des raies Raman des autres constituants diminue mais toute mesure demeure incertaine. En outre, pour une telle longueur d'onde le risque de fluorescence de NO<sub>2</sub> n'est pas à exclure. Notons que seuls les lasers à colorant permettent d'obtenir une longueur d'onde comprise entre 280 et 300 nm mais ces lasers sont encombrants, coûteux et peu énergétiques.

En résumé, la mesure de concentrations de polluants dans un panache est impossible à 266 nm et difficile à d'autres longueurs d'onde dans l'intervalle 250 - 300 nm.

En ce qui concerne la surveillance d'atmosphères polluées autres que le panache, par exemple l'environnement urbain ou la proximité d'autoroutes ou d'usines, la conception d'un lidar peut être envisagée pour la détection de CO<sub>2</sub>. Il permettrait le contrôle du niveau de pollution ( > 330 ppm) avec une précision estimée à 10 % pour une distance de 500 m et une résolution de 30 m. Le temps d'intégration dépendrait du spectromètre utilisé. Il pourrait être de deux minutes en utilisant un spectromètre multicanal ; cet appareil augmenterait d'autre part la fiabilité de la mesure, les signaux sur les différentes raies étant enregistrés simultanément, dans les mêmes conditions atmosphériques.

Ce type de spectromètre plus compact et moins déréglable qu'un double monochromateur conviendrait particulièrement à une station lidar montée sur camion. Il faudrait cependant utiliser un laser ne présentant pas une partico optique aussi délicate que le laser Y.A.G. quadruplé en fréquence. Le laser à exciplexe K<sub>r</sub>F - émission à 248 nm, 250 mJ par impulsion à une fréquence supérieure à 10 Hz - serait susceptible de remplacer le Y.A.G.

Il faut noter que les aérosols présents dans un environnement urbain, bien qu'en quantité plus faible que dans un panache, pourraient présenter une absorption et une fluorescence dont il faudrait tenir compte.

Le lidar stationné à Magny permet la mesure de la vapeur d'eau atmosphérique jusqu'à plus de 2000 m avec une résolution en distance de 30 m jusqu'à 1200 m et de 90 m au delà, la précision étant de 10 % à 1500 m. Le temps d'intégration est de 8 minutes. L'ozone atmosphérique est également détectable à 500 m avec une résolution en distance de 80 m. Aussi, une station mobile équipée d'un spectromètre multicanal pourrait être là encore développée; les mesures de vapeur d'eau et d'ozone qu'elle permettrait seraient très utiles pour les météorologistes et les physiciens de la basse atmosphère.

Un domaine d'application où la télédétection Raman de gaz pourrait se révéler fructueuse est celui de l'étude à très courtes distances (<30 m) d'atmosphères "confinées" telles que les ateliers d'usine ou les réacteurs. La résolution en distance ne serait plus nécessaire, la concentration du gaz mesuré étant intégrée le long du faisceau laser. Par conséquent, si l'utilisation de laser en impulsions est toujours souhaitable pour avoir le meilleur rapport signal/bruit lors de l'acquisition des signaux, il n'est plus nécessaire d'avoir une largeur temporelle d'impulsion de quelques nanosecondes. Un temps supérieur à la microseconde pourrait convenir, ce qui éviterait la nécessité d'employer un analyseur de transitoires, coûteux et inutile dans ce cas.

De plus, les mesures se faisant en général à l'abri du rayonnement du ciel diurne, une émission dans le visible serait possible ce qui, sur le plan du choix des lasers, constituerait un avantage. ANNEXES

### ANNEXE I : PROGRAMMES DE TRAITEMENT DE DONNEES

### 00000000

### A. - PROGRAMME DE TRAITEMENT POUR LES SONDAGES H20

Nous présentons sur la figure l l'organigramme de ce programme.

La place mémoire du calculateur étant limitée on condense les tableaux stokés sur disque en les lissant par paquets de 5 points. On se ramène donc à une résolution maximale en distance de 50 ns (soit 7m50), correspondant à la bande passante de l'amplificateur 7A16P (bande limitée à 20 MHz). Les nouveaux signaux lissés 02, N2 et H<sub>2</sub>O s'étendent sur (1848- 215)/5 = 326 points soit une portée de 2445m.

## 1.- Calcul du profil H<sub>2</sub>0

Le profil est calculé avec la résolution maximale. Pour i∈[0, 326] on effectue les étapes suivantes :

- Si  $S_{N_2}(i)$  (signal azote) = 0 on pose  $r_{(i)}$  = 0 avec r: rapport de mélange i: point considéré

- Si 
$$S_{N_2}(i) \neq 0$$
 on calcule  $x_{(i)} = \frac{SO_2(i)}{EO_2} / \frac{SN_2(i)}{E_{N_2}}$ 

 $E_{0_2}$ ,  $E_{N_2}$  étant les énergies moyennes des tirs effectués sur l'oxygène et l'azote

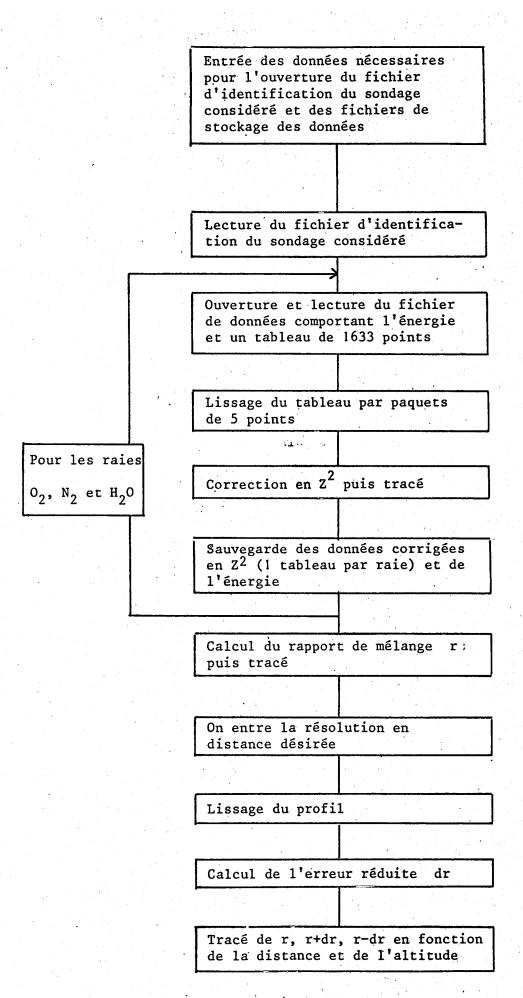
ne et l'azote  

$$si x(i) \le 0$$
 on pose  $r_{(i)} = 0$   
 $si x(i) > 0$   $r_{(i)} = \begin{bmatrix} x_{(i)} \end{bmatrix}^{1,06}$   $\frac{S_{H_2O}(i)}{E_{H_2O}}$   $\frac{S_{N_2}(i)}{E_{N_2}}$   
avec  $E_{H_2O}$  énergie moyenne des tirs effectués sur  $H_2O$ 

avec  $E_{\rm H_{2O}}$  énergie moyenne des tirs effectués sur  ${\rm H_{2O}}$ 

- Le graphe r(i) est tracé

Si 
$$r_{(i)} > 20$$
 g/kg on pose  $r=20$   
Si  $r_{(i)} < 0$  g/kg on pose  $r=0$ 



રે ઇંડિકે ાર્ડા

FIGURE 1 : ORGANIGRAMME DE SONDZ

### 2. Lissage et tracé du profil

- Les signaux lidar devenant trop faibles à partir d'une certaine distance pour être exploités, un curseur permet de choisir une zone utilisable dans le graphe. Soit  $N_1$  et  $N_2$  le rang des points choisis; en tenant compte de la résolution maximale on introduit la résolution en distance voulue RD et on lisse par paquets de P points avec P = partie entière (RD/ 7,5).

Le profil final occupe donc N points avec N=  $(\frac{N_2 - N_1 + 1}{P})$ 

- Pour i variant de 0 à N-1 on calcule le rapport de mélange moyen R(i)

$$R_{(i)}$$
 = valeur moyenne  $r(u_1 : u_2)$  avec  $u_1 = N_1 + i \times P$   $u_2 = N_1 + (i+1) \times (P-1)$ 

on calcule également l'erreur réduite

$$DR_{(i)} = \frac{1}{\sqrt{P}} \sqrt{\frac{1}{P} \sum_{j=\overline{u}_1}^{\overline{u}_2} (r_{(j)} - R_{(i)})^2}$$

Les graphes R, R+ DR, R - DR sont tracés en fonction de la distance d, R et DR étant recalculés en fonction de l'altitude h (h = d sin f avec f angle d'inclinaison). les graphes précédents sont tracés en fonction de h.

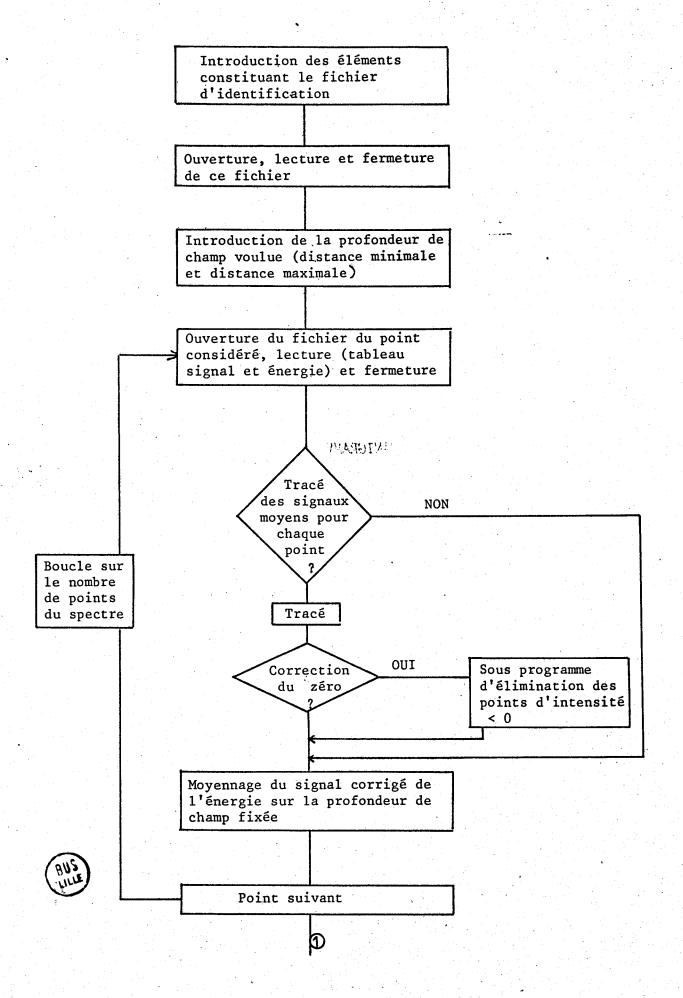
### B:- PROGRAMME POUR LE TRACE ET L'ETABLISSEMENT DE SPECTRE

La figure 2 présente l'organigramme de ce programme.

La profondeur de champ d'où proviennent les signaux analysés est déterminée en entrant une distance minimale X l et maximale X 2.

La correction du zéro consiste, pour un point du spectre, à mettre à zéro tous les canaux d'échantillonnage dont l'intensité serait inférieure à un certain seuil (zéro par exemple).

Pour chaque point du spectre, on moyenne le signal lidar entre les points [ent(X1/AX)] et [ent(X2/AX)] où AX est la résolution en distance . AX = 1,5 m si l'intervalle d'échantillonnage fixé dans le programme d'acquisition est 10ns. Si ce dernier est de 5 ns AX= 0,75 m. Notons qu'un petit programme permet de corriger les données acquises avant traitement, en tenant compte d'un gain PM différent en certains points du spectre.



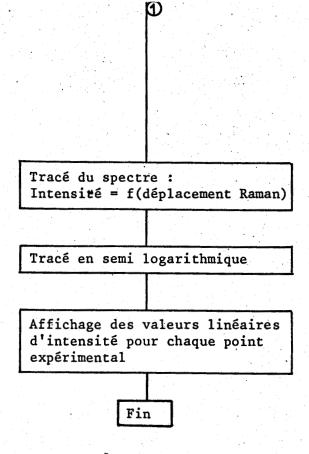


FIGURE 2 : ORGANIGRAMME DU PROGRAMME SPEC2

# C.- PROGRAMME PERMETTANT L'OBTENTION DE PROFIL DE GAZ EN CUVE $(SF_6)$ OU EN ATMOSPHERE $(O_3)$

La figure 3 présente l'organigramme de ce programme qui exploite les signaux acquis sur 3 raies (cf Chap.II): gaz mesuré, gaz de référence et bruit.

Si l'on établit un profil en cuve de simulation on garde la résolution maximale fixée lors de l'acquisition (0,75m) et on moyenne le signal pour chacune des trois sur les trois points correspondants à la cuve (~ 2m)

Si l'on établit un profil dans l'atmosphère le programme opère dès le début un moyennage du signal acquis sur chaque raie avec une résolution de 3,75m.

Le lissage de P avec une résolution en distance supérieure à 3,75m s'opère de la manière décrite dans le paragraphe A.

Que ce soit en atmosphère ou dans la cuve le signal exploitable est donné par la relation :

$$S = \frac{\tilde{S}_G - \tilde{S}_B}{\tilde{\tilde{S}}_R}$$

où  $\tilde{S}_G$ ,  $\tilde{S}_R$  et  $\tilde{S}_B$  sont les signaux moyens normalisés par l'énergie moyenne correspondante, acquis aux longueurs d'onde du gaz mesuré, du gaz de référence et du bruit.

La concentration P est déduite par la relation P= S x  $C_{\rm A}$ ,  $C_{\rm A}$  étant la constante de calibration.

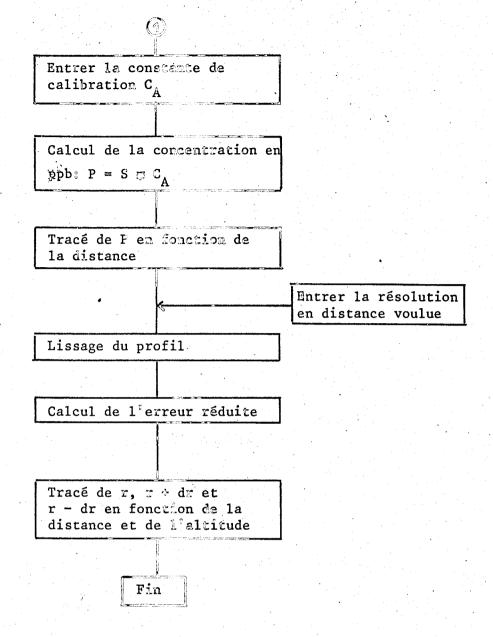
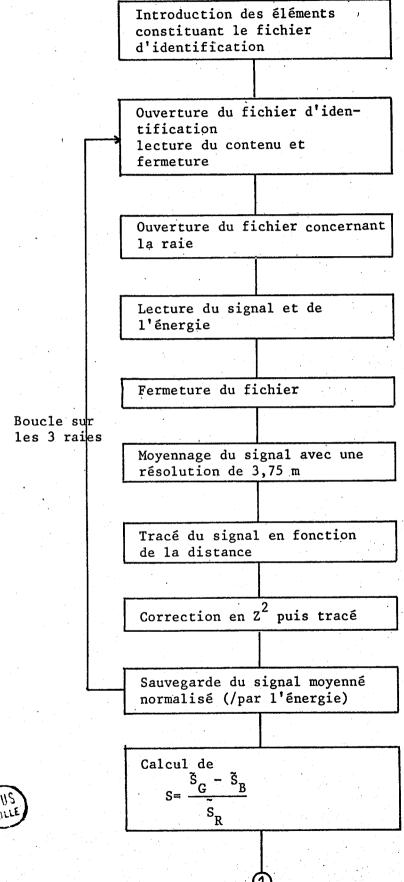


FIGURE 3: ORGANIGRAMME DU PROGRAMME GAZATM



### ANNEXE II : RAPPELS SUR LES MONOCHROMATEURS

### 00000000

Un monochromateur est destiné à extraire, du rayonnement complexe émis par une source, un faisceau ne transportant que des radiations comprises dans un intervalle spectral étroit, de largeur et de longueur d'onde moyenne variables.

Le monochromateur schématisé sur la Fig.l est du type CZERNY- TURNER symétrique; son collimateur est constitué de deux miroirs sphériques concaves de focales f.

### A.- FORMULE DU RESEAU. DISPERSION ANGULAIRE. DISPERSION LINEAIRE RECIPROQUE

En appelant n le nombre de traits par mm du réseau et i l'angle du rayon incident par rapport à la normale du réseau, la relation classique des réseaux donne la direction  $\theta$  du maximum principal d'intensité:

$$\sin i + \sin \theta = n\lambda$$
 (1) en ne considérant que l'ordre 1

La dispersion angulaire est donnée par :

$$\frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}\sigma} = \frac{\mathrm{n}}{\cos\theta \cdot \sigma^2} \tag{2}$$

La dispersion linéaire réciproque dans le plan de la fente de sortie :

$$\frac{d\sigma}{dx} \quad \stackrel{\circ}{(A/mm)} = \frac{1}{f} \quad \frac{d\sigma}{d\theta} \quad \text{avec f focale du miroir en mm}$$

Dans le cas du lidar l'intervalle spectral de travail étant 265- 295 nm il convient de travailler avec n= 3600 tr/mm afin d'avoir une dispersion angulaire suffisante.

Notons que le montage étant symétrique l'angle  $\alpha$  entre le rayon incident et l'axe de l'instrument :  $\alpha = \frac{\theta - i}{2}$  (3)

### B.- RESOLVANCE ET LUMINOSITE

Un monochromateur est caractérisé essentiellement par deux grandeurs, sa résolvance et sa luminosité, qui sont toutes deux directement liées à la fonction d'appareil.

Soit B'( $\sigma$ ') la répartition énergétique spectrale de la lumière monochromatique de longueur d'onde  $\sigma$ ' pénétrant un monochromateur positionné sur la longueur d'onde  $\sigma$ . La réponse de l'appareil est par définition le produit de convolution de cette répartition énergétique par la fonction d'appareil  $A(\sigma - \sigma')$ 

$$B_{(\lambda)} = \int_0^\infty B'(\sigma') \cdot A(\sigma - \sigma') \cdot d\sigma'$$

La fonction d'appareil résulte de plusieurs causes. Dans notre cas seules interviennent les largeurs finies de fentes d'entrée et de sortie.

La résolvance  $R = \frac{\sigma}{\Delta \sigma}$  où  $\Delta \sigma$  est l'intervalle spectral résolu, c'est à dire l'intervalle minimal qui doit exister entre deux radiations pour que celles ci soient enregistrées séparément par l'instrument.

Dans le cas du Lidar  $\Delta\sigma$  est la largeur de la fonction d'appareil, c'est elle qui limite la résolution.

La luminosité  $L=\frac{\phi}{L_\sigma}$  où  $\phi$  est le flux émergent total et  $L_\sigma$  est la luminance monochromatique du rayonnement incident.

On peut montrer qu'une largeur angulaire égale des fentes d'entrée et de sortie assur au monochromateur la luminosité la plus élevée possible pour une résolvance donnée; le profil de la fonction d'appareil est alors triangulaire avec une largeur à mihauteur

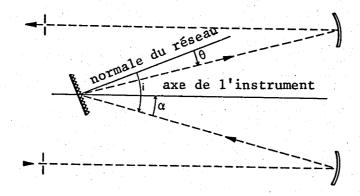


Fig. 1: Paramètres angulaires pour un montage CZERNY-TURNER

$$\Delta \sigma_{\rm cm} = \frac{\alpha}{d\theta/d\sigma}$$

avec α largeur angulaire de la fente de

 $\frac{d\theta}{d\sigma}$  dispersion angulaire

 $\alpha = \frac{1}{f}$  1: largeur de la fente de sortie en mm

### C.- FIGURE DE MERITE

La comparaison de monochromateurs entre eux a conduit les constructeurs et utilisateurs à définir une "figure de mérite" qui groupe les paramètres responsables de la qualité du monochromateur considéré.

Dans l'expression de la "figure de mérite", on peut montrer que pour une largeur de fentes donnée la luminosité L est proportionnelle au produit de quatre facteurs sur lesquelles on peut influer lors de la construction de l'appareil:

- la transmission T qui est la transmission de toutes les pièces optiques
- le rapport entre la hauteur de fentes h et la distance focale du collimateur f.
- la section du faisceau S au niveau du réseau
- la dispersion angulaire  $\frac{d\theta}{d\sigma}$

$$L \simeq T \left(\frac{h}{f}\right)$$
 .  $S\left(\frac{d\theta}{d\sigma}\right)$ 

L'étude de cette formule montre que la luminosité sera d'autant plus élevée que le nombre de surfaces optiques sera plus faible puisque cela améliorera T, ensuite que la distance focale en elle- même ne joue aucun rôle, mais que seul le rapport entre hauteur de fente et distance focale compte.

Par contre, le choix d'une distance focale longue, en conservant le même rapport  $\frac{h}{f}$ , permet d'atteindre facilement une résolution élevée; cependant, l'encombrement de l'appareil devient vite génant.

La section du faiseau S peut-être accrue en choisissant des réseaux de grandes dimensions, la seule limite est fixée par le prix de revient des réseaux. Enfin le rapport  $\frac{d\theta}{d\sigma}$  , dispersion angulaire, dépend du nombre de traits du réseau, puisqu'on travaille dans l'ordre l

# ANNEXE III : DIFFUSION DES AEROSOLS SOUS RAYONNEMENT LASER

L'intensité diffusée à un angle  $\theta$  pour une lumière incidente naturelle sur une sphère de rayon r est donnée par la relation :

$$F = \frac{I_{1} (\alpha, \eta, \theta) + I_{2}(\alpha, \eta, \theta)}{2 k^{2} z^{2}} \cdot F_{0}$$

avec Fo: intensité de l'onde incidente

 $I_1(\alpha,\eta,\theta)$ ,  $I_2(\alpha,\eta,\theta)$ : intensité de la fonction Mie pour une lumière dont le champ électrique est respectivement perpendiculaire et parallèle au plan des directions de propagation des ondes incidente et diffusée.

k : constante de propagation =  $\frac{2\pi}{\lambda}$ 

 $\alpha$  : paramètre de taille de la particule  $\frac{2\pi r}{\lambda}$ 

z : distance de l'observateur à la particule diffusante

η : indice complexe de réfraction

 $\theta$  : angle de diffusion mesuré par rapport à la direction de propagation

Pour une rétrodiffusion on montre que  $I_1(\alpha,\eta, 180^\circ) = I_2(\alpha,\eta, 180^\circ)$ Une particule présente une discontinuité optique à une lumière incidente, l'indice de réfraction de la particule étant plus grand que celui de l'air environnant, Cet indice complexe peut s'écrire :

 $\eta(\lambda) = \eta(\lambda) + \text{in}_i \ (\lambda); \ \text{la partie réelle correspond à la diffusion,}$  la partie imaginaire à l'ab'sorption.

Dans la plupart des cas, et en particulier pour les aérosols de panache, on peut supposer que la particule n'absorbe pas et donc  $\eta(\lambda) = \eta(\lambda)$ 

En appelant  $\sigma_A(\alpha,\eta)$  la section efficace Mie d'absorption pour une molécule en m $^2$   $\sigma_S(\alpha,\eta)$  la section efficace Mie de diffusion pour une molécule en m $^2$   $\sigma_E(\alpha,\eta)$  la section efficace Mie d'extinction pour une molécule en m $^2$ 

nous avons la relation  $\sigma_E = \sigma_A + \sigma_S$ 

Si la particule n'absorbe pas  $\sigma_E = \sigma_S$ ;

le facteur de rendement de la diffusion de la particule est donné par

$$Q_{S}(\alpha,\eta) = \frac{\sigma_{S}(\alpha,\eta)}{\pi r^{2}}$$
 (1)

Les tables de Mc Cormick donne  $Q_S$  pour  $\eta = 1,5$  et pour divers paramètres de taille  $\alpha$ 

 $\alpha = \frac{2\pi r}{\lambda} \quad \text{est fix\'e par le rapport du rayon de la particule suppos\'ee}$  sphérique sur la longueur d'onde excitatrice

Les tables donnent également  $I_1(\alpha, 1,5, 180^\circ)$ 

De  $I_1$  on peut déduire la section efficace de rétrodiffusion Mie de la particule

$$\sigma(180^{\circ}) = \frac{\lambda^2}{4\pi^2} I_1 (180^{\circ})$$

Pour r=  $0,5 \mu$ 

λ	α	$Q_{S}(\alpha, 1, 5)$	I <sub>1</sub> (α, 1,5,180°)	σ <sub>S</sub> m <sup>2</sup>	σ(180°) m <sup>2</sup>	
266 nm	11,81	2,794	208,55	2,19.10 <sup>-12</sup>	3,74.10 <sup>-13</sup>	
274,4nma	11,45	2,944	97,20	2,31.10 <sup>-12</sup>	1,85.10 <sup>-13</sup>	
283,6nm	11,08	3,094	264,15	2,43.10 <sup>-12</sup>	5,38.10 <sup>-13</sup>	1



\* M.P.Mc CORMICK, J.D.LAWRENCE, Jr . Tables of Mie Scattering Functions for particles with refractive index 1.5 - NASA Technical Notes - TN D- 5110-1969