

UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE

École doctorale : « Sciences du Numérique et de l'Ingénieur »

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE REIMS
CHAMPAGNE-ARDENNE

Discipline : Physique

Spécialité : Milieux dilués et Optique

Présentée et soutenue publiquement par

Laurent BIZET

Le 14 Février 2019

**Spectrométrie laser avec sources moyen
infrarouge largement accordables et
application à la détection de gaz**

Jury :

M.	Fabien BRETENAKER	Directeur de Recherche	LAC (Orsay)	Rapporteur
M.	Patrick CROZET	Chargé de Recherche	ILM (Lyon)	Rapporteur
M.	Philippe ADAM	Responsable Photonique	DGA/MRIS	Examineur
M.	Mathieu CARRAS	Directeur Général	MirSense	Examineur
M ^{me}	Virginie ZENINARI	Professeur	URCA-GSMA	Directrice de thèse
M.	Bertrand PARVITTE	Professeur	URCA-GSMA	Directeur de thèse
M.	Raphaël VALLON	Maitre de Conférences	URCA-GSMA	Encadrant

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes deux rapporteurs, Fabien Bretenaker et Patrick Crozet, ainsi que les autres membres du jury, Phillipe Adam et Mathieu Carras, pour avoir accepté de lire et évaluer mes travaux. Je les remercie également pour leurs questions et remarques pertinentes, ainsi que l'intérêt qu'ils ont porté à ma thèse.

Je remercie mes directeurs de thèse, Virginie Zeninari et Bertrand Parvitte, ainsi que mon encadrant, Raphaël Vallon, de m'avoir permis de travailler sur ce sujet. De même, je les remercie pour le temps qu'ils m'ont accordé ainsi que pour les connaissances et compétences apportées. La technologie des QCL est très intéressante et j'espère pouvoir continuer dans cette voie!

Enfin mes remerciements vont à tous mes collègues, amis et membres de ma famille qui m'ont soutenu au cours de ces années. Merci pour les moments de rire et de soutien lorsque cela a été nécessaire, ainsi qu'aux plus courageux qui ont insisté pour me faire sortir afin que je ne reste pas le nez dans mes recherches! Je vous remercie sincèrement.

Table des matières

Introduction	1
1 Présentation générale des Lasers à Cascade Quantique	9
1.1 Développement historique des QCL	9
1.2 Principe des QCL	10
1.2.1 Le concept fondamental : les superréseaux	10
1.2.2 Effet cascade et amplification d'une onde	11
1.3 Évolutions du laser à cascade quantique	14
1.3.1 Le QCL originel	14
1.3.2 Amélioration des QCL	17
1.3.3 Limites de l'effet cascade	18
1.4 Caractéristiques des QCL	20
1.4.1 Dissipation thermique	20
1.4.2 Divergence et polarisation	21
1.4.3 Cavité optique et équations laser	21
1.5 Conclusion	22
I Sources moyen infrarouge largement accordables basées sur des QCL	23
2 Les barrettes de QCL DFB	25
2.1 Les lasers DFB	25
2.2 La source Miriade	26
2.3 Enregistrement du spectre de transmission d'un gaz	30
2.3.1 Montage expérimental	30
2.3.2 Méthode d'acquisition et traitement	31
2.3.3 Résultats et discussion	32
2.4 Conclusion	34
3 La barrette multiplexée	35
3.1 Le multiplexeur/démultiplexeur	35
3.2 La barrette multiplexée	37
3.3 Enregistrement de spectres de gaz avec la barrette multiplexée	38
3.3.1 Montage expérimental	38

3.3.2	Méthode d'acquisition et traitement	39
3.3.3	Résultats et discussion	42
3.4	Conclusion	45
4	Les cavités étendues	47
4.1	Principe de fonctionnement	47
4.2	Balayage <i>mode hop-free</i>	49
4.2.1	Variation synchrone des longueurs des cavités	49
4.2.2	Revêtement anti-reflet	50
4.3	Les différentes configurations de cavité	52
4.3.1	Littrow face avant	53
4.3.2	Littrow face arrière	53
4.3.3	Littman face avant	53
5	La barrette de μSQCL cohérents montée en cavité étendue	55
5.1	Principe de la barrette de μ SQCL cohérents	57
5.2	Montage expérimental	59
5.3	Enregistrement du spectre de l'acétone	63
5.4	Conclusion	63
II	Sources basées sur la technique intracavité	65
6	Spectroscopie intracavité sans détecteur optique	67
6.1	La technique Intracavité (ICLAS)	67
6.1.1	ICLAS en régime impulsionnel multimode	68
6.1.2	ICLAS en régime continu monomode	71
6.2	Influence de la puissance intracavité sur la tension des QCL	72
6.3	Premier essai d'application de la technique EVIS	75
6.3.1	Caractéristiques de la cavité	75
6.3.2	Enregistrement du spectre d'un gaz	77
7	Technique EVIS et méthode de suppression des sauts de modes	81
7.1	Tests de différentes puces laser	81
7.1.1	Montage expérimental	81
7.1.2	Méthode de sélection et résultats	82
7.2	Montage expérimental pour l'EVIS	83
7.3	Tension du QCL	88
7.4	Comparaison entre puissance optique et tension du QCL	91
7.5	Méthode d'acquisition et traitements	94
7.5.1	Méthode d'acquisition	94
7.5.2	Traitement des traces	95
7.5.3	Différentes méthodes de traitement	97
7.6	Résultats préliminaires	102

7.7 Conclusion	105
Conclusion	107
Communications et publications	109

Introduction

La spectroscopie est l'étude des spectres des rayonnements électromagnétiques émis ou absorbés par un milieu. Son origine remonte à l'étude de la diffraction de la lumière solaire au travers d'un prisme par Isaac Newton en 1666. Il est le premier à réaliser une série d'expériences, présentées dans son traité d'optique *Opticks*, permettant de comprendre que la lumière blanche est composée de différentes couleurs. Depuis ce temps de nombreux progrès ont été réalisés et la spectroscopie n'est plus limitée à la seule région du visible. En effet le spectre électromagnétique est exploité de manière bien plus large, des ondes radios aux rayons gammas, en passant par l'infrarouge et l'ultraviolet. Les applications se situent dans de nombreux domaines : astrophysique, aéronomie, physique nucléaire, physique du solide, médical, etc... . De nombreux groupes et laboratoires utilisent et étudient quotidiennement cet aspect de la physique. Parmi eux se trouve le laboratoire GSMA (Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique, UMR CNRS - Université de Reims Champagne-Ardenne) qui combine spectroscopie moléculaire théorique et applications en physique de l'atmosphère et planétologie. Cette thèse s'est déroulée au sein de l'équipe SLA (Spectrométrie Laser et Applications) qui s'intéresse à la spectrométrie très haute résolution dans le domaine de l'infrarouge, ainsi qu'à ses applications en détection de gaz [1].

Dans le cadre de cette thèse c'est la région du moyen infrarouge qui est explorée, c'est-à-dire entre $2.5\ \mu\text{m}$ et $12\ \mu\text{m}$. L'intérêt de cette région est double. En effet, comme représenté sur la figure 1, il existe plusieurs fenêtres de transparence atmosphérique (en vert) dans lesquelles la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone n'absorbent presque pas. Ces fenêtres sont intéressantes pour des applications telles que la détection à distance de molécules, les télécommunications ou encore la contre-mesure optique (dont nous reparlerons par la suite).

L'autre aspect intéressant du moyen infrarouge concerne la détection de gaz. De nombreuses molécules y possèdent des raies d'absorption plus intenses que dans le proche infrarouge. Un exemple est tracé pour quelques molécules d'intérêt atmosphérique en figure 2. Grâce à la présence de fortes raies d'absorption, la région du moyen infrarouge est idéale pour détecter des concentrations de gaz plus faibles que dans le visible ou le proche infrarouge. Une représentation schématique des longueurs d'ondes de détection pour diverses molécules est réalisée en figure 3. Parmi les domaines concernés se trouve celui de la pollution, sujet toujours d'actualité avec la hausse des gaz polluants tels que le méthane (CH_4) et l'ammoniac (NH_3). De même est présent celui de la sécurité (par exemple dans les aéroports) pour laquelle le développement de systèmes capables de dé-

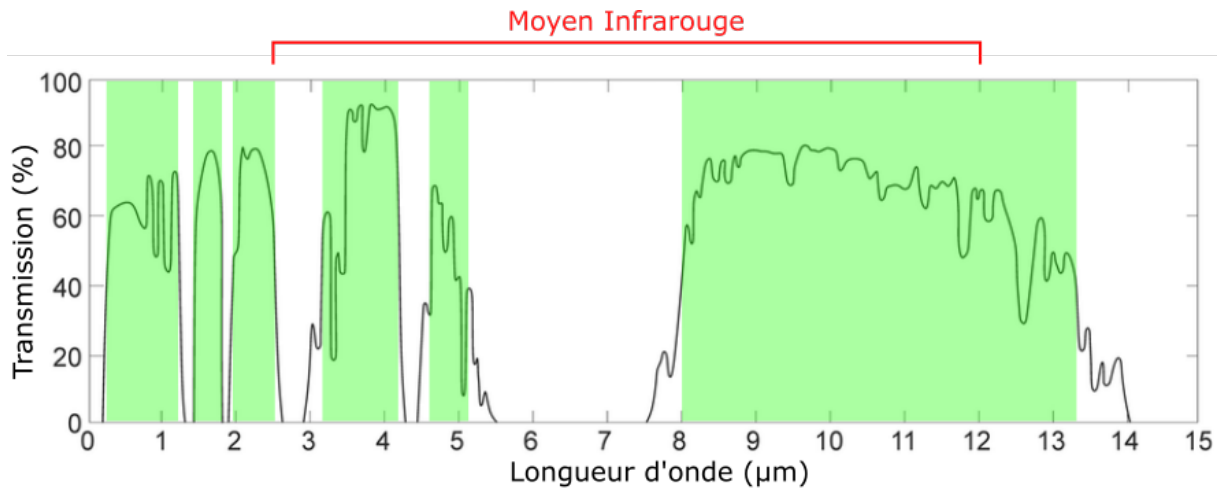


FIGURE 1: Transmission de l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde dans l'infrarouge (spectre tiré de [2]). Les fenêtres de transparence atmosphérique sont représentées en vert.

tecter des explosifs (TNT, TATP) est primordial. Enfin, pour clore cette liste d'exemples non exhaustive, le domaine médical est concerné, notamment pour des applications basées sur les émissions respiratoires (CO_2 , NO).

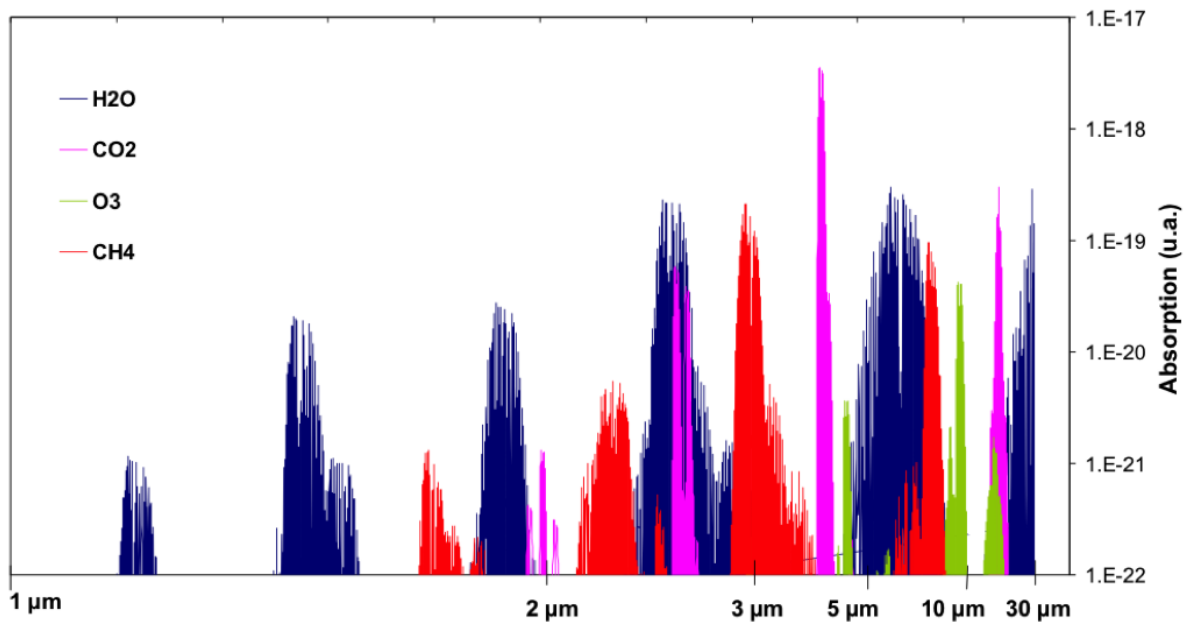


FIGURE 2: Exemple de raies d'absorption en fonction de la longueur d'onde dans l'infrarouge proche et moyen.

Comme nous venons de le voir, la région du moyen infrarouge est intéressante pour de nombreuses applications dans différents domaines. Afin d'atteindre cette région, diverses sources ont été développées. La figure 4 recense ces nombreuses sources infrarouges classées selon leur type (gaz, semi-conducteurs, lasers à fibre, etc...). Bien que quasiment toutes atteignent le moyen infrarouge, seuls les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) et les lasers à cascade quantique (QCL pour *Quantum Cascade Laser*) explorent une large

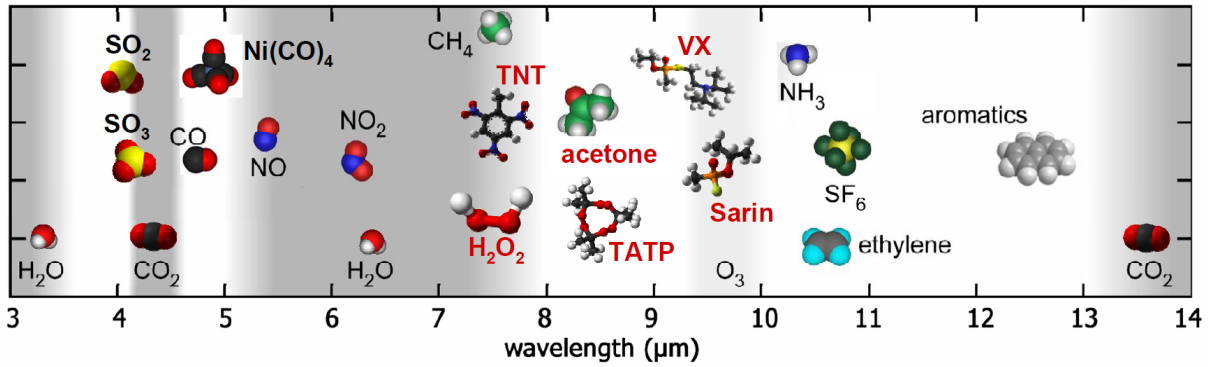


FIGURE 3: Molécules absorbantes dans le moyen infrarouge (image tirée de [3]).

gamme au delà de 5µm. Les OPO reposent sur le pompage optique d'un milieu non linéaire en cavité résonnante. Ils ont l'avantage de couvrir une large plage spectrale avec une forte puissance. Toutefois, ils nécessitent une forte puissance de laser de pompe et sont plus sensibles aux variations mécaniques que les QCL. En effet leur fonctionnement est fortement dépendant de l'alignement optique de différents éléments. Les QCL sont des lasers à semi-conducteur. Par rapport aux OPO, la source est de dimensions plus petites et est monolithique, ce qui les rend plus attractifs pour les applications industrielles. Cependant leur puissance moyenne ainsi que leur plage spectrale couverte sont inférieures.

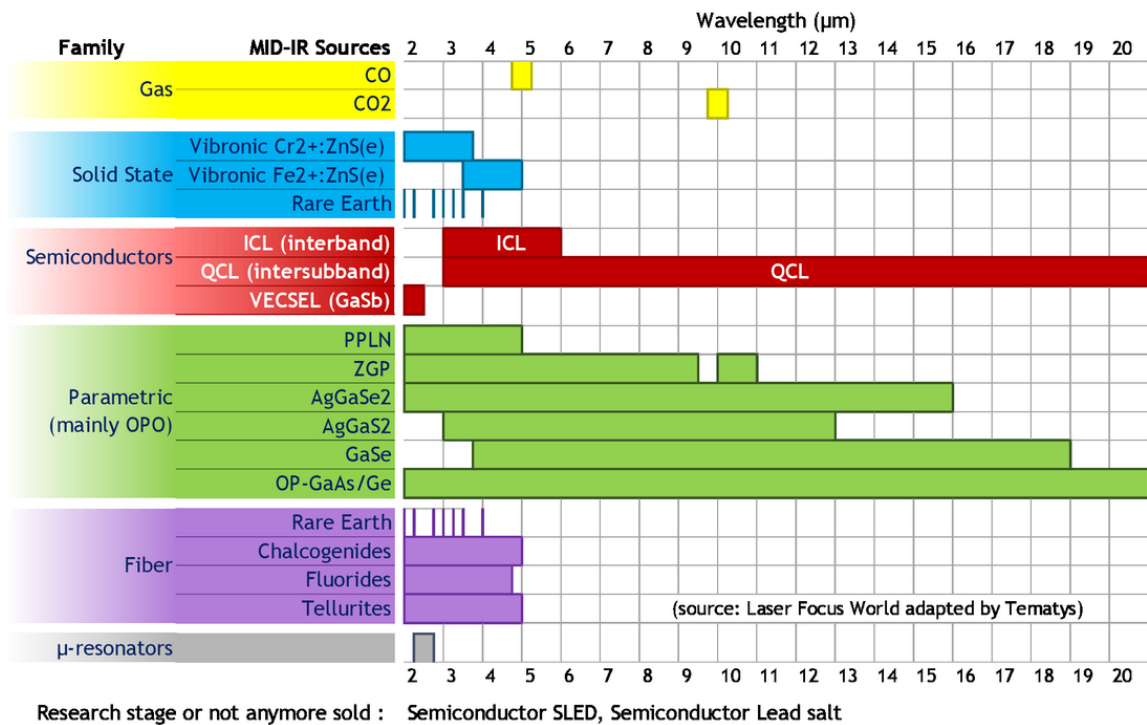


FIGURE 4: Sources lasers dans le moyen infrarouge en Mars 2016 (image tirée de [4])

Nous venons d'évoquer deux aspects importants des sources laser : la puissance et la plage d'accord spectrale.

La puissance est désirée pour de nombreuses applications. Par exemple, dans le cas de la contre-mesure optique [5, 6], un faisceau laser infrarouge aveugle un missile dont le système de guidage est basé sur la détection de sources de chaleur (tels les réacteurs d'un avion). Pour être efficace, le laser doit être capable d'émettre une puissance moyenne supérieure au watt avec une très bonne qualité de faisceau. Pour les applications spectroscopiques nous pouvons citer la spectrométrie photoacoustique [7, 8] et le LIDAR (*Light Detection and Ranging*) [9]. La spectrométrie photoacoustique est une technique de détection locale. Elle consiste à exciter un milieu gazeux avec des impulsions laser et mesurer l'onde acoustique résultant de la désexcitation non-radiative des molécules. Ce type de détection est réalisée au sein d'une cellule photoacoustique possédant une fréquence de résonance propre et équipée de microphones. Le signal obtenu est proportionnel à la puissance du laser. Le LIDAR est une technique de détection à distance. Des impulsions laser sont envoyées dans la zone d'intérêt, ce qui excite les molécules présentes sur le trajet optique. L'onde rétrodiffusée issue de la désexcitation des molécules est collectée grâce à un télescope dont l'axe est colinéaire à celui du laser. Le temps entre le tir et le signal rétrodiffusé permet de connaître la répartition spatiale des molécules. L'intensité du signal est proportionnelle à la concentration du gaz et à l'intensité du laser. On comprend donc que pour ces deux exemples la puissance du laser est bel et bien un paramètre incontournable.

De manière générale une grande plage d'accord est un atout pour un laser. Plus cette plage est petite et plus les applications sont limitées à des domaines spectraux restreints. Par exemple, sur la figure 4 les laser à CO_2 ne couvrent qu'une faible fraction du moyen infrarouge, ce qui les rend inexploitable pour nombres d'applications. L'autre intérêt d'un laser largement accordable est de résoudre les raies de molécules possédant un large spectre, ou encore de réaliser de la détection multi-gaz.

Compte tenu de ces critères, les QCL sont moins intéressants que les OPO. Cependant, si cela reste vrai pour les QCL commercialisés, des recherches sont effectuées dans le but de combler les lacunes de ces lasers. Parmi les solutions explorées nous pouvons citer les barrettes de QCL, systèmes monolithiques associant plusieurs lasers. Ces sources novatrices font l'objet de la première partie de ce manuscrit. Nous y détaillons leur principe de fonctionnement et présentons les résultats expérimentaux obtenus dans le cadre de l'enregistrement de spectres de gaz.

Dans cette introduction le sujet de la détection de gaz à été abordé plusieurs fois car beaucoup d'applications sont fondées dessus. La quasi-totalité des techniques de détection de gaz reposent sur les 3 éléments représentés en figure 5 : la source, le milieu d'étude et le détecteur. Le sujet des sources étant déjà traité, nous nous concentrons maintenant sur les deux éléments restants.

Nous appelons "milieu d'étude" l'endroit où se trouve le gaz d'intérêt. Ce milieu diffère selon la technique de détection utilisée. Le choix de la technique est basé sur les performances visées (résolution spectrale, sensibilité, etc...). Quelques exemples sont évoqués sur la figure 5 : cellule simple passage ou environnement (sans cellule) pour une

détection SPAS (*Single-Pass Absorption Spectroscopy*), cellule multipassage pour une détection MPAS (*Multi-Pass Absorption Spectroscopy*) [10, 11], cavité résonnante dans les cas de la CEAS (*Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy*) [12] et CRDS (*Cavity Ring-Down Spectroscopy*) [13]. Toutes ces techniques (hormis la SPAS) visent à augmenter la longueur de parcours dans le milieu gazeux. La MPAS augmente le nombre de passages dans le gaz grâce à de multiples réflexions dans une cellule multipassage. La CEAS et la CRDS exploitent l'oscillation des photons au sein d'une cavité résonnante. Le gaz est inséré dans la cavité. La longueur d'interaction est liée au temps de vie des photons dans la cavité. Ces deux techniques diffèrent sur l'observation de l'intensité en sortie : pour la CEAS c'est une diminution totale d'intensité (comme pour une SPAS) tandis que pour la CRDS c'est la diminution de l'intensité après chaque tour de cavité qui est observée.

Toutefois, quelle que soit la technique utilisée, un détecteur est nécessaire pour collecter les photons après le milieu d'étude. Dans le moyen infrarouge il en existe principalement deux types : les thermiques et les photoniques. Les premiers reposent sur l'élévation de la température due au rayonnement infrarouge. Les seconds reposent sur la génération d'un photocourant. Ces derniers possèdent une meilleure sensibilité et un meilleur temps de réponse mais ils doivent généralement être refroidis à des températures cryogéniques pour diminuer le bruit thermique. Le choix du détecteur est dépendant de la longueur d'onde de la source. En effet, les matériaux utilisés dans la fabrication des détecteurs ne permettent de détecter que sur une gamme spectrale donnée.

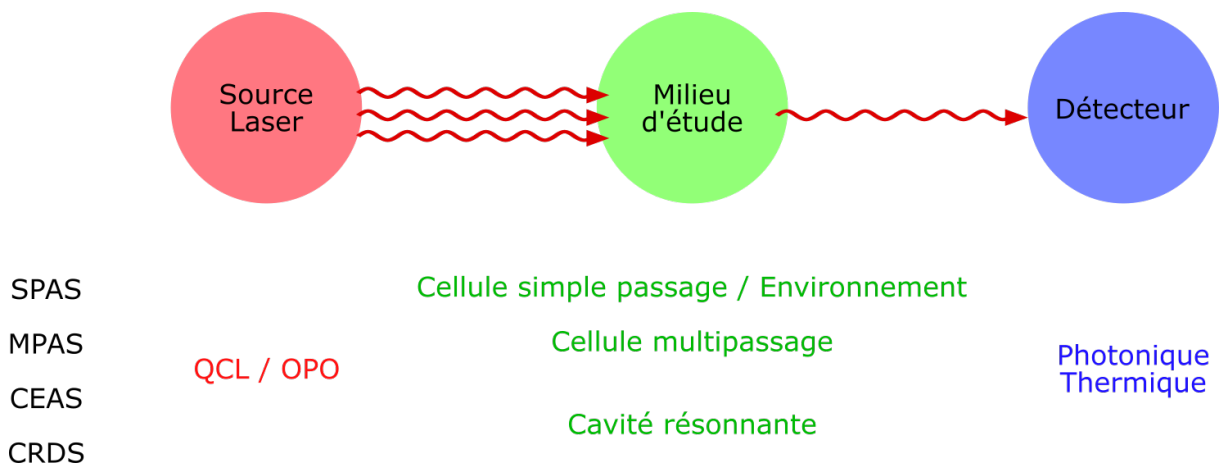


FIGURE 5: Schématisation des 3 éléments pour la détection de gaz par spectrométrie laser.

Les travaux de cette thèse ont également porté sur le développement d'un dispositif permettant de combiner la source, le milieu d'étude et le détecteur comme représenté en figure 6. Ce dispositif fait l'objet de la seconde partie de ce manuscrit. Il est fondé sur la méthode intracavité (ou ICLAS pour *IntraCavity Laser Absorption Spectroscopy*) [14] où le gaz est introduit dans la cavité laser. La source est un QCL monté en cavité étendue (EC-QCL) et l'obtention du spectre est réalisée à travers la mesure de la tension du laser. Ce dispositif permet d'enregistrer localement le spectre d'un gaz sur une grande plage spectrale et fonctionne quelle que soit la longueur d'onde de la source.

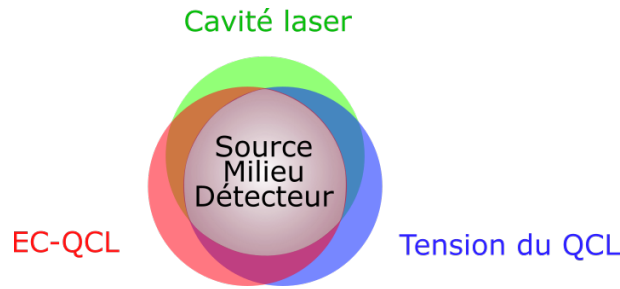


FIGURE 6: Représentation schématique de la méthode basée sur l'ICLAS utilisée dans cette thèse.

Le manuscrit est divisé en 7 chapitres dont le fil conducteur est l'enregistrement de spectres de gaz dans le moyen infrarouge à partir de QCL. Néanmoins les sources exploitées sont très différentes les unes des autres, chacune possédant ses avantages.

Le premier chapitre est une introduction aux lasers à cascade quantique. Il retrace l'évolution de cette technologie tout en apportant des éléments nécessaires à la compréhension de son fonctionnement.

Le second chapitre présente une des sources étudiées dans ce manuscrit : les barrettes de QCL-DFB (*Distributed FeedBack*). Il détaille la méthode expérimentale mise en œuvre pour enregistrer un spectre de gaz avec cette source largement accordable.

Le troisième chapitre est lié au second. Une barrette de QCL-DFB est associée avec un dispositif multiplexeur, supprimant ainsi un des défauts majeurs des barrettes de lasers. le principe de fonctionnement du multiplexeur y est expliqué, ainsi que celui de la technique intrapulse utilisée pour enregistrer le spectre du gaz.

Les cavités étendues font l'objet du quatrième chapitre. Le principe de ce type de montage y est expliqué. Les notions de balayage spectral sans sauts de modes et les différentes configurations de cavité sont également présentées.

Un autre type de source est présenté dans le cinquième chapitre : les barrettes de QCL cohérents. Il y est décrit le montage de cette source potentiellement de forte puissance dans une cavité étendue ainsi que l'enregistrement d'un spectre.

Le sixième chapitre introduit la technique intracavité. Il aborde ensuite la relation entre la tension du laser et la puissance dans la cavité. Enfin il y est expliqué la première application de la méthode sans détecteur optique pour obtenir un spectre.

Le septième et dernier chapitre détaille le même type de montage que le chapitre précédent, avec toutefois une amélioration incontestable des performances obtenues. Dans ce chapitre figurent également l'explication des méthodes d'acquisition et de traitement pour améliorer la résolution du spectre.

Avant de débiter la lecture de ce manuscrit quelques précisions sont nécessaires. Les barrettes de laser exploitées dans ce manuscrit sont encore en stade de recherche. Ces sources ne sont pas répandues et sont actuellement utilisées en laboratoire. De même, la technique ICLAS sans détecteur optique est très récente et peu utilisée (à notre connaissance seule une équipe l'a déjà exploitée). La marge de progression est donc énorme par rapport aux résultats obtenus. Ces derniers sont néanmoins intéressants comme le

prouvent les publications parues [15, 16] (une autre sur l'ICLAS est en cours de rédaction à l'écriture de ces lignes, mais les résultats ont déjà fait l'objet de présentations orales dans des congrès internationaux).

Chapitre 1

Présentation générale des Lasers à Cascade Quantique

1.1 Développement historique des QCL

L'histoire des lasers à cascade quantique (QCL pour *Quantum Cascade Laser*) débute en 1970 avec un article écrit par Esaki et Tsu [17]. Ils y établissent le concept de superréseau dans un semi-conducteur, ce qui deviendra la base du fonctionnement des QCL. L'année suivante, Kazarinov et Suris proposent l'idée d'amplifier une onde électromagnétique à partir d'un superréseau soumis à un champ électrique externe [18]. Les transitions radiatives se produisent entre des états créés par la structure du superréseau donc ce n'est plus la bande interdite du semi-conducteur qui fixe la longueur d'onde. Le concept est novateur, mais la technologie de l'époque ne permet pas de le mettre en application. Il faudra attendre plus de 20 ans pour que la technologie, notamment l'épitaxie par jet moléculaire, atteigne la maturité nécessaire pour produire de manière fiable des couches ultra-minces avec une précision de l'ordre du nanomètre. C'est ainsi qu'en 1994 Faist observe pour la première fois un effet laser à $4.3\ \mu\text{m}$ dans ce type de structure : c'est la naissance du QCL [19]. Ce premier modèle fonctionnait en régime impulsionnel à température cryogénique mais les progrès dans le domaine ont été fulgurants. En 1995 le régime continu est atteint à des températures similaires [20], en 1996 le fonctionnement à température ambiante en régime impulsionnel est obtenu [21] et l'année 1997 voit l'apparition du premier QCL équipé d'un système à rétroaction répartie (ou DFB pour *Distributed FeedBack*) [22]. Pour clore cette série d'événements non exhaustive nous citerons l'exploration du domaine terahertz [23] et le fonctionnement en régime continu à température ambiante [24] tous deux réalisés en 2002. Actuellement le domaine spectral couvert par les QCL s'étend de 3 à $315\ \mu\text{m}$ [25,26], le régime continu à température ambiante est maîtrisé et on atteint couramment des puissances de l'ordre du watt [27,28] avec un record en régime impulsionnel à 120 W [29].

Les applications des lasers à cascade quantique sont variées et couvrent des domaines tels que la détection de gaz environnementaux [30–32], la défense et sécurité (contre-mesure infrarouge [33] ou détection d'explosifs [34,35]) ou encore le biomédical [36]. Le sujet a connu un véritable envol au cours de ces 20 dernières années comme le montre la

figure 1.1 et reste attractif de part les domaines spectraux qu'il permet d'aborder.

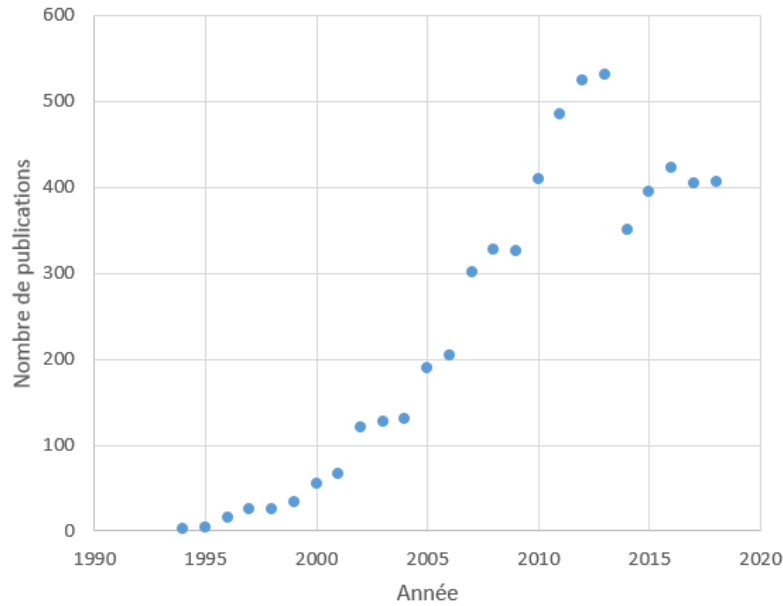


FIGURE 1.1: Nombre de publications sur les lasers à cascade quantique publiés par année. Source : Scopus.

1.2 Principe des QCL

Dans cette partie nous allons présenter le fonctionnement et les caractéristiques des lasers à cascade quantique. Dans un premier temps nous nous focaliserons sur le principe de fonctionnement des QCL, puis nous montrerons l'évolution du concept jusqu'à aujourd'hui. Enfin nous aborderons des aspects plus conventionnels des lasers tels que la dissipation thermique et les équations de taux.

1.2.1 Le concept fondamental : les superréseaux

Les lasers à cascade quantique reposent sur l'utilisation de superréseaux. Un superréseau est une alternance périodique de couches ultraminces d'au moins deux matériaux. En utilisant des matériaux semi-conducteurs on peut créer une succession de puits quantiques au sein de la bande de conduction du système. Cette structure 1D périodique de puits de potentiels est créée selon l'axe de croissance des couches (aussi appelé axe vertical). La période est plus petite que la longueur d'onde de de Broglie des électrons, donc il y a un phénomène de confinement quantique où le mouvement des électrons est confiné selon l'axe de croissance. Ceci mène à la création de bandes d'énergie discrètes au sein de la structure comme représenté sur la figure 1.2. On parle alors de sous-bandes d'énergie car elles sont situées dans une même bande, en l'occurrence la bande de conduction.

Les électrons peuvent passer d'une sous-bande à une autre par absorption ou émission d'un photon. Dans la pratique, la structure est réalisée de façon à former des états

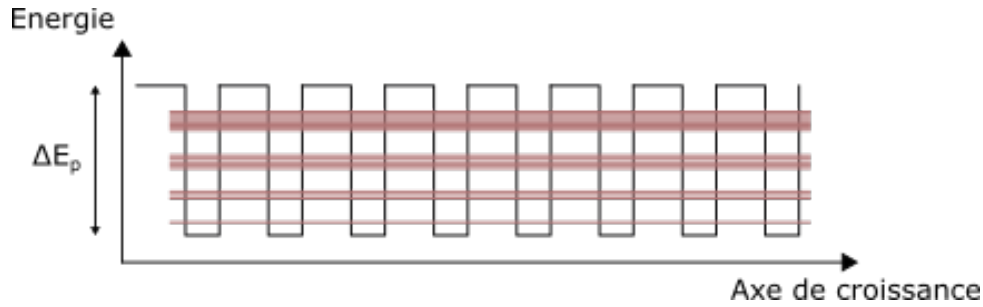


FIGURE 1.2: Représentation schématique d'un superréseau. ΔE_p est la profondeur des puits de potentiel. Les états créés par la structure forment des bandes d'énergie (en rouge).

quantiques séparés et non des sous-bandes d'énergie, donc nous nous placerons dans ce cas pour la suite des explications. Les transitions électroniques dans les lasers à cascade quantique diffèrent donc de celles des lasers semi-conducteurs classiques. Ces différences sont représentées sur la figure 1.3. Dans le cas d'un semi-conducteur (type jonction pn par exemple) la transition radiative s'effectue par recombinaison d'un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de valence. La transition est donc dite interbande et deux types de charges participent au phénomène. L'énergie du photon émis est déterminée par la largeur de la bande interdite. Pour un laser à cascade quantique la transition radiative s'effectue par désexcitation d'un électron entre les états créés par le superréseau. La transition est dite intrabande (aussi dite intersousbande) et n'implique qu'un seul type de charge. L'énergie du photon est déterminée par l'écart en énergie entre les états. Ainsi on s'affranchit de la limite imposée par la bande interdite qui est une contrainte majeure dans la fabrication des lasers semi-conducteurs, notamment pour les longueurs d'onde infrarouges. Les niveaux d'énergie accessibles pour les électrons sont déterminés par les paramètres des puits (largeur et profondeur). Cet aspect des QCL est une de leurs grandes forces puisqu'il est ainsi possible d'utiliser les mêmes matériaux pour produire des lasers à des longueurs d'ondes différentes. Cette grande versatilité a permis de fabriquer des QCL sur de grandes plages spectrales dans le moyen infrarouge sans contraintes liées à la technologie des matériaux semi-conducteurs. Pour comprendre l'impact de cette technologie, il faut rappeler qu'avant son apparition on ne pouvait atteindre le moyen infrarouge vers $10\ \mu\text{m}$ qu'avec des laser semi-conducteurs utilisant des matériaux IV et VI. Ces lasers, appelés lasers à sels de plomb, étaient peu fiables, ce qui ne leur a jamais permis de s'imposer.

1.2.2 Effet cascade et amplification d'une onde

L'idée d'amplifier une onde électromagnétique à partir d'un superréseau est émise par Kazarinov et Suris en 1971 [18]. Pour expliquer ce concept nous nous reposerons sur l'utilisation d'une structure périodique comme celle représentée en figure 1.4. Les puits quantiques sont identiques et possèdent chacun 3 niveaux d'énergie distincts. La transition du niveau 3 vers le niveau 2 est radiative tandis que celle entre les niveaux 2 et 1 s'effectue par émission d'un phonon optique longitudinal. Les barrières de potentiel sont

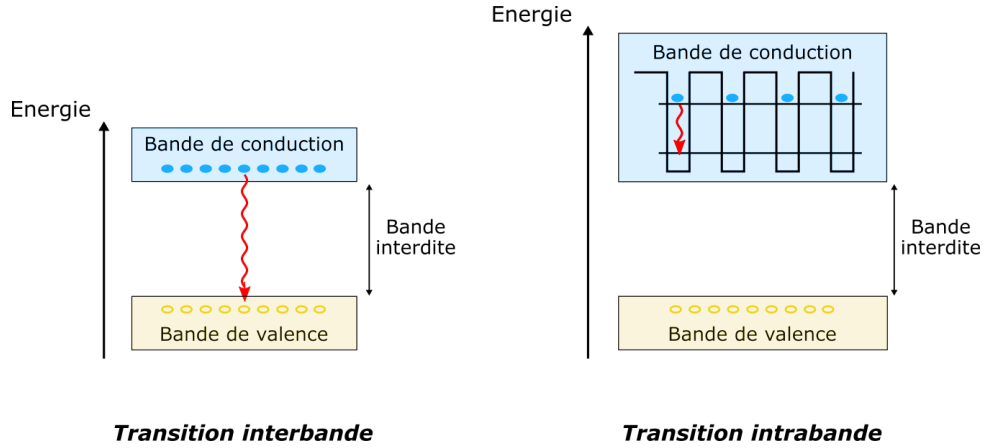


FIGURE 1.3: Différences entre les transitions interbande et intrabande. Les ronds bleus représentent les électrons et les cercles jaunes les trous. Les transitions radiatives sont symbolisées par les flèches rouges ondulées.

suffisamment fines pour autoriser le passage des électrons d'un puits à l'autre par effet tunnel. Si l'on garde le système tel quel ($V=0$), l'injection d'électrons dans le matériau servirait à peupler principalement le niveau 3 du premier puits. Après avoir effectué les transitions citées précédemment les électrons traversent le matériau par effet tunnel entre les niveaux bas des puits. On a donc un rendement de 1 photon produit par électron injecté comme dans le cas d'un laser semi-conducteur classique. De plus seul un puits suffit et la structure n'est pas exploitée au maximum. Par contre si la structure est soumise à un potentiel électrique externe V on peut décaler les puits de potentiels les uns par rapport aux autres. À $V = V_{th}$ on se retrouve ainsi dans une configuration où le niveau bas d'un puits possède une énergie proche du niveau haut du puits suivant. De ce fait les électrons injectés dans le premier puits se désexcitent puis passent par effet tunnel dans le puits suivant où ils subissent à nouveau une désexcitation, et ainsi de suite autant de fois qu'il y a de puits. On parle alors d'effet cascade pour désigner ce recyclage des électrons au travers de la structure. Dans le cas idéal le rendement est de n photons produits par électron injecté (n étant le nombre de puits).

L'amplification d'une onde n'est toutefois possible que si la condition d'inversion de population est respectée, autrement dit si $n_3 > n_2$ (n_i étant la densité surfacique électronique du niveau i , $i = 1, 2, 3$). On définit τ_i le temps de vie du niveau i et J la densité de courant injectée dans le QCL. La population du niveau 3 du $m^{\text{ième}}$ puits s'exprime comme

$$n_3 = \frac{\eta_m J}{e} \tau_3 \quad (1.1)$$

où e est la charge élémentaire de l'électron et η_m l'efficacité d'injection dans le $m^{\text{ième}}$ puits. Dans le cas idéal $\eta_m = 1$ et les électrons sont tous recyclés dans chaque puits. En réalité $\eta_m < 1$ à cause de pertes telles que l'excitation thermique des électrons vers le continuum ou l'injection directe dans le niveau 2. Ces phénomènes peuvent être minimisés au moment de la conception du QCL et nous y reviendrons par la suite. Nous allons considérer un cas où le niveau 2 n'est peuplé que par la désexcitation du niveau 3. La

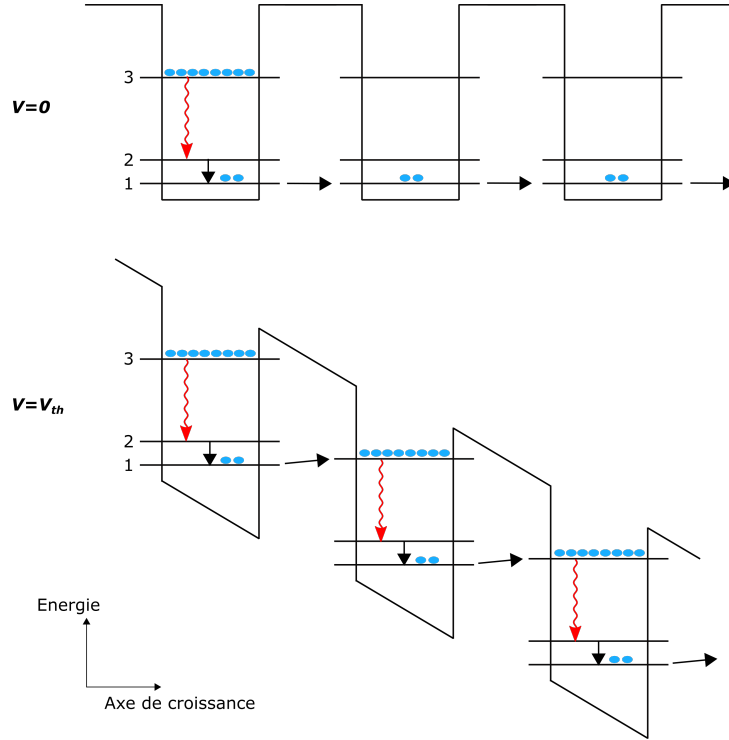


FIGURE 1.4: Représentation schématique de l'effet cascade. À potentiel électrique V nul les électrons traversent le matériau via succession de saut par effet tunnel entre les états bas des puits. En présence d'un champ suffisamment fort les niveaux se décalent en énergie les uns par rapport aux autres. Les électrons sont alors recyclés et subissent plusieurs désexcitations radiatives (flèche rouge).

densité électronique du niveau 2 s'exprime comme

$$n_2 = n_3 \frac{\tau_2}{\tau_{32}} \quad (1.2)$$

avec τ_{32} le temps moyen de désexcitation du niveau 3 vers le niveau 2. On obtient alors

$$n_3 - n_2 = \frac{\eta_m J}{e} \tau_3 \left(1 - \frac{\tau_2}{\tau_{32}} \right) \quad (1.3)$$

En négligeant les pertes non radiatives du niveau 3 on a $\tau_3 = \tau_{32}$ et

$$n_3 - n_2 = \frac{\eta_m J}{e} (\tau_3 - \tau_2) \quad (1.4)$$

L'inversion de population est donc possible si $\tau_3 > \tau_2$. Cette condition est atteinte par la différence de nature des transitions : la transition radiative est plus longue que la transition par émission d'un phonon. Une conséquence importante est que l'inversion de population ne possède pas de seuil de pompage mais est présente dès le premier électron injecté.

Il est aussi intéressant de noter que les temps de vie des niveaux sont bien plus courts que ceux des autres lasers. Pour les transitions intrabandes ces temps sont de quelques picosecondes, voire même inférieurs à la picoseconde. La largeur spectrale de la transition

est donc bien plus importante que dans le cas d'une diode laser, par exemple, où l'ordre de grandeur est la nanoseconde. Le gain d'un tel système est donc très large et peut couvrir plusieurs centaines de cm^{-1} [37].

Pour résumer cette structure est donc un milieu amplificateur sans seuil de pompage qui possède un gain très large. On pourrait alors penser qu'il suffit de la placer dans une cavité optique résonante pour avoir un laser. En réalité le système proposé par Kazarinov et Suris n'est pas applicable expérimentalement puisque l'accumulation d'électrons dans les puits provoque la formation de zones de charges d'espaces [38,39]. Cela crée des régions de forts champs électriques et la tension au travers de la structure n'est plus uniforme : le système est électriquement instable.

1.3 Évolutions du laser à cascade quantique

1.3.1 Le QCL originel

Nous allons nous intéresser au tout premier QCL, fabriqué dans le laboratoire Bell en 1994 par Faist et al. [19]. Afin d'avoir un système réalisable expérimentalement la structure a évolué : l'alternance puits/barrière est remplacée par une alternance zone active/zone d'injection comme représenté en figure 1.5. Ces zones sont composées d'une succession de puits et barrières avec des caractéristiques différentes. Les transitions radiatives ont lieu dans les zones actives, les zones d'injection servent à assurer la stabilité électrique du système et le transport des électrons. Le QCL est ainsi composé de 500 couches de GaInAs-AlInAs qui forment 25 périodes (1 période ou étage = 1 zone active + 1 zone d'injection) et émet à $4.26 \mu\text{m}$. Nous allons traiter séparément l'architecture de la zone d'injection et de la zone active pour expliquer le fonctionnement du système.

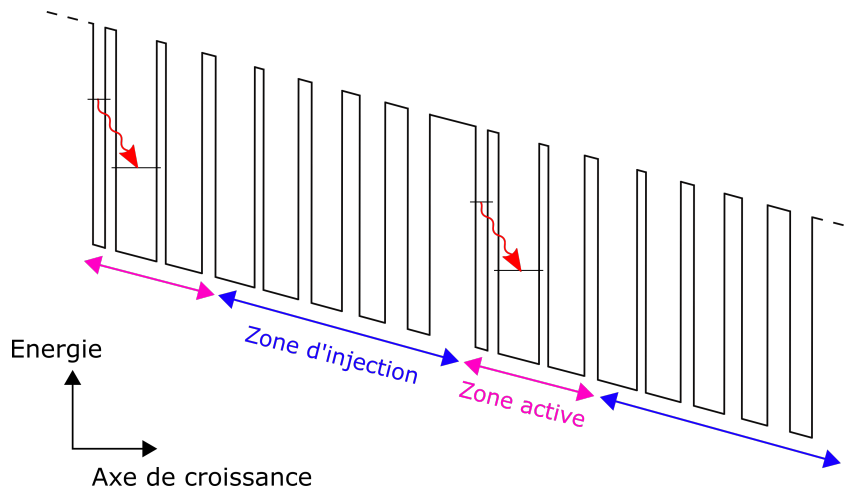


FIGURE 1.5: Schéma simplifié du diagramme de bande du premier laser à cascade quantique.

La zone d'injection ou l'injecteur

Le fonctionnement de la zone d'injection est basé sur la variation de l'énergie d'un état avec la largeur du puits. Plus un puits est large et plus l'énergie de l'état est basse. La zone d'injection est formée d'une succession de puits quantiques d'épaisseurs décroissantes dans le sens de propagation des électrons. De cette manière, en l'absence de potentiel électrique externe l'énergie des niveaux est croissante (fig.1.6) et s'oppose au passage des électrons.

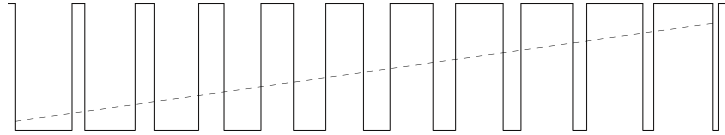


FIGURE 1.6: Diagramme de bande d'une zone d'injection à potentiel nul. L'énergie croissante (pointillés) bloque le passage des électrons.

Ceci étant répété à chaque période, le diagramme de bande à potentiel nul possède une forme en dents de scie (fig. 1.7). Sous l'action d'un potentiel électrique externe le diagramme adopte une forme d'escalier qui permet de retrouver l'effet cascade.

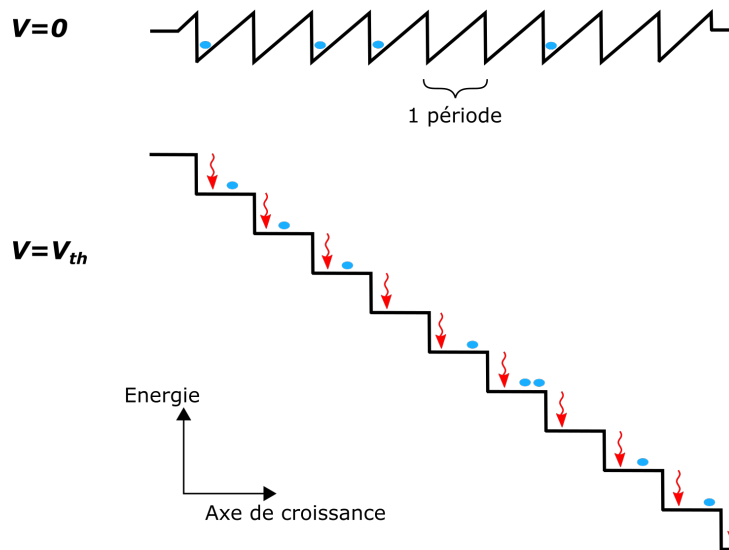


FIGURE 1.7: Schéma de principe de fonctionnement de la zone d'injection. À champ qV nul les électrons sont bloqués par le potentiel en dents de scie. En présence d'un potentiel élevé les dents de scies "s'aplatissent" et l'effet cascade devient possible.

Pour régler le problème d'instabilité électrique la zone d'injection est dopée n [38]. En conditions de fonctionnement les charges positives fixes (atomes ionisés) de la zone d'injection compensent les charges négatives mobiles de la zone active. La neutralité électrique est ainsi assurée sur la période donc le champ électrique est nul (loi de Gauss). Toutes les périodes sont dans le même état électrostatique et ne perturbent pas le passage du courant. Le système est électriquement stable. Grâce au dopage n les zones d'injection ont aussi le rôle de réservoirs à électrons puisque les charges négatives mobiles alimentent les zones actives suivantes en conditions de fonctionnement.

La zone active

La zone active est une région non dopée composée de 3 puits quantiques (fig. 1.8). Il existe deux types de transitions :

- diagonale : l'état du premier puits est en résonance avec l'état haut du second puits. La transition radiative se fait entre les deux puits.
- verticale : l'état du premier puits possède une énergie plus grande que l'état haut du second puits. La transition radiative se fait au sein du second puits.

C'est donc la largeur du premier puits qui définit le type de transition. Le premier laser à cascade quantique utilisait des transitions diagonales. En effet, les fonctions d'onde étant localisées dans deux puits différents, le temps de vie du niveau haut est plus grand que dans le cas d'une transition verticale où les fonctions d'onde ont un meilleur recouvrement. L'inversion de population est par conséquent plus importante donc le gain du laser meilleur.

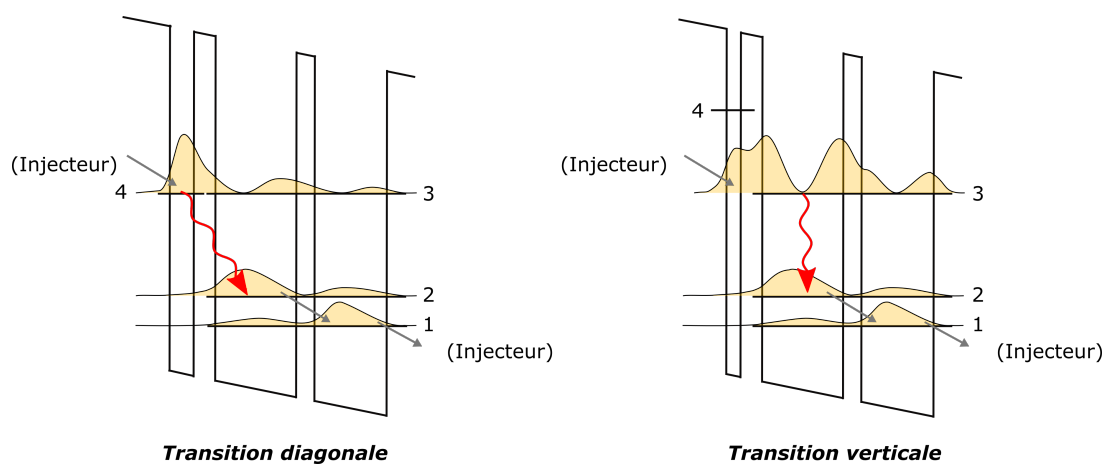


FIGURE 1.8: Représentation de zones actives basées sur 3 puits quantiques. Les surfaces oranges correspondent aux carrés des fonctions d'ondes.

Le second et le troisième puits sont conçus de telle sorte que l'énergie entre les niveaux 1 et 2 soit égale à l'énergie d'un phonon optique longitudinal. La comparaison a été faite expérimentalement, dans une publication ultérieure [40], entre cette configuration et une autre où il n'y a qu'un seul état bas. Le gain est multiplié par 2.8 avec la résonance à 1 phonon car elle permet de diminuer le temps de vie du niveau 2 et donc d'augmenter l'inversion de population.

L'extraction des électrons se fait par effet tunnel du niveau 1 vers l'injecteur. On retrouve alors le système présenté dans la section 1.2.2 permettant d'amplifier une onde électromagnétique mais tout en étant électriquement stable.

Quelques paramètres optimisables

Ce premier laser à cascade quantique fonctionnait à température cryogénique (entre 10 et 90 K), en régime impulsif (20 ns de durée, rapport cyclique de 10^{-3}) et possédait une puissance optique maximale de 10 mW. Entre ce premier modèle et des modèles

actuels, qui fonctionnent en régime continu à température ambiante avec des puissances de l'ordre du watt, de nombreuses améliorations ont été nécessaires. En particulier il a fallu améliorer deux critères :

- Minimisation des pertes du laser. Des électrons peuvent passer directement du niveau 3 vers l'injecteur. Ils ne participent donc pas à l'amplification de l'onde.
- Amélioration de l'extraction vers l'injecteur. Dans ce QCL les temps de vie des niveaux 3, 2 et 1 sont respectivement 4.3 ps, 0.6 ps et 0.5 ps. Si l'on regarde uniquement les temps de vie des niveaux 3 et 2 il y a un facteur 7 donc l'inversion de population est obtenue. Cependant ce facteur est quasiment égal à 1 entre les niveaux 2 et 1. Du fait de ces temps de vie similaires les électrons présents dans le niveau 1 ont la possibilité de repeupler le niveau 2. Ce phénomène diminue l'inversion de population et mène à un temps total d'extraction de 2 ps.

Notons également que la transition diagonale comporte un inconvénient : la désexcitation se faisant entre deux puits différents l'écart en énergie est sensible à la variation du champ électrique. Bien que le phénomène ait été exploité quelques années plus tard pour obtenir un QCL émettant à deux longueurs d'ondes différentes selon le champ appliqué [41], il est préférable d'avoir un système insensible aux perturbations extérieures. Ce problème n'existe pas pour une transition verticale puisque la désexcitation se fait au sein d'un puits. Cependant une transition verticale implique une réduction du temps de vie du niveau 3, donc l'impact du repeuplement du niveau 2 est d'autant plus grand sur l'inversion de population.

1.3.2 Amélioration des QCL

L'amélioration des performances des lasers à cascade quantique est encore aujourd'hui un sujet d'actualité. Dans cette partie nous nous concentrerons sur les principaux progrès corrigeant les défauts du premier QCL. La première amélioration concerne la perte des électrons vers l'injecteur. En 1995 Faist et al. modifient la structure de ce dernier [42] : elle est basée sur un superréseau de Bragg qui crée une minibande interdite dans l'injecteur (fig. 1.9). En conditions de fonctionnement cette minibande est alignée avec le niveau haut, empêchant ainsi les électrons de passer dans le continuum par effet tunnel. La deuxième amélioration concerne l'extraction vers l'injecteur. En 2000 Hofstetter et al. ajoutent un quatrième puits dans la zone active [43] (fig. 1.9) ce qui forme 3 états séparés par l'énergie d'un phonon optique. Cette configuration dite "résonance à deux phonons" amoindrit considérablement le repeuplement du niveau bas et par conséquent augmente le gain du laser.

Une autre configuration également utilisée se nomme "bound-to-continuum" [44] et est représentée en figure 1.10. Dans ce cas il n'y a pas de séparation entre zone active et injecteur et la transition radiative s'effectue entre deux minibandes. Néanmoins dans la minibande haute seul l'état de plus basse énergie participe à la transition [45]. D'autres états (non représentés sur la figure) existent mais possèdent des énergies trop élevées pour être peuplés. Dans la minibande basse plusieurs états sont accessibles donc le gain du laser est plus large que dans les cas précédents. Le transport des électrons se fait par

effet tunnel dans la minibande basse jusqu'à la période suivante.

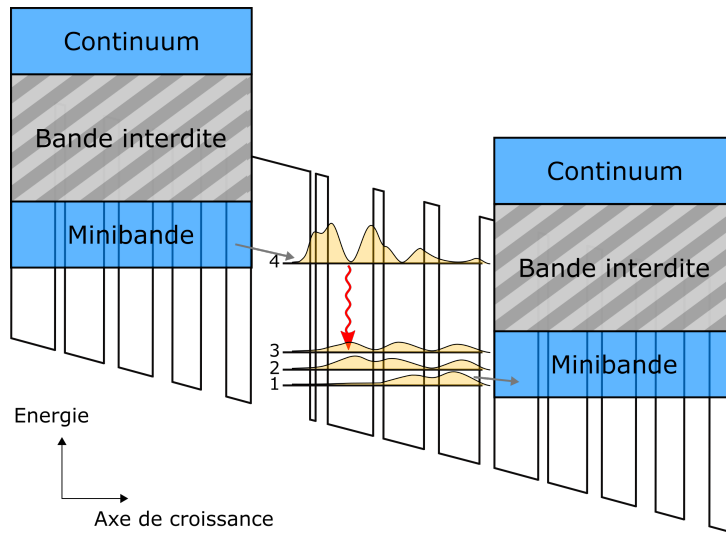


FIGURE 1.9: Représentation du principe de fonctionnement d'un QCL résonance à deux phonons.

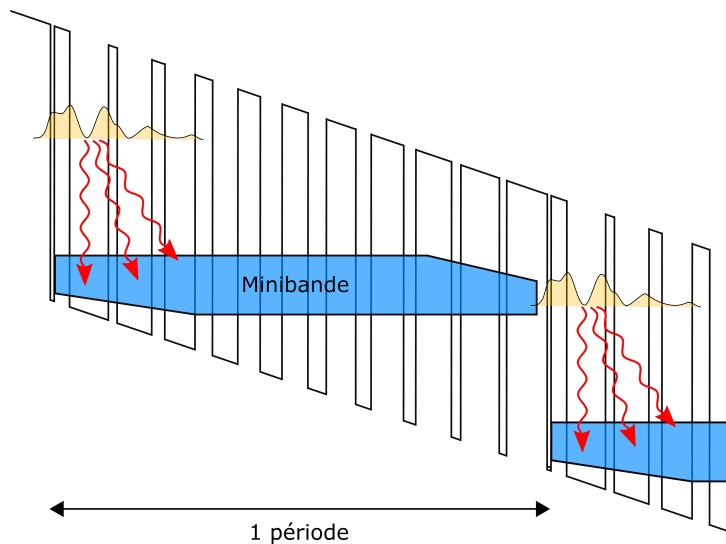


FIGURE 1.10: Représentation simplifiée du diagramme de bande d'un QCL bound-to-continuum.

1.3.3 Limites de l'effet cascade

L'effet cascade permet de recycler un électron au travers d'une succession de périodes. On est alors tenté de dire que plus il y a d'étages et plus le gain du laser est important. Cette idée est valide dans un premier temps car l'augmentation du nombre de périodes implique deux choses : une hausse du nombre de photons générés par électrons injectés et un meilleur recouvrement du mode transverse. Cependant accroître le nombre de périodes implique également une augmentation de la tension à appliquer. On comprend facilement ceci en regardant la forme d'escalier en figure 1.7 : une période supplémentaire signifie

une marche d'escalier en plus. Par conséquent la puissance électrique injectée dans le QCL augmente, et au delà d'un certain nombre d'étages les pertes par excitation thermique (dues à l'effet Joule) augmentent plus rapidement que le gain. Il existe plusieurs phénomènes thermiques qui diminuent l'inversion de population (cf figure 1.11) :

- Le repeuplement (*backfilling*) : les électrons sont excités de l'injecteur vers le niveau bas de la zone active précédente. Le nombre d'électrons par unité de surface n_3^{therm} qui repeuplent le niveau 3 s'exprime comme [46] :

$$n_3^{therm} = n_{inj} \exp\left(-\frac{\Delta_{inj}}{k_B T_{el}}\right) \quad (1.5)$$

où n_{inj} est la densité surfacique électronique de l'injecteur, Δ_{inj} la différence d'énergie entre le niveau 3 et le niveau de Fermi de l'injecteur, k_B la constante de Boltzmann et T_{el} la température électronique.

- La perte vers le continuum. Si l'excitation est suffisamment forte les électrons peuvent atteindre le continuum au dessus de la bande interdite. La densité surfacique d'électrons excités s'exprime comme [47] :

$$n_4^{cont} = n_4 \exp\left(-\frac{\Delta E_p - E_4}{k_B T_{el}}\right) \quad (1.6)$$

où n_4 est la densité surfacique électronique de l'état 4 et ΔE_p la profondeur des puits.

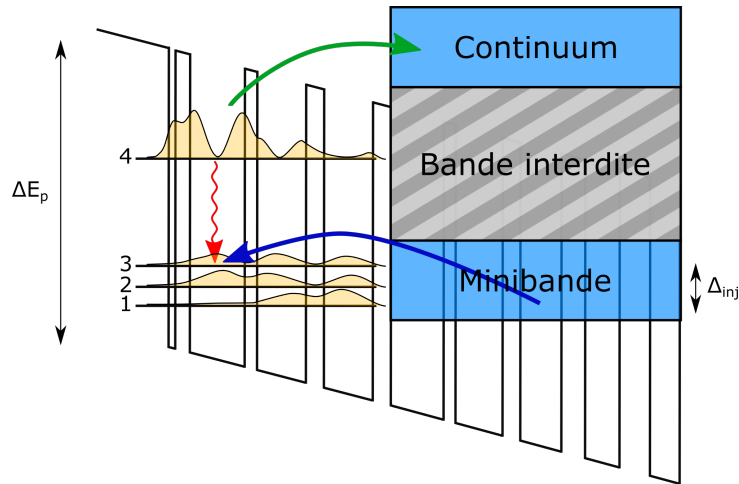


FIGURE 1.11: Excitations thermiques des électrons. La flèche bleue représente le repeuplement (*backfilling*) et la flèche verte l'excitation vers le continuum.

Le nombre optimal d'étages pour les QCL est compris entre 25 et 30 [48]. En régime continu les valeurs de tension et courant sont généralement entre 8-12 V et 0.5-1.5 A respectivement, soit quelques watts dissipés sous forme de chaleur. La température d'un QCL est un paramètre important car elle impacte grandement ses performances [49, 50].

1.4 Caractéristiques des QCL

1.4.1 Dissipation thermique

Dans la recherche de l'amélioration des performances des QCL de nombreuses conceptions ont vu le jour [51]. Nous allons uniquement aborder deux cas simples pour présenter les concepts généraux.

Le premier cas est le laser non enterré (fig. 1.12). La zone active est une succession de couches ultraminces de matériaux semi-conducteurs déposées par épitaxie par jet moléculaire ou par dépôt chimique de composés organiques en phase gazeuse. Au-dessus et au-dessous de cette zone active se trouvent des couches de matériaux permettant le passage du courant, mais possédant un indice différent afin de créer un guide d'onde (InP dopé n par exemple). Le rôle de ce guide d'onde est de confiner le mode TEM au sein de la zone active car le gain du laser dépend du recouvrement entre les deux. Un isolant électrique est appliqué sur la structure pour éviter la perte d'électrons par les côtés de la zone active. Enfin une couche métallique (par exemple de l'or) recouvre le tout pour assurer le contact électrique. Ce type de laser fonctionne parfaitement mais plus on se rapproche d'un régime continu et/ou de la température ambiante et plus le problème thermique est important. Avec cette configuration, la chaleur ne peut s'évacuer que vers le haut ou vers le bas à travers l'InP et l'or qui sont de bons conducteurs thermiques.

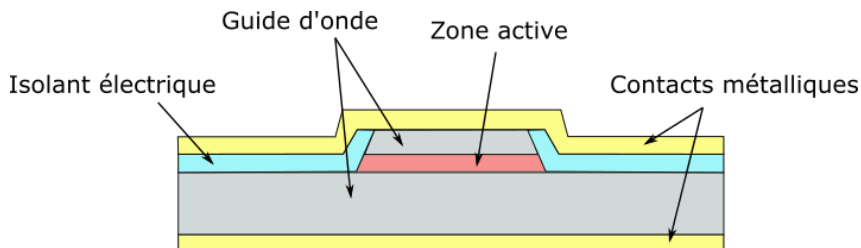


FIGURE 1.12: Coupe transversale d'un QCL non enterré

Le second cas est le laser enterré, qui permet une meilleure évacuation de la chaleur. Dans l'exemple représenté en figure 1.13 la zone active est entourée d'une couche électriquement isolante mais thermiquement conductrice. La chaleur peut ainsi être évacuée de tous les côtés. Un matériau intéressant pour ce type de configuration est l'InP. D'un point de vue électrique il est conducteur si dopé n et isolant si dopé Fe. Dans tout les cas il reste un très bon conducteur thermique.

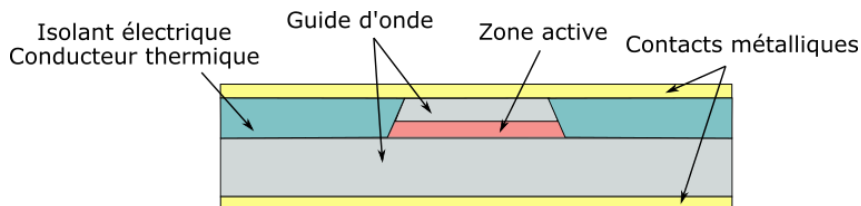


FIGURE 1.13: Coupe transversale d'un QCL enterré

1.4.2 Divergence et polarisation

Le faisceau laser des lasers à cascade quantique est très divergent de par la taille du guide d'onde (quelques microns, par exemple $2\ \mu\text{m} \times 8\ \mu\text{m}$). Les valeurs typiques données par Alpes Lasers sont 60° et 40° pour les directions verticale et horizontale respectivement. Cette différence s'explique par la forme rectangulaire de la zone d'émission.

La polarisation est perpendiculaire au plan des couches du fait des règles de sélection des transitions intra-bande [46].

1.4.3 Cavité optique et équations laser

Pour former une cavité optique les faces du laser sont clivées. On a donc une cavité Fabry-Pérot avec un intervalle spectral libre (en cm^{-1}) égal à

$$ISL_{FP} = \frac{1}{2n_{eff}L} \quad (1.7)$$

où n_{eff} est l'indice de réfraction effectif de la zone active et L sa longueur en cm.

On considère le système en figure 1.14 représentant une période d'un QCL. Il s'agit d'un système à 4 niveaux où l'injecteur est symbolisé par le niveau g .

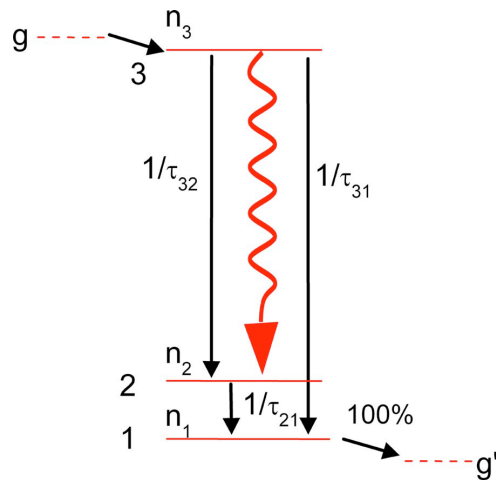


FIGURE 1.14: Représentations schématique des niveaux d'énergie d'un QCL [52]. L'injecteur est symbolisé par le niveau g . Les transitions non radiatives sont représentées par les flèches noires. Le niveau 1 est supposé vide tout le temps pour simplifier (rapide désexcitation vers le niveau g')

On peut écrire les équations de taux de ce système sous la forme suivante [46, 52] :

$$\frac{dn_3}{dt} = \frac{J}{e} - \frac{n_3}{\tau_3} - Sg_c(n_3 - n_2) \quad (1.8a)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = \frac{n_3}{\tau_{32}} - \frac{n_2}{\tau_{21}} + Sg_c(n_3 - n_2) \quad (1.8b)$$

$$\frac{dS}{dt} = \frac{c}{n_{eff}} \left[S (g_c(n_3 - n_2) - \alpha) - \beta \frac{n_3}{\tau_{sp}} \right] \quad (1.8c)$$

où n_3 et n_2 sont les densités de population des niveaux 3 et 2 respectivement, J la densité de courant injecté, $1/\tau_{ij}$ les taux de désexcitations non radiatives entre les niveaux i et j ($i, j = 1, 2, 3$), $\tau_3^{-1} = \tau_{32}^{-1} + \tau_{31}^{-1}$, τ_{sp} le temps d'émission spontanée, β la fraction d'émission spontanée couplée au mode du laser, g_c la section efficace du gain, α les pertes du mode et S la densité de flux de photons (par unité de longueur par seconde). Il est important de garder à l'esprit que ces équations ne concernent qu'une seule période du QCL. Néanmoins le gain g_c désigne le gain total sur la région active (issu des gains de toutes les périodes mis ensemble) et s'écrit sous la forme :

$$g_c = \Gamma \frac{4\pi e^2 z_{32}^2}{\epsilon_0 n_{eff} \lambda L} \frac{1}{2\gamma_{32}} \quad (1.9)$$

où Γ est le facteur de recouvrement du mode (aussi appelé facteur de confinement optique), z_{32} l'élément de matrice dipolaire, λ la longueur d'onde, L la longueur d'une période et $2\gamma_{32}$ la largeur totale à mi-hauteur de la transition. La densité de flux de photons S quant à elle est celle émise par une seule période. Dans le cas présenté en figure 1.14 on peut calculer la densité totale en multipliant S par le nombre de périodes car la perte des charges est négligée. Pour un cas réel le calcul est plus complexe car ces pertes doivent être considérées dans la zone active ($\tau_3^{-1} \neq \tau_{32}^{-1} + \tau_{31}^{-1}$ et $\tau_2 \neq \tau_{21}$) et dans l'injecteur avec un terme $\eta_m J$ qui varie selon la période considérée (η_m étant l'efficacité d'injection dans la $m^{\text{ième}}$ période).

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons abordé le fonctionnement du laser à cascade quantique et son évolution. Tel que nous l'avons présenté ce laser est de type Fabry-Pérot avec un gain large. Cependant son utilisation pour la détection de gaz n'est pas chose aisée de part son fonctionnement multimode. En effet on préférera un laser monomode, suffisamment fin spectralement pour résoudre les raies, et largement accordable pour les molécules ayant des spectres larges ou pour détecter plusieurs gaz simultanément. Il existe diverses méthodes pour obtenir un laser monomode largement accordable et au cours de cette thèse nous en utiliserons deux : les barrettes de laser DFB et les cavités étendues.

Première partie

Sources moyen infrarouge largement accordables basées sur des QCL

Chapitre 2

Les barrettes de QCL DFB

2.1 Les lasers DFB

Un laser à rétro-diffusion de Bragg (ou DFB pour *Distributed Feedback*) est monomode et possède un guide d'onde permettant de contrôler la longueur d'onde émise. Il existe de nombreuses structures permettant d'arriver à ce résultat. La plus commune est la création d'un réseau en créneau au sein de la zone active, ce qui se traduit par une modulation de l'épaisseur de cette dernière comme représenté en figure 2.1. Cette variation périodique de l'indice de réfraction provoque de multiples réflexions partielles qui interfèrent entre elles. Il existe toutefois une longueur d'onde λ pour laquelle les interférences sont constructives d'après la condition suivante :

$$\lambda = \frac{2 n_{eff} \Lambda_B}{m} \quad (2.1)$$

où n_{eff} est l'indice du guide, Λ_B le pas du réseau et m l'ordre de diffraction du réseau.

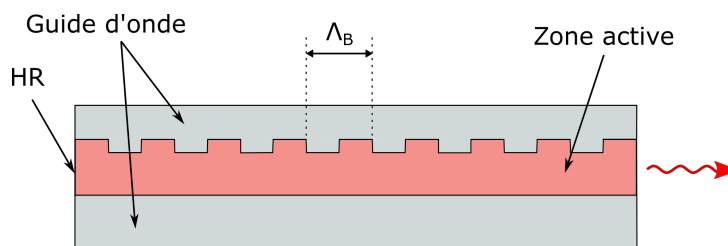


FIGURE 2.1: Schéma de principe d'un laser DFB. La modulation périodique d'indice de la zone active crée des interférences constructives pour une longueur d'onde. Le pas Λ_B du réseau détermine la longueur d'onde émise.

La technologie des lasers DFB est maîtrisée et commercialisée depuis de nombreuses années, dans les régions spectrales allant du visible au moyen infrarouge, et est appliquée dans de multiples domaines [53–59].

Les lasers DFB sont accordables par une variation de leur indice optique. Ce dernier ne dépend que de la température du milieu donc c'est ce paramètre qui est contrôlé. Il existe deux façons d'influer sur cette température :

- Varier la température du laser. Parmi les deux méthodes c'est celle qui permet d'avoir le plus grand balayage spectral. Néanmoins la température possédant un impact important sur la puissance des QCL, une rampe de température s'accompagne d'une variation de puissance.
- Varier le courant injecté. Grâce à l'effet Joule une variation de courant provoque une variation de température de la zone active. Cependant, étant donné que les lasers sont conçus pour limiter cet effet, l'influence du courant est faible sur la température. On ne peut donc balayer que sur de petites plages spectrales.

Avec ces deux méthodes combinées les QCL DFB sont accordables sur des plages spectrales de quelques cm^{-1} , voire une dizaine de cm^{-1} , pour des variations de température de plusieurs dizaines de degrés. Toutefois il existe une conception particulière récemment développée permettant d'obtenir un accord quasi-continu 20 cm^{-1} [60] dans le moyen infrarouge. Dans ce manuscrit, lorsque nous évoquons les QCL DFB, il s'agit de conceptions classiques accordables sur quelques cm^{-1} . Ceci les rend peu adaptés pour la détection de molécules avec un spectre large ou de la détection multigaz. Une solution est donc d'utiliser plusieurs QCL DFB avec des recouvrements entre leurs plages spectrales. Cette technique est utilisée pour des instruments de laboratoire dédiés, par exemple, à l'étude des paramètres spectroscopiques de molécule d'intérêt atmosphérique à très haute résolution [61]. Cependant, avoir plusieurs lasers pour une même expérience peut s'avérer très fastidieux et contraignant.

La solution que nous exploitons dans cette thèse est une barrette de QCL DFB [62–64]. Elle a été développée au cours du projet ANR MIRIADE (référence ANR-11-ECOT-0004) démarré en janvier 2012 dans le cadre du programme Production durable et technologies de l'environnement (ECOTECH). L'objectif était de créer un système de spectroscopie optique de gaz ayant la dimension d'une puce électronique (laboratory-on-a-chip). Cela démontrait aussi la faisabilité d'un capteur de gaz optique entièrement intégré, constitué d'une source Moyen Infra-Rouge basée sur une barrette de QCL DFB, d'un circuit photonique silicium, et d'une micro-cellule Photo-Acoustique réalisée en technologie MEMS (*Microelectromechanical systems*). La barrette que nous utilisons dans ce chapitre est l'une des premières développées lors du projet.

2.2 La source Miriade

La barrette est représentée schématiquement en figure 2.2. La croissance des QCL DFB non enterrés est faite sur la même embase. Ils sont espacés périodiquement avec un écart de $100 \mu\text{m}$ et leur surface d'émission est d'une vingtaine de μm^2 chacun. Le pas du réseau de Bragg est différent pour chaque laser DFB, de sorte que leurs plages spectrales d'émission soient décalées les unes par rapport aux autres mais se recouvrent partiellement. On a ainsi un système monolithique qui constitue une source monomode largement accordable. Le contact électrique est assuré d'une part par une borne commune en or, et d'autre part les pistes d'or situées sous les lasers. Ces dernières sont chacune adressées à un laser unique. Un boîtier LDD100 Alpes Lasers (*Laser Diode Driver*) permet de convertir une tension de commande en impulsions de courant. Ces dernières sont transportées jusqu'à

la barrette par une nappe basse impédance pour éviter toute déformation du signal. La durée et la fréquence des impulsions sont déterminées par un générateur d'impulsions Digital Delay/Pulse Generator BNC 565 (Berkeley Nucleonics Corporation), l'amplitude est fixée par une tension de commande.

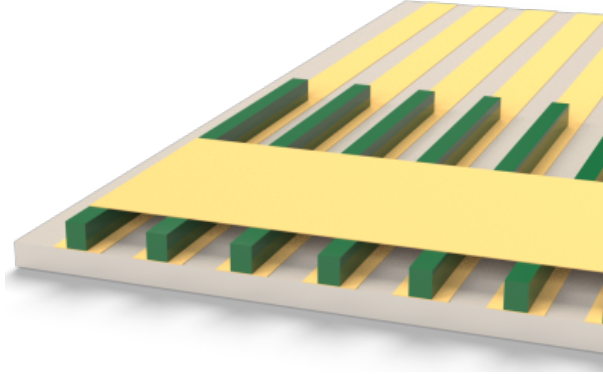


FIGURE 2.2: Représentation de la barrette Miriade. Le contact électrique (jaune) des QCL DFB (vert) est assuré par une plaque commune et des pistes individuelles.

La barrette Miriade est composée de 34 QCL DFB fonctionnant en régime quasi-continu avec une puissance optique moyenne de l'ordre du milliwatt. On différencie le régime quasi-continu du régime impulsionnel par la durée de l'impulsion de pompe (ici électrique). Dans le cas du régime quasi-continu elle est suffisamment longue pour permettre au laser de s'approcher du régime continu, et suffisamment courte pour minimiser les effets thermiques. La durée de l'impulsion n'influe donc pas sur la puissance crête contrairement au régime impulsionnel.

Nous avons, pour chaque laser, déterminé la tension de commande maximale à partir de la puissance émise. Au delà de cette tension, la puissance chute à cause de l'échauffement du laser. En figure 2.3 sont tracées les puissances des QCL DFB de la barrette, de 10 V à la tension de commande maximale (différente pour chaque laser). Nous avons toutefois fait le choix de ne pas dépasser 16 V pour éviter d'endommager les QCL. Les lasers ont la même tendance mais avec des seuils et puissances maximales différents. Il n'a pas été observée de corrélation entre le nombre d'onde d'émission et la valeur du seuil, comme cela serait le cas si la courbe de gain du matériau des zones actives était en cause. Ces écarts de seuils peuvent être dus aux imperfections lors de la fabrication de la barrette.

Les imperfections sont extrêmement difficiles à éviter pour ce type de source. Si nous prenons le cas d'un laser DFB seul (pas de barrette), le procédé de fabrication du masque appliqué sur la zone active (pour y inscrire le motif du réseau de Bragg) doit être le plus précis et fiable possible car le pas du réseau détermine la longueur d'onde d'émission. Or il s'agit de répéter un motif avec une précision inférieure au nanomètre sur une longueur pouvant atteindre plusieurs centaines de micromètres. Malgré les progrès technologiques, l'apparition de défauts dans la structure est un phénomène courant, ce qui décale spectralement la longueur d'onde. Autrement dit, lors de la fabrication de lasers, le taux de réussite τ_r n'est pas de 100 %. Dans le cas de la barrette Miriade, la croissance des QCL

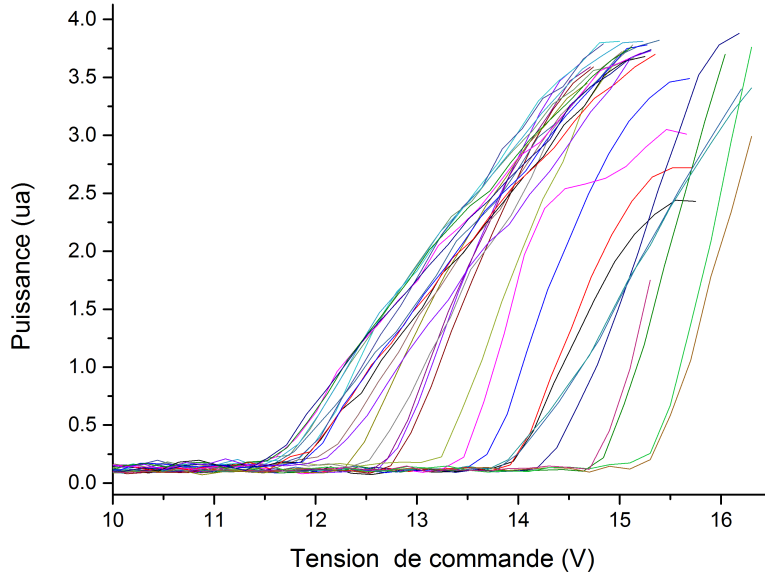


FIGURE 2.3: Puissance des lasers de la barrette en fonction de la tension de commande.

DFB est commune (les lasers ne sont pas créés les uns après les autres). Par conséquent le masque commun appliqué est plus complexe à réaliser car il doit contenir tous les différents pas des réseaux de Bragg. La probabilité d'obtenir une source de type Miriade avec tous les lasers émettant aux longueurs d'onde visées est τ_r^N (N le nombre de lasers). Ainsi, obtenir une barrette avec 34 lasers fonctionnels n'est pas trivial.

Sur la figure 2.4 sont tracés les spectres d'émission en régime impulsionnel de trois des lasers de la barrette Miriade. Chaque spectre a été enregistré pour trois températures de la barrette (10, 20, 30 °C). Chaque laser est accordable sur 2 cm^{-1} .

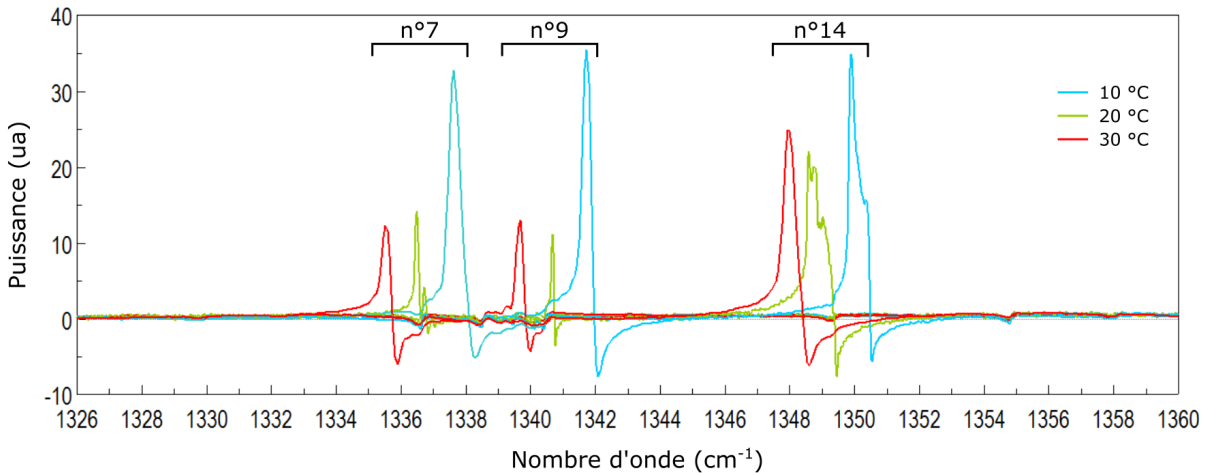


FIGURE 2.4: Spectre d'émission des lasers 7, 9, et 14 de la barrette Miriade pour 3 températures.

La plage totale couverte par la barrette est représentée en figure 2.5. Le spectre de chacun des lasers est acquis dans les mêmes conditions que la figure 2.4. Les plages spectrales se recouvrent ce qui permet de balayer un total de 50 cm^{-1} sans discontinuités.

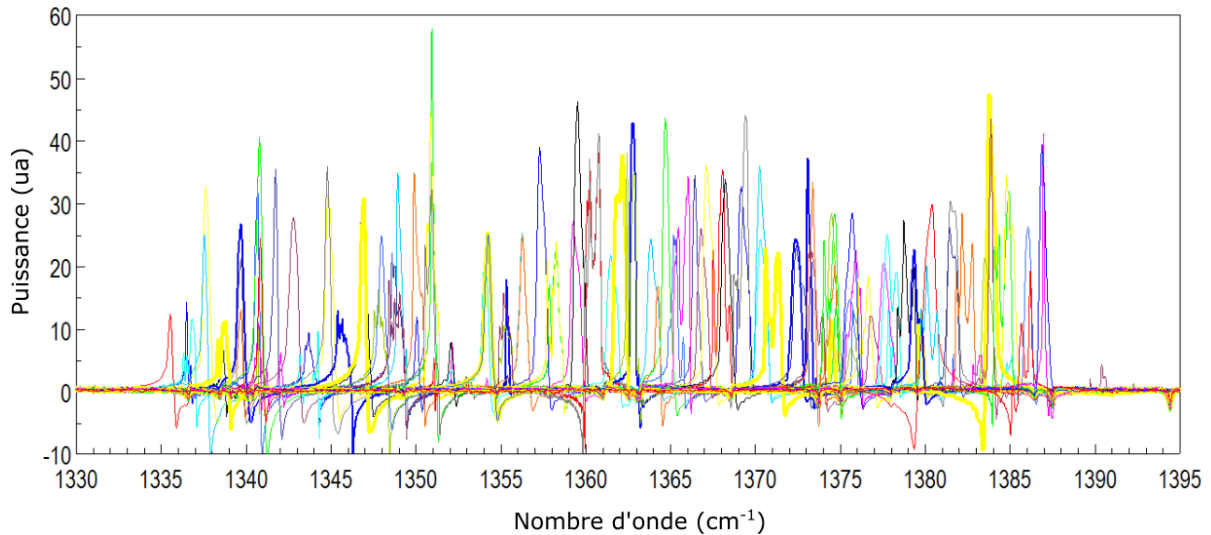


FIGURE 2.5: Spectre total d'émission de la barrette Miriade (sur ce tracé les couleurs sont arbitraires).

Il existe des packagings pour que la source soit prête à l'emploi. Ils incluent notamment l'alimentation des QCL par un dispositif micro-électronique [62, 63] : le contact électrique entre la barrette et un circuit imprimé est assuré par des fils d'or, comme montré sur l'image 2.6 tirée de [65]). L'exploitation de la source s'en trouve facilitée car l'utilisateur doit seulement envoyer une impulsion électrique dans les pistes du circuit imprimé.

Dans notre cas la barrette nous a été fournie nue et nous avons élaboré un dispositif pour alimenter les lasers. Le passage du courant dans les QCL DFB est assuré par une lame métallique en contact avec la plaque d'or et par une pointe en titane en contact avec les pistes. Le mouvement de la pointe doit être suffisamment précis pour adresser un seul laser à la fois. Un système de micromanipulation Sensapex, fonctionnant en boucle fermée et possédant une précision de 300 nm, est utilisé pour cette tâche. Le mouvement est contrôlé par un programme que nous avons développé sous LabVIEW. Ce système avec la pointe est plus lent par rapport à un dispositif micro-électronique mais ne pose aucun souci quant à l'application. En effet pour détecter un gaz nous n'utilisons qu'un seul laser à la fois et non plusieurs, donc la pointe suffit.

Le balayage spectral est réalisé en variant la température de la barrette. L'asservissement est assuré par un contrôleur en température TEC2000 (Thorlabs) en association avec un peltier et une thermistance.

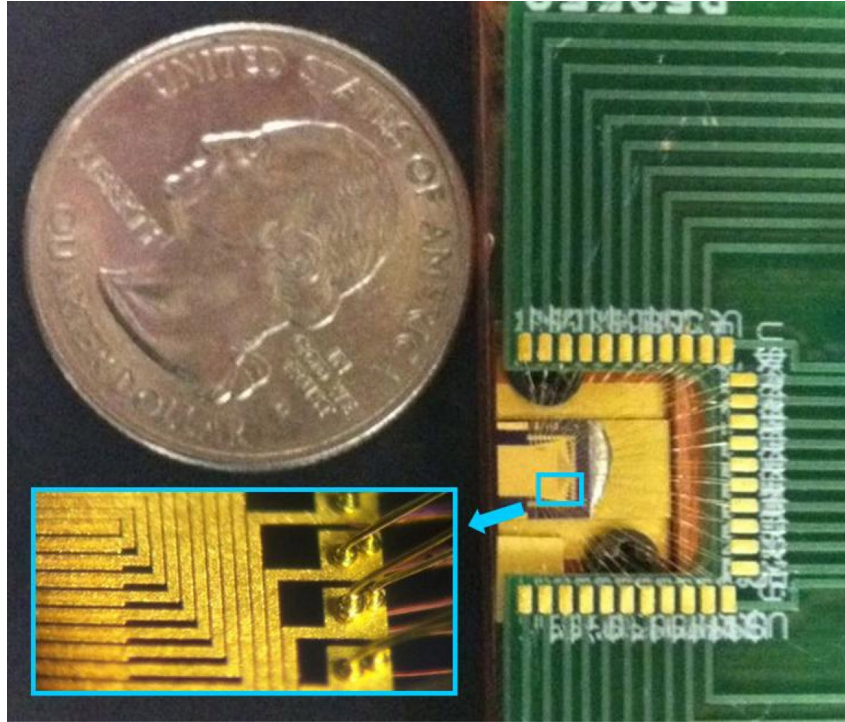


FIGURE 2.6: Photo d'une barrette de QCL DFB prête à l'emploi (image tirée de [65]). Les pistes dorées (encart sur la photo) sont reliées à un circuit imprimé (en vert) par des fils d'or. La pièce est un quart de dollar américain (diamètre 24.26 mm).

2.3 Enregistrement du spectre de transmission d'un gaz

2.3.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est représenté en figure 2.7. Une lentille de 4 mm de distance focale, montée sur une translation motorisée M-112.1DG (Physik Instrumente), est utilisée pour collimater le faisceau de chaque laser de la barrette. Pour chacun des lasers, la pointe est placée sur la piste d'or correspondante et la position de la lentille est ajustée avec l'axe optique. De même que pour le micromanipulateur de la pointe, la translation motorisée fonctionne en boucle fermée. La précision sur la position de la lentille est de $0.05 \mu\text{m}$. Le gaz d'intérêt, ici du méthane pur, est contenu dans une cellule de 15 cm de long, à température ambiante et une pression de 0.1 bar. Un détecteur MCT refroidi à la température de l'azote liquide est placé après la cellule. Étant donné que le faisceau se déplace latéralement avec chaque changement de laser, nous utilisons un miroir parabolique qui compense ce décalage et focalise le faisceau sur le détecteur. La mesure du nombre d'onde est réalisée par un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier FT/IR-6300 (Jasco) (ou FTIR pour *Fourier Transform InfraRed spectroscopy*) continu avec précision minimale de 0.015 cm^{-1} .

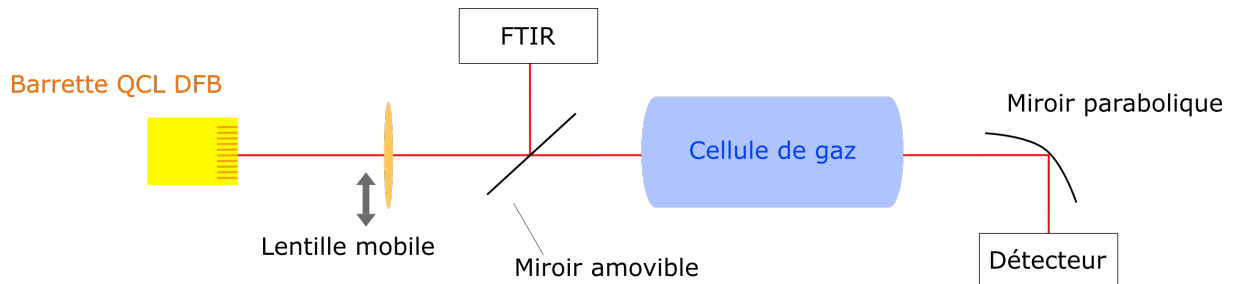


FIGURE 2.7: Schéma du montage expérimental. Le déplacement latéral de la lentille (double flèche noire) permet de conserver la collimation du faisceau malgré le changement de laser. Le décalage latéral induit par ce changement est compensé par le miroir parabolique avant le détecteur.

2.3.2 Méthode d'acquisition et traitement

Nous allons détailler la méthode d'acquisition d'un spectre pour un laser. Cette méthode est répétée pour chaque laser, l'un après l'autre, afin de couvrir toute la plage spectrale de la barrette.

Le laser fonctionne en régime quasi-continu avec des impulsions de 100 ns et une période de 10 μ s.

Les signaux sont enregistrés au cours d'une rampe de température d'une durée de 90 s, entre 10 °C et 30 °C. Ces températures sont contraintes par le système : au delà de 30 °C les puissances sont trop faibles pour être détectées, et aux alentours de 10 °C nous observons un phénomène de condensation de la vapeur d'eau ambiante sur le laser. Cette condensation peut endommager le revêtement des QCL DFB et également créer un contact électrique entre plusieurs lasers.

La puissance transmise par la cellule et la température de la puce sont enregistrées de façon synchrone par un oscilloscope Waverunner 104Xi (Teledyne Lecroy). Nous obtenons le spectre de transmission du gaz à partir de deux enregistrements consécutifs, l'un en présence et l'autre en l'absence de gaz (pression $< 2 \cdot 10^{-2}$ Torr) dans la cellule. Cette méthode nécessite toutefois de s'assurer que l'émission du laser est répétable d'une rampe de température à l'autre. Nous avons donc réalisé trois essais et tracé en figure 2.8 le rapport des puissances en fonction de la température. Un des enregistrements sert de référence pour le rapport avec les deux autres. La variation est au maximum de 3 %, ce qui est acceptable pour nos expériences. Le bruit augmente avec la température car la puissance du laser diminue (donc le rapport signal sur bruit aussi).

Les deux enregistrements sont traités dans un programme développé sous LabVIEW. La conversion de la température en nombre d'onde est basée sur la linéarité entre ces deux grandeurs pour un laser DFB [66]. Nous mesurons au spectromètre FTIR le nombre d'onde à 10 °C et 30 °C puis réalisons une interpolation linéaire entre ces deux points. Le spectre en transmission est obtenu par le rapport des puissances avec et sans gaz.

Une fois ces étapes exécutées pour tous les lasers nous procédons à un dernier traitement où nous supprimons les parties du spectre très bruitées, qui correspondent au rapport de faibles puissances. Au niveau des recouvrements spectraux entre deux laser, nous ne conservons que le meilleur des spectres en terme de profondeur de raie et de

résolution spectrale.

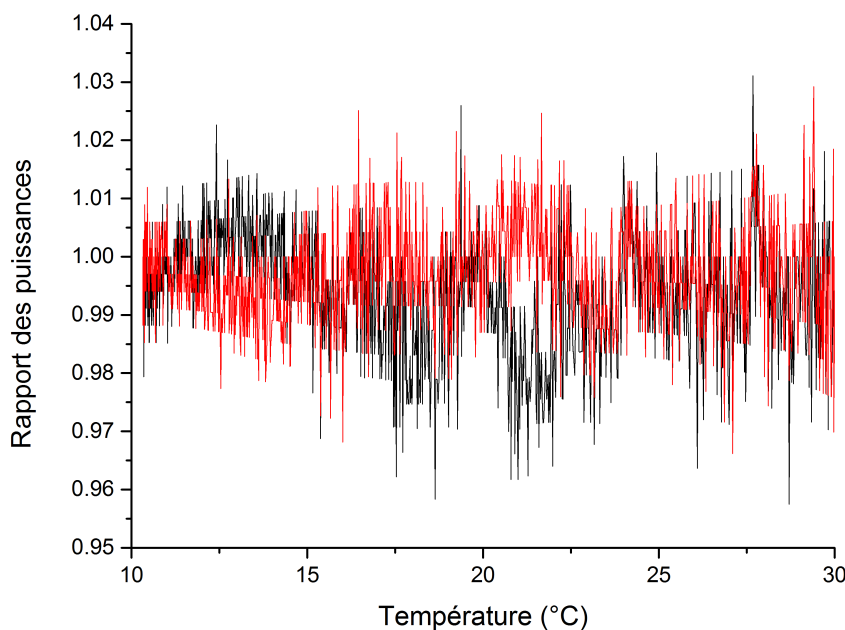


FIGURE 2.8: Rapport des puissances entre 3 enregistrements en fonction de la température (un des enregistrements est utilisé comme référence pour le rapport avec les deux autres)

2.3.3 Résultats et discussion

La comparaison entre un spectre réalisé avec la barrette et un autre réalisé au spectromètre FTIR est effectuée en figure 2.9. Le gaz est du méthane pur à 20 °C et une pression de 0.1 bar. La résolution du spectromètre FTIR est fixée à 0.25 cm⁻¹ pour correspondre à celle de la barrette. Deux zones se détachent avec un bon accord entre 1340 et 1356 cm⁻¹ puis un écart marqué sur les profondeurs d'absorption entre 1356 et 1386 cm⁻¹. Dans cette deuxième zone les profondeurs sont effectivement plus faibles que prévu et le signal dégradé. Cette différence peut s'expliquer par une absorption plus faible du gaz (figure 2.10), ce qui implique une diminution du rapport signal sur bruit lors de l'enregistrement des signaux. Toutefois, s'il ne s'agissait que d'une baisse de l'absorption, le spectre devrait être plus bruité mais les profondeurs de raies ne devraient pas être systématiquement plus petites que prévues. Il est donc possible qu'un autre paramètre, non identifié, influe sur la qualité des résultats. Cette partie du spectre n'est malheureusement pas exploitable pour détecter le méthane dans ces conditions.

Un agrandissement de la première zone est présenté en figure 2.11 où l'on peut voir que les différences entre les deux spectres sont globalement minimales. La ligne de base du spectre est discontinue car d'un laser à l'autre le rapport et le bruit peuvent varier, ce qui se traduit par un léger décalage en transmission. Malgré un bon accord sur cette plage, des différences de profondeurs entre les spectres existent alors qu'ils ont été réalisés avec la même cellule dans les mêmes conditions. De plus on remarque pour la raie à 1348 cm⁻¹ que les deux lasers qui la couvrent donnent des résultats similaires (profondeurs de raie

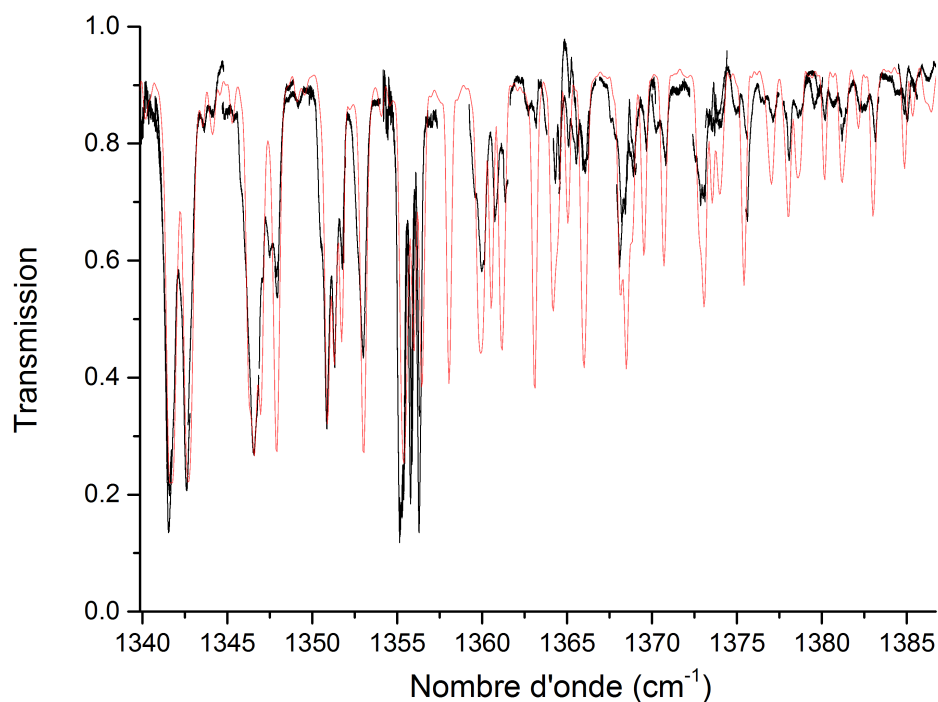


FIGURE 2.9: Spectres de transmission effectués avec la barrette (noir) et le spectromètre FTIR (rouge).

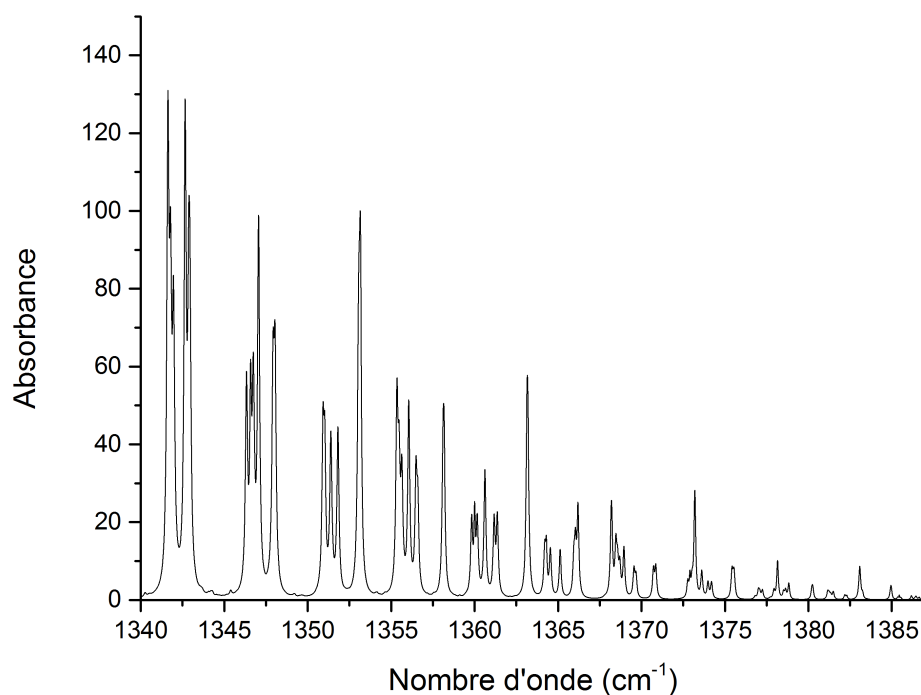


FIGURE 2.10: Absorbance du méthane calculé à partir des données HITRAN2012 [67] dans les mêmes conditions que l'expérience.

de 0.53 et 0.58 au lieu des 0.27 au FTIR). Une hypothèse est que les impulsions de 100 ns sont trop courtes et des phénomènes liés au transitoire du laser (incertitude sur le nombre d'onde ou la puissance) influent sur le rapport des puissances. Cependant nous n'avons

pas étudié ces hypothèses au moment de l'expérience. Toutefois les différences entre les deux spectres ne portent que sur l'amplitude des raies et non sur leur position absolue.

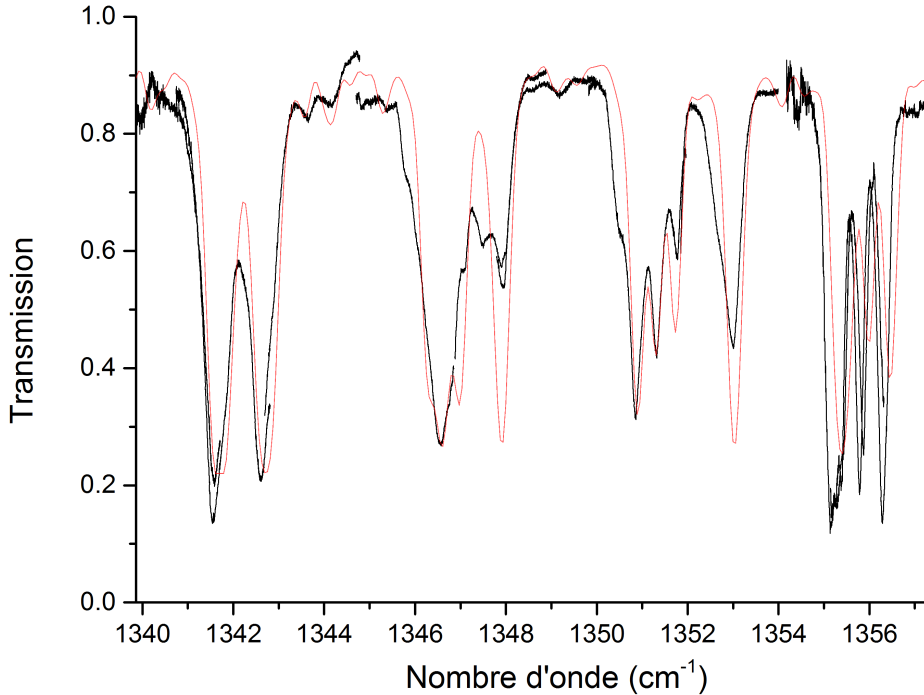


FIGURE 2.11: Agrandissement de la figure 2.9. Spectres de transmission effectués avec la barrette (noir) et le spectromètre FTIR (rouge).

Dans les conditions de l'expérience nous avons réussi à enregistrer le spectre du méthane sous une pression de 0.1 bar et à température ambiante, avec une résolution de 0.25 cm^{-1} sur une plage de 16 cm^{-1} . La totalité des QCL DFB n'a pas pu être exploitée dans ces circonstances c'est pourquoi cette plage est plus petite que les 50 cm^{-1} couverts par la barrette.

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons introduit la source Miriade (barrette de QCL DFB) puis réalisé un montage expérimental pour enregistrer le spectre d'un gaz. La qualité du spectre enregistré est bien moins bonne que celles couramment obtenues avec des lasers accordables en régime continu. Ceci est tout à fait normal étant donné que la source est en régime impulsionnel, ce qui limite la qualité du résultat.

L'inconvénient majeur de cette source monolithique est le décalage latéral du faisceau avec le changement de laser. Ceci est un problème pour des dispositifs sensibles à l'alignement telles que les cellules multi-passages par exemple. Une solution est d'associer la barrette à un multiplexeur, système regroupant spatialement les faisceaux, comme nous allons le voir dans le chapitre suivant. L'expérience nous a permis de valider le montage, notamment l'alimentation des lasers, donc nous pouvons le réutiliser avec une autre barrette.

Chapitre 3

La barrette multiplexée

Le décalage latéral du faisceau dû aux multiples sorties de la barrette peut être compensé de diverses façons. Par exemple on peut utiliser un réseau de diffraction placé juste après la barrette pour regrouper les longueurs d'ondes [68] ; ou encore fabriquer des guides d'ondes intégrés qui rassemblent les faisceaux en une sortie unique de barrette [69]. Dans ce chapitre nous présentons une solution à mi-chemin entre ces méthodes. La barrette est associée à un multiplexeur aligné et collé sur le même substrat. Le dispositif barrette + multiplexeur n'est donc pas monolithique mais ne nécessite pas de réaligner le dispositif en cas de changement de la source. Il s'agit d'une source monomode largement accordable avec une seule sortie.

3.1 Le multiplexeur/démultiplexeur

Les termes de "multiplexeur" et de "démultiplexeur" désignent le même système, seul change la façon de l'utiliser. Comme l'illustre la figure 3.1, le multiplexeur regroupe spatialement différentes longueurs d'ondes tandis que le démultiplexeur les sépare. Cette association permet donc de transmettre de l'information, codées sur différentes longueurs d'ondes, à travers un canal de communication unique.

Dans ce chapitre nous utilisons un multiplexeur. Cependant pour comprendre son fonctionnement il est plus aisé de s'intéresser à celui du démultiplexeur.

Principe de fonctionnement du démultiplexeur

Le dispositif est constitué de 5 zones identifiées sur la figure 3.2 : un guide d'onde d'entrée (1), une première zone de propagation libre (ZPL) (2), un réseau de guides d'ondes (ou AW pour *Arrayed Waveguide*) (3), une seconde zone de propagation libre (4) et enfin les guides de sortie (5).

Le faisceau contenant différentes longueurs d'onde est injecté dans le guide d'onde d'entrée puis se propage dans la première ZPL. Cette ZPL est un guide d'onde plan, c'est-à-dire que le faisceau n'est plus confiné dans une direction (ici latérale). L'onde est alors diffractée en suivant un comportement de faisceau gaussien classique. Elle est ensuite injectée dans le réseau de guides d'onde. Comme on peut le voir sur la figure 3.2 ces guides

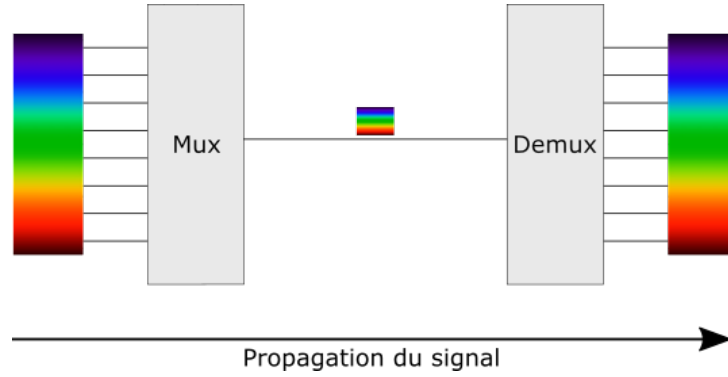


FIGURE 3.1: Exemple d'utilisation d'un multiplexeur (Mux) et d'un démultiplexeur (Demux). Les différentes longueurs d'ondes sont regroupées spatialement par le multiplexeur, puis transmises (par fibre par exemple) jusqu'au démultiplexeur qui les sépare. Ainsi un seul canal de commutation est nécessaire pour le transport des données.

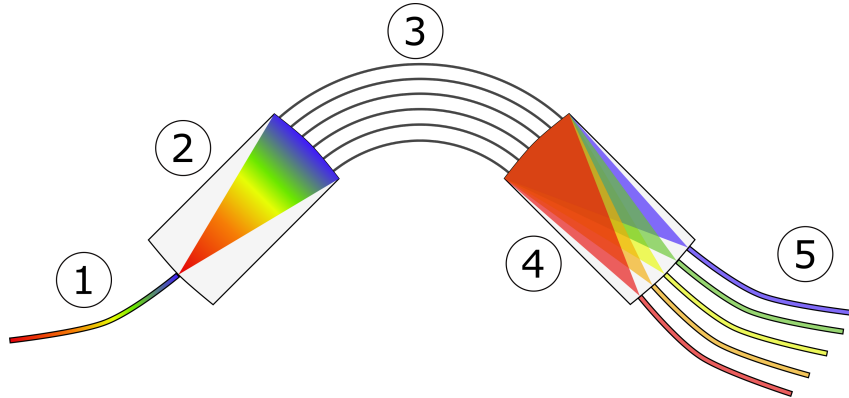


FIGURE 3.2: Représentation du fonctionnement d'un démultiplexeur. Le dispositif se décompose en cinq parties : (1) guide d'onde d'entrée, (2) et (4) zones de propagation libre, (3) réseau de guides (AW), (5) guides de sortie.

sont tous de longueurs différentes. La variation de longueur ΔL d'un guide à l'autre est définie pour une longueur d'onde centrale, de sorte que le déphasage entre deux guides adjacents soit égal à 2π [70] :

$$\Delta L = m \frac{\lambda_c}{n_{eff}} \quad (3.1)$$

avec λ_c la longueur d'onde centrale dans le vide, m l'ordre du réseau de guides et n_{eff} l'indice de réfraction effectif de l'AW. Le front d'onde d'une onde à λ_c est donc identique à l'entrée et à la sortie du réseau de guides. Pour toute onde à λ la phase s'exprime comme [71] :

$$\varphi(x) = \frac{2\pi}{\lambda} \left[nl_0 + \left(\frac{M-1}{2} + \frac{x}{d} \right) m\lambda_c \right] \quad (3.2)$$

où l_0 est la longueur du plus petit guide, M le nombre de guides, d l'écart entre deux guides, x la coordonnée latérale à la sortie de l'AW ($x = 0$ pour le guide central) et n

l'indice de groupe :

$$n = n_{eff} + f \frac{dn_{eff}}{df} \quad (3.3)$$

avec f la fréquence de l'onde. Ce déphasage se traduit par une inclinaison du front d'onde en sortie de l'AW, et c'est ce phénomène qui permet de séparer spatialement les longueurs d'onde. En effet à la sortie du réseau de guides se trouve une ZPL où les ondes issues des guides vont être diffractées et interférer entre elles. La position latérale où les interférences sont constructives dépend de l'inclinaison du front d'onde. Les longueurs d'ondes sont ainsi séparées et injectées dans différents guides de sortie.

Le multiplexeur fonctionne en sens inverse : on injecte différentes longueurs d'onde en zone 5 et elles sont regroupées spatialement en zone 1 (sur la figure 3.2).

3.2 La barrette multiplexée

La barrette de QCL DFB et son multiplexeur nous ont été fournis par la société MirSense où ils ont été alignés et assemblés. Nous avons utilisé le dispositif monté tel quel sans jamais les décoller l'un de l'autre. Le multiplexeur, présenté dans les publications [72, 73], est composé de guides SiGe/Si rectangulaires de dimensions $3.3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$. La variation de longueur ΔL est de $14.11 \mu\text{m}$ et l'ordre du réseau de guide est 11. Un modèle avec MMI et sans *taper* nous a été fourni [72]. Les MMI (*Multi-Mode Interference coupler*) [74] sont des coupleurs placés sur les guides de sortie à l'interface ZPL/guides. Ils réduisent la sélectivité spectrale, c'est-à-dire que la puissance injectée diminue moins vite avec une variation en longueur d'onde. Les *tapers* [75] sont des designs créés aux extrémités du réseau de guides. Leur rôle est de limiter l'erreur sur la phase induite par le couplage entre les guides. Sur la figure 3.3 on peut voir qu'il y a plusieurs sorties et non une seule. Les sorties supplémentaires jouent le rôle de sortie de "secours" pour pouvoir utiliser le système même si le point où les interférences sont constructives n'est pas exactement à l'endroit prévu théoriquement.

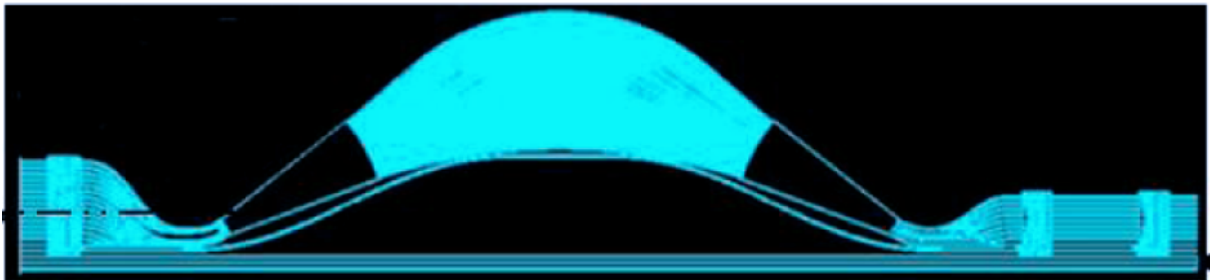


FIGURE 3.3: Image du multiplexeur tirée de [72]. À gauche se trouvent les guides d'entrée, séparés en 2 groupes. ce design à été choisi par rapport à l'application visée. À droite se trouvent les guides de sortie. Seul un guide est utilisé, les autres ne sont là qu'en cas de défauts qui provoqueraient un décalage latéral du point où les interférences sont constructives.

La barrette possède 34 lasers et le multiplexeur 35 guides. Cependant ce prototype possède 9 lasers complètement opérationnels pour effectuer une détection de gaz. La répar-

tition spectrale de ces 9 lasers multiplexés est tracé en figure 3.4. Chacun est accordable sur 3 cm^{-1} avec la température, et la puissance optique en sortie du multiplexeur est de l'ordre d'une dizaine de microwatts. Cette faible puissance nécessitera de modifier le système d'acquisition comme nous le verrons par la suite.

Les dispositifs d'alimentation électrique et d'asservissement en température restent les mêmes que ceux utilisés précédemment avec la barrette de QCL DFB.

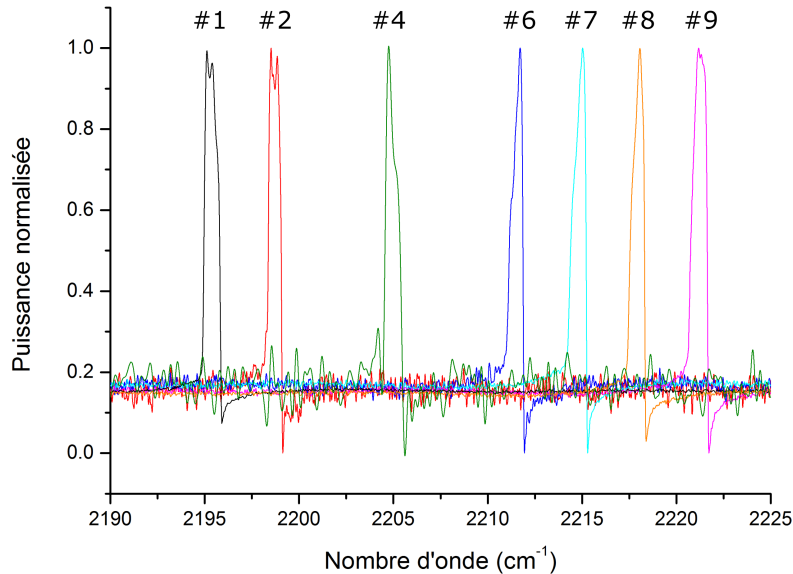


FIGURE 3.4: Spectre des lasers à 20°C . Les impulsions durent 50 ns et la fréquence est de 33.3 kHz . Le numéro des lasers est indiqué au dessus de chaque pic d'émission. Les lasers n°3 et n°5 ont cessé de fonctionner avec le temps.

3.3 Enregistrement de spectres de gaz avec la barrette multiplexée

Dans le chapitre précédent, nous avons utilisé une barrette de QCL DFB pour enregistrer le spectre de transmission d'un gaz à l'aide d'un montage expérimental adapté pour compenser le déplacement latéral du faisceau. Nous allons montrer dans cette partie les résultats obtenus avec le dispositif barrette+multiplexeur. De plus nous utiliserons une technique dite "intrapulse" [76–78] pour agrandir la plage spectrale accessible.

3.3.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est représenté en figure 3.5. Nous utilisons une lentille de focale 15 mm pour collimater le faisceau vers le spectromètre FTIR ou le détecteur (PCI-3TE-10.6, VIGO System). Ce dernier est de type photoconducteur et est muni d'une

lentille permettant de focaliser un faisceau collimaté sur le capteur. Le détecteur est placé directement après une cellule de gaz de 51 cm de parcours disposant de fenêtres en BaF₂.

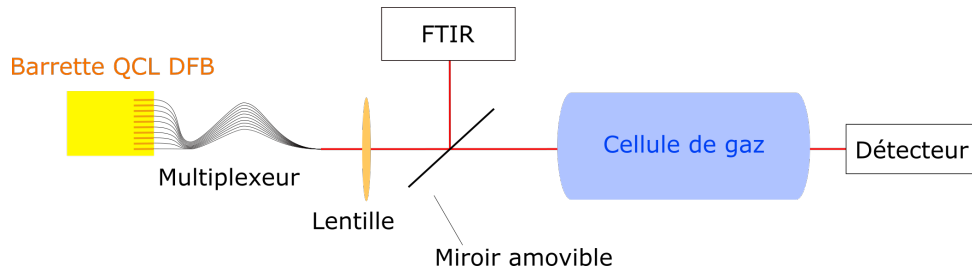


FIGURE 3.5: Représentation schématique du montage expérimental.

3.3.2 Méthode d'acquisition et traitement

Les méthodes d'acquisition et de traitement sont similaires à celles utilisées dans le chapitre précédent pour la barrette seule : deux enregistrements (avec et sans gaz) sont nécessaires, la rampe de température et la puissance sont enregistrées de façon synchrone par un oscilloscope, et le traitement est identique.

Toutefois, en raison de la faible puissance en sortie du multiplexeur, un intégrateur boxcar modèle 4121B Boxcar Averager (Princeton Applied Research) est utilisé pour faciliter la mesure. Cet appareil, prêté par la société MirSense, permet de moyennner un nombre d'impulsions défini par l'utilisateur pour améliorer le rapport signal sur bruit (RSB). Pour trouver le nombre d'impulsions optimal nous avons calculé la variance du signal en sortie de boxcar en fonction du nombre d'impulsions moyennées. Le résultat est tracé en figure 3.6. Jusqu'à 100 impulsions l'évolution est similaire à celle d'un bruit poissonien, puis elle dérive à cause d'autres paramètres. Cependant la variance ne cesse de décroître jusqu'à 10^4 impulsions moyennées (le maximum de la boxcar). Ainsi la moyenne est effectuée sur 10^4 impulsions pour les expériences. Nous travaillons à une fréquence de répétition de 33.3 kHz, soit 0.3 s entre chaque impulsion en sortie de boxcar. Cela est bien inférieur aux 90 s de la rampe de température donc nous pouvons considérer que la variation de longueur d'onde est négligeable au cours du moyennage.

Nous avons évoqué au début de cette partie la technique intrapulse. Elle est fondée sur le *chirp*, phénomène naturellement présent dans les impulsions laser. Il s'agit d'une variation de la longueur d'onde, provoquée par l'échauffement de la zone active, au cours d'une impulsion. Le spectre d'un laser a été enregistré pour estimer la plage couverte par le *chirp* (figure 3.7) à différentes températures de la barrette. Les impulsions durent 300 ns à un taux de répétition de 33.3 kHz. Quelle que soit la température, la largeur de la plage couverte par le *chirp* est similaire et estimée à 4.7 cm^{-1} . L'influence de la température est globale, c'est-à-dire qu'elle provoque un décalage de la plage du *chirp*. Ce décalage spectral est estimé à 3.5 cm^{-1} entre 10°C à 30°C . Ces valeurs ne sont que des estimations en raison des conditions d'acquisition : le spectromètre FTIR est un modèle continu et l'acquisition n'est pas synchronisée avec les impulsions. Cela signifie qu'au cours la mesure

le laser n'est pas constamment en fonctionnement. Le spectre obtenu est déformé puisqu'il correspond à un mélange entre le laser en fonctionnement et à l'arrêt.

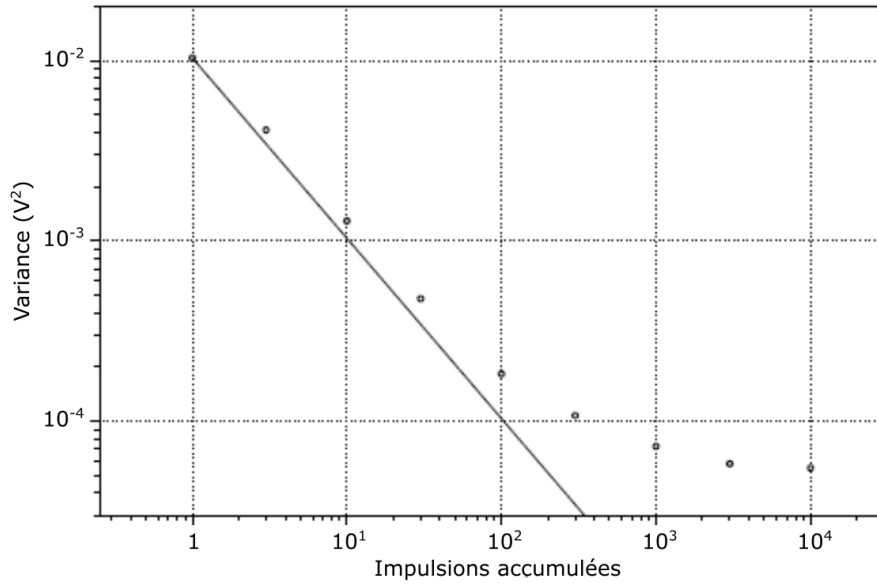


FIGURE 3.6: Évolution de la variance avec le nombre d'impulsions moyennées pour le laser à 2218 cm⁻¹. L'évolution d'un bruit poissonien est représenté par la ligne noire.

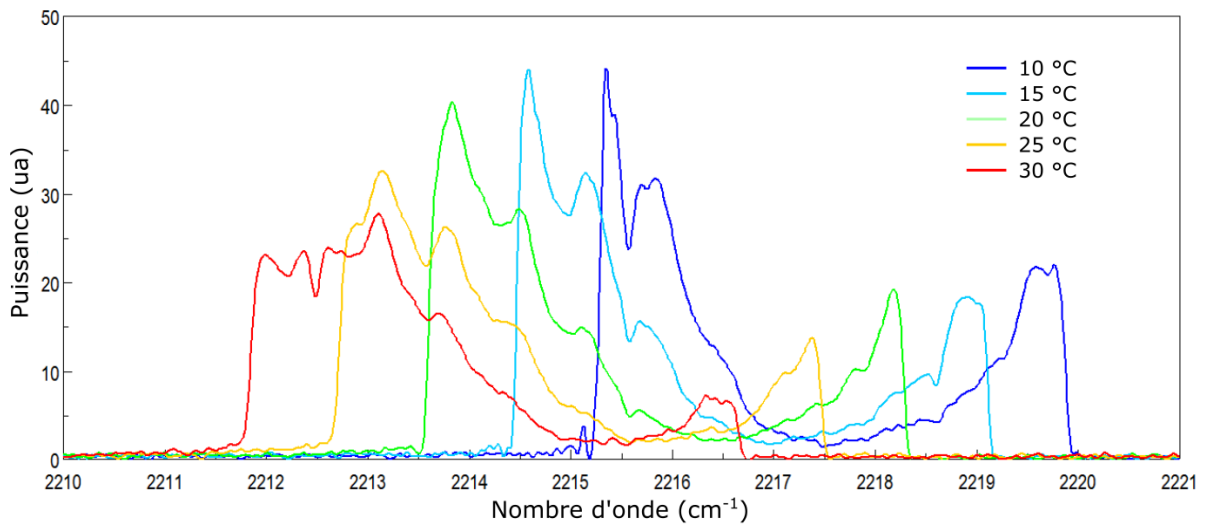
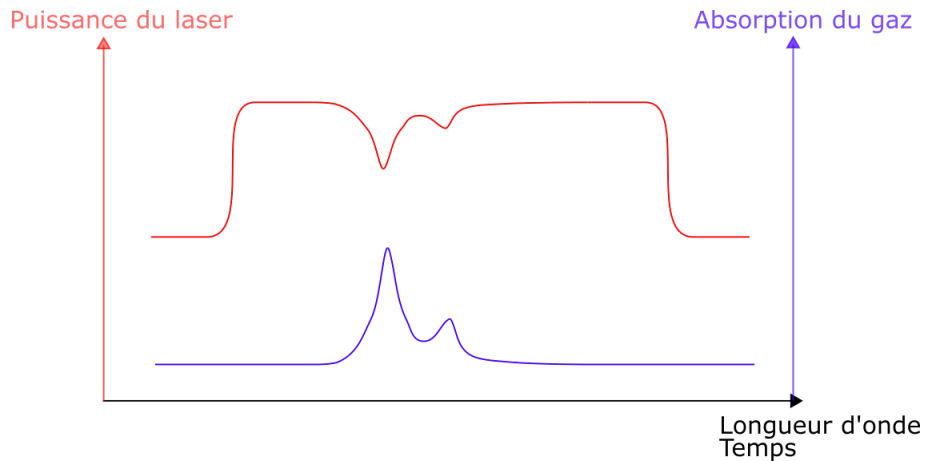


FIGURE 3.7: Spectre du laser n°8 à différentes températures.

La technique intrapulse exploite le balayage spectral au sein de l'impulsion pour détecter une raie d'absorption de gaz. Le principe est représenté en figure 3.8 : l'absorption du gaz provoque une diminution locale de la puissance dans l'impulsion.

L'intégrateur boxcar peut extraire une partie temporelle du signal en sortie de détecteur, ce qui rend la technique applicable. La largeur et la position temporelles de la zone sélectionnée (appelée "porte") sont des paramètres contrôlables. En figure 3.9 est représentée la méthode d'acquisition. L'idée est de se servir du *chirp* pour décaler spectralement le

FIGURE 3.8: Utilisation du *chirp* pour détecter un gaz.

point d'acquisition. Nous réalisons un balayage en température pour différentes positions de la porte dans l'impulsion, ce qui nous donne plusieurs plages de même largeur décalées les unes par rapport aux autres. Avec cette méthode nous pouvons ainsi agrandir la plage couverte par un laser. La largeur de la porte doit être la plus petite possible car c'est elle qui limite la résolution du spectre. Dans notre cas nous l'avons définie à 1 ns, le minimum accessible par la boxcar. Pour l'exemple, en reprenant les conditions de la figure 3.7, la porte couvre 0.016 cm^{-1} .

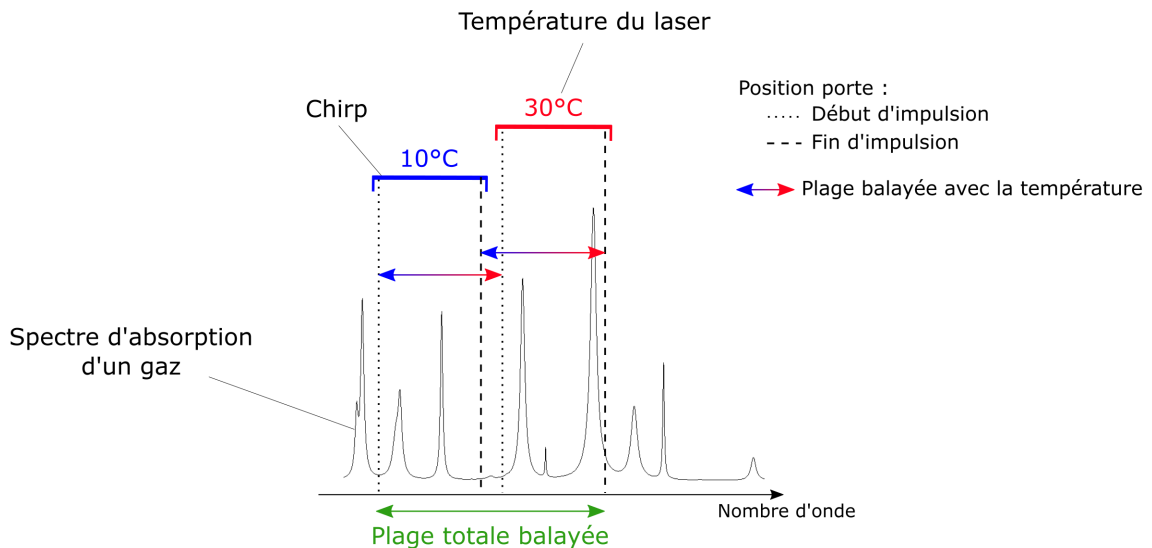


FIGURE 3.9: Principe d'acquisition avec la technique intrapulse. La plage totale est l'association de plusieurs plages plus petites. Chacune de ces plages fait la même largeur (définie par la rampe de température) mais est décalée spectralement par rapport aux autres (déterminé par la position de la porte dans l'impulsion).

La durée maximale des impulsions est un paramètre important puisqu'il définit la plage du *chirp*. Sur la figure 3.10 est tracée la puissance détectée pour différentes longueurs d'impulsion. Pour des durées inférieures à 400 ns elle chute brutalement avec la fin de

l'impulsion de commande. Par contre, pour une durée de 400 ns la puissance diminue progressivement. Cette diminution est due à la combinaison de deux facteurs : d'une part l'augmentation de la température du laser au cours de l'impulsion, ce qui réduit l'efficacité d'émission au delà d'une température limite, et d'autre part la sélectivité spectrale des guides en entrée et sortie du multiplexeur. Pour les expériences nous imposons une durée d'impulsion de 400 ns. Toutefois il est important de noter que le *chirp* n'est pas exploitable dans sa totalité. En effet en début d'impulsion se trouve le transitoire du laser et en fin d'impulsion la puissance est faible. Néanmoins avec 400 ns la plage totale balayée par chaque laser est d'environ 5 cm^{-1} .

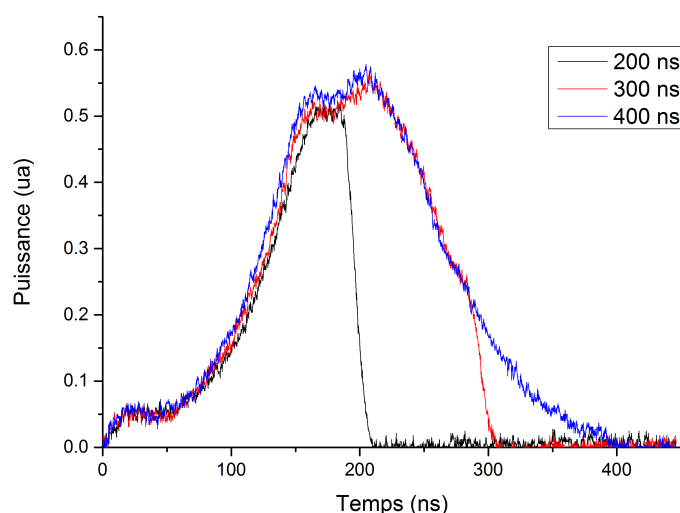


FIGURE 3.10: Puissance du laser à 2218 cm^{-1} pour différentes durées d'impulsion. Seule une durée de 400 ns permet d'exploiter l'impulsion au maximum car il n'y a pas de coupure brutale. La chute de puissance est due à l'élévation de la température du laser au cours de l'impulsion et à la sélectivité du guide d'onde en sortie.

Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, on applique un filtre passe-bas dont la fréquence de coupure de 10 Hz est choisie pour ne pas déformer le signal enregistré. Le rapport est ensuite calculé entre les enregistrements avec et sans gaz.

Les spectres obtenus sont "recalés" en nombre d'onde en comparant avec un spectre théorique calculé à partir des données HITRAN. Les deux spectres sont tracés sur un même graphique et un offset est appliqué sur les nombres d'ondes du résultat expérimental pour que les raies coïncident. L'opération est rapide puisque l'on possède une mesure de référence au spectromètre FTIR et que l'on connaît le décalage maximal dû au *chirp*.

3.3.3 Résultats et discussion

Nous avons choisi le monoxyde de carbone (CO) pour un premier test en raison de ses raies d'absorption intenses et bien séparées les unes des autres. Le spectre obtenu est tracé en figure 3.11. Le gaz est à température ambiante, pression atmosphérique et à une

concentration de 2800 ppm dans une cellule de 51 cm de long. La plage couverte par chaque laser est représentée par une double-flèche avec le numéro du laser dessus. Si les lasers n°3 et n°5 fonctionnaient toujours il n’y aurait pas de trous dans le spectre. Les oscillations visibles sur la ligne de base correspondent à une cavité Fabry-Pérot formée entre la sortie du multiplexeur et la lentille.

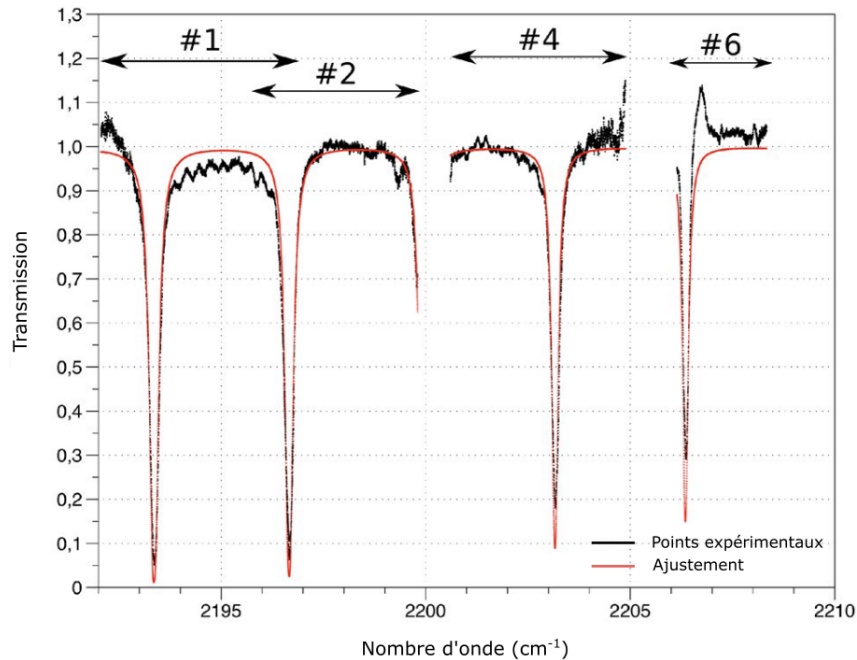


FIGURE 3.11: Spectre du CO enregistré avec la barrette+multiplexeur (noir). L’ajustement de ce spectre (rouge) est basé sur les données HITRAN 2012.

Nous avons effectué un ajustement (méthode des moindres carrés) du spectre à partir des données HITRAN 2012 pour remonter à la concentration. L’ajustement donne une valeur de 2400 ppm au lieu des 2800 ppm attendus, mais l’accord est relativement bon. Les facteurs à l’origine de cette différence de concentration sont multiples. D’une part, elle peut provenir d’une variation de l’offset du signal en sortie de la boxcar. Il n’est pas possible de le monitorer, ce qui peut fausser le rapport. D’autre part, de multiples opérations (moyenne et filtre) sont appliquées aux enregistrements pour extraire le signal utile du bruit, ce qui impacte la profondeur des raies. L’ajustement est alors moins facile à réaliser. Ce phénomène est présent pour tous les spectres réalisés avec la barrette multiplexée.

Le rapport signal sur bruit n’est pas constant d’un laser à l’autre, ni même sur le spectre obtenu avec un seul laser. Par exemple, pour le laser n°4 il varie entre 7 et 25 au cours du balayage. Cela s’explique par l’évolution de la puissance optique au cours de la rampe de température.

Cet enregistrement du spectre du CO valide la chaîne d’acquisition. L’étape suivante est d’effectuer un enregistrement multi-gaz. L’objectif est de valider l’utilisation de ce système dans un cas où le spectre est plus complexe que celui du CO.

Le même dispositif est conservé, seul change le gaz. Il s’agit d’un mélange industriel utilisé pour les chalumeaux. Il est composé principalement d’acétylène dissous (C_2H_2)

et d'impuretés (<%). Le spectre obtenu est représenté en figure 3.12. Nous avons de nouveau effectué le même type d'ajustement avec les données HITRAN et l'on remarque un bon accord entre les spectres expérimental et théorique (aux erreurs mentionnées précédemment près). Nous remontons à une composition de C_2H_2 quasiment pur avec 400 ppm de CO.

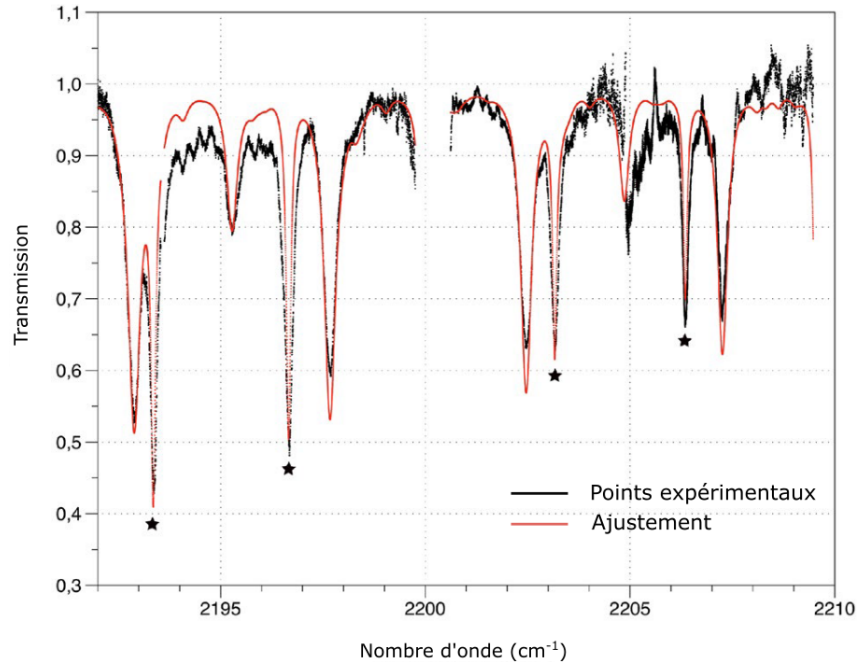


FIGURE 3.12: Spectre du C_2H_2 fait avec la barrette+multiplexeur (noir). L'ajustement de ce spectre (rouge) est basé sur les données HITRAN 2012. Les raies de CO ont été identifiées par une étoile noire en dessous. Les autres raies sont celles du C_2H_2

Le CO identifié est présent dans le mélange de la bouteille et ne provient pas d'une contamination de la cellule par l'expérience précédente. Cette affirmation est fondée sur un spectre de ce mélange, directement issu de la bouteille, effectué au spectromètre FTIR avant les expériences. Pour une meilleure lisibilité, le résultat est tracé sur un second graphe, en figure 3.13.

Cette seconde expérience valide le système pour une application à la détection multi-gaz. Grâce à ces deux expériences nous pouvons observer une amélioration de la qualité des spectres obtenus par rapport au chapitre précédent, et ce malgré un facteur 100 sur les puissances émises. Cela est dû à l'utilisation de l'intégrateur boxcar. Dans le chapitre précédent c'est la totalité de la puissance de l'impulsion qui est détectée, autrement dit toutes les longueurs d'onde couvertes par le *chirp*. Ici c'est une faible fraction de l'impulsion qui est détectée, ce qui améliore la résolution spectrale. Le *chirp* n'est plus une limite de résolution.

Malgré ces résultats concluants pour la détection de gaz, ces expériences ne mettent pas en évidence l'avantage du système barrette+multiplexeur : la sortie laser unique. Une troisième étape est nécessaire, où la barrette est associée à un dispositif sensible à l'alignement optique.

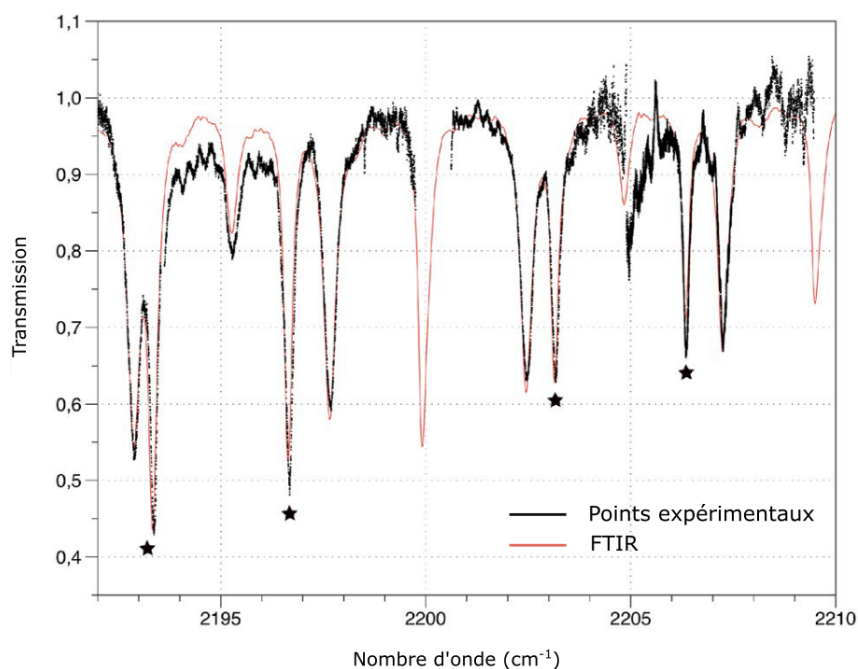


FIGURE 3.13: Spectre du C_2H_2 fait avec la barrette+multiplexeur (noir) et le spectromètre FTIR (rouge). Les raies de CO ont été identifiées par une étoile noire en dessous. Les autres raies sont celles du C_2H_2

Une cellule de White multi-passages [79] est montée et remplace la cellule précédente. Le reste du montage expérimental est identique. La distance de parcours dans la cellule est de 5.1 m donc nous n'avons pas pu utiliser les gaz précédents car leurs raies sont saturées. Cependant le CO_2 possède des raies qui ne saturent pas avec cette longueur d'interaction et est aussi un gaz d'intérêt atmosphérique, donc parfaitement adapté à cette expérience. Le spectre expérimental est tracé en figure 3.14. Le CO_2 pur est à température ambiante et pression atmosphérique. L'accord entre le spectre et l'ajustement suffit, aux erreurs d'ajustements près évoquées précédemment, pour remonter aux concentrations naturelles des isotopes du CO_2 avec une précision de 1 % (99 % de $^{12}CO_2$ et 1 % de $^{13}CO_2$).

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le principe de fonctionnement d'un multiplexeur puis l'exploitation d'une barrette de QCL DFB multiplexée pour l'enregistrement de spectres de gaz. Cette série d'expériences montre l'avantage de la barrette multiplexée : le système peut facilement être associé à un montage optique, quel qu'il soit, grâce à son unique sortie laser. Il peut être exploité pour de la détection multi-gaz ou de molécules possédant des spectres larges dans le moyen infrarouge. Les résultats obtenus ont menés à la rédaction d'une publication [15] qui constitue une première mondiale sur le sujet.

Le système exploité est un prototype destiné à montrer le potentiel de l'application expérimentale. Il couvre une plage totale de 28 cm^{-1} . Le développement futur de ce type

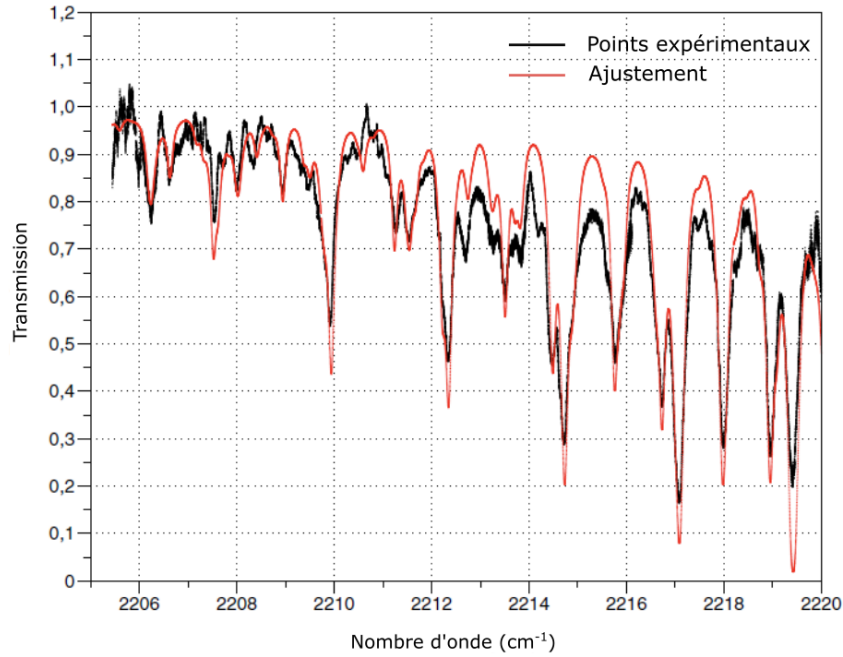


FIGURE 3.14: Spectre du CO_2 fait avec la barrette+multiplexeur (noir). L'ajustement de ce spectre (rouge) est basé sur les données HITRAN 2012.

de source consiste en l'amélioration de la plage spectrale, notamment atteindre la centaine de cm^{-1} .

Un autre point important de ce chapitre est l'utilisation d'une boxcar. Ce dispositif permet d'améliorer de manière drastique la qualité des spectres obtenus. De plus la technique intrapulse est applicable grâce à ce dispositif, ce qui rend le *chirp* de l'impulsion exploitable.

Ce chapitre clôt l'exploitation des barrettes de QCL DFB réalisée au cours de cette thèse. La suite du manuscrit porte sur l'utilisation de cavités étendues pour l'enregistrement de spectres de gaz.

Chapitre 4

Les cavités étendues

Ce chapitre introduit les cavités étendues, qui seront utilisées dans la suite du manuscrit. Il s'agit du deuxième type de source monomode largement accordable, avec les barrettes de QCL DFB, qui sont exploitées dans cette thèse. Contrairement aux barrettes le dispositif n'est pas monolithique. Il s'agit d'une source multimode que l'on rend monomode accordable par contre-réaction.

4.1 Principe de fonctionnement

Une cavité étendue est un montage optique permettant de rendre monomode et accordable une source multimode. Le principe repose sur de la contre-réaction optique. La lumière émise par la source est affinée spectralement puis renvoyée dans cette dernière. L'objectif étant d'avoir une source monomode, l'affinement spectral sélectionne une plage de largeur bien inférieure à l'intervalle spectral libre (ISL) de la source multimode. En général on parle d'une seule longueur d'onde λ_{CR} sélectionnée. En raison de la contre-réaction les pertes sont diminuées à λ_{CR} donc la cavité émet sur cette longueur d'onde.

L'affinement spectral est réalisé par un élément dispersif tel un prisme ou un réseau. Dans le cas d'un prisme ou d'un réseau en transmission il est nécessaire d'utiliser un miroir pour renvoyer le faisceau dans la source. La dispersion spectrale et la réflexion sont chacune assurée par un élément optique différent donc leur alignement est un paramètre déterminant dans la qualité de la contre-réaction. De plus chaque passage dans ce type d'élément inclus des pertes par absorption. Pour un réseau en réflexion ces inconvénients n'existent pas, c'est pourquoi nous privilégions leur utilisation.

L'accord spectral est effectué par rotation du miroir ou du réseau en réflexion. La rotation change la longueur d'onde λ_{CR} renvoyée dans la source, autrement dit la longueur d'onde de la cavité.

Les cavités étendues sont bien maîtrisées pour les diodes laser [80–82] et les QCL [83–85] et sont de nos jours commercialisées. Pour la suite des explications nous nous plaçons dans le cas d'un QCL mais elles sont aussi valides pour une diode laser.

Un exemple de cavité étendue accordable est représenté en figure 4.1.

La collimation du faisceau est assurée par une lentille. La contre-réaction repose sur l'utilisation d'un réseau blazé. Avec un réseau classique, la puissance est distribuée dans

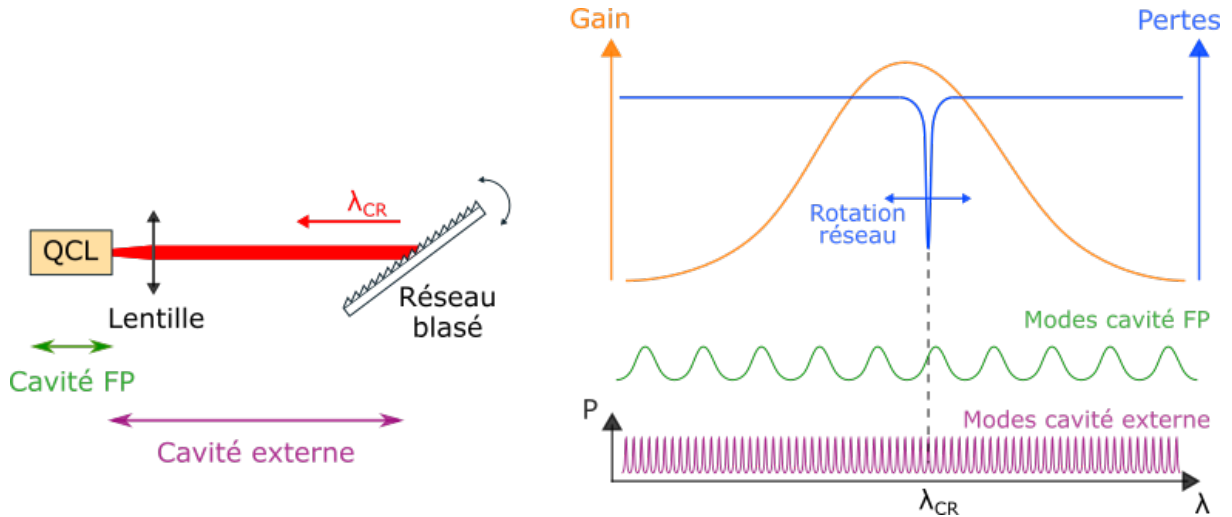


FIGURE 4.1: À gauche : Représentation d'une cavité étendue accordable. À droite : Représentation des caractéristiques (gain, pertes, modes) de la cavité.

les différents ordres de diffraction. Un réseau blazé est fabriqué pour une longueur d'onde, un angle d'incidence et un ordre de diffraction donnés. Le maximum de puissance est alors obtenu dans l'ordre en question au détriment des autres. Les pertes sont ainsi plus faibles que dans le cas d'un réseau classique. Tous les réseaux employés dans cette thèse sont blazés pour l'ordre 1.

En figure 4.2 est tracé le spectre d'émission sans contre-réaction en régime impulsionnel (300 ns de durée d'impulsion à une fréquence de 100 kHz), et avec contre-réaction en régime continu (courant constant). Le QCL est à 20 °C dans les deux cas. L'influence de la contre-réaction est nettement visible. La source passe d'une émission multimode couvrant plus de 20 cm^{-1} à une émission monomode. La largeur à mi-hauteur de la raie en régime continu est limitée par résolution du spectromètre (0.07 cm^{-1}). Nous pouvons donc seulement affirmer qu'elle est inférieure à 0.07 cm^{-1} .

La longueur d'onde de la cavité est régie par la loi de diffraction par un réseau :

$$\sin \theta_i + \sin \theta_r = mN\lambda \quad (4.1)$$

avec θ_i et θ_r les angles d'incidence sur le réseau et de réflexion respectivement, m l'ordre de diffraction, et N le nombre de traits du réseau par unité de longueur. Pour cet exemple, la contre-réaction implique que $\theta_i = \theta_r$, soit

$$\lambda = \frac{2 \sin \theta_i}{mN} \quad (4.2)$$

Néanmoins la cavité étendue est composée de deux cavités couplées : une de type Fabry-Pérot (le QCL) et une cavité externe accordable. L'émission laser n'est obtenue que si l'accord de phase entre ces deux cavités est respecté. Les modes des cavités sont représentés sur le schéma de droite de la figure 4.1. Dans les cas abordés dans ce manuscrit, la cavité externe est plus longue que la cavité FP (jusqu'à 40 fois la longueur optique), donc ses sauts de modes sont plus resserrés et plus fins. Expérimentalement la coexistence

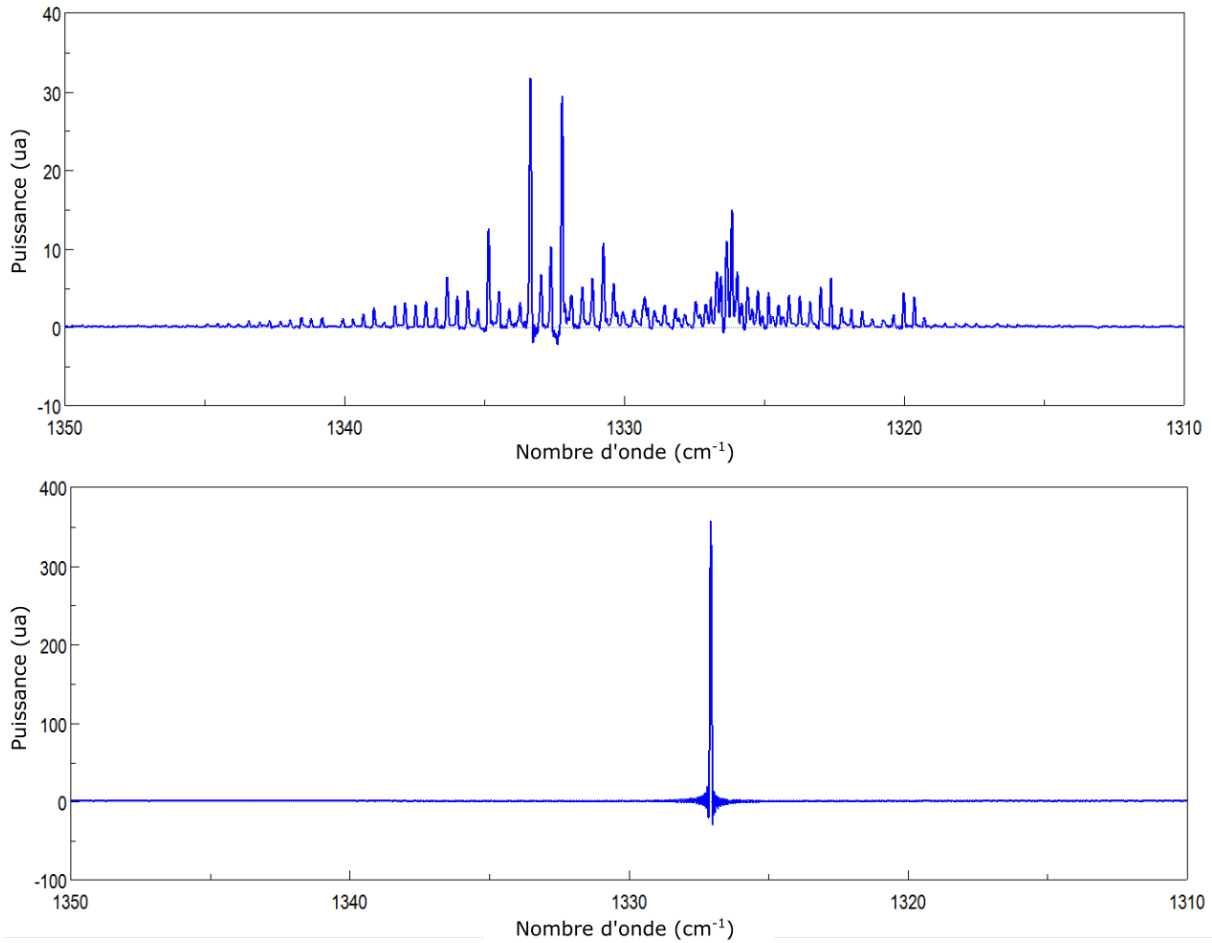


FIGURE 4.2: En haut : spectre d'émission d'un QCL sans contre-réaction en régime impulsif. En bas : spectre d'émission du même QCL avec contre-réaction en régime continu.

de ces deux résonateurs optiques se traduit par différentes valeurs de sauts de modes, correspondant à leur ISL respectifs. Ces sauts sont une gêne dans l'enregistrement de spectres de gaz car ils limitent la résolution. Un balayage spectral continu (aussi appelé *mode hop-free*) ne possède pas de sauts de mode et est par conséquent plus intéressant pour l'enregistrement de spectres.

4.2 Balayage *mode hop-free*

4.2.1 Variation synchrone des longueurs des cavités

Pour obtenir un balayage *mode hop-free* l'accord de phase entre la cavité externe et la cavité FP du QCL doit être conservé au cours du balayage. La cavité reste ainsi sur le même mode longitudinal. Diverses techniques ont été développées afin d'obtenir ce résultat. Toutes reposent sur le même principe : la conservation de l'accord de phase est réalisé en changeant simultanément la longueur optique de chacune des cavités. Ainsi l'ISL de chaque cavité varie et le même mode est conservé au cours du balayage. La longueur de la cavité externe varie avec un déplacement du réseau selon l'axe de la cavité.

Il peut être monté sur une translation dont le mouvement est synchronisé avec la rotation du réseau [86–88], ou monté sur une rotation dont l’axe est excentré par rapport au point d’impact du faisceau sur le réseau [89, 90]. Les deux méthodes sont représentées en figure 4.3. Pour la cavité FP, la variation de longueur optique est contrôlée par le courant d’alimentation du laser. En effet une variation du courant d’alimentation induit un changement de l’indice du milieu.

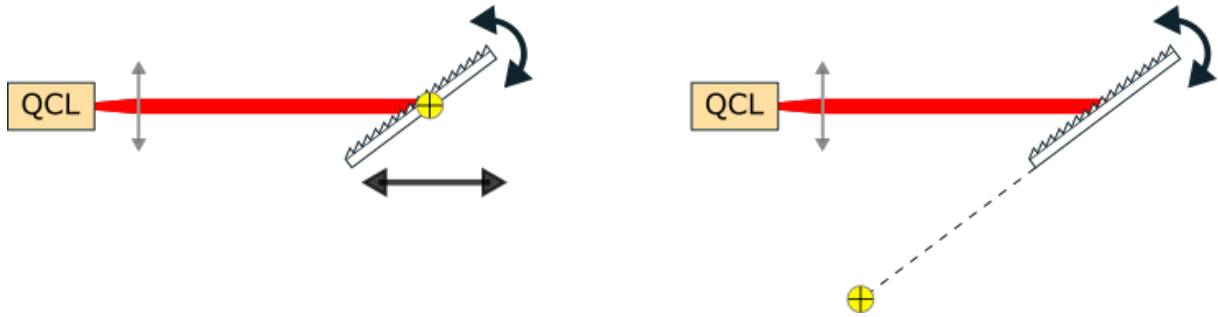


FIGURE 4.3: Variation de la longueur de la cavité externe avec la rotation du réseau. L’axe de rotation est symbolisé par le repère jaune. À gauche : Le mouvement d’une platine de translation est synchronisé avec celui d’une platine de rotation. À droite : L’axe de rotation est excentré de façon à faire varier la longueur de la cavité tout en tournant le réseau.

Néanmoins, quel que soit le montage expérimental, le *mode hop-free* n’est obtenu que sur quelques cm^{-1} . La limitation principale est la plage de courant exploitable. En effet l’influence du courant sur l’ISL de la cavité FP est faible. La variation de courant théorique pour conserver le même mode tout au long du balayage est énorme. Par exemple, pour la cavité présentée dans le chapitre 7, il faudrait une variation de plus de 4 A pour balayer sur 70 cm^{-1} . Or la puissance chute dû aux effets thermique à partir de 840 mA pour le QCL utilisé. Par conséquent un accord continu est réalisable uniquement sur de petites plages spectrales avec cette méthode.

4.2.2 Revêtement anti-reflet

Une autre solution pour obtenir un balayage *mode hop-free* est d’appliquer un revêtement anti-reflet (AR) sur une face du QCL. Dans l’idéal, le coefficient de la face est alors nul (ou négligeable) et la cavité FP n’existe plus (figure 4.4). Un balayage *mode hop-free* ne nécessite alors qu’une variation de la longueur de la cavité avec la rotation du réseau.

Dans les faits l’anti-reflet n’est pas parfait et une faible réflectivité persiste. En figure 4.5 est tracé le coefficient de réflexion d’une couche de TiO_2 (servant d’AR) sur différents substrats (qui correspondent aux matériaux de la zone active du QCL). Ces mesures ont été effectuées pour des QCL émettant à $7.5 \mu\text{m}$. La réflectivité de l’AR est de 0.5 %.

Bien que la résonance dans le QCL soit fortement supprimée par l’AR, la réflectivité résiduelle est généralement suffisamment importante pour influencer la longueur d’onde de la cavité et provoquer des sauts de modes. Nous avons mesuré l’évolution du nombre d’onde d’une cavité étendue avec la rotation du miroir. Il s’agit d’une configuration Littman, que nous présenterons par la suite, où la rotation d’un miroir permet de balayer

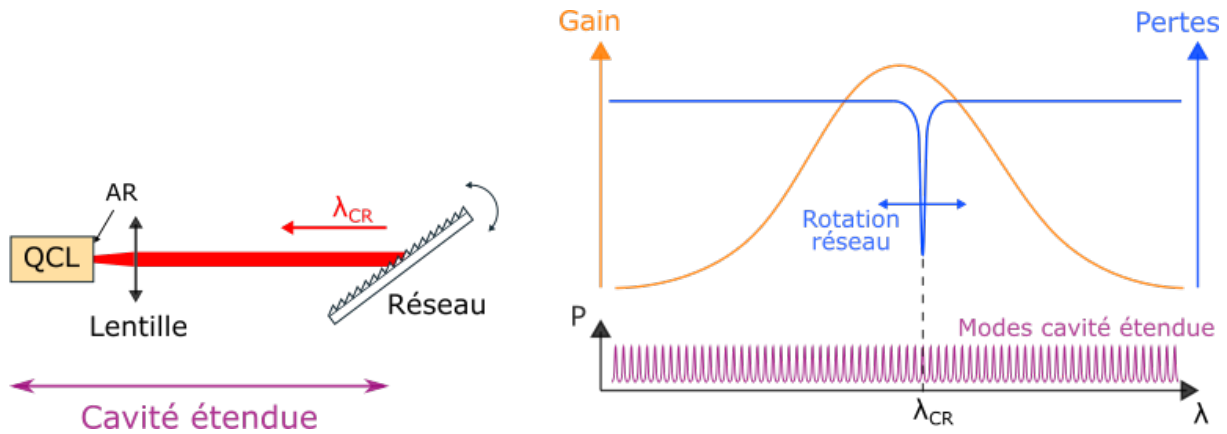


FIGURE 4.4: À gauche : Cavité étendue accordable avec AR. À droite : Représentation des caractéristiques (gain, pertes, modes) de la cavité.

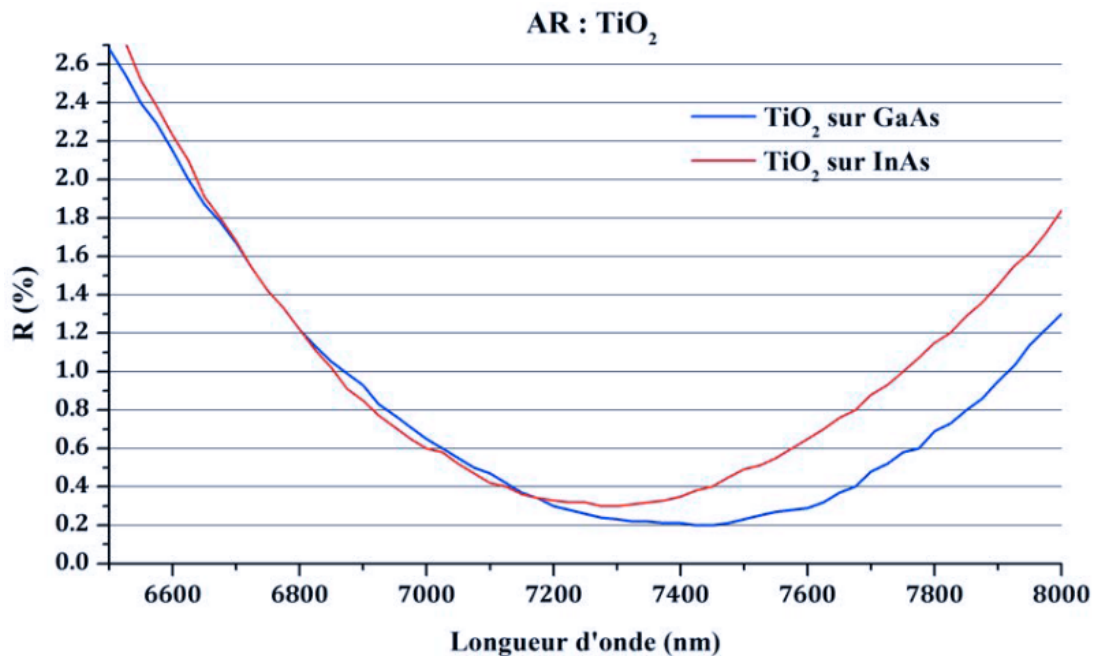


FIGURE 4.5: Coefficient de réflexion résiduel d'une couche de TiO_2 sur différents substrats (image tirée de [91]).

spectralement (équivalent à une rotation du réseau pour l'exemple utilisé jusqu'alors). Le courant est fixe et seul le miroir tourne. La rotation est par pas de 0.001° . À chaque pas, une acquisition au spectromètre FTIR est effectuée avec une précision de 0.015 cm^{-1} . Le traitement des données est effectué par un programme LabVIEW que nous avons développé. Il détermine le nombre d'onde correspondant au maximum d'émission pour chaque spectre. Le QCL utilisé possède un traitement AR identique à celui présenté en figure 4.5 et émet à $7.5 \mu\text{m}$. En figure 4.6 sont tracés les écarts en nombre d'onde entre deux angles consécutifs du miroir. L'incertitude sur la différence calculée est de 0.03 cm^{-1} . Nous observons des sauts de modes d'environ 0.5 cm^{-1} et de 0.015 cm^{-1} . Ces derniers correspondent à l'incertitude sur la mesure. Théoriquement l'ISL du QCL est de 0.51 cm^{-1} (indice 3.27,

longueur 3 mm), ce qui correspond aux sauts observés. Ainsi l'effet du coefficient résiduel de 0.5% est visible expérimentalement.

La longueur de la cavité est de 38 cm, soit un ISL de 0.013 cm^{-1} (indice de l'air). Cette valeur étant du même ordre de grandeur que l'incertitude sur la mesure, les sauts de modes de cavité externe ne sont pas visibles.

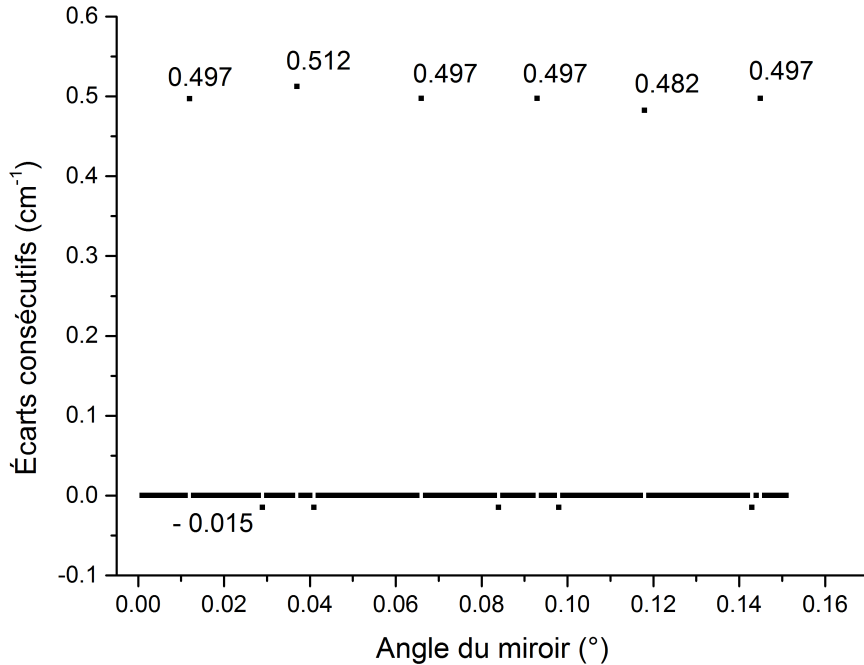


FIGURE 4.6: Écart en nombre d'onde entre deux positions angulaires consécutives du miroir.

La réflectivité résiduelle des AR ou leur dégradation avec le temps (selon les conditions d'utilisation) ne permet pas de supprimer la cavité FP. Toutefois l'influence de la cavité externe sur le nombre d'onde émis est d'autant plus important que le coefficient de réflexion est bas. Sans AR c'est la cavité FP qui "domine" et fixe le nombre d'onde. Nous n'observerions alors que ses sauts de modes. Avec l'AR, la valeur des sauts est comprise dans l'intervalle [sauts de cavité externe, sauts de cavité FP] car les deux cavités sont couplées. Cependant nous n'avons pas pu observer ce phénomène avec la cavité utilisée en raison de l'ISL très faible de la cavité externe.

4.3 Les différentes configurations de cavité

Au cours de cette thèse nous avons utilisé trois configurations différentes que nous allons présenter. Nous nous plaçons dans le cadre où la source est un QCL mais le principe est applicable à d'autres sources (diodes lasers par exemple). En plus de l'AR, un traitement haute réflectivité (HR) peut être appliqué sur l'une des faces du QCL dans le but de diminuer les pertes de la cavité.

4.3.1 Littrow face avant

La première configuration, représentée en figure 4.7, est dite Littrow face avant. Pour une cavité de type Littrow, la contre-réaction est assurée par l'ordre 1 du réseau, directement renvoyé dans le QCL. L'accord en nombre d'onde est obtenu par rotation du réseau. Parmi les trois configurations utilisées, c'est celle-ci qui possède le moins de pertes. Cependant, la sortie laser est l'ordre 0 du réseau, ce qui implique que la direction du faisceau change avec la rotation du réseau. Cette caractéristique est problématique pour beaucoup d'applications.

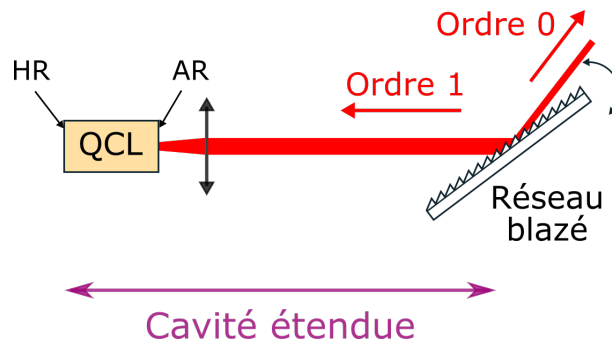


FIGURE 4.7: Principe d'une cavité Littrow face avant.

4.3.2 Littrow face arrière

La deuxième configuration, représentée en figure 4.8, est dite Littrow face arrière. Le faisceau sort par la face qui peut être non traitée. Les pertes sont plus importantes qu'en face avant car l'ordre 0 du réseau est perdu et le coefficient de réflexion de la face avant est plus faible qu'un HR. Cependant, l'avantage est que la direction du faisceau ne change pas avec la rotation du réseau.

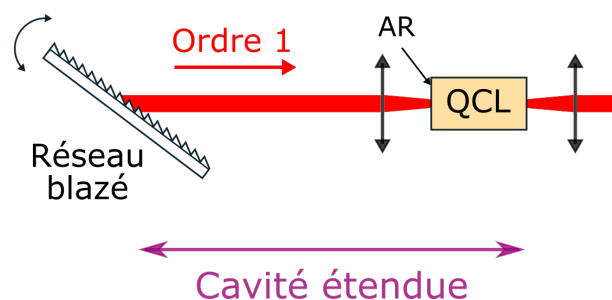


FIGURE 4.8: Principe d'une cavité Littrow face arrière.

4.3.3 Littman face avant

La dernière configuration, représentée en figure 4.9, est dite Littman face avant. Pour une cavité Littman c'est l'association d'un réseau et d'un miroir qui assure la contre-réaction. L'ordre 1 du réseau est envoyé sur le miroir avec un angle d'incidence nul.

Le faisceau est réfléchi sur lui-même puis est diffracté une seconde fois. Selon la loi de diffraction par un réseau, l'ordre 1 de cette seconde diffraction est envoyé dans le QCL. Le réseau est immobile et l'accord est obtenu par la rotation du miroir. Ainsi le faisceau de sortie (ordre 0) reste fixe au cours du balayage. De plus, la largeur de raie du laser tend à être plus fine grâce au double passage par le réseau [92]. Néanmoins l'ordre 0 diffracté par le retour du miroir est perdu, ce qui accroît les pertes par rapport à une Littrow face avant.

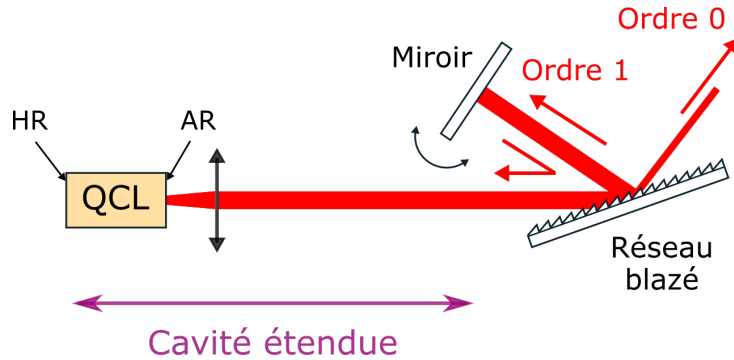


FIGURE 4.9: Principe d'une cavité Littman face avant.

Dans la suite de ce manuscrit, aucune des configurations n'est conçue pour faire du *mode hop-free*. Le chapitre 5 porte sur l'exploitation d'une source innovante en cavité étendue et le chapitre 7 détaille le développement d'une méthode de traitement des données, que nous avons développée, pour retirer l'influence des sauts de mode sur le spectre final du gaz.

Chapitre 5

La barrette de μ SQCL cohérents montée en cavité étendue

Nous avons déjà évoqué l'intérêt des sources dans le moyen infrarouge pour les domaines de la contre-mesure optique et de la détection de gaz à distance. Pour ces domaines, les lasers doivent émettre une forte puissance avec une bonne qualité de faisceau. Nous avons vu en section 1.3.3 qu'augmenter le nombre de périodes du QCL n'est pas une solution pour obtenir une forte puissance à cause des effets thermiques. Une autre possibilité est d'agrandir la largeur de la zone active (ZA). De tels lasers ont été réalisés [93, 94] et une puissance de 120 W a été obtenue, en régime impulsif à température ambiante, pour une largeur de ZA de 400 μm [29]. L'évolution de puissance avec la taille de la ZA est tracée sur la figure 5.1 tirée de [29]. Le régime est impulsif avec un rapport cyclique de 0.2 %. Le courant seuil, le courant de saturation et la puissance optique évoluent linéairement avec la largeur de la ZA. Le courant de saturation est défini comme étant le courant maximal au delà duquel la puissance commence à chuter. Deux phénomènes peuvent être à l'origine de cette diminution. Le premier est une trop forte élévation de la température de la ZA, à cause de l'effet Joule, ce qui diminue le rendement (*Wall-plug efficiency*) du laser [95]. Le second est une augmentation trop importante du champ appliqué au QCL, ce qui désaligne les niveaux de la zone active et de l'injecteur [96]. Dans ce cas, une augmentation de la pente de la caractéristique Tension-Courant est observée, comme sur la figure 5.1.

Néanmoins la qualité du faisceau se dégrade avec l'augmentation de la taille de la ZA. En effet, au delà d'une largeur limite le confinement optique latéral n'existe plus. De ce fait, tout changement local d'indice peut conduire à une auto-focalisation de la lumière dans la zone active et provoquer l'apparition de modes latéraux. Ce phénomène est connu sous le nom de filamentation [97, 98] et se traduit par la formation aléatoire de filaments de forte intensité dans la ZA. Dans le pire des cas ils peuvent endommager le milieu par une trop forte élévation locale de température. L'aspect aléatoire de ce phénomène conduit à un profil d'intensité chaotique en champ lointain, ce qui n'est pas compatible avec les domaines cités précédemment. Le profil en champ lointain pour deux largeurs de ZA différentes est présenté en figure 5.2. Les acquisitions ont été faites avec une caméra infrarouge Pyrocam IIIHR Beam Profiling Camera (Ophir). Avec 10 μm de large

le profil est gaussien alors qu'avec $20\ \mu\text{m}$ deux lobes existent. Le confinement est encore suffisamment présent pour éviter la formation de modes aléatoires de forte intensité, mais le profil est tout de même dégradé.

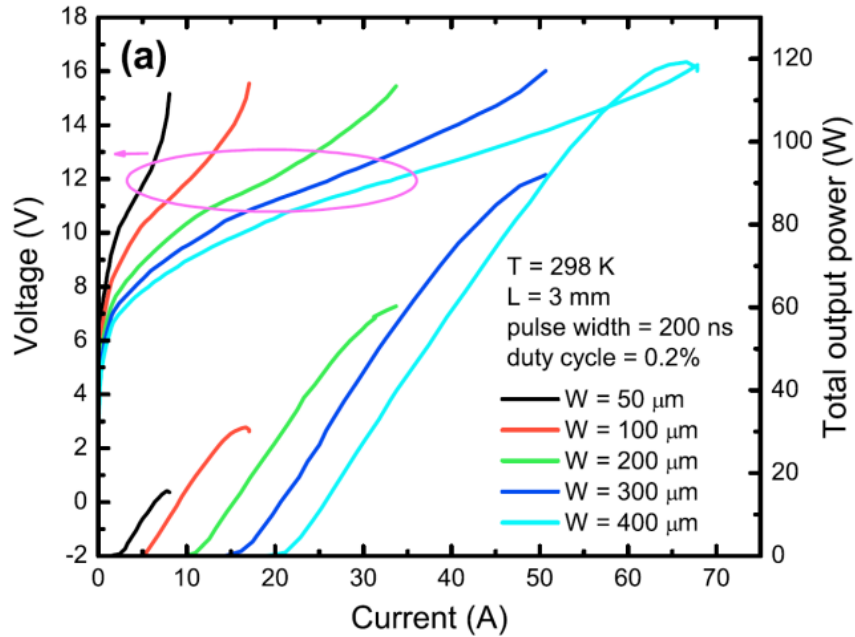


FIGURE 5.1: Évolution de la tension et de la puissance d'un QCL en fonction du courant pour différentes largeurs de ZA (image tirée de [29]).

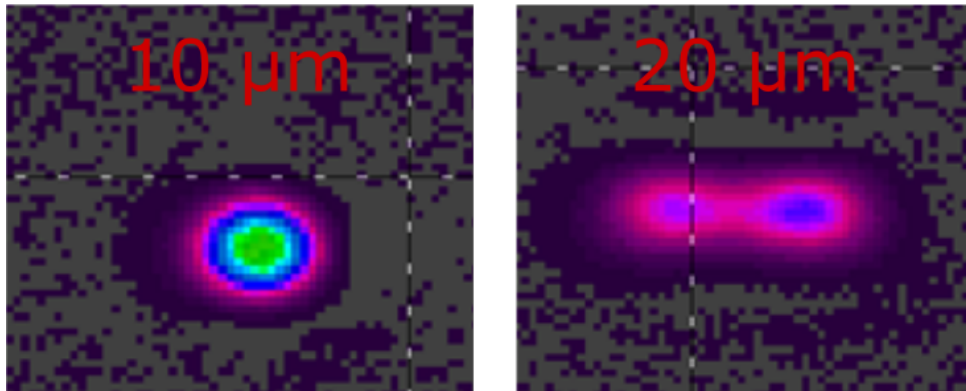


FIGURE 5.2: Profil de faisceau en champ lointain pour 2 tailles différentes de ZA (images fournies par MirSense). Deux modes transverses existent à $20\ \mu\text{m}$ en raison de la diminution du confinement optique.

Une solution est de diviser la ZA en plusieurs sources cohérentes entre elles. Cette idée, déjà appliquée aux lasers semi-conducteurs dans le visible [99] et proche infrarouge [100], a été transposée aux QCL, notamment avec le projet ANR COCASE (référence ANR-11-ASTR-0027). Ce projet démarré en janvier 2012 s'inscrit dans le cadre du programme d'Accompagnement Spécifique de Travaux de Recherches et d'Innovation Défense (ASTRID). L'objectif était de développer une source forte puissance largement accordable

dans le moyen infrarouge. La puissance repose sur l'utilisation de micros-rubans cohérents (μ SQCL pour *Micro-Stripes QCL*). Ces μ SQCL sont montés en cavité étendue pour accorder la longueur d'onde d'émission.

5.1 Principe de la barrette de μ SQCL cohérents

Le principe des μ SQCL cohérents est représenté en figure 5.3. Des images en champ proche d'un réseau de 4 émetteurs ont été obtenues avec une caméra QWIP (*Quantum Well Infrared Photodetector*) et le motif de diffraction est schématisé en dessous. Sous le courant seuil, l'émission de chaque émetteur est spontanée et il n'y a pas de cohérence. Le motif de diffraction est la somme des intensités de champ. Au dessus du seuil, l'émission est stimulée et une cohérence de phase existe au sein du réseau d'émetteurs. Le motif de l'émission cohérente présente des interférences constructives et destructives, et une enveloppe d'intensité est visible (contrairement à l'émission incohérente).

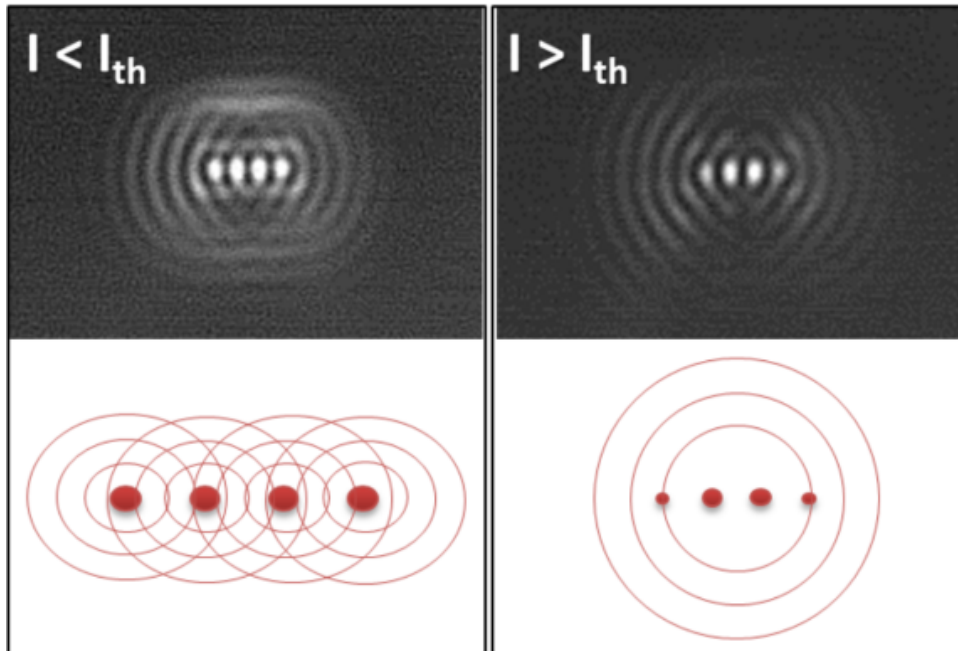


FIGURE 5.3: Champ proche d'un réseau de 4 émetteurs en dessous (gauche) et au dessus (droite) du seuil (image tirée de [101]). Le motif de diffraction est schématisé sous chaque image.

Le fonctionnement des μ SQCL est schématisé en figure 5.4 pour un réseau d'émetteurs de période $\Lambda=W+D$ (W la largeur d'un émetteur, D l'espace entre deux émetteurs). Il repose sur le recouvrement des modes propres des émetteurs contigus. Pour chaque émetteur, il existe une onde évanescente qui se propage au delà du guide d'onde. Les ondes d'émetteurs voisins se recouvrent, ce qui force la phase de chacun. On parle ainsi de couplage par onde évanescente. C'est cette cohérence de phase qui permet aux émetteurs d'interférer entre eux. Plus il y a d'émetteurs et plus l'intensité lumineuse est importante.

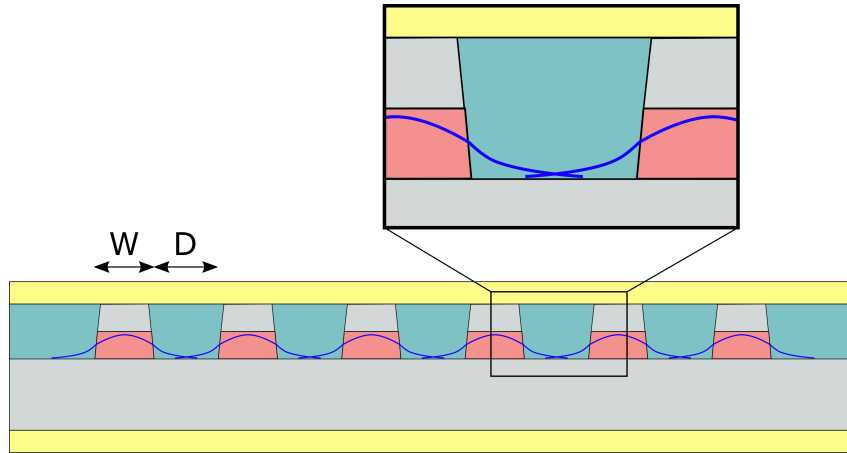


FIGURE 5.4: Représentation du couplage par ondes évanescentes dans un μ SQCL. Le couplage des modes propres de chaque guide se fait par le recouvrement des ondes évanescentes.

Un aspect important des μ SQCL est le compromis entre le confinement des modes dans les guides, leur recouvrement, et la dissipation thermique. Ces caractéristiques sont influencées par les dimensions des émetteurs et leur espacement. Plus un mode est confiné dans son guide, donc dans la zone active, et plus il y a de gain. Cependant cela implique une diminution de l'énergie se propageant dans l'onde évanescente, donc un affaiblissement du couplage. Un rapprochement des émetteurs renforce le couplage mais la dissipation thermique en pâtit et le comportement du système tend alors vers un QCL avec une large ZA (figure 5.5).

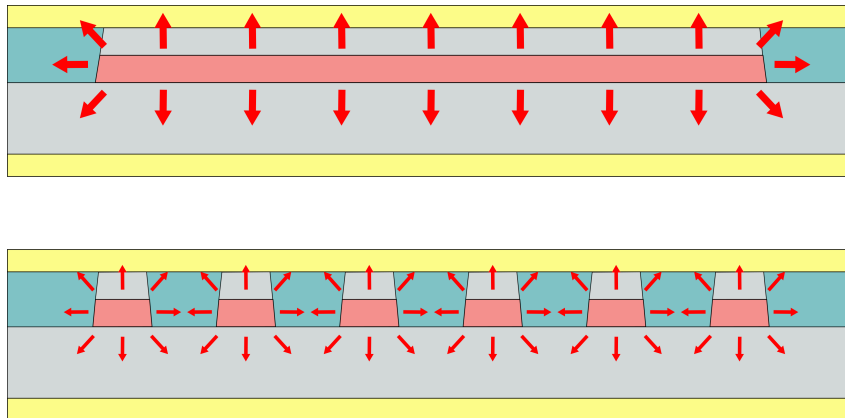


FIGURE 5.5: Représentation schématique de la dissipation thermique (flèches rouges) pour un QCL à large ZA (haut) et un μ SQCL (bas). La surface d'échange est plus importante pour le μ SQCL donc la dissipation est meilleure.

La théorie des modes couplés [102] prédit la formation de N supermodes en champ proche (N étant le nombre d'émetteurs). Deux supermodes nous intéressent : le symétrique, où la phase est la même pour tous les émetteurs, et l'anti-symétrique, où les émetteurs voisins sont en opposition de phase. Le profil d'intensité en champ lointain est monolobe pour le symétrique et bilobe pour l'anti-symétrique (figure 5.6). Pour la

plupart des applications le supermode symétrique est donc désiré car plus facile à exploiter. Cependant, il existe dans le cas où $\Lambda < \lambda$ alors que l'anti-symétrique existe lorsque $\Lambda < 3/2 \lambda$. Dans notre cas l'objectif est d'avoir une source cohérente de forte puissance, donc la dissipation thermique est privilégiée et c'est le supermode anti-symétrique qui est présent.

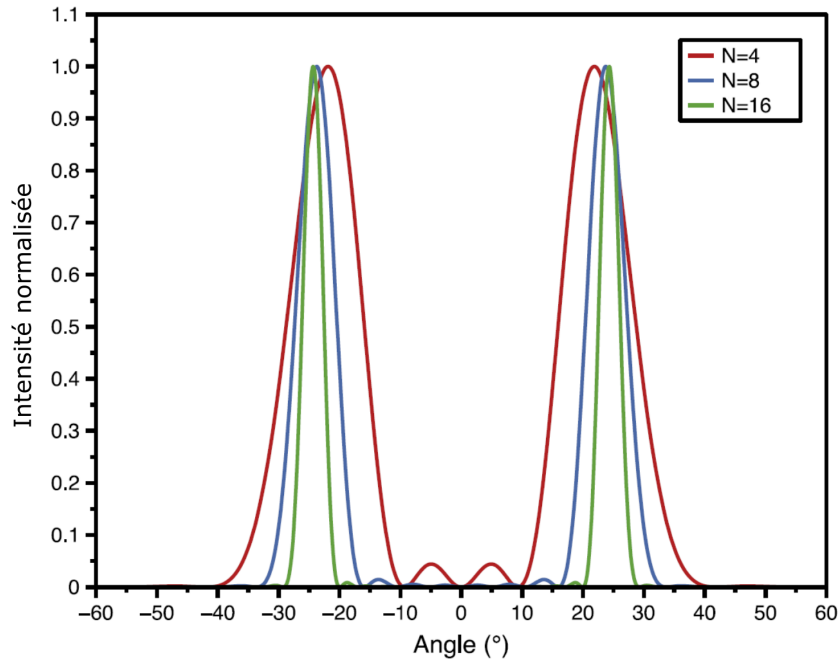


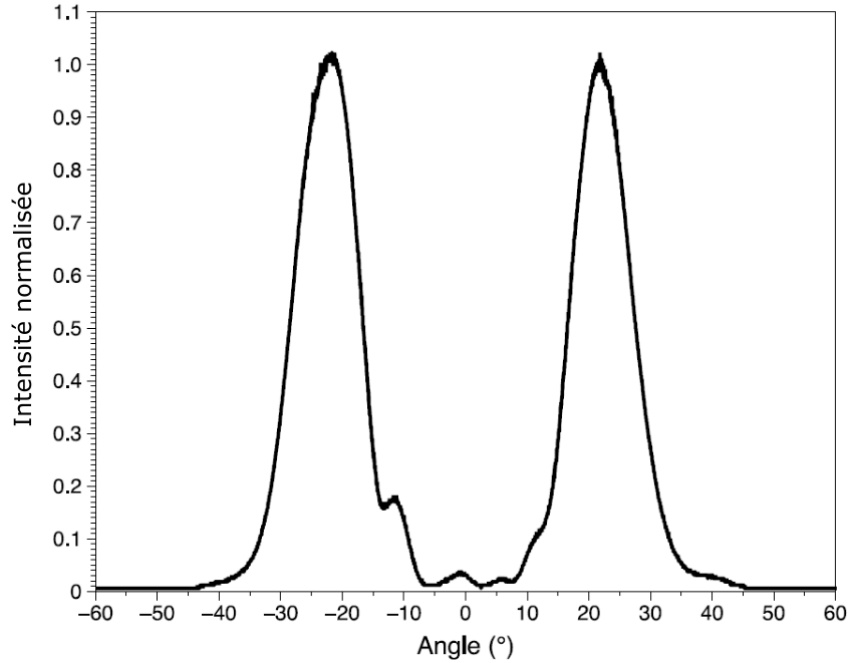
FIGURE 5.6: Simulation du profil d'intensité normalisée en champ lointain du supermode anti-symétrique pour N émetteurs. Les paramètres sont $W = 2 \mu\text{m}$, $D = 8 \mu\text{m}$, $\lambda = 8.3 \mu\text{m}$.

5.2 Montage expérimental

Le μSQCL exploité dans ce chapitre possède 4 émetteurs ($W = 2 \mu\text{m}$, $D = 8 \mu\text{m}$, longueur 1 mm) émettant à $8.3 \mu\text{m}$. Un revêtement haute réflectivité est appliqué sur la face arrière et la face avant est clivée. Le profil d'intensité en champ lointain dans le plan du μSQCL est tracé en figure 5.7. L'écart angulaire de 45° et la largeur des lobes sont en accord avec le spectre théorique présenté en figure 5.6. L'asymétrie entre les lobes est probablement due à un défaut dans l'un des émetteurs.

Pour la plupart des applications une émission bilobe est problématique. Cependant, nous avons tiré parti de cette caractéristique en associant un des lobes à une cavité étendue (configuration Littrow) et l'autre à un dispositif de détection de gaz. La cohérence entre les émetteurs implique que les deux lobes sont à la même longueur d'onde. De ce fait, la contre-réaction sur l'un influe l'émission de l'autre. L'avantage de cette méthode est que le faisceau reste quasiment immobile au cours du balayage spectral.

Le montage expérimental est représenté en figure 5.8. Le laser est monté dans un boîtier LLH (*Laboratory Laser Housing*) Alpes Lasers modifié pour pouvoir l'accueillir. Dans ce type de boîtier la puce laser est refroidie par un peltier et alimentée par une nappe basse

FIGURE 5.7: Profil d'intensité normalisée en champ lointain dans le plan du μ SQCL.

impédance pour limiter la déformation des impulsions électriques. Le laser fonctionne à température ambiante en régime impulsionnel (fréquence 5 kHz, durée d'impulsion 100 ns) et la puissance crête d'un lobe est de 0.2 W pour un courant de 1 A. Deux lentilles en Germanium, traitées avec un AR pour $8\ \mu\text{m}$, collimatent les faisceaux. Elles sont montées sur des translations xyz et leurs axes sont colinéaires avec ceux des lobes. Pour la cavité étendue, le réseau est blazé pour l'ordre 1 à $8.3\ \mu\text{m}$ et un angle de 30° . Il est monté une sur platine goniométrique GNL20 (Thorlabs) possédant une précision angulaire de 0.01° . Le point de rotation de la platine est au point d'impact du faisceau sur le réseau. Ainsi la longueur de la cavité ne change pas avec la rotation. Pour le système de détection, le faisceau est séparé par une lame afin de mesurer la puissance avec un détecteur PCI-3TE-10.6 (Vigo) et la longueur d'onde avec un spectromètre FTIR MIR8025 (Newport) de résolution maximale de $1\ \text{cm}^{-1}$.

La caractéristique Puissance-Courant avec et sans contre-réaction est tracée en figure 5.9. Le μ SQCL est à 20° en régime impulsionnel (durée d'impulsion 100 ns, fréquence 5 kHz). Étant donné que la face avant de la puce est non traitée, la source peut émettre sans contre-réaction. De plus, en présence de contre-réaction, c'est la cavité FP formée par les faces du μ SQCL qui prédomine sur l'émission. C'est pourquoi la puissance ne varie quasiment pas avec la contre-réaction. Toutefois les pertes diminuent pour la longueur d'onde renvoyée par le réseau. Par conséquent nous observons une diminution du courant seuil (passage de 730 mA à 700 mA) et une légère augmentation de la puissance. Néanmoins l'influence de la contre-réaction est nettement observable sur le spectre du faisceau (figure 5.10 haut). Le comportement du laser seul est multimode (comportement FP) et devient monomode avec la contre-réaction. La cavité est ainsi accordable entre 1202 et $1222\ \text{cm}^{-1}$ par rotation du réseau. Cet accord n'est pas continu à cause de la réflec-

tivité de la face avant du laser. Nous observons des sauts de 1.5 cm^{-1} , soit l'ISL du μSQCL .

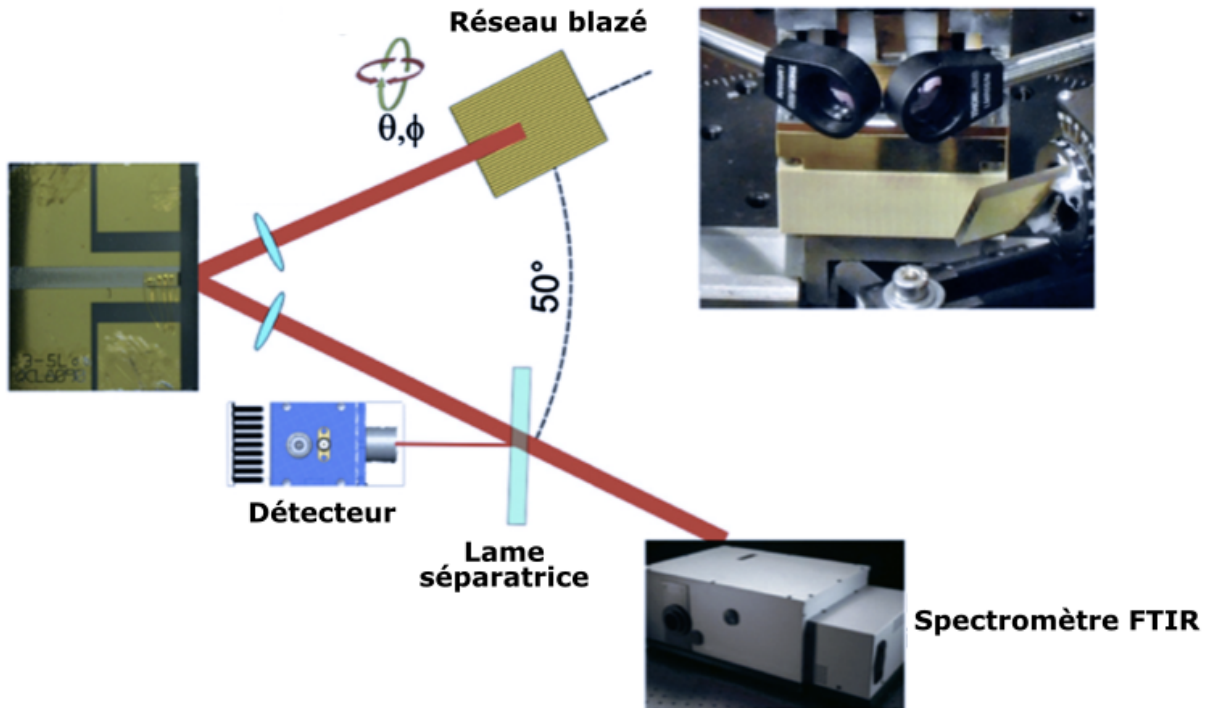


FIGURE 5.8: Représentation du montage expérimental. L'encart en haut à droite est une photo des lentilles de collimation devant le μSQCL .

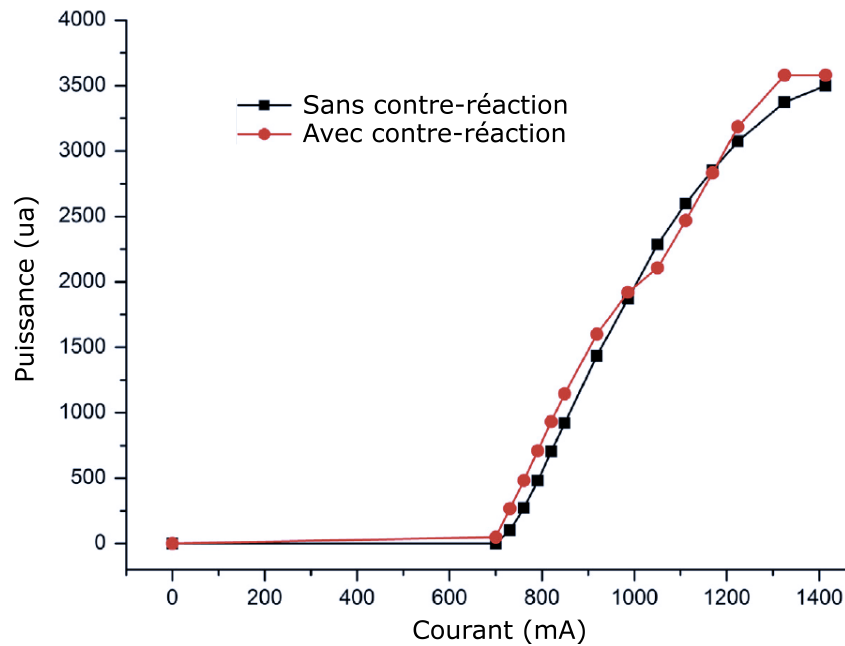


FIGURE 5.9: Caractéristique Puissance-Courant avec et sans contre-réaction.

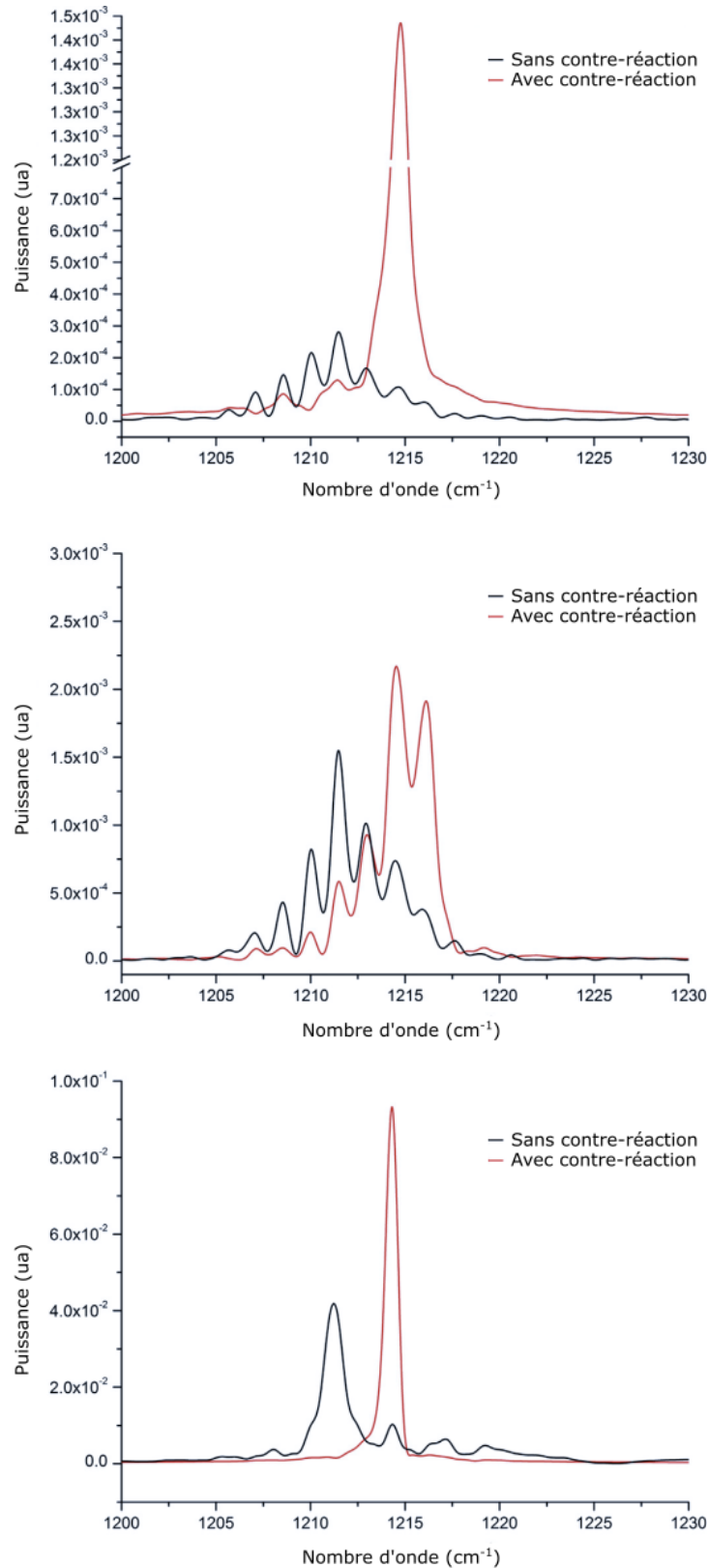


FIGURE 5.10: Spectre d'émission avec et sans contre-réaction. L'écart de 1.5 cm^{-1} entre les modes correspond à l'intervalle spectral libre du μ SQCL (longueur 1 mm, indice 3.3). De haut en bas le courant est de 740 mA, 1.01 A et 1.41 A.

Sur les plages de courants 0.740-1 A et 1.2-1.4 A (figure 5.10 haut et bas) le spectre d'émission est affiné par rapport au laser seul, ce qui est le comportement attendu pour une cavité étendue. Cependant sur la plage 1-1.2 A plusieurs éléments sont à noter. La contre-réaction est toujours présente mais beaucoup plus faible. Nous pouvons affirmer ceci avec la figure 5.10 (milieu). Le spectre est multimode, mais certains modes non centrés sur l'émission naturelle du μ SQCL sont privilégiés. De plus, nous observons sur la figure 5.9 que la puissance est plus faible avec la contre-réaction que sans. Tout ceci nous laisse penser que la divergence angulaire de l'émission bilobe a changée sur cette plage de courant. Les éléments optique ne sont alors plus correctement alignés avec les faisceaux, ce qui explique la diminution de la contre-réaction et de la puissance. Nous n'avons toutefois pas mesuré le profil du champ lointain pour les différentes plages de courants donc nous ne pouvons rien affirmer. Nous n'avons également pas d'explication quant à l'origine de ce phénomène s'il est avéré, mais nous supposons que son origine est un effet thermique au sein du laser.

5.3 Enregistrement du spectre de l'acétone

Nous avons enregistré un spectre en transmission de l'acétone avec ce dispositif. Notre choix s'est porté sur cette molécule car elle possède un spectre similaire à certains gaz d'intérêt militaire et elle absorbe dans la région spectrale de la cavité (figure 5.11 courbe noire). De plus, ce spectre est relativement étendu et ne peut être couvert par un QCL DFB, dont la plage d'accord n'est que de quelques cm^{-1} .

La largeur de la plage d'accord a été étendue de 1187 à 1227 cm^{-1} en combinant la rotation du réseau et un changement du courant d'alimentation. La plage de courant exploitée est entre 740 mA et 1 A afin d'éviter toute erreur liée au fonctionnement multimode entre 1 A et 1.2 A.

Le spectre en transmission de l'acétone est tracé en figure 5.11. Le gaz est contenu dans une cellule simple passage de 15 cm de long placée avant le détecteur. Il est à température ambiante et une pression de 10 Torr. Le spectre est obtenu par le rapport de deux enregistrements (avec et sans gaz). L'écart de 1.5 cm^{-1} entre les points correspond à l'ISL du μ SQCL. Cet écart n'est pas le même sur toute la figure car certains points sont à des courants différents des autres. Nous avons comparé ce résultat à un enregistrement au spectromètre FTIR dans les mêmes conditions. Un bon accord entre les deux spectres est obtenu, ce qui valide l'expérience. Ces résultats ont menés à la publication d'un article [16] qui constitue la première application, à notre connaissance, d'une barrette de μ SQCL cohérents montés en cavité étendue pour l'enregistrement d'un spectre de gaz.

5.4 Conclusion

Les résultats obtenus dans ce chapitre montrent que les μ SQCL sont associables à une cavité étendue pour obtenir une source monomode accordable. Cette source est intéressante pour effectuer la détection d'un gaz avec un spectre large, ou plusieurs gaz,

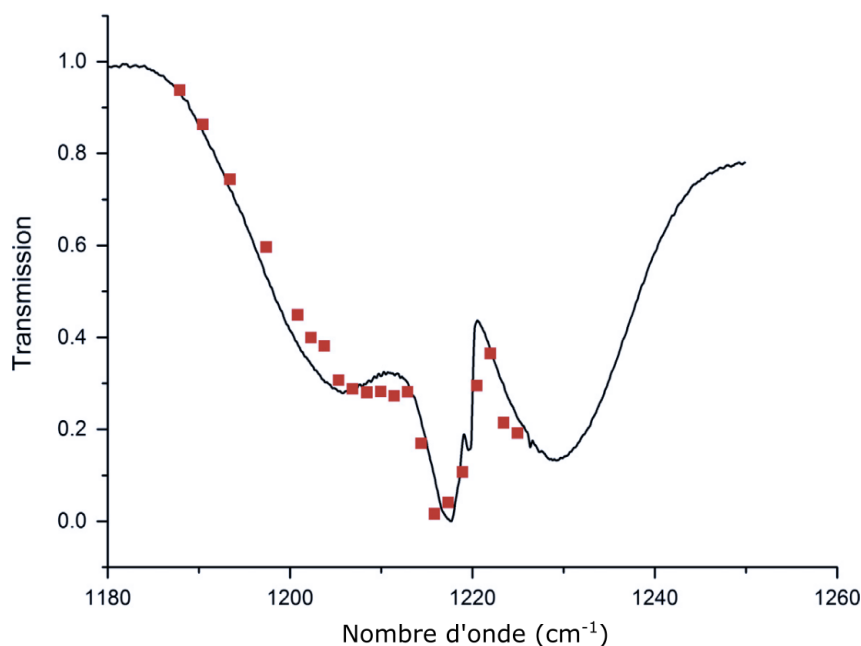


FIGURE 5.11: Spectre de l'acétone réalisé avec la cavité étendue (points rouges) et le spectromètre FTIR (ligne noire).

grâce à sa grande plage d'accord. Les futurs travaux et développements porteront sur l'augmentation de la puissance de sortie. Il sera alors possible d'associer la source avec une cellule photoacoustique pour améliorer la sensibilité de détection. L'objectif est de dépasser le watt en puissance crête avec cette source, ce qui est possible en diminuant la température du μ SQCL. De même le régime continu est un objectif afin de s'affranchir des inconvénients liés au régime impulsionnel.

Dans la suite du manuscrit nous abordons une autre application des cavités étendues : la spectroscopie intracavité.

Deuxième partie

Sources basées sur la technique intracavité

Chapitre 6

Spectroscopie intracavité sans détecteur optique

6.1 La technique Intracavité (ICLAS)

L'ICLAS (*Intracavity Laser Spectroscopy*) est une technique haute sensibilité et haute résolution développée au début des années 70 [103]. Elle a depuis été maîtrisée dans les domaines du visible [104–106] et du proche infrarouge [107, 108], et se développe dans le moyen infrarouge [109, 110]. Le principe est représenté en figure 6.1. L'échantillon d'intérêt est placé à l'intérieur de la cavité laser formée par les miroirs M1 et M2. Les raies d'absorption de l'échantillon induisent une augmentation des pertes aux longueurs d'onde correspondantes. Ainsi, une diminution de la puissance en sortie de cavité est observée à ces longueurs d'onde. Le système de détection est adapté au mode de fonctionnement du laser, comme nous le verrons par la suite. L'attrait majeur de l'ICLAS est la grande longueur de parcours obtenue. En effet, les oscillations optiques à l'intérieur de la cavité impliquent de multiples passages dans l'échantillon. Avec un système soigneusement optimisé, la longueur de parcours peut atteindre plusieurs centaines de kilomètres, ce qui en fait une technique appropriée pour la détection de faibles absorptions (jusqu'à 10^{-9} - 10^{-10} cm^{-1} [111–113]).

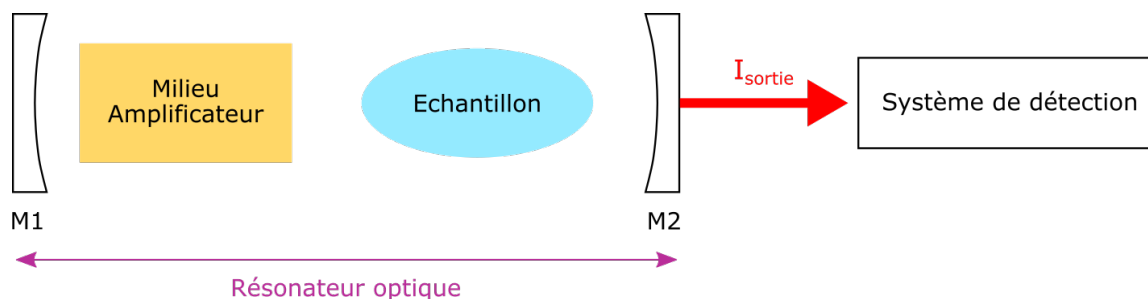


FIGURE 6.1: Principe de l'ICLAS

Dans cette section nous abordons l'ICLAS pour deux régimes de fonctionnement du laser : le régime impulsionnel multimode et le régime continu monomode. Le premier

permet d'obtenir une meilleure sensibilité, mais le second à l'avantage d'être plus facile à implémenter. De plus, comme nous le verrons par la suite, le régime multimode n'est pas adapté à notre méthode de détection.

6.1.1 ICLAS en régime impulsionnel multimode

Le principe de l'ICLAS en régime impulsionnel multimode est représenté en figure 6.2. Les raies d'absorption de l'échantillon sont plus fines que l'élargissement spectral homogène du milieu à gain. Ainsi le gain du laser n'est pas affecté par ces raies et ne compense que les pertes de la cavité (telles que la transmission des miroirs et les pertes dans le milieu à gain).

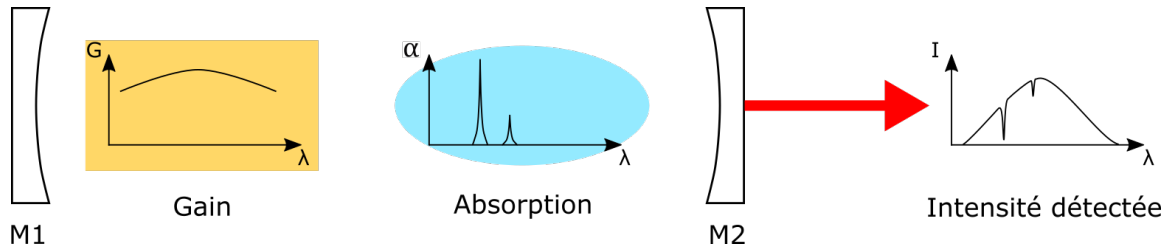


FIGURE 6.2: Principe de l'ICLAS

La mesure de l'absorption est effectuée au cours d'un intervalle de temps bien défini. En effet il existe 4 intervalles caractérisant la dynamique d'un laser multimode [114]. Le premier est marqué par l'augmentation de l'inversion de population à l'allumage du laser ($t = 0$) et un nombre de photons intracavité quasiment nul. Lors du second, l'inversion de population atteint sa valeur de saturation et le nombre de photons augmente de façon exponentielle. À $t = t_M$ ces deux paramètres atteignent leur valeur stationnaire. Pour $t > t_M$ le nombre de photons reste fixe mais la répartition spectrale évolue, c'est le troisième intervalle. En effet il existe une compétition entre les modes longitudinaux de la cavité. Ceux dont le gain est le plus faible, ou dont les pertes ne sont pas compensées, s'atténuent et disparaissent au profit des modes centraux du laser. Ce comportement est observable sur la figure 6.3 représentant l'évolution de la répartition spectrale d'un laser à colorant. Le dernier intervalle est caractérisé par une émission stationnaire du laser à partir d'un temps $t = t_s$.

C'est au cours du troisième intervalle que la mesure de l'absorption est réalisée. En effet, pendant cette période, l'évolution du nombre de photons dans un mode q en présence de l'échantillon suit la loi suivante [114, 115] :

$$M_{q,\alpha}(t) = M_q(t)e^{-\alpha_q ct} \quad (6.1)$$

avec M_q le nombre de photons dans le mode q en l'absence de l'échantillon, α_q le coefficient d'absorption pour le mode q , t le temps entre l'allumage du laser et la mesure. Nous retrouvons un comportement de type loi de Beer-Lambert avec une longueur d'interaction $L_{eff} = \frac{1}{L}ct$ (l est la longueur occupée par l'échantillon et L la longueur de la cavité). Ainsi pour $t_M < t < t_s$ l'absorbance évolue linéairement en fonction du temps.

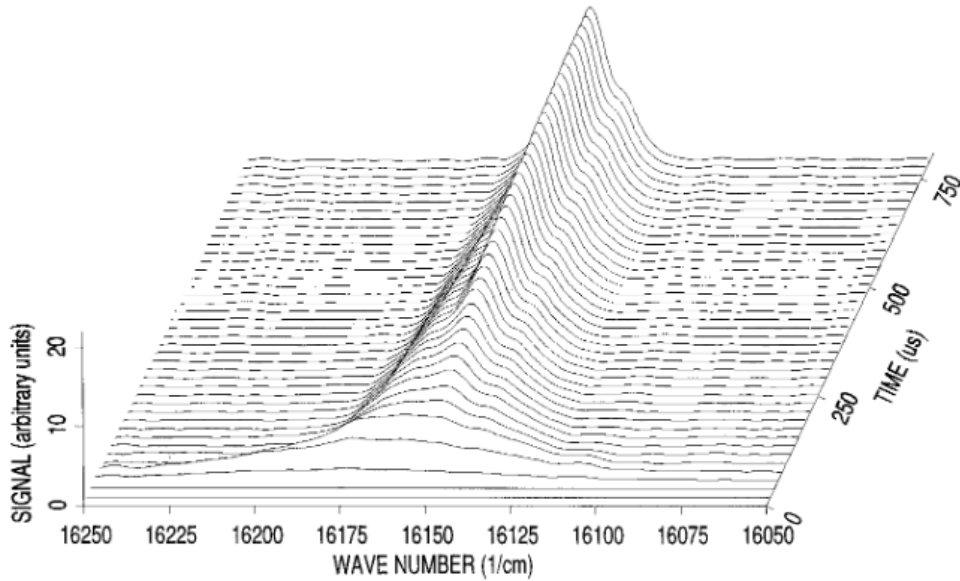


FIGURE 6.3: Évolution de la répartition spectrale d'un laser à colorant (image tirée de [115]).

Lorsque le laser atteint le régime stationnaire la longueur d'interaction est maximale. Sa limite fondamentale peut alors être définie comme [114] :

$$L_{eff}^{max} = ct_s = \frac{cM_q^s}{\gamma} \quad (6.2)$$

avec M_q^s le nombre de photons en régime stationnaire et γ les pertes de la cavité.

Au cours de l'intervalle la plage spectrale d'émission diminue tandis que la sensibilité augmente. Il existe alors un compromis entre sensibilité et plage spectrale étudiée. Afin d'exploiter au maximum ces deux paramètres, plusieurs enregistrements à des temps différents peuvent être effectués au cours de l'intervalle. Dans ce cas, le système de détection doit être capable de résoudre spectralement et temporellement le spectre d'émission de la cavité. Un spectromètre à transformée de Fourier est un dispositif idéal pour exploiter la méthode intracavité. Cet appareil effectue des acquisitions spectrales sur de larges plages. Sa vitesse d'acquisition ne permet pas d'enregistrer plusieurs spectres au cours d'un intervalle, mais il est possible de synchroniser l'acquisition avec les impulsions laser. Ainsi plusieurs enregistrements correspondant à différents instants de l'intervalle peuvent être effectués. Un exemple tiré de [116] est tracé en figure 6.4. La figure comporte 114 spectres résolus en temps de l'atmosphère. Chaque spectre est composé de 10000 points. L'augmentation de l'absorption au cours de temps est caractérisée par des trous de plus en plus prononcés sur les spectres.

Le spectre d'émission est un peigne de période égale à l'ISL de la cavité. La résolution spectrale est donc déterminée par cet ISL. Une représentation du spectre est tracée en figure 6.5. L'absorption de l'échantillon est tracée en noir et le spectre d'émission en rouge. Les dents du peigne les plus foncées correspondent au spectre initial de la cavité. Dans l'exemple représenté, les raies de l'échantillon sont plus fines que l'ISL. Elles ne sont alors pas résolues. Pour éliminer ce problème, une solution consiste à faire varier la longueur de

la cavité. Cela change son ISL, ce qui décale les dents du peigne. Avec plusieurs variations de longueurs il est possible de résoudre les raies d'absorption (les dents les plus claires correspondent à plusieurs peignes) [14, 109].

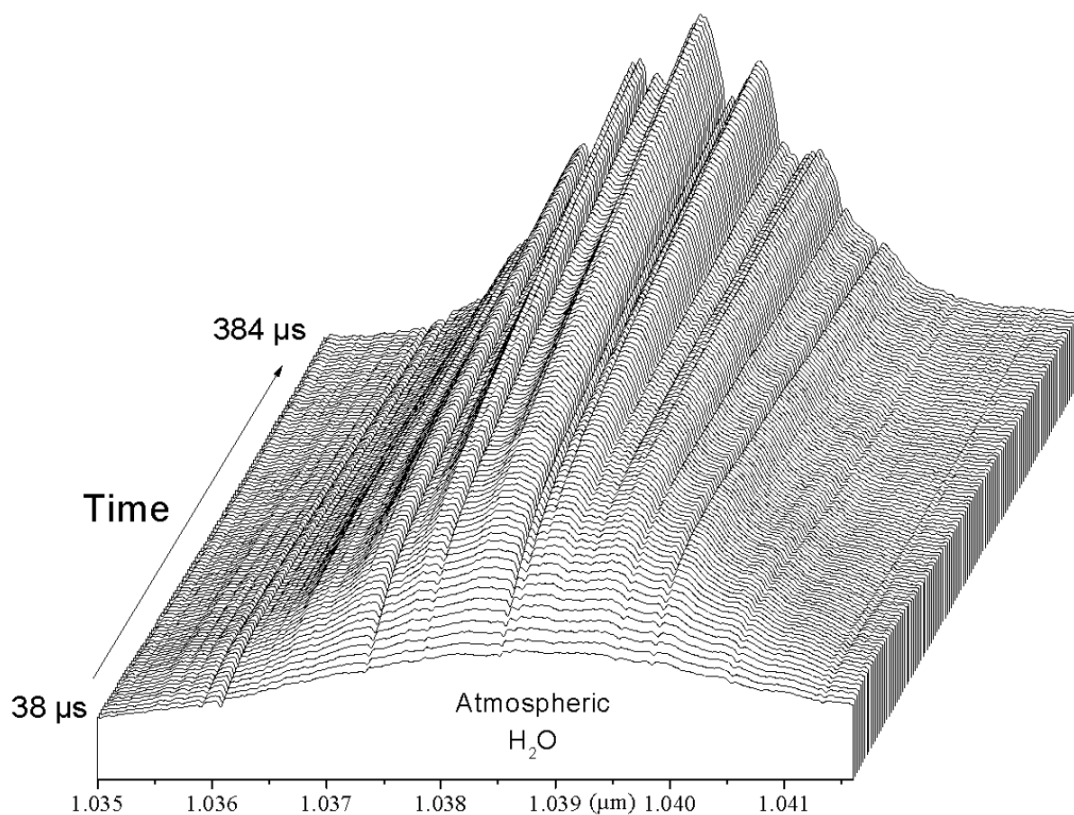


FIGURE 6.4: Spectre intracavité de l'atmosphère résolu en temps (image tirée de [116]).

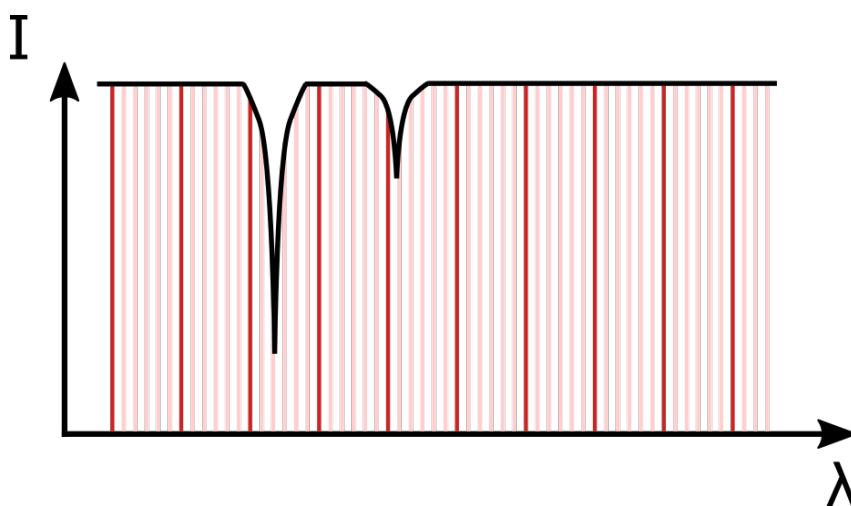


FIGURE 6.5: Représentation schématique du spectre d'émission de l'ICLAS pour différentes longueurs de cavité (peignes rouges). Le spectre d'absorption de l'échantillon est tracé en noir.

6.1.2 ICLAS en régime continu monomode

L'atout majeur du régime continu monomode est la simplification du système d'acquisition. En effet un simple détecteur (pour mesurer l'intensité lumineuse) et un étalon FP (pour mesurer le balayage spectral) peuvent être utilisés. De plus le fonctionnement continu ne nécessite pas de synchronisation avec le système d'acquisition. Néanmoins le caractère monomode impacte la sensibilité du système. Contrairement au cas multimode présenté précédemment, le gain du laser compense les pertes totales de la cavité, ce qui inclut les pertes liées à l'absorption de l'échantillon (figure 6.6).

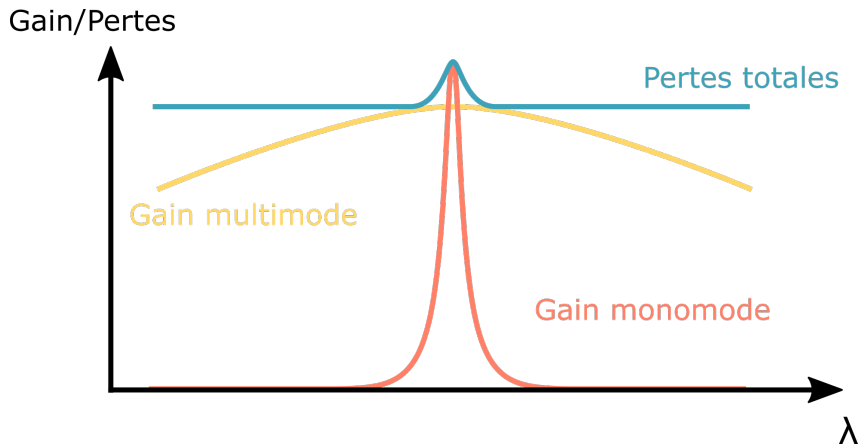


FIGURE 6.6: Représentation schématique des gains en fonction du régime du laser.

La variation de puissance dans le cas monomode est alors beaucoup plus faible que dans le cas multimode. Le nombre de photons ne suit plus une loi type Beer-Lambert mais est calculé comme [114] :

$$M = \frac{A}{B} \left(\eta \frac{\gamma}{\gamma + \Delta\gamma} - 1 \right) \quad (6.3)$$

avec A le taux d'émission spontané, B le taux d'émission stimulée, η le taux de pompage normalisé ($\eta = J/J_{th}$ où J_{th} est le taux de pompage seuil), $\Delta\gamma$ les pertes induites par l'échantillon. On peut définir une longueur de parcours effective [114, 117] :

$$L_{eff} = \frac{c}{\Delta\gamma} \ln \left(\frac{M(\gamma)}{M(\gamma + \Delta\gamma)} \right) \simeq \frac{\eta}{\eta - 1} \frac{c}{\gamma} \quad (6.4)$$

Lorsque le laser fonctionne loin du seuil ($\eta \gg 1$) la longueur de parcours tend vers c/γ . Si l'on compare au cas multimode (équation 6.2) on observe qu'il y a un facteur M_q^s entre les deux cas, soit plusieurs ordre de grandeurs.

Un fonctionnement proche du seuil permet d'augmenter la sensibilité [117, 118]. L'équation 6.4 tend vers l'infini car il s'agit d'une approximation [114]. Dans la réalité la sensibilité est limitée par le bruit d'émission spontanée [119], l'instabilité du pompage et la faible puissance (qui nécessite un détecteur avec une haute sensibilité et résolution) [114, 120].

Notons que les pertes liées à l'échantillon sont petites devant les pertes de la cavité. Si elles sont trop importantes, deux cas de figure peuvent se présenter : soit il n'y a plus

d'effet laser donc l'information est perdue, soit la cavité ne peut plus émettre sur le mode mais il existe un mode adjacent pour lequel les pertes totales sont inférieures. Dans ce dernier cas l'émission spectrale est décalée sur le mode adjacent.

Pour nos expériences nous souhaitons nous affranchir de tout élément optique extérieur à la cavité (étalon FP, détecteur). La technique de détection utilisée, dont le principe est expliqué dans la section suivante, ne permet pas de différencier plusieurs modes d'émission. Nous avons donc choisi de fonctionner en régime continu monomode accordable avec des cavités étendues de type Littman ou Littrow. Les travaux de cette thèse ont porté sur la technique de détection, son implémentation et l'amélioration de la résolution spectrale.

6.2 Influence de la puissance intracavité sur la tension des QCL

La contre-réaction optique influe sur les caractéristiques des lasers semi-conducteurs. Ce phénomène existe quel que soit la nature de la transition, recombinaison de paires électron/trou pour les diodes laser ou désexcitation en cascade d'électrons pour les QCL. Il a été étudié dans les années 1970 pour les diodes [121,122] et observé expérimentalement pour les QCL dans les années 2000 [123,124]. Ce phénomène est intéressant car les lasers semi-conducteurs peuvent ainsi être utilisés comme sources et détecteurs [125,126]. En particulier c'est la variation de tension du laser à courant injecté constant qui est observée, et c'est celle-ci que nous utiliserons.

L'évolution de la tension d'un QCL en fonction du courant peut être schématisée comme en figure 6.7. Trois régimes sont identifiables. Le premier est logarithmique entre un courant nul et un courant caractéristique du QCL. Le second correspond à un comportement résistif. Nous pouvons approximer la tension par la loi d'Ohm. Le dernier régime est dû à l'effet "Stark rollover" [95,96]. Le champ appliqué au QCL est trop important, ce qui désaligne les niveaux de la zone active et de l'injecteur. Le nombre de porteurs injectés dans la zone active est réduit et la pente de la caractéristique augmente. La rapidité de l'augmentation dépend du dopage de l'injecteur. Toutefois, pour des champs plus élevés, les porteurs ont la possibilité de passer directement dans le continuum. Cela explique pourquoi ce phénomène se caractérise par une marche en tension et non une augmentation continue de la pente. Dans le cadre de nos travaux nous nous plaçons dans le régime résistif.

Nous avons monté un QCL en cavité étendue (configuration Littman) et observé l'évolution de sa tension pour différentes positions angulaires du miroir. Un changement de l'angle implique un changement de longueur d'onde, ce qui correspond à un déplacement du point de fonctionnement sur la courbe de gain de la cavité. En première approximation les pertes sont considérées constantes. Ainsi le changement d'angle correspond à une variation de la différence gain-pertes, autrement dit une variation de la puissance intracavité. Plus nous nous rapprochons du centre de la courbe de gain du laser, plus la puissance optique est importante et le courant seuil bas. Le résultat est tracé en figure 6.8. Nous

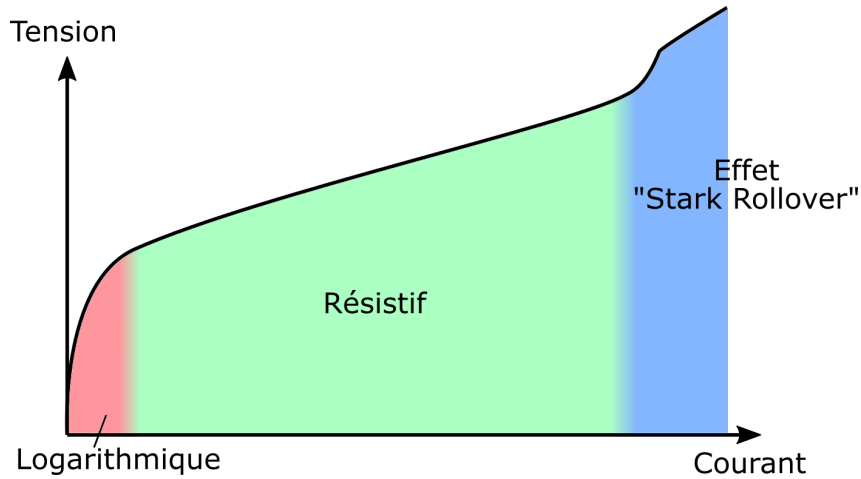


FIGURE 6.7: Représentation de la caractéristique Tension-Courant d'un QCL.

travaillons en régime continu. L'effet laser étant présent au delà de 600 mA, le courant varie par pas de 10 mA sur la plage 0-600 mA, puis par pas de 2 mA pour obtenir une meilleure résolution. La tension et la puissance en sortie de cavité sont enregistrées de façon synchrone. L'allure de la tension correspond à celle attendue présentée en figure 6.7 sans toutefois atteindre l'effet "Stark rollover" (courant injecté pas assez important).

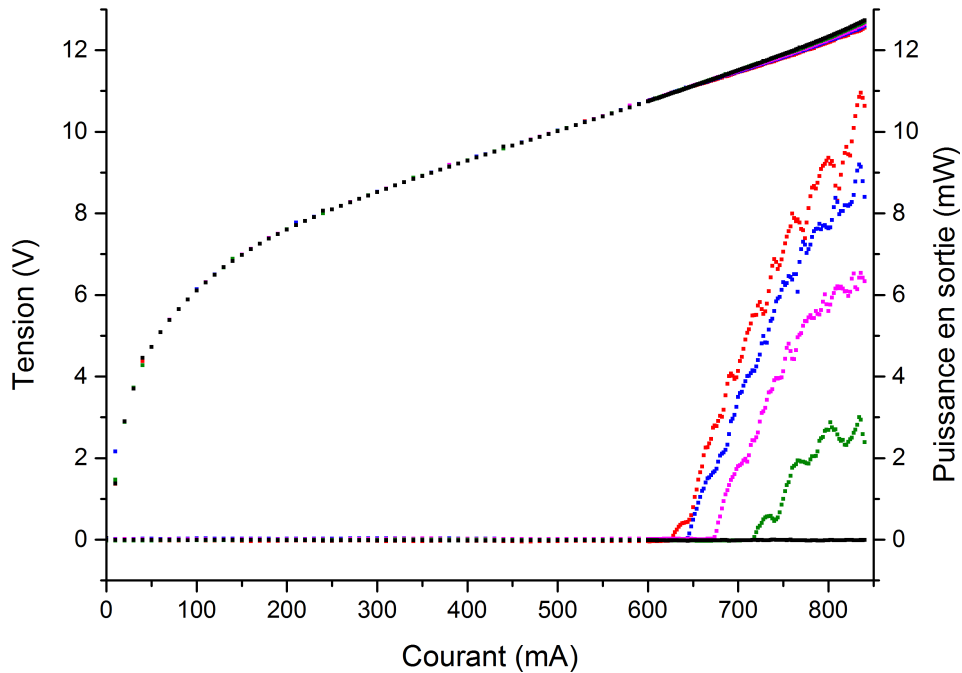


FIGURE 6.8: Évolution de la tension du QCL et de la puissance en sortie de cavité avec le courant. Chaque couleur correspond à une position angulaire du miroir différente. La différence gain-pertes est croissante dans l'ordre suivant : Noir (pas de contre-réaction), Vert, Magenta, Bleu, Rouge.

Un agrandissement de la tension est tracé en figure 6.9. Nous observons un changement de pente de la caractéristique tension-courant avec la position angulaire du miroir. Plus

la différence gain-pertes est importante et plus la pente diminue. De même, le courant seuil (à partir duquel la pente varie) diminue avec l'augmentation de la différence gain-pertes. Les valeurs des courants seuils sont similaires à celles observées pour la puissance sur la figure 6.8. En effet, il existe un lien entre la puissance intracavité et le courant du QCL. Une hausse de l'intensité lumineuse (par contre-réaction) dans la zone active du QCL induit une augmentation de l'émission stimulée. Cette augmentation provoque une diminution du temps de vie du niveau haut de la transition laser. Or le courant traversant un QCL est dépendant de ce temps de vie par la relation $J = \frac{Nq}{\tau}$ [127] (J le courant, N le nombre de porteurs dans l'état haut, τ le temps de vie). De ce fait l'émission stimulée favorise le passage du courant dans le laser [128]. Autrement dit la résistance électrique du laser diminue. Étant donné que le laser est alimenté par une alimentation stabilisée en courant, c'est la tension qui évolue avec la contre-réaction. De plus le régime résistif implique que cette évolution se traduit par un changement de la pente de la caractéristique tension-courant.

Pour l'expérience ce n'est pas la contre-réaction qui varie mais la position angulaire du miroir. Cependant l'effet est le même car une variation de la contre-réaction signifie une variation des pertes du miroir à gain du laser constant. Autrement dit c'est aussi une variation de la différence gain-pertes.

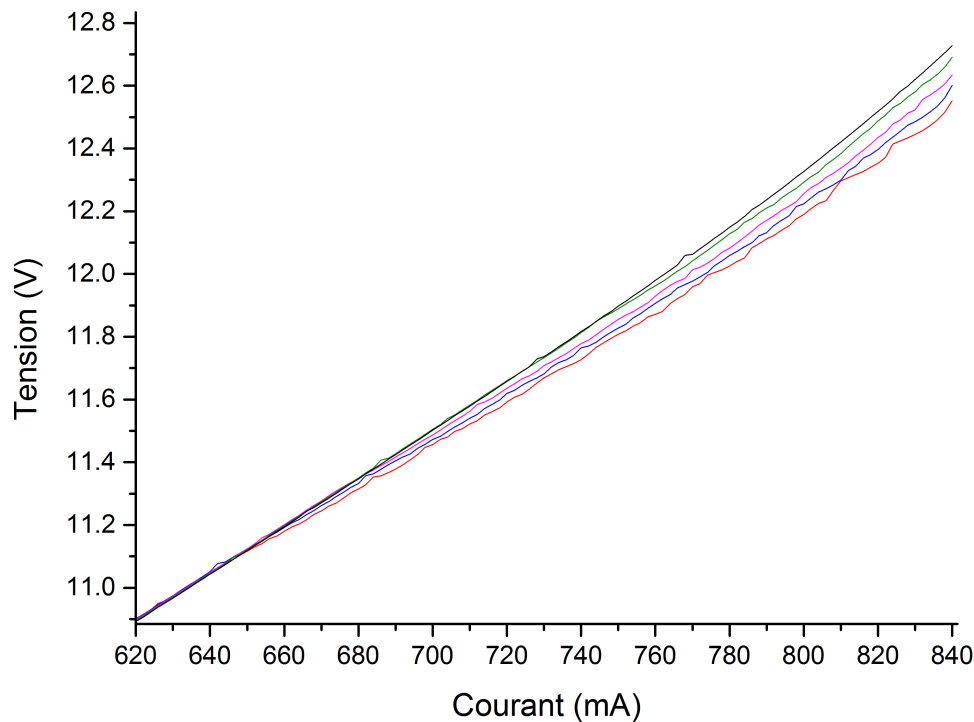


FIGURE 6.9: Agrandissement de la tension tracée en figure 6.8. Les points ont été remplacés par des lignes pour une meilleure lisibilité.

Ce phénomène est particulièrement utile dans le cas de l'ICLAS puisqu'il est possible d'observer une variation de puissance intracavité au travers de la tension du laser. Cette technique, nommée EVIS (*ECQCL-Voltage Intracavity Sensing*), a été développée par M.C.Phillips et M.S.Taubman en 2012 [129] puis appliquée à la détection de gaz

en temps réel en 2015 [130]. L'avantage de cette méthode est qu'il n'y a pas besoin de détecteur optique. On s'affranchit à la fois du refroidissement du détecteur, de son alignement optique, et aussi de son achat. De plus, la technique est applicable quelle que soit la longueur d'onde de la cavité. Le matériel de mesure de la tension n'a pas besoin d'être adapté, contrairement à un détecteur optique.

6.3 Premier essai d'application de la technique EVIS

L'EVIS étant implémentable sur n'importe quelle cavité, nous l'avons testée sur un montage déjà disponible. Ce démonstrateur fut réalisé dans le cadre du projet *Photo-Acoustic Mid-Infrared Spectroscopy Sensor for Extended Range of Chemical Agents* du programme EURIDIPES (référence n° EUR-09-710 (AcousticNose)) entre 2010 et 2012. Le but de ce projet était de développer un système de détection de gaz haute sensibilité, très compact et transportable. Son fonctionnement est basé sur une cavité étendue forte puissance associée à une cellule photo-acoustique. Le système n'est donc pas conçu pour être exploité en intracavité. Nous l'avons cependant utilisé pour essayer la technique EVIS, avec pour objectif de l'appliquer par la suite à une autre cavité.

6.3.1 Caractéristiques de la cavité

La cavité est en configuration Littrow face arrière et émet à $4.5\ \mu\text{m}$. Les faces du QCL ne sont pas traitées. Les lentilles 390037-F (Thorlabs) de courte focale ($1.873\ \text{mm}$) sont en Black Diamond-2 (coefficient d'absorption de $0.01\ \text{cm}^{-1}$ à $4.5\ \mu\text{m}$) avec un anti-reflet (coefficient de réflexion de $0.17\ \%$). Le QCL et les lentilles ont été alignées et collées sur un support fabriqué au laboratoire permettant de contrôler la température. Le réseau est blazé pour l'ordre 1 à $4.5\ \mu\text{m}$ et un angle d'incidence de 44.8° . Il est monté sur une platine de rotation M116-DGH (Physik Instrumente) fonctionnant en boucle fermée et possédant une précision de $25\ \mu\text{rad}$ (0.0014°). La rotation est contrôlée par un programme LabVIEW que nous avons développé. La cavité est courte ($5\ \text{cm}$) et tous les éléments ont été collés sur un même support.

Ce démonstrateur a été conçu pour émettre une forte puissance avec l'objectif de réaliser de la spectrométrie photo-acoustique. La caractéristique Puissance-Courant est tracée en figure 6.10. Les mesures ont été effectuées en régime continu et au maximum de la courbe de gain du laser. La cavité est enfermée dans une enceinte étanche remplie avec de l'azote et le faisceau sort par une fenêtre en CaF_2 . Le laser est à 15°C . Un maximum de $115\ \text{mW}$ est atteint.

La plage d'accord de la cavité a été mesurée avec un spectromètre FTIR. Le réseau effectue une rotation par pas de 0.04° . À chaque pas l'acquisition est effectuée avec une résolution de $0.07\ \text{cm}^{-1}$. Le courant est fixé à $1140\ \text{mA}$. Le résultat est tracé en figure 6.11. Au total la cavité est accordable sur près de $140\ \text{cm}^{-1}$.

Les sauts de mode de cette cavité ont été observés puisqu'ils limitent la résolution du spectre obtenu. Les conditions sont les mêmes que celles de la figure 6.11. Seul le pas de la rotation du réseau change et passe à 0.01° . Le résultat est tracé en figure 6.12.

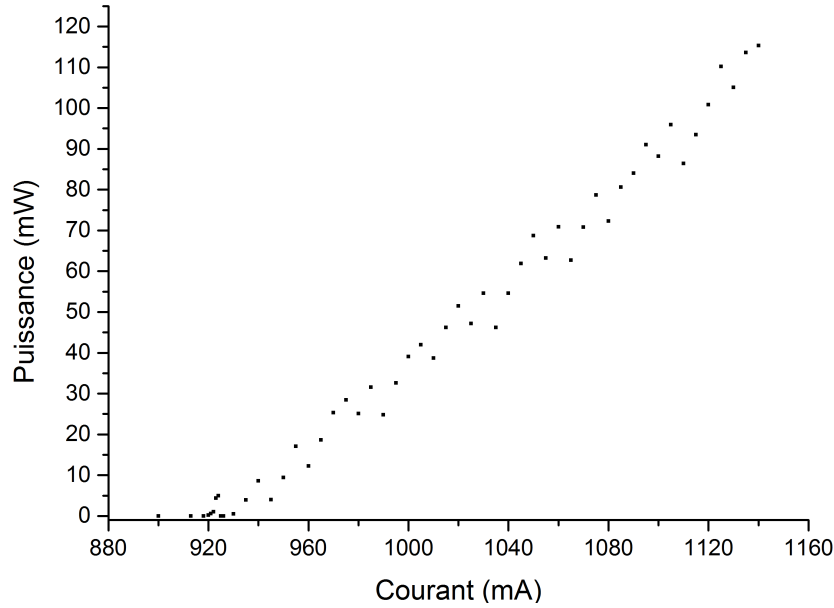


FIGURE 6.10: Puissance en sortie de la cavité en fonction du courant.

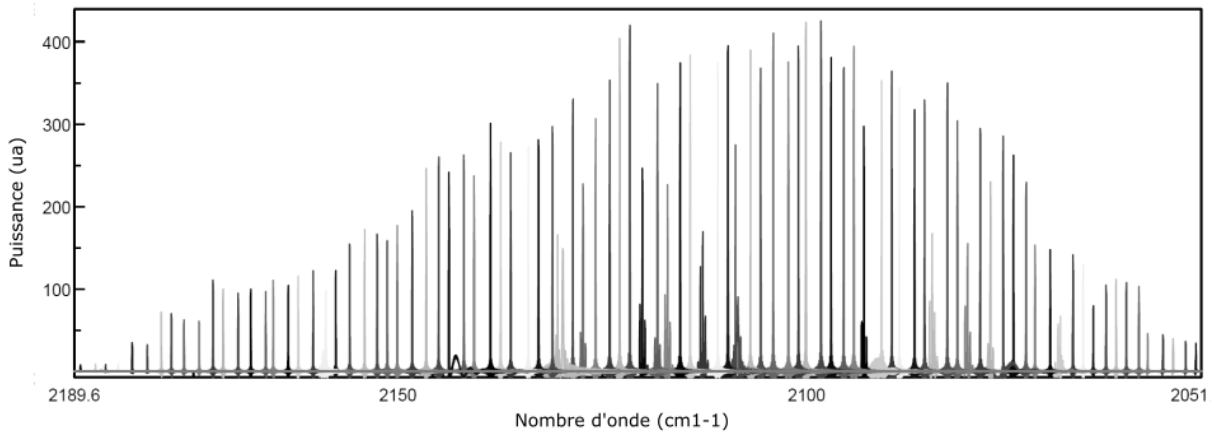


FIGURE 6.11: Plage d'accord totale de la cavité à 1140 mA et 15 °C.

Sur les 27 cm^{-1} observés ($2056\text{-}2083 \text{ cm}^{-1}$), l'évolution du nombre d'onde en fonction de l'angle du réseau se fait par sauts de valeurs bien définies : 0.32 et 0.62 cm^{-1} . Ces écarts correspondent respectivement à un et deux sauts de mode du QCL (longueur 5 mm et indice 3.27 , soit ISL de 0.31 cm^{-1}). La cavité externe mesure 5 cm , ce qui mène à un ISL de 0.1 cm^{-1} . Toutefois ces sauts n'apparaissent sur la figure. Cela est dû aux faces non traitées du QCL qui forment une cavité FP. Cette dernière possède un impact plus fort que la cavité externe car les coefficients de réflexion de ses faces sont non négligeables. L'accord de phase ne peut ainsi s'effectuer que par sauts de modes du QCL. Les petites variations visibles de 0.01 et 0.02 cm^{-1} sont dues à la précision de 0.01 cm^{-1} du spectromètre. La longueur d'onde est récupérée de manière automatique par un programme LabVIEW qui détecte le maximum de la raie laser. La précision du spectromètre ne permet pas de bien échantillonner la raie, ce qui mène à cette incertitude de 0.01 cm^{-1} .

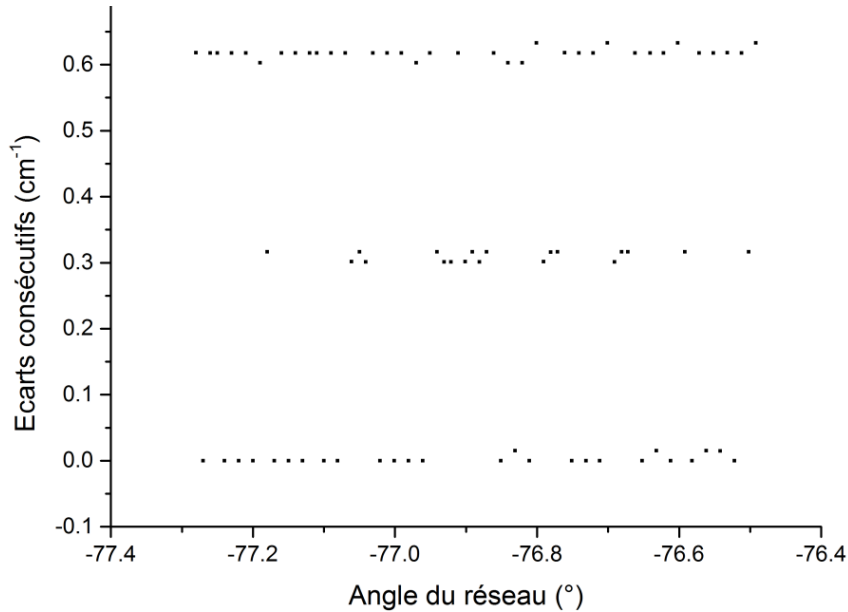


FIGURE 6.12: Écarts en nombre d'onde entre deux angles consécutifs du réseau.

6.3.2 Enregistrement du spectre d'un gaz

Dans leur publication [130] Phillips et Taubman définissent la relation entre la tension du QCL et le coefficient d'absorption α du gaz comme :

$$\alpha(\sigma) = \frac{V(\sigma) - V_0(\sigma)}{C} \quad (6.5)$$

avec $V(\sigma)$ la tension en présence du gaz, $V_0(\sigma)$ celle en l'absence du gaz, et C un coefficient de calibration défini empiriquement (en V/cm^{-1}). Nous n'avons pas trouvé trace de justification quant à l'établissement de cette relation. Il semblerait qu'elle soit purement empirique et basée sur la linéarité observée entre la différence de tension et le coefficient d'absorption [129]. Néanmoins il est important de noter que la tension qu'ils utilisent est démodulée à cause de leur méthode d'acquisition. La composante continue est alors supprimée au cours de l'opération. La différence de tensions n'est pas une différence entre les valeurs brutes de tension mais plutôt une différence entre les pentes des caractéristiques. Pour nos expériences nous reprenons cette formule mais en l'appliquant à des valeurs brutes de tension. Cela simplifie le montage car il n'y a pas besoin de détection synchrone.

Détermination de la méthode d'acquisition

L'expérience est contrôlée par un programme LabVIEW qui gère la rotation du réseau et l'enregistrement de la tension du QCL. La tension est obtenue via une communication USB-GPIB entre l'ordinateur et l'alimentation stabilisée en courant LDX-3232 (ILX Lightwave). La précision de la mesure est déterminée par celle de l'alimentation, soit 10^{-3} V. Deux modes de rotation sont possibles pour le réseau : en continu ou en pas à pas.

Si la rotation est continue, la tension du QCL et la position angulaire du réseau sont enregistrées de façon synchrone à une fréquence définie. Si la rotation est pas à pas, elles sont enregistrées à chaque incrément. Le réseau balaye toute la plage spectrale d'émission de la cavité (entre -73.4° et -78.1°). Le courant (970 mA) et la température du laser (15°C) restent fixes au cours de l'expérience.

Le spectre d'absorption du gaz est obtenu à partir de deux enregistrements (avec et sans gaz). L'enregistrement sans gaz est réalisé avec de l'azote à pression atmosphérique dans l'enceinte. Celui avec gaz est effectué avec le gaz d'intérêt à la même pression dans l'enceinte. Ce type d'expérience nécessite que la mesure soit répétable. Nous avons effectué plusieurs essais et tracé le résultat en figure 6.13. Les deux modes de rotations du réseau ont été testées. En continu la rotation est de 0.01°s^{-1} ; en pas à pas l'incrément est de 0.01° . L'enceinte est remplie avec de l'azote. Quel que soit le mode, la mesure de la tension n'est pas répétable. Nous supposons que ce comportement est lié à des instabilités mécaniques du montage, en particulier le jeu mécanique du support du réseau (système à engrenages).

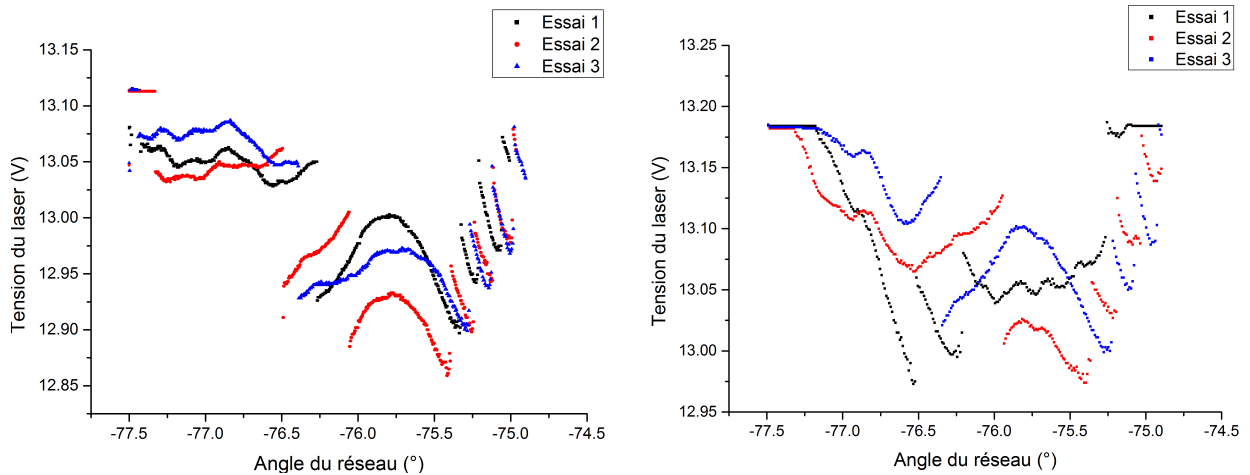


FIGURE 6.13: À gauche : Acquisition en continu, vitesse de rotation du réseau de 0.01°s^{-1} . À droite : Acquisition en pas à pas, incrément du réseau de 0.01° .

Dans le but de réduire l'impact de l'instabilité mécanique du support du réseau, sa vitesse de rotation est augmentée d'un facteur 10. Le résultat est présenté en figure 6.14. La rotation est continue à une vitesse de 0.1°s^{-1} . Une vingtaine d'enregistrements sont réalisés. La forme globale de chacun correspond à la courbe de gain du laser. Des variations d'amplitude existent d'un enregistrement à l'autre à cause des sauts de modes du QCL et de l'instabilité mécanique. L'écart-type sur la tension est de 0.1 V. Afin d'exploiter ce montage pour tester la méthode EVIS, nous avons effectué une moyenne des enregistrements.

Enregistrement du spectre du butane

La cavité couvre une large plage spectrale (140 cm^{-1}) avec une faible résolution (0.3 cm^{-1}) due aux sauts de mode du QCL. Le choix du gaz s'est porté sur le butane, gaz

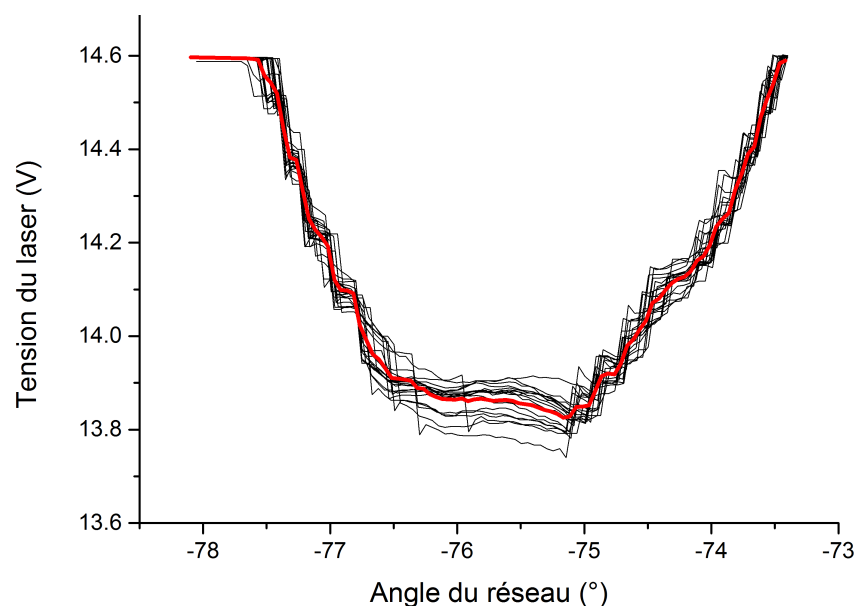


FIGURE 6.14: Enregistrements de la tension du QCL au cours du balayage en nombre d'onde. 20 enregistrements sont tracés (courbes noires) ainsi que la moyenne (courbe rouge). L'acquisition a été réalisée en continu avec une vitesse de rotation du réseau de 0.1°s^{-1} .

dont le spectre est large dans la zone d'émission de la cavité comme présenté en figure 6.15. Ainsi la faible résolution n'est pas limitante pour l'expérience. Le résultat de la différence de tensions pour du butane pur est tracé en figure 6.15. La moyenne est faite sur 20 enregistrements dans chaque conditions (avec et sans gaz) puis la différence est effectuée. L'angle du réseau est converti en nombre d'onde à partir d'une mesure faite au spectromètre FTIR. La variation de tension est de l'ordre de 0.1 V au maximum. Cela est égal à l'écart-type de la tension obtenu sur les 20 enregistrements. Dans ces conditions, nous ne pouvons pas affirmer que la présence de butane a un impact sur la tension du laser.

L'application de la méthode EVIS à cette cavité met en avant le problème de l'instabilité mécanique de la platine de rotation du réseau. Le système doit posséder un balayage plus fiable pour observer l'influence d'un gaz sur la tension du laser.

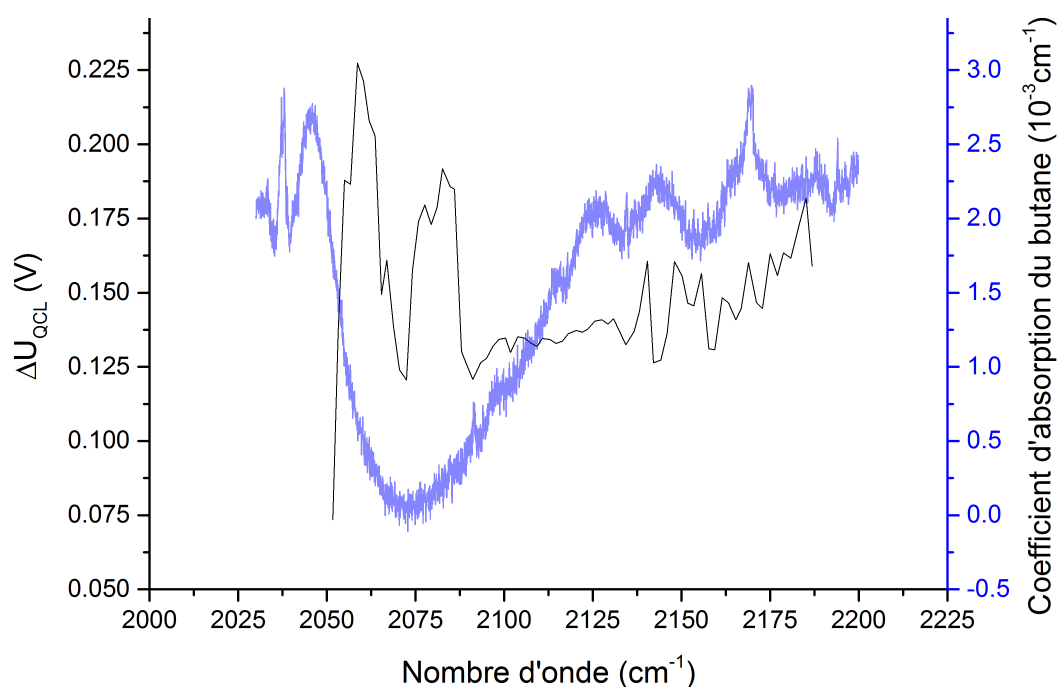


FIGURE 6.15: Spectre du butane obtenu par la différence des tensions avec et sans gaz (noir). Le coefficient d'absorption du butane est tracé pour la comparaison (bleu).

Chapitre 7

Technique EVIS et méthode de suppression des sauts de modes

Ce chapitre présente la cavité développée spécifiquement pour l'EVIS et le traitement utilisé pour supprimer l'effet des sauts de mode. Dans un premier temps nous présentons le choix du QCL. Dans un second temps nous nous attardons sur le montage pour l'EVIS et ses caractéristiques. Dans un troisième temps nous abordons les méthodes de traitement développées pour améliorer la résolution des spectres enregistrés. Finalement nous présentons quelques résultats préliminaires.

7.1 Tests de différentes puces laser

Nous possédons un total de cinq QCL enterrés de type résonance à 2 phonons et émettant à $7.5\ \mu\text{m}$. Nous avons monté une cavité étendue pour les tester et sélectionner le plus adapté pour les expériences. L'objectif est d'avoir une source monomode largement accordable, fonctionnant en régime continu, et émettant le plus de puissance possible. Le régime continu permet de s'affranchir des inconvénients du régime impulsionnel (transitoire de l'impulsion, chirp, synchronisation des acquisitions, etc...).

Pour tester les QCL, la cavité doit avoir le moins de pertes possibles afin de favoriser l'effet laser. De ce fait nous avons choisi une configuration Littrow face avant (figure 4.7).

7.1.1 Montage expérimental

Le QCL est monté dans un boîtier LLH Alpes Lasers modifié pour l'adapter aux embases des puces Mirsense. Nous avons choisi ce boîtier car il est adapté à la fois aux régimes impulsionnel et continu.

Pour le régime impulsionnel, un générateur d'impulsion Digital Delay/Pulse Generator (Berkeley Nucleonics Corporation) commande un boîtier LDD100 Alpes Lasers qui génère une impulsion de courant. Cette dernière est transportée jusqu'à la barrette par une nappe basse impédance pour éviter toute déformation du signal. Pour le régime continu, une alimentation stabilisée en courant LDX-3232 (ILX Lightwave) pouvant délivrer un courant maximal de 4 A est utilisée.

La température du QCL est asservie par un contrôleur de température LDT-5980 (Newport) en association avec une sonde PT100 et un peltier.

La divergence mesurée en sortie de QCL est de 69° . Nous avons donc opté pour une lentille de collimation 390037-F (Thorlabs) avec une faible distance de travail (0.723 mm) pour éviter des pertes liées à cette divergence. La lentille est en Black Diamond-2, matériau absorbant très peu à $7.5\ \mu\text{m}$ (coefficient d'absorption de $0.01\ \text{cm}^{-1}$), et est traitée avec un anti-reflet (coefficient de réflexion de 0.5 %).

Le réseau est blazé pour l'ordre 1 à $8\ \mu\text{m}$ et un angle de 36.52° . Il est monté sur un système de platines pour lui assurer 3 degrés de libertés représentés sur la figure 7.1 :

- l'angle Ψ : influe sur l'efficacité d'injection de l'ordre 1 dans le QCL. Un réglage fin est possible avec des translations piézoélectriques situées derrière le réseau.
- l'angle φ : influe sur l'efficacité de diffraction. La polarisation du laser est horizontale (plan XY) donc les traits du réseau doivent être orientés verticalement pour maximiser l'efficacité de diffraction. Dans notre cas nous atteignons une efficacité de 70 %. Une platine goniométrique GNL18/M (Thorlabs) située sous le réseau est utilisée pour ajuster cet angle avec une précision de $10'$ (0.167°).
- l'angle θ : influe sur la longueur d'onde de la cavité. Étant donné que la longueur d'onde est un paramètre crucial, une platine de rotation motorisée CR1/M-Z7 (Thorlabs) en boucle fermée avec une répétabilité inférieure à $1'$ est utilisée. L'axe de rotation de la platine passe par le point d'impact du faisceau sur le réseau. Ainsi on évite un changement de longueur de cavité avec la rotation.

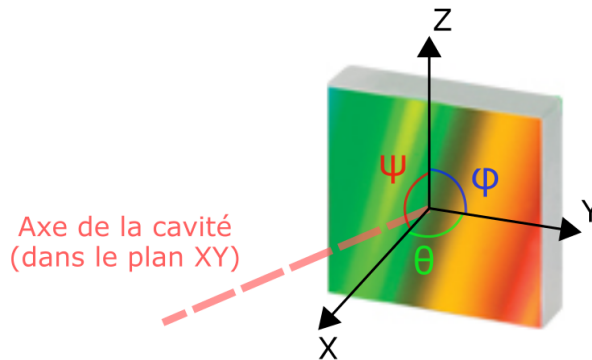


FIGURE 7.1: Représentation des degrés de liberté du réseau.

7.1.2 Méthode de sélection et résultats

La sélection se déroule en deux étapes : tout d'abord nous testons les QCL en régime impulsionnel et mesurons leur plage d'accord ; ensuite, pour ceux qui lasent, nous les testons en régime continu à 20°C . Nous restons à cette température pour éviter les effets de condensation liés à l'humidité de l'air ambiant. Les résultats sont regroupés dans le tableau 7.1. Nous avons choisi la puce n° 6292 car elle possède la plus grande plage d'accord et émet le plus de puissance. Sa caractéristique Puissance-Courant est tracée en figure 7.2. La puissance augmente avec le courant pour atteindre 16.4mW à $840\ \text{mA}$, puis

elle chute à cause de l'élévation de la température de la zone active due à l'effet Joule (nous n'avons pas observé d'effet "Stark-rollover" sur la tension).

Puce n°	Plage d'accord en impulsionnel (cm ⁻¹)	Largeur plage d'accord en impulsionnel (cm ⁻¹)	Puissance maximale en continu (mW)
4670	<i>Ne lase pas</i>	<i>Ne lase pas</i>	<i>Ne lase pas</i>
4686	1283 - 1360	77	<i>Ne lase pas</i>
4621	1288 - 1343	55	1
4747	1292 - 1362	70	3.8
6292	1283 - 1384	101	16.4

TABLE 7.1: Résultats des tests des puces

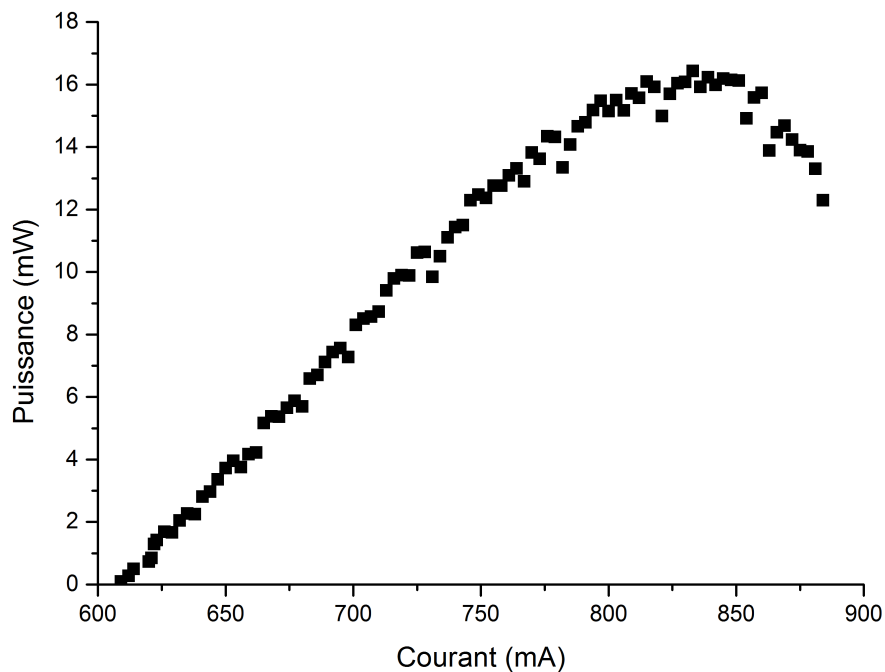


FIGURE 7.2: Caractéristique Puissance-Courant de la puce n°6292 à 20 °C.

Lors de cette thèse nous n'avons pas à disposition de quoi mesurer la largeur de spectrale du laser. Nous pouvons seulement dire quelle est inférieure à 0.07 cm⁻¹ grâce au spectromètre FTIR.

7.2 Montage expérimental pour l'EVIS

Cette nouvelle cavité a été montée en tenant compte des problèmes identifiés au chapitre précédent, notamment l'instabilité mécanique. Pour comparer des spectres obtenus par la méthode EVIS avec ceux obtenus par une absorption simple passage il est préférable d'avoir un faisceau fixe en sortie de cavité. Par conséquent nous avons choisi une configuration Littman. Le matériel utilisé est détaillé en section 7.1.1. Le montage expérimental est représenté en figure 7.3 et sa photo est en figure 7.4.

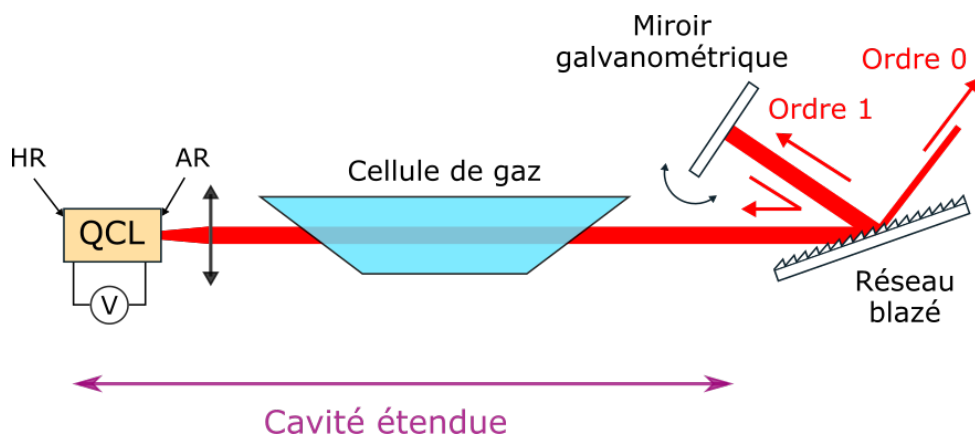


FIGURE 7.3: Schéma du montage expérimental. Une cellule de gaz avec des fenêtres à angle de Brewster est insérée dans une cavité Littman face avant.

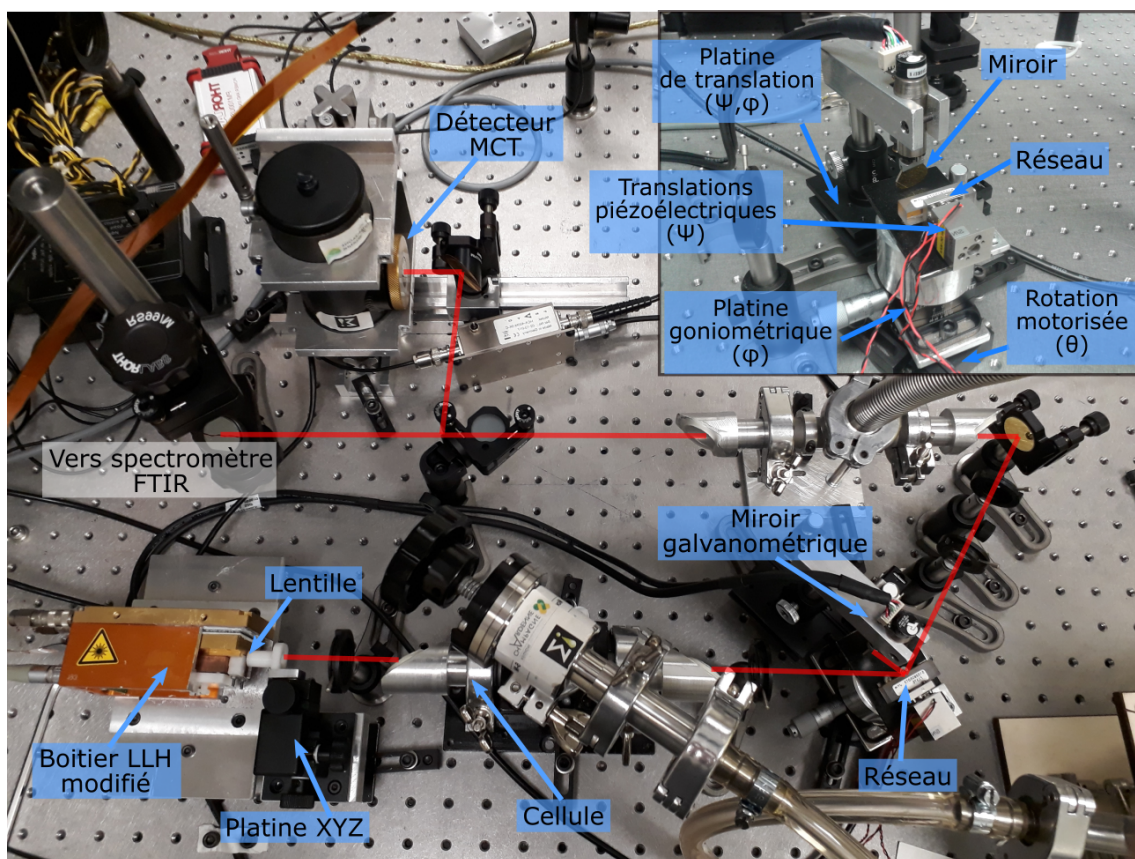


FIGURE 7.4: Photo du montage pour l'EVIS (en bas). L'encadré en haut à droite présente une vue différente de la partie réseau/miroir galvanométrique. Le reste du montage est une chaîne de détection extracavité (cellule + détecteur MCT)

Le miroir 6220H (Cambridge Technology) est monté sur un dispositif galvanométrique en boucle fermée. Le passage d'un courant dans ce système induit un champ électromagnétique, ce qui provoque la rotation du miroir. Cette dernière est ainsi plus fiable et précise qu'avec un système à engrenage. Le miroir possède un revêtement HR et la rotation est répétable avec une précision de $8 \mu\text{rad}$ ($4.6 \cdot 10^{-4}$ degrés). Le contrôle de l'angle du miroir

est effectué par une tension de commande avec une conversion $1 \text{ V} = 1^\circ$. Nous utilisons un signal triangulaire pour balayer le miroir, et par conséquent le nombre d'onde de la cavité, afin d'avoir une succession de rampes. La réponse fréquentielle du dispositif est supérieure à 500 Hz, ce qui ne limite pas la vitesse d'acquisition.

L'insertion d'une cellule à l'intérieur de la cavité a été choisie plutôt que d'enfermer cette dernière dans une enceinte. Le contrôle des conditions expérimentales est plus facile car le volume est plus petit et l'étanchéité meilleure. Les fenêtres en CaF_2 sont à angle de Brewster par rapport à la polarisation du laser. Cela favorise leur transmission, ce qui minimise les pertes dues à la cellule. De plus cela évite des potentielles réflexions sur les fenêtres dans l'axe de la cavité, ce qui formerait d'autres résonateurs optiques au sein du montage. Les mélanges de gaz sont générés par un mélangeur de gaz Gasmix Aiolos (AlyTech) avec une précision $< 2 \%$ de la valeur demandée.

La longueur de la cavité est un paramètre important du montage. Plus la cavité est longue et plus la cellule peut l'être également, ce qui augmente la longueur de parcours dans le gaz. Néanmoins cela implique que le montage est plus sensible à l'alignement optique. Les cellules à disposition mesurent 20 cm, ce qui impose une grande taille au montage. Au total, la cavité mesure 38 cm de long (distance lentille-miroir). Avec une telle taille, des pertes de couplage avec la lentille sont possibles. Nous avons donc mesuré la divergence du faisceau avec une caméra infrarouge Pyrocam IIIHR Beam Profiling Camera (Ophir) associée au logiciel BeamGage. Des images du faisceau en sortie de cavité sont enregistrées à différentes distances du réseau. Le diamètre ($D4\sigma$) est mesuré par le logiciel. Le résultat est tracé en figure 7.5. Un ajustement linéaire est réalisé selon les axes X et Y (respectivement perpendiculaire et parallèle au plan de la table optique). La distance réseau-lentille est de 36 cm, ce qui correspond à un diamètre de 3.4 mm au plus large. Le diamètre de la lentille étant de 4 mm, nous pouvons conclure qu'il n'y a pas de pertes de couplages dues à la divergence du faisceau.

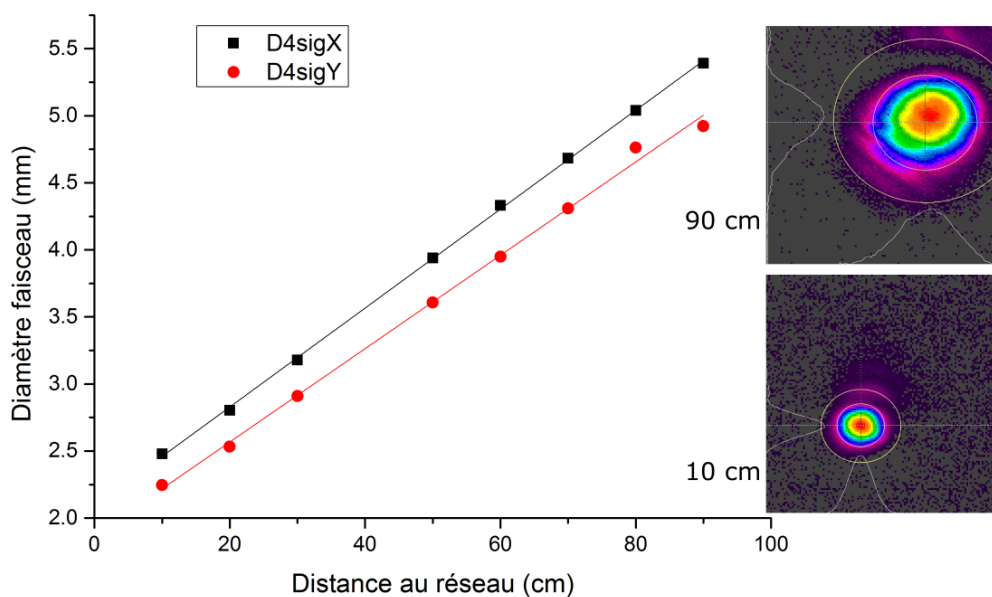


FIGURE 7.5: Diamètre du faisceau en sortie de cavité en fonction de la distance au réseau.

La caractéristique Puissance-Courant au maximum de la courbe de gain est tracée en figure 7.6. La puissance est mesurée avec un puissance-mètre S401C (Thorlabs). Un maximum de 11.2 mW est atteint. Les pertes sont plus importantes pour une configuration Littman face avant par rapport à une Littrow face avant. Par conséquent la puissance maximale de cette cavité est plus faible que celle présentée en section 7.1.2.

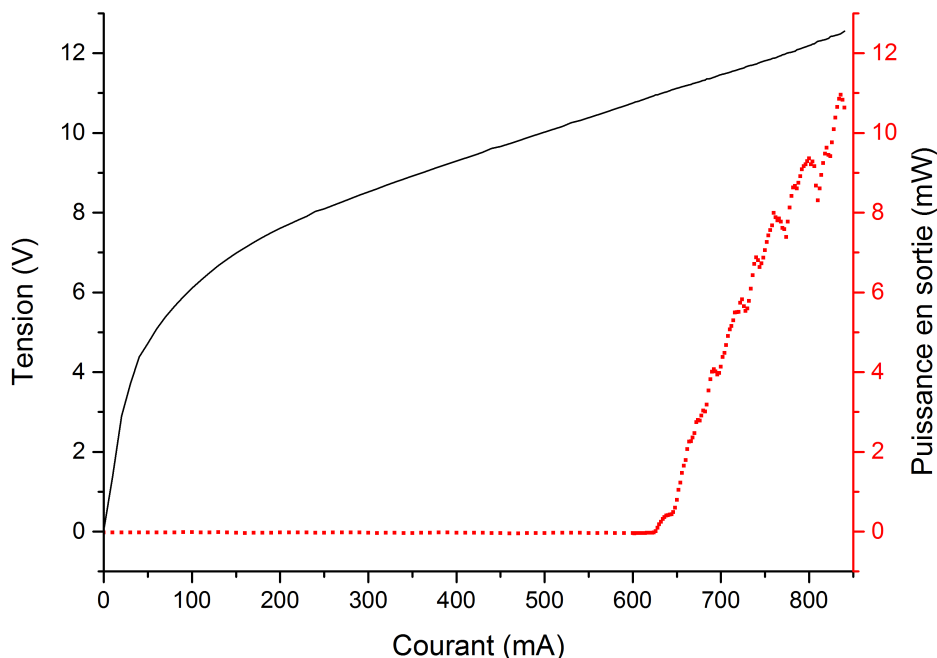


FIGURE 7.6: Évolution de la puissance et de la tension avec le courant au maximum de la courbe de gain du laser.)

Nous avons mesuré au spectromètre FTIR l'évolution du nombre d'onde avec l'angle du miroir. Le courant d'alimentation du QCL est fixe (818 mA) et le miroir tourne avec un incrément de 0.001° entre chaque enregistrement. Le nombre d'onde est mesuré avec une précision de 0.015 cm^{-1} . Le résultat est tracé en figure 7.7. Les sauts de mode observés sont de 0.5 cm^{-1} , ce qui correspond à l'ISL du QCL (indice 3.27, longueur 3 mm soit 0.51 cm^{-1} théorique). Les petites variations visibles sont toutes exactement égales à 0.015 cm^{-1} . Cette valeur correspond à l'ISL de la cavité externe (longueur 38 cm, indice 1 (air) soit 0.013 cm^{-1}). Cependant, la précision du spectromètre étant de 0.015 cm^{-1} nous ne pouvons pas affirmer qu'il s'agit des sauts de mode de cavité externe et non de l'imprécision de la mesure.

Au total la cavité est accordable sur 69 cm^{-1} entre 1278 cm^{-1} et 1347 cm^{-1} .

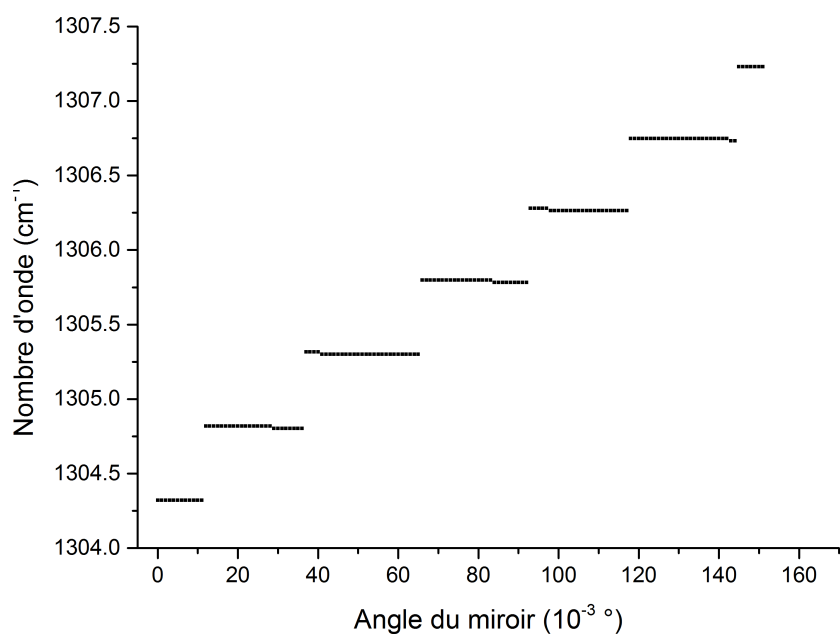


FIGURE 7.7: Sauts de modes de la cavité.

7.3 Tension du QCL

Acquisition de la tension

L'acquisition de la tension du QCL est effectuée par une carte FPGA PXI-7841 (National Instrument) pouvant enregistrer jusqu'à $2 \cdot 10^5$ échantillons par seconde. La tension est directement prélevée au niveau de l'alimentation en courant par un câble. Néanmoins la carte FPGA ne supporte que 10 V au maximum en entrée, or le QCL possède une tension supérieure dès 525 mA (cf. figure 6.8). Nous avons donc réalisé un montage électrique soustracteur-amplificateur pour faire le lien entre l'alimentation et la carte. Ce montage soustrait une tension de commande à la tension du laser, puis amplifie la différence. Il est utilisé pour soustraire la tension du laser sans contre-réaction (autrement dit avoir une tension nulle lorsque le laser n'émet pas). Un gain d'un facteur 10 est appliqué sur ce signal, ce qui amplifie les variations de tension et les rend plus facilement mesurables. La fréquence maximale du signal en entrée du montage est de 500 Hz. Au delà, des déphasages et déformations du signal peuvent apparaître (testé avec un signal triangulaire).

La tension est enregistrée au format TDMS. Ce format permet d'enregistrer en continu des données brutes et des métadonnées en binaire dans un fichier .tdms. De grandes quantités de données peuvent alors être stockées en continu. La vitesse d'acquisition de la carte est ainsi exploitée quasiment à son maximum.

Évolution de la tension au cours du balayage

La tension du QCL au cours d'une rampe du miroir est tracée en figure 7.8. Dans la suite du manuscrit nous appelons "trace" ce type de figure correspondant à l'évolution d'une grandeur (puissance ou tension du laser) au cours d'une rampe du miroir. Le laser est en régime continu à 795 mA (valeur choisie arbitrairement), la fréquence d'acquisition de la carte FPGA est de $1.6 \cdot 10^5$ éch/s, et le balayage du miroir est défini par un signal triangulaire de 4 V d'amplitude à une fréquence de 5 Hz. Ainsi la durée d'une rampe est de 0.1 s et le nombre de points par trace est de $1.6 \cdot 10^4$.

Plusieurs éléments sont observables sur la figure 7.8. Tout d'abord l'allure générale correspond à la courbe de gain du laser, résultat attendu puisque la tension est le reflet de la puissance intracavité. De nombreux pics sont visibles sur la trace. Certains se démarquent entre $0^\circ - 0.5^\circ$ et à 1.5° et correspondent à des raies d'absorption de l' H_2O ambiant qui circule dans l'espace ouvert de la cavité. Les autres pics sont espacés périodiquement (période de 0.025°) et sont dus aux sauts de modes du QCL. Un agrandissement de la trace est présenté en figure 7.9. Les vallées correspondent à une contre-réaction maximale, et les pics sont les endroits où un saut de mode a lieu. Le bruit sur les abscisses a été identifié comme étant dû à la carte d'acquisition. Nous l'avons mesuré sur la voie d'entrée à vide et obtenu une valeur de $6 \cdot 10^{-4}$ V, ce qui est en accord avec l'observation de la figure. Pour supprimer son influence nous réalisons un ajustement linéaire de l'angle du miroir.

Par ailleurs, un bruit de $2 \cdot 10^{-3}$ V est visible sur la tension en figure 7.8 (notamment lorsque le laser n'émet pas). Nous n'avons pas trouvé son origine.

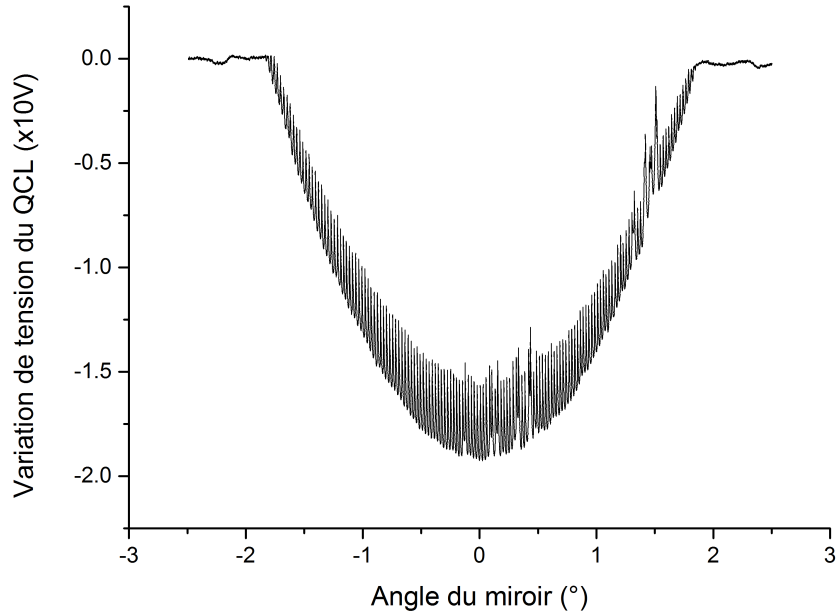


FIGURE 7.8: Évolution de la tension du QCL au cours d'une rampe du miroir.

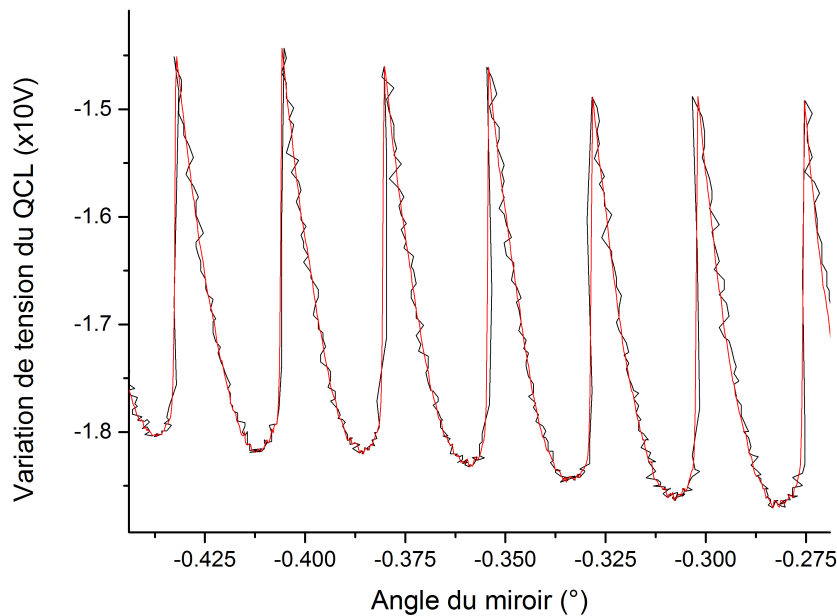


FIGURE 7.9: Agrandissement de la trace en figure 7.8 (noir). Un ajustement linéaire de l'angle du miroir est effectué pour supprimer le bruit d'acquisition (rouge).

Conversion de l'angle du miroir en nombre d'onde

La conversion en nombre d'onde se base sur une calibration de la cavité. Cela consiste à déterminer l'angle d'incidence sur le réseau θ_i^{ref} , l'angle du miroir θ_r^{ref} (qui est aussi l'angle de réflexion puisque le faisceau est renvoyé sur lui-même), et le nombre d'onde de la cavité σ^{ref} .

L'angle θ_i^{ref} est déterminé grâce à la contre-réaction d'ordre 0. Cette contre-réaction se

produit lorsque le réseau est perpendiculaire à l'axe de la cavité. Dans ce cas il se comporte comme un miroir, sans séparer les nombres d'onde, et l'effet de la contre-réaction est visible sur la tension du QCL. Cette position à angle d'incidence nul sert de référence à la platine de rotation.

Le nombre d'onde σ^{ref} est mesuré au spectromètre FTIR avec une précision de 0.015 cm^{-1} .

À partir de θ_i^{ref} et σ^{ref} nous calculons la valeur absolue de θ_r^{ref} par la formule de diffraction sur un réseau.

La calibration effectuée, la variation d'angle $\Delta\theta_r$ du miroir au cours d'une trace est convertie (avec la même formule de diffraction) :

$$\sigma = \frac{N}{\sin \theta_i^{ref} + \sin (\theta_r^{ref} + \Delta\theta_r)} \quad (7.1)$$

La trace de la figure 7.8 après conversion des angles en nombre d'onde est tracée en figure 7.10. Le miroir balaye sur $1256 - 1371 \text{ cm}^{-1}$ et la cavité émet sur $1277 - 1348 \text{ cm}^{-1}$, soit une plage de 71 cm^{-1} . L'intervalle entre deux pics est égal à 0.5 cm^{-1} , soit l'ISL du QCL, ce qui confirme qu'il s'agit bien de ses sauts de mode. Le miroir balaye une plage totale de 115 cm^{-1} et une trace comporte 16000 points, donc le pas d'échantillonnage est de 0.007 cm^{-1} . L'ISL de la cavité externe étant de 0.013 cm^{-1} , l'échantillonnage n'est pas suffisant pour observer ses sauts de modes.

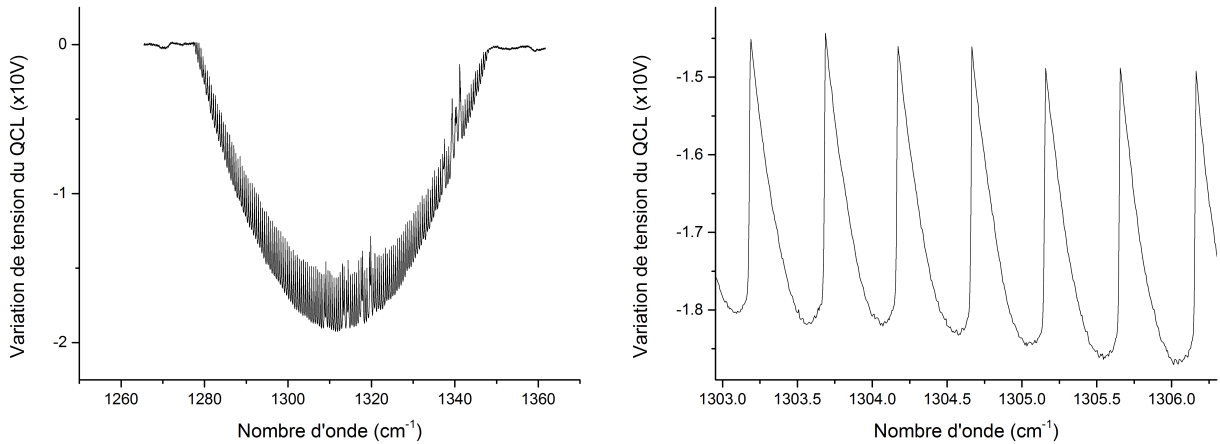


FIGURE 7.10: Trace de la figure 7.8 après conversion de l'angle du miroir en nombres d'ondes.

Il est important de noter que la conversion en nombre d'onde faite pour la figure 7.10 n'est pas correcte. En effet le spectromètre FTIR donne une valeur du nombre d'onde dans le vide tandis que la cavité est remplie d'air. Cela se traduit par un facteur n_{air} au numérateur. Si l'on applique ce facteur aux bornes de la plage d'accord on obtient 1277.348 cm^{-1} et 1348.367 cm^{-1} . La figure 7.10 a donc un léger effet de compression et est décalée d'environ 0.35 cm^{-1} par rapport à la réalité. Dans le cas présent cette différence n'est pas importante, mais elle le devient lors de l'enregistrement de spectres de gaz. Pour éviter cela nous avons choisi de prendre une raie de gaz comme référence pour déterminer

σ^{ref} lors des enregistrements. Cela nous permet de nous affranchir de l'utilisation du spectromètre FTIR pour la calibration de la cavité.

Répétabilité du dispositif

La répétabilité de la mesure est un paramètre déterminant pour remonter au spectre d'un gaz. Dans le chapitre précédent le montage ne permettait pas d'obtenir une répétabilité suffisante. Pour cette cavité, la répétabilité est testée en enregistrant trois traces consécutives à courant constant. En figure 7.11 est représenté une fraction de la plage totale. Cette mesure a été effectuée avant l'insertion de la cellule dans la cavité. Il y a donc moins de pertes, c'est pourquoi la valeur de la tension n'est pas la même que les figures précédentes. L'incertitude observée sur la tension du QCL est de l'ordre de 10^{-3} V, ce qui est en accord avec le bruit observé sur la figure 7.8. L'incertitude sur le nombre d'onde est de l'ordre de 10^{-2} cm^{-1} . Cela est dû à plusieurs facteurs tels que le pas d'échantillonnage (7.10^{-3} cm^{-1}), l'ajustement linéaire de l'angle du miroir pour supprimer le bruit, et les sauts de modes de la cavité externe ($1.3.10^{-2}$ cm^{-1}). Néanmoins ce montage est bien plus stable que le précédent et est exploitable avec la méthode EVIS.

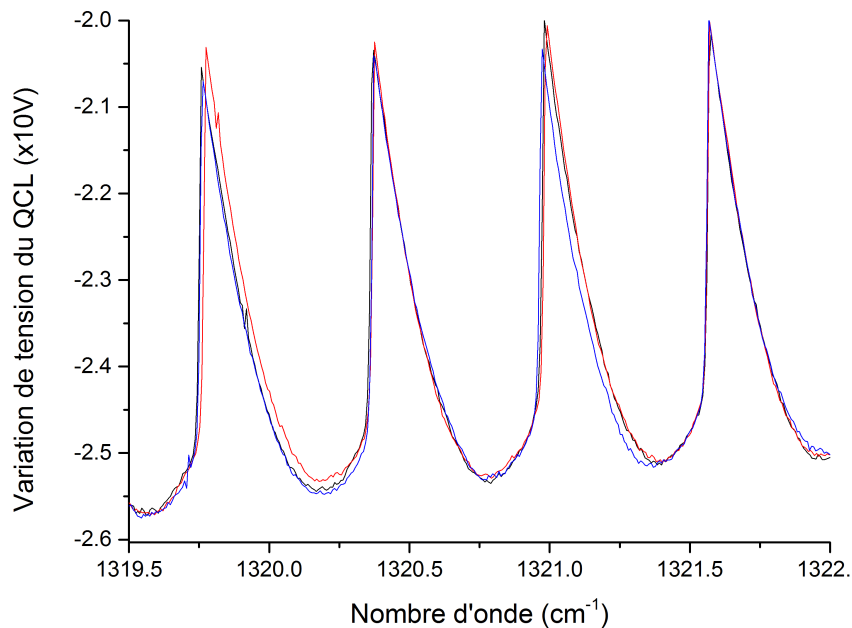


FIGURE 7.11: Démonstration de la répétabilité de la mesure.

7.4 Comparaison entre puissance optique et tension du QCL

La puissance en sortie de cavité P_{extra} est mesurée en continu par un détecteur MCT. Le signal issu du détecteur est enregistré au format TDMS par la carte d'acquisition de façon synchrone avec la tension du QCL. Une comparaison directe de la variation de

tension avec P_{extra} est tracée en figure 7.12. Le courant est fixe et le miroir effectue une rampe. Nous observons que la relation entre les deux grandeurs n'est pas linéaire. Or la tension est censée être le reflet de la puissance intracavité P_{intra} , et $P_{extra} = (1 - R)P_{intra}$ (en première approximation) où R est l'efficacité de diffraction du réseau dans l'ordre 1. Pour calculer la dépendance de R avec le nombre d'onde nous utilisons un réseau identique placé en sortie de cavité. La mesure de la puissance est effectuée avant ce réseau et dans son ordre 1 avec un puissance-mètre. Le rapport est égal à R . Le résultat est tracé en figure 7.13. Nous observons une variation de 10 % de l'efficacité du réseau sur la plage spectrale couverte par la cavité. Un ajustement linéaire est réalisé pour tenir compte de ce paramètre en première approximation. Cet ajustement est loin d'être idéal mais suffisant dans le cadre de ce travail. En tenant compte de cette variation d'efficacité la relation entre la variation de tension et la puissance intracavité est linéaire comme le montre le tracé de la figure 7.14. L'augmentation de la valeur des résidus est due à l'ajustement linéaire. Toutefois, la forme caractéristique visible sur les résidus en figure 7.12 n'est plus présente. Le comportement se rapproche plus d'un bruit blanc. Ainsi, les spectres obtenus intracavité et extracavité ne sont pas complètement comparables puisque l'évolution de la puissance au cours du balayage n'est pas la même dans les deux cas.

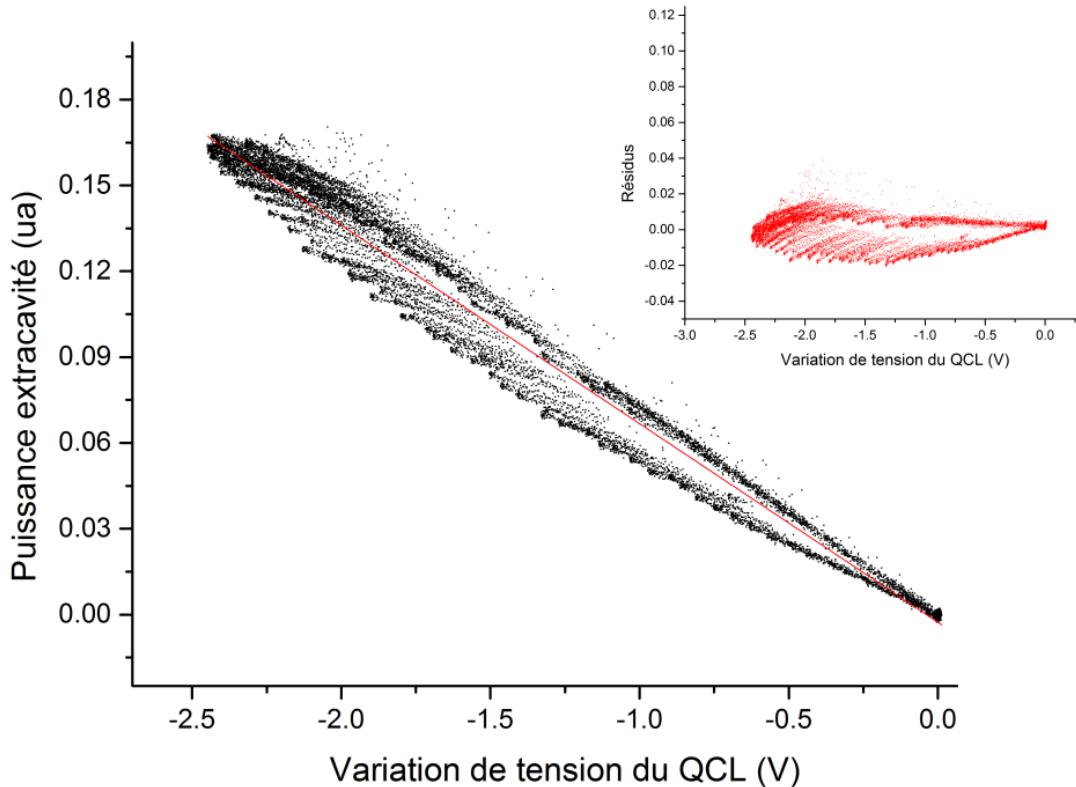


FIGURE 7.12: Évolution de la puissance en sortie de cavité en fonction de la variation de tension du QCL au cours d'une rampe du miroir. Les résidus de l'ajustement linéaire sont tracés dans l'encart en haut à droite de la figure.

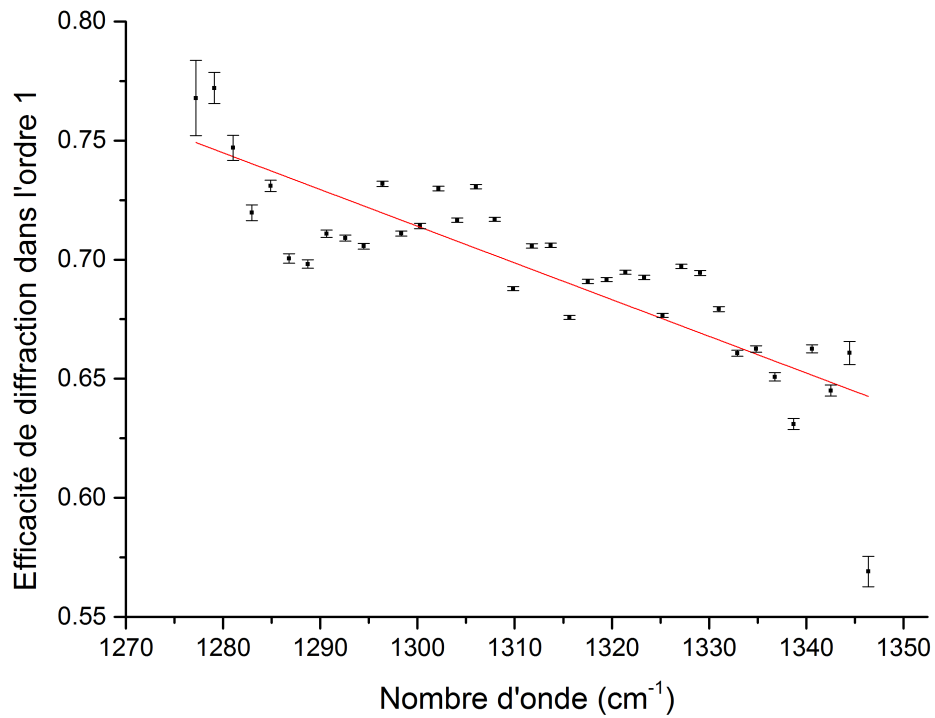


FIGURE 7.13: Efficacité de diffraction du réseau dans l'ordre 1 en fonction du nombre d'onde.

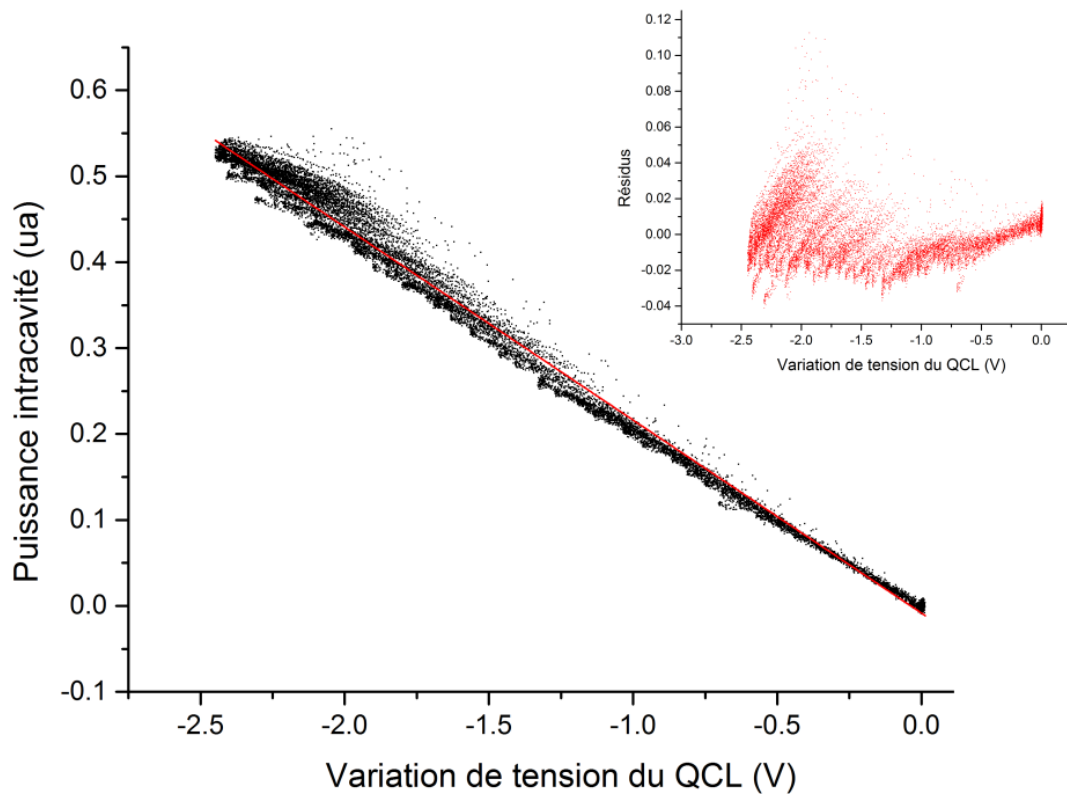


FIGURE 7.14: Évolution de la puissance intracavité en fonction de la variation de tension du QCL au cours d'une rampe du miroir. Les résidus de l'ajustement linéaire sont tracés dans l'encart en haut à droite de la figure.

7.5 Méthode d'acquisition et traitements

Au cours de cette thèse, l'impact des sauts de modes sur la résolution du spectre obtenu a été abordé plusieurs fois. Le balayage *mode hop-free* présenté en section 4.2 est une solution pour éviter les sauts de mode. Cependant, comme évoqué dans la section 4.2, cette méthode ne fonctionne que sur quelques cm^{-1} . Nous présentons ici une méthode pour supprimer l'influence des sauts de modes sur le spectre du gaz, ainsi que les différents traitements effectués.

7.5.1 Méthode d'acquisition

Notre objectif est de supprimer l'influence des sauts de mode sur le spectre final, ce qui améliore la résolution. Néanmoins la méthode que nous utilisons n'est pas du *mode hop-free*. En effet les sauts de mode au cours du balayage spectral sont conservés. Le principe repose sur un double balayage simultané en nombre d'onde, comme représenté en figure 7.15. Un balayage "large" est réalisé par le miroir et couvre toute la plage spectrale du laser. Un autre balayage "fin" est effectué en même temps par une rampe de courant de manière à couvrir l'ISL du QCL. La rampe de courant est beaucoup plus lente que la rampe du miroir. Chaque trace enregistrée est ainsi décalée spectralement par rapport aux autres, comme schématisé en figure 7.16.

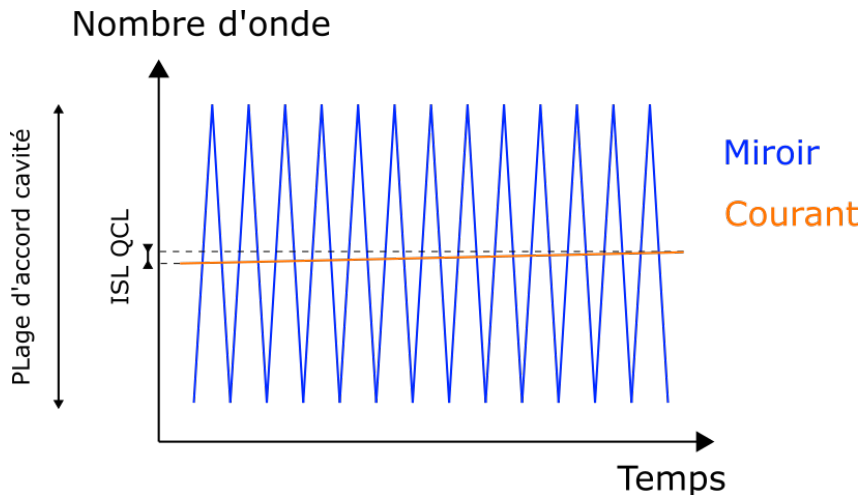


FIGURE 7.15: Double balayage en nombre d'onde

Expérimentalement, deux signaux triangulaires sont générés de façon synchrone par la carte FPGA. Un premier signal de fréquence basse (0.05 Hz) est utilisé pour réaliser des rampes de courant. Son amplitude (44 mA) couvre environ 1.3 ISL du QCL. Un deuxième signal à plus haute fréquence (5 Hz) sert à réaliser des rampes de mouvement du miroir. Son amplitude (5 V) est fixée pour couvrir toute la plage spectrale du laser, quel que soit le courant. Au total se sont donc 100 traces qui sont enregistrées par rampe de courant.

Un fichier TDMS contient les signaux correspondants à la tension du QCL, la puissance en sortie de cavité, l'angle du miroir et la valeur du courant d'alimentation. Tous ces signaux sont enregistrés par la carte FPGA de façon synchrone.

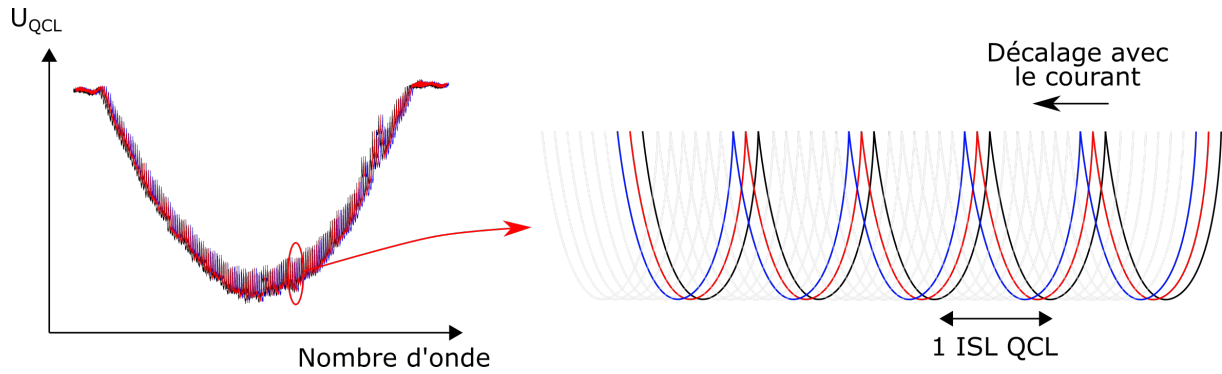


FIGURE 7.16: Décalage spectral des traces avec le courant.

Les enregistrements avec et sans gaz d'intérêt sont effectués à pression atmosphérique. Le premier est enregistré en présence d'un mélange d'air sec et de CH_4 dans la cellule. Le second est enregistré avec uniquement de l'air sec dans la cellule.

7.5.2 Traitement des traces

En figure 7.17 est tracée une fraction des signaux au cours de la rampe de courant. Il existe une différence d'amplitude sur la tension et la puissance selon le sens de la rampe du miroir. Cependant cette différence n'existe pas en l'absence de la rampe de courant. Nous n'avons pas trouvé l'origine de ce phénomène. Par conséquent les signaux sont découpés de façon à ne prendre que les rampes du miroirs dans le même sens. Sur la figure 7.17 ce découpage est symbolisé par les zones roses. Le choix de prendre les rampes croissantes ou décroissantes est donné à l'utilisateur mais nous n'avons pas noté de différence entre les résultats.

Pour la puissance et la tension nous supprimons l'offset de chaque trace. Il est constant sur la puissance puisqu'il s'agit de l'offset du détecteur. Cependant, étant donné que nous travaillons dans le régime résistif, l'offset sur la tension varie d'une trace à l'autre à cause de la variation du courant.

Au cours d'une rampe de miroir le courant varie de 0.44 mA. La puissance intracavité n'est donc pas la même entre le début et la fin de la rampe. Cependant cette variation est de 0.1 mW, ce que nous considérons comme négligeable par rapport aux 16 mW estimés intracavité (11.2 mW en sortie de cavité et coefficient d'efficacité du réseau de 0.7).

Afin de ne sélectionner que les rampes correspondant à 1 ILS du QCL, l'écart-type du rapport entre la première et la nième trace est calculé. Il présente un minimum lorsque les traces se recouvrent après une variation d'un ISL du QCL (figure 7.18). Néanmoins il n'atteint pas une valeur nulle car le gain du laser est différent d'une trace à l'autre à cause de la rampe de courant. L'amplitude varie comme tracé en figure 7.19. Les signaux sont enregistrés tels quels et la prise en compte de ce changement d'amplitude est faite lors du traitement pour remonter aux spectres d'absorption du gaz.

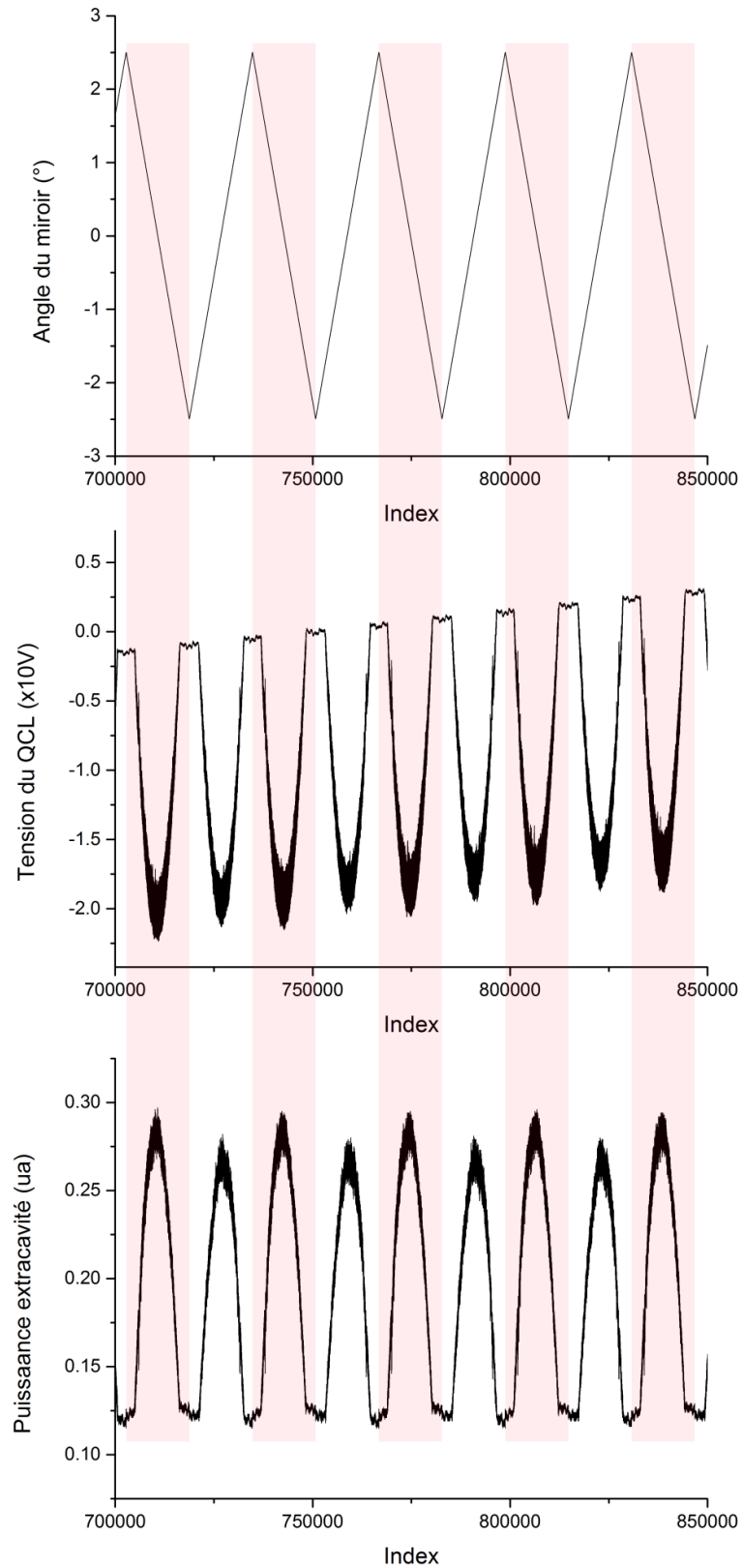


FIGURE 7.17: Évolution des signaux (angle du miroir, tension du QCL et puissance en sortie de cavité) au cours d'une rampe de courant. Seule une partie des signaux est tracée. L'index correspond à la position d'un point dans le tableau de données.

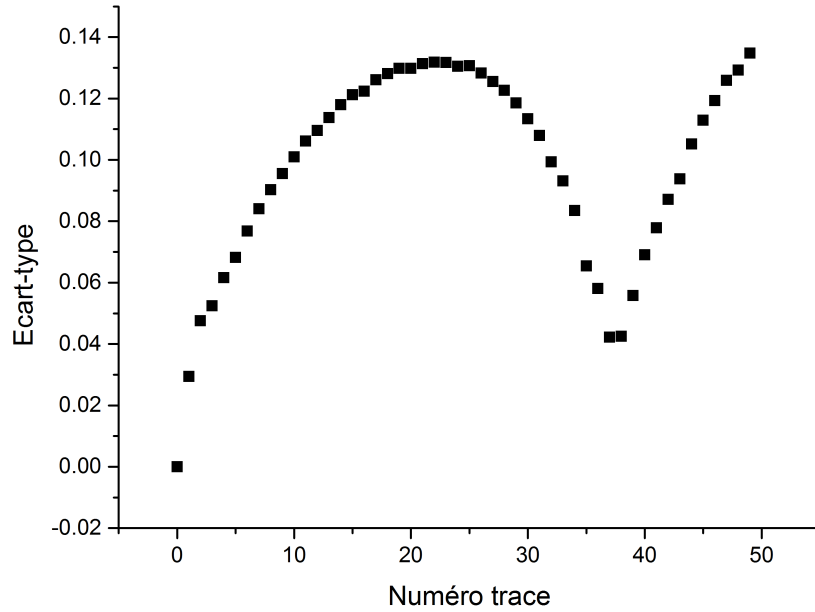


FIGURE 7.18: Variation de l'écart-type du rapport entre la 1^{ère} et la n^{ième} trace (n étant le numéro de la trace).

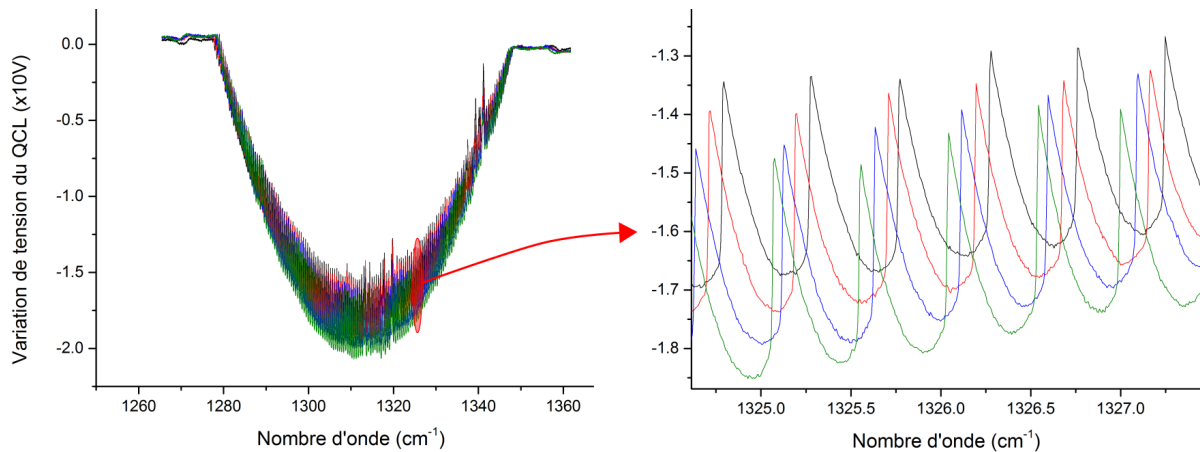


FIGURE 7.19: Quatre traces à des courants différents (noir 795.5 mA, rouge 801 mA, bleu 806 mA, vert 810 mA)

7.5.3 Différentes méthodes de traitement

Pour les explications nous n'allons montrer que la tension du QCL mais le même traitement est appliqué à la puissance en sortie de cavité. Différentes méthodes ont été mises en œuvre pour traiter les données. Nous les présentons ici afin de montrer l'évolution de la résolution du spectre obtenu.

Méthode n° 1 : Moyenne sur l'ISL du QCL

Cette première méthode a été utilisée au début de la thèse. Elle consiste à effectuer la moyenne de toutes les traces. Cette opération est effectuée pour deux enregistrements

(avec et sans gaz dans la cellule). Le spectre est ensuite obtenu par la différence des deux moyennes. Cette dernière opération est possible grâce à la synchronisation des rampes, ce qui assure que d'un enregistrement à l'autre chaque point correspond au même nombre d'onde (avec une incertitude de 0.01 cm^{-1}). Le résultat pour 0.3 % de méthane à pression atmosphérique est tracé en figure 7.20, ainsi que le coefficient d'absorption calculé (HITRAN 2012).

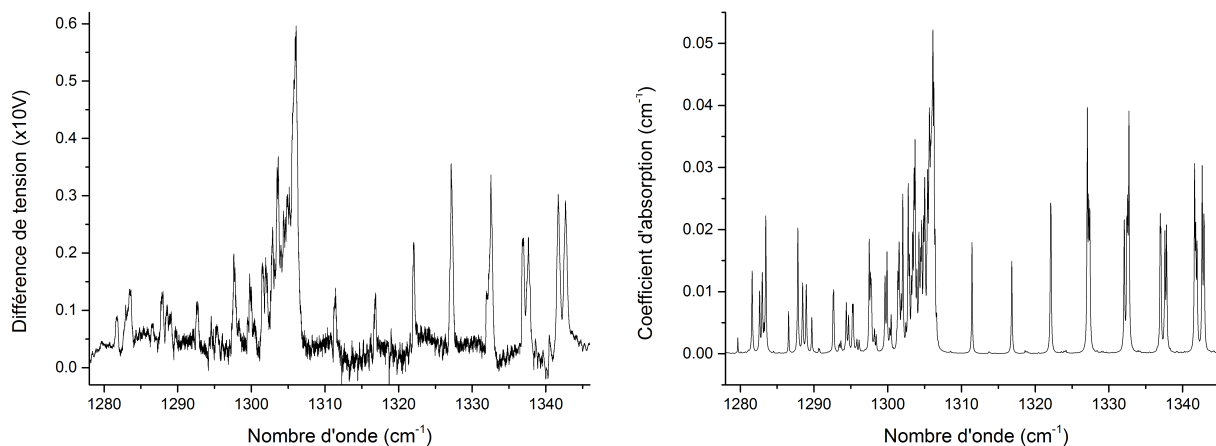


FIGURE 7.20: À gauche : Spectre obtenu avec la moyenne sur l'ISL du QCL pour 0.3 % de méthane. À droite : Coefficient d'absorption du méthane.

L'influence du gaz est bien visible et nous pouvons identifier le méthane. La résolution atteinte est de 0.5 cm^{-1} , ce qui est attendu car une moyenne sur toutes les traces équivaut à une moyenne sur l'ISL du QCL. Au total la cavité couvre une plage spectrale de 69 cm^{-1} ($1278\text{-}1347 \text{ cm}^{-1}$). Bien que cette méthode soit très rapide à réaliser, la marge de progression sur la résolution est grande. La limite imposée par l'incertitude sur le nombre d'onde est de 10^{-2} cm^{-1} , soit un facteur 50. Nous nous sommes donc concentrés sur l'amélioration de la résolution en développant d'autres méthodes de traitement.

Méthode n° 2 : Suivi de points sur une trace

Cette méthode ne nécessite qu'un enregistrement avec le gaz dans la cellule. Un exemple est tracé en figure 7.21. Pour supprimer la différence d'amplitude entre chaque trace, nous réalisons un ajustement polynomial des zones où la contre-réaction est maximale et où il n'y a pas de raie d'absorption (points verts). La détection de ces zones est réalisée par un module LabVIEW de "détection des pics/vallées". Elle est basée sur un algorithme qui fait correspondre un polynôme quadratique à des groupes séquentiels de points de données. Le nombre de points utilisés dans la correspondance est spécifié par l'utilisateur. Sur l'exemple tracé en figure 7.21, l'ajustement est calculé avec un polynôme d'ordre 5 sur la plage où le laser émet. L'ordre du polynôme a été choisi empiriquement.

La différence entre la trace et l'ajustement est effectuée et le résultat est tracé en figure 7.22. En appliquant ce traitement sur chaque trace nous obtenons des figures avec une même ligne de base.

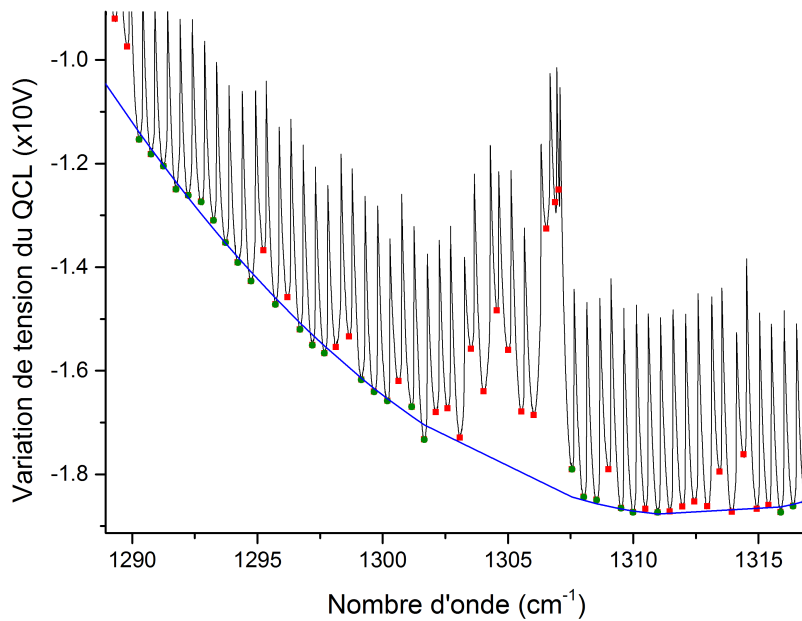


FIGURE 7.21: Illustration de la méthode de traitement par suivi de point sur une trace. La figure ne représente qu'une partie d'une trace. Les points verts sont utilisés pour l'ajustement (ligne bleue). Les points rouges sont les autres vallées détectées.

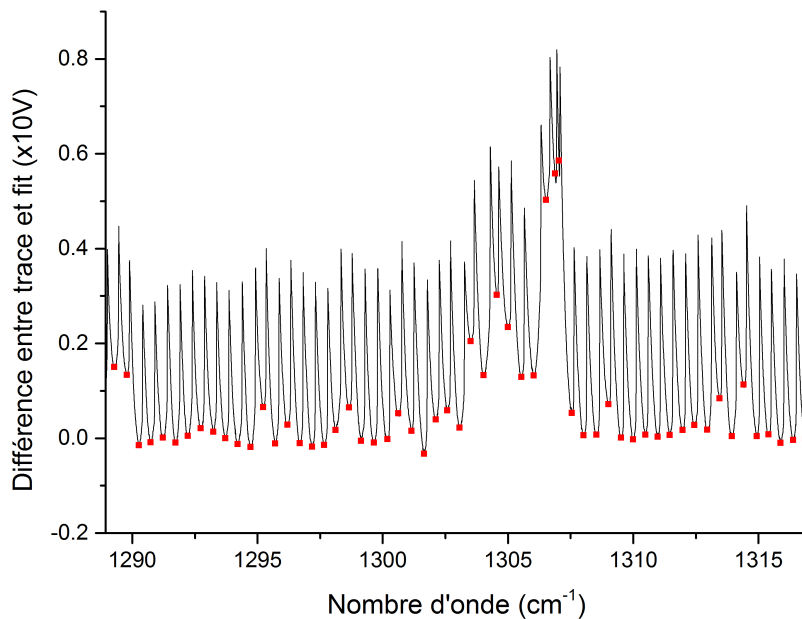


FIGURE 7.22: Signal obtenu après la soustraction du fit. Les points rouges sont les vallées détectées.

Une deuxième détection de vallées est ensuite appliquée sur le résultat de la différence. La zone recherchée est l'intersection entre un saut de mode et une raie d'absorption. Ce procédé est schématisé en figure 7.23. Nous utilisons le décalage spectral des sauts de mode avec la rampe de courant pour scanner les raies d'absorption. Sur le schéma la raie d'absorption et les sauts de mode sont séparés, mais la détection de vallées se fait sur

le signal total (égal à la somme des signaux). Le nombre de points à prendre pour la détection de l'intersection est crucial : s'il est trop grand certaines intersections ne sont pas détectées; s'il est trop petit des intersections parasites causées par le bruit sur le signal sont détectées. Le nombre de points menant à la meilleure détection est 20, soit une plage de $8.5 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. Cette valeur a été déterminée expérimentalement.

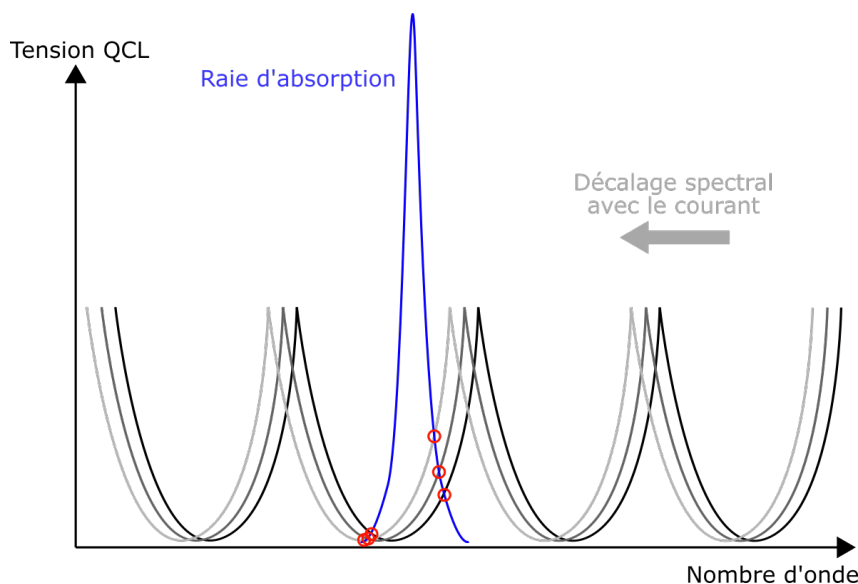


FIGURE 7.23: Représentation schématique du balayage d'une raie d'absorption par les sauts de mode du QCL (noir et gris).

Le spectre final est obtenu en traçant les zones d'intersections pour tous les courants. Le résultat est tracé en figure 7.24. L'apparition des raies de l' H_2O ambiant sur le spectre est due au changement de méthode. Pour la précédente méthode, le rapport des tensions supprime l'influence de l' H_2O . Pour la méthode par suivi de point, la différence est faite avec un ajustement, ce qui ne permet pas de retirer ces raies. Néanmoins la résolution est bien meilleure que la méthode précédente. Elle est de 0.1 cm^{-1} , ce qui est attendu en raison de la plage de détection de l'intersection.

Cependant cette méthode ne permet pas de résoudre le sommet des raies d'absorption. Cela se comprend si l'on regarde la figure 7.23. Les intersections n'existent pas pour le sommet des raies donc il n'y a pas de détection à ces endroits. Pour améliorer ceci nous avons développé une troisième méthode.

Méthode n° 3 : Suivi de points avec une référence

Cette dernière méthode est dérivée de la seconde. L'objectif est d'améliorer la résolution au sommet des raies d'absorption. Pour cela, une détection des vallées est effectuée sur un premier enregistrement avec un gaz neutre (azote) à la même pression que le gaz d'intérêt (pression atmosphérique). Ainsi sur chaque trace ne sont présents que les sauts de mode de la cavité. Étant donné que la mesure est répétable, nous pouvons récupérer les abscisses des zones de contre-réaction maximale (vallées) et les utiliser pour récupérer

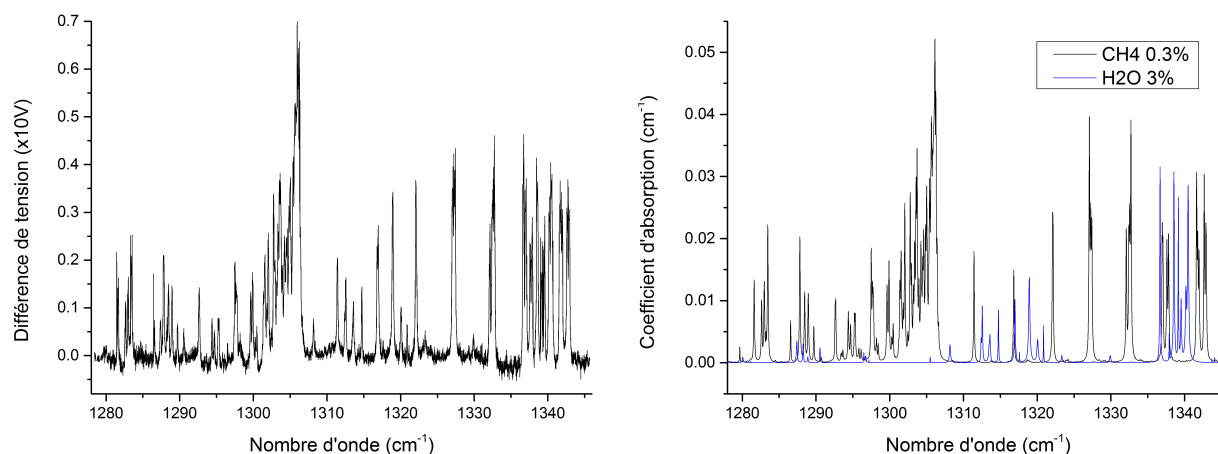


FIGURE 7.24: À gauche : Spectre obtenu avec la méthode de suivi de points sur une trace pour 0.3 % de méthane. À droite : Coefficient d'absorption du méthane et de l' H_2O .

les points de mêmes abscisses sur les traces avec gaz. En théorie nous nous affranchissons complètement de l'influence des sauts de mode.

Pour l'enregistrement avec gaz, un ajustement est effectué de la même manière que précédemment sur chaque trace afin de supprimer la variation d'amplitude d'une trace à l'autre. De même la différence entre chaque trace et son ajustement est réalisé. Le spectre final est obtenu en traçant tous les points récupérés sur chaque trace avec gaz. Le résultat est tracé en figure 7.25. Quelques points aberrants sont présents mais nous n'avons pas encore pu identifier leur origine. Nous supposons qu'elle provient d'un problème dans l'association des points et des abscisses ou d'un découpage de fichier. Le sommet des raies est légèrement mieux résolu, mais la résolution du spectre de 0.1 cm^{-1} , soit la même que le traitement précédent. En théorie elle devrait être de $1.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ (0.5 cm^{-1} couverts par 38 traces). Dans les faits, l'incertitude sur la répétabilité du système abordée en section 7.3 limite la résolution à 10^{-2} cm^{-1} . Il y a donc un facteur 10 entre la limite obtenue et celle attendue.

L'erreur sur la position de la détection de vallée a été observée pour la première trace avec et sans gaz. La partie étudiée ne comporte pas de raie d'absorption. Comme tracé en figure 7.26 il existe une erreur sur la position des vallées qui varie entre 10^{-2} cm^{-1} et $8 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. L'origine de cette différence est probablement un léger désalignement du montage. En effet la grande taille de la cavité la rend très sensible à l'alignement optique. Pour essayer d'améliorer la résolution, les futurs travaux devront se pencher sur la réduction de la longueur de la cavité.

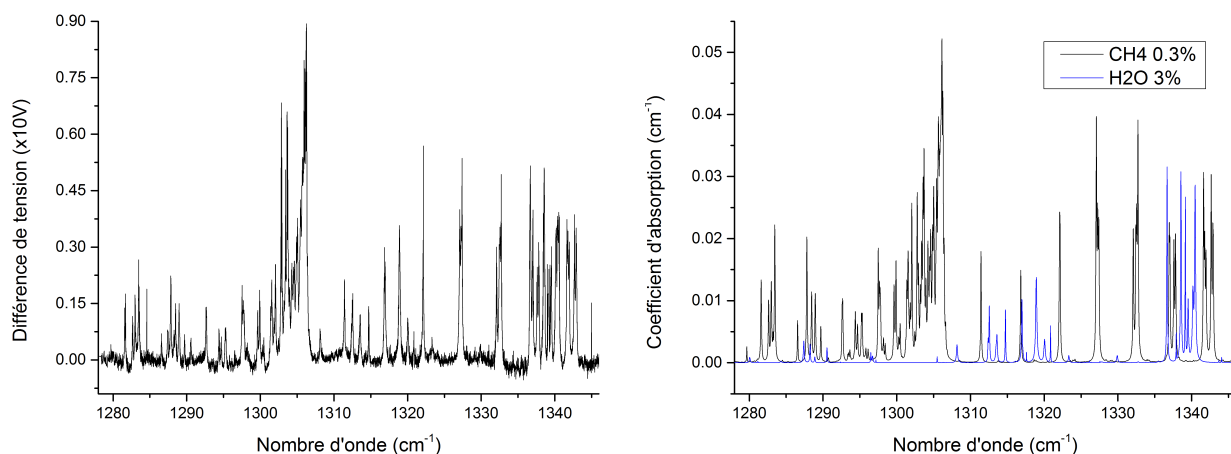


FIGURE 7.25: À gauche : Spectre obtenu par la méthode de suivi de points avec référence pour 0.3 % de méthane. À droite : Coefficient d'absorption du méthane et de l' H_2O .

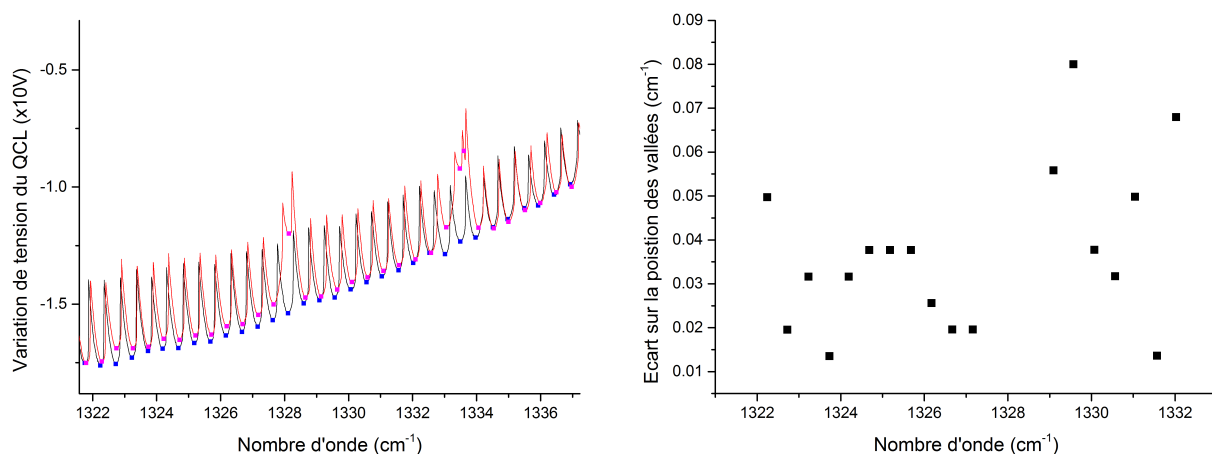


FIGURE 7.26: Observation de l'erreur sur le nombre d'onde entre deux traces à courant identique. À gauche : Traces avec (rouge) et sans (noir) gaz d'intérêt. À droite : Écarts en nombre d'onde sur les positions des creux entre les deux traces. Les zones étudiées ne comportent pas de raies de méthane.

7.6 Résultats préliminaires

Les spectres obtenus sont basés sur la différence entre l'enregistrement avec et celui sans gaz d'après l'équation 6.5 issue de [130]. Plusieurs exemples, correspondant à des plages spectrales différentes, sont tracés en figures 7.27, 7.28 et 7.29. Ces différentes figures présentent le coefficient d'absorption calculé pour une concentration de 0.3 % de méthane et la différence de tension mesurée, ainsi que la corrélation entre les deux. Pour de faibles absorptions (figure 7.27) la linéarité entre les deux grandeurs est observée. Pour des absorptions plus élevées (figures 7.28 et 7.29) l'allure globale est linéaire mais il existe une dispersion pour les valeurs les plus élevées. Deux causes sont possibles. La première est due aux artefacts du spectre évoqués précédemment. La seconde est due à un changement de longueur d'onde du laser. Si l'absorption est trop forte, les pertes pour le mode sont

trop élevées et la cavité ne peut émettre sur ce dernier. Dans ce cas il est possible qu'elle émette sur un mode adjacent pour lequel les pertes sont plus favorables. Cela se traduit par un changement de puissance intracavité. Pour observer ce phénomène il faudrait enregistrer la longueur d'onde au cours du balayage (par exemple avec un FP en sortie de cavité), ce que nous ne possédons pas actuellement pour cette longueur d'onde. Toutefois nous pouvons valider l'utilisation de l'équation 6.5 dans le cas de faibles absorptions.

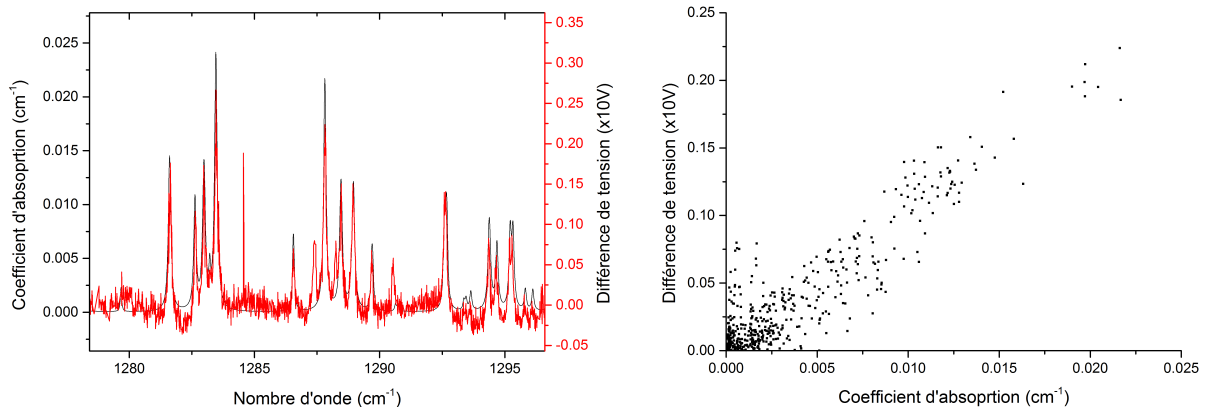


FIGURE 7.27: À gauche : Plage spectrale étudiée. La différence de tensions entre les enregistrements avec et sans méthane est tracée en rouge ; le coefficient d'absorption pour une concentration de 0.3% est tracé en noir. À droite : Différence de tensions en fonction du coefficient d'absorption du gaz.

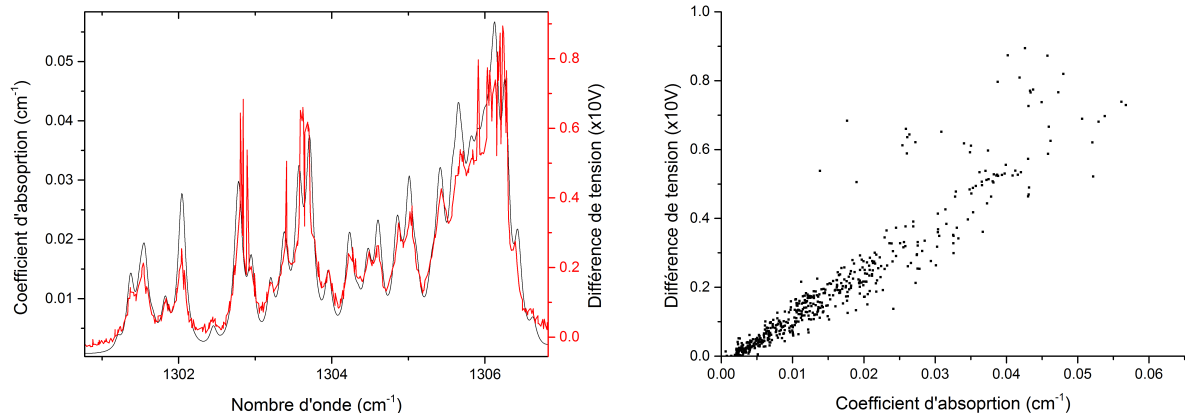


FIGURE 7.28: Même figure que la 7.27 mais sur une deuxième plage.

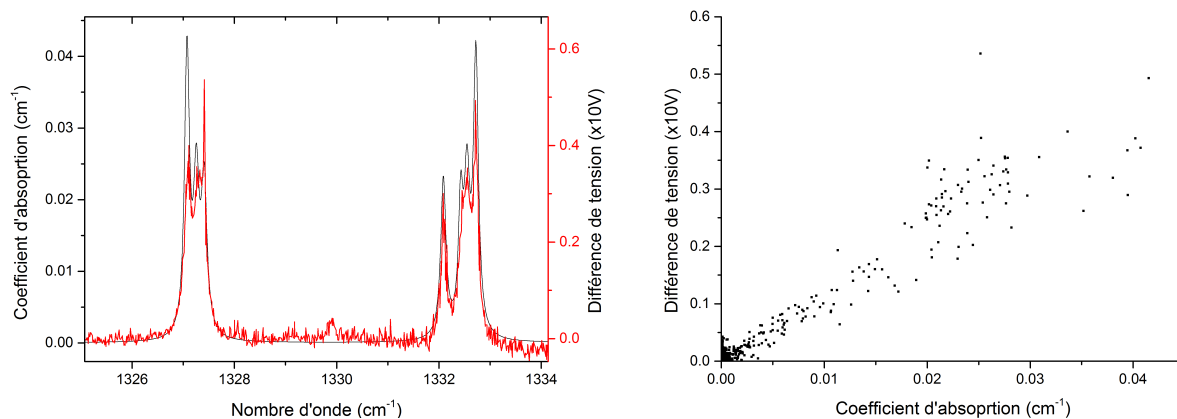


FIGURE 7.29: Même figure que la 7.27 mais sur une troisième plage.

La comparaison d'un spectre intracavité et extracavité est montrée en figure 7.30 pour 0.3 % de méthane. Hormis les artefacts, le spectre intracavité est meilleur car moins bruité mais avec la même résolution. Le rapport signal sur bruit pour le spectre extracavité est égal à 16 tandis qu'il est de 47 pour l'intracavité.

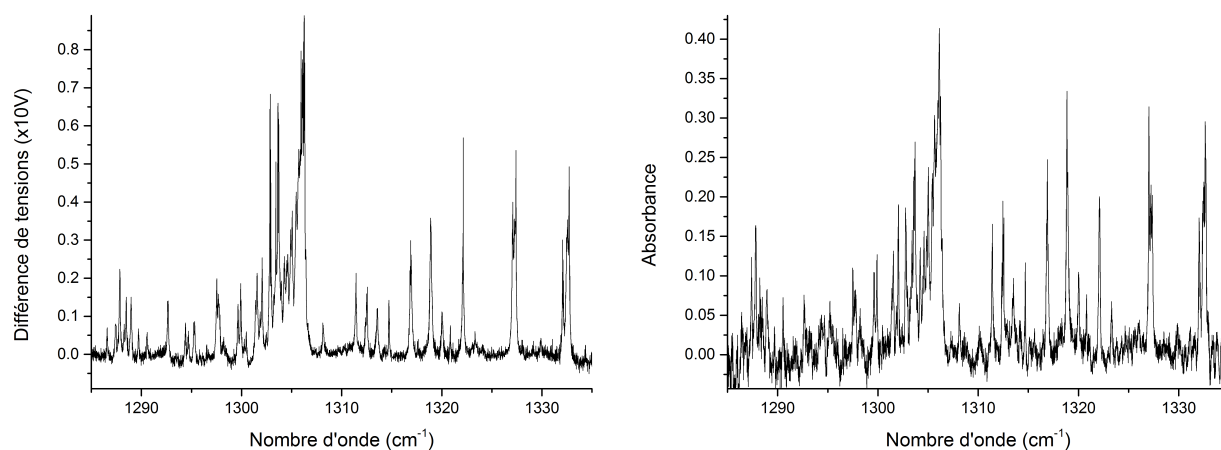


FIGURE 7.30: Comparaison d'un spectre intracavité (gauche) et extracavité (droite).

Un dernier test a été effectué avec un changement de réseau. Le coefficient d'efficacité de ce réseau est de 90 %. Le spectre pour 0.3 % de méthane dans la cavité est tracé en figure 7.31. La plage totale couverte est de 82 cm^{-1} ($1272\text{-}1355 \text{ cm}^{-1}$) soit une augmentation de 19 % par rapport au précédent réseau. Ce résultat est attendu puisque le changement de réseau diminue les pertes de la cavité. La configuration Littrow n'a pas été testée mais elle devrait permettre d'obtenir une plage encore plus grande en raison de ses pertes plus faibles qu'une configuration Littman.

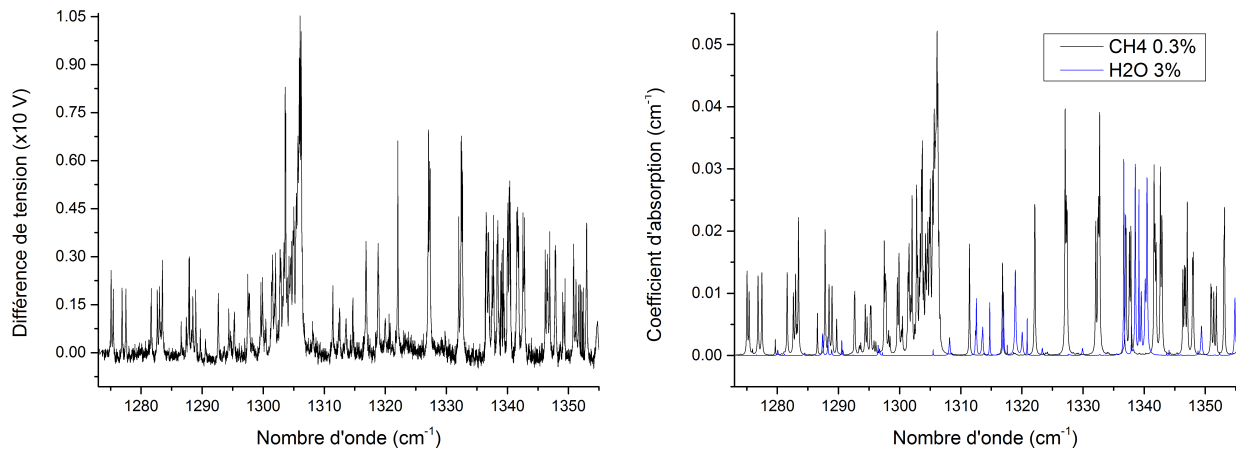


FIGURE 7.31: À gauche : Spectre obtenu avec un réseau possédant une efficacité de diffraction de 90 %. À droite : Coefficient d'absorption du méthane et de l' H_2O .

7.7 Conclusion

La méthode d'acquisition et de traitement développée permet de s'affranchir des sauts de mode du QCL sans avoir besoin d'adapter le montage pour réaliser du *mode hop-free*. La résolution atteinte est de 0.1 cm^{-1} sur une plage pouvant atteindre 82 cm^{-1} en configuration Littman. La relation entre la différence de tensions et le coefficient d'absorption est linéaire. Ainsi, dans un cas de détection de gaz, il est aisé de remonter à la concentration grâce à la technique EVIS. La méthode permet d'obtenir un spectre intracavité avec un meilleur rapport signal sur bruit qu'un spectre extracavité. Les travaux futurs devront porter sur l'amélioration de la stabilité du montage (notamment en raccourcissant la cavité) et les limites du système (concentrations, vitesse d'acquisition).

Conclusion

Les travaux réalisés au cours de cette thèse ont portés sur le développement de systèmes de détection de gaz, dans le moyen infrarouge, exploitant la technologie des lasers à cascade quantique.

Dans la première partie du manuscrit nous nous sommes consacrés à l'exploitation de barrettes de QCL, sources novatrices fonctionnant en régime impulsionnel. Deux types de sources ont été utilisées : les sources Miriade, basées sur le recouvrement spectral de plusieurs QCL DFB créés sur une même embase, et les sources Cocase, reposant sur la cohérence de plusieurs QCL.

Les sources Miriade sont conçues de manière à obtenir une source monolithique largement accordable. Les expériences réalisées ont montré l'intérêt de cette source pour de la détection de gaz. De plus, ces expériences ont prouvé que l'association d'une barrette Miriade et d'un multiplexeur corrige le principal des défauts des barrettes de lasers pour n'avoir qu'une sortie unique de faisceau. Ainsi, la source devient exploitable avec n'importe quel dispositif de détection, même ceux sensibles à l'alignement optique. Le dernier point important de ces expériences est l'application de la spectroscopie intrapulse. En utilisant un intégrateur boxcar le chirp au cours de l'impulsion laser peut être exploité. La résolution du spectre s'en trouve améliorée, même lorsque la puissance de sortie ne dépasse pas une dizaine de micro-watts.

Les sources Cocase sont quant à elles conçues pour émettre une forte puissance. L'expérience menée sur cette source a permis de mettre en avant l'avantage de son émission bilobe lorsque le laser est monté en cavité étendue. Un des lobes est utilisé pour accorder la longueur d'onde tandis que le second peut être exploité pour des applications, ici l'enregistrement du spectre d'un gaz.

Ces deux types de source ont montré leur potentiel pour une application à de la détection de gaz. Les sources utilisées dans les travaux de cette thèse ne sont que des prototypes servant à démontrer leur intérêt. Les futurs développements porteront sur l'augmentation de leurs caractéristiques d'émission. Pour les sources Miriade, il s'agit d'augmenter la plage spectrale couverte. Pour la source Cocase, c'est l'augmentation de la puissance qui est ciblée, ce qui aura pour effet d'augmenter également la plage d'accord. Néanmoins les résultats obtenus avec les prototypes actuels ont menés à la publication de deux papiers, chacun étant, à notre connaissance, une première mondiale sur leurs sujets respectifs.

Dans la seconde partie du manuscrit nous nous sommes concentrés sur la technique intracavité en régime continu. Le dispositif expérimental est basé sur un QCL monté en cavité étendue. Nous avons présenté une technique de détection de gaz reposant sur la mesure de tension de laser. Le premier dispositif expérimental a permis d'identifier les problèmes du montage, notamment les instabilités mécaniques liées aux platines de rotation. Ces problèmes ont été pris en compte dans la conception d'un second montage. Par ailleurs, nous avons développé une méthode d'acquisition et de traitement des données afin de supprimer l'influence des sauts de modes sur le spectre du gaz détecté. L'avantage de cette méthode est sa facilité d'implémentation. Elle n'est pas *Mode Hop-Free* mais repose sur un double balayage spectral, réalisé avec le courant d'alimentation du QCL et la rotation du miroir de la cavité. La méthode de traitement développée permet de remonter au spectre du laser. La résolution n'est plus limitée par les sauts de mode du laser, mais par la faible instabilité mécanique du montage liée à la grande longueur de la cavité. Les résultats préliminaires obtenus sont prometteurs, tant par la grande plage d'accord que la résolution spectrale, et ont fait l'objet de présentations orales dans des congrès internationaux.

Avec ce système intracavité il est possible d'effectuer une détection locale de gaz sans détecteur optique. En plus d'être facilement implémentable, la technique de détection n'est pas dépendante de la longueur d'onde du QCL. Elle est donc exploitable dans les régions spectrales où les détecteurs actuels ne sont potentiellement pas encore performants (infrarouge lointain, THz). L'autre avantage de cette technique est qu'elle permet de balayer rapidement toute la plage spectrale accessible par le laser. Les futurs travaux sur ce système porteront sur l'amélioration de la résolution spectrale, en particulier en réduisant la longueur de la cavité pour obtenir un montage plus stable. De plus, l'augmentation de la plage d'accord est également un autre point d'amélioration. Réduire les pertes du système actuel est envisageable mais la marge de progression est faible. L'autre moyen serait d'utiliser un QCL de plus forte puissance.

Les sources exploitées en première partie et la technique de détection développée en seconde partie sont très récentes et peu exploitées. Le TRL (*Technology Readiness Level*) des travaux de cette thèse est de 3, c'est-à-dire qu'ils servent de preuves expérimentales de concepts. C'est pourquoi nous ne nous sommes pas intéressés à divers aspects tels que l'influence de l'environnement, la robustesse, la taille ou encore la consommation électrique. Chacun de ces aspects sera étudié et optimisé dans de futurs travaux afin d'obtenir des dispositifs de détection de gaz performants utilisables en conditions réelles. Comme pour toute nouvelle technologie, la marge de progression est énorme et leurs applications industrielles n'apparaîtront pas avant plusieurs années, le temps d'atteindre une certaine maturité.

Communications et publications

Publications

- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, M. Brun, G. Maisons, M. Carras, and V. Zeninari, "Multi-gas sensing with quantum cascade laser array in the mid-infrared region", *Applied Physics B : Lasers and Optics* vol. 123, no. 5, pp. 1–6, 2017 .
DOI : 10.1007/s00340-017-6716-9
- R. Vallon, B. Parvitte, L. Bizet, G. M. De Naurois, B. Simozrag, G. Maisons, M. Carras, and V. Zeninari, "External cavity coherent quantum cascade laser array", *Infrared Physics and Technology*, vol. 76, pp. 415–420, 2016.
DOI : 10.1016/j.infrared.2016.03.013

Communications orales internationales

- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Intracavity gaz detection with an extended-cavity quantum cascade laser emitting at 7.6 μm ", OSA High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress, Strasbourg (France), Mars 2018.
- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Detectorless intracavity technique with EC-QCL for atmospheric gas detection", OSA Imaging and Applied Optics Congress, Orlando (Floride, États-Unis), Juin 2018.

Communications par affiches

- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Sources moyen infrarouge largement accordables basées sur des lasers à cascade quantique développées pour la détection de gaz", Congrès JSM-PAMO, Bordeaux (France), Juillet 2016.
- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Quantum Cascade Laser-based sources with broad tunable emission for infrared gas detection", Congrès ASA-HITRAN, Reims (France), Août 2016.

- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Quantum Cascade Laser-based sources with broad tunable emission for infrared gas detection", Congrès FLAIR, Aix-les-Bains (France), Septembre 2016.
- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Spectrométrie moyen infrarouge intracavité sans détecteur externe", Journées GdR SpecMo, Lille (France), Mai 2017.
- L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Detectorless intracavity gas detection with quantum cascade laser in the mid-infrared region", International User Meeting and Summer School on Cavity Enhanced Spectroscopy, Egmond aan Zee (Pays-Bas), Juin 2017.
- B. Parvitte, L. Bizet, R. Vallon, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Latest results of an intracavity-QCL based spectrometer for atmospheric gas detection", OSA Advanced Photonics Congress, Zurich (Suisse), Juillet 2018.
- B. Parvitte, L. Bizet, R. Vallon, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Intracavity-QCL based spectrometer for atmospheric gas detection", International Workshop of the SAFESIDE France – Wallonie – Vlaanderen Interreg project, Gand (Belgique), Juillet 2018.
- R. Vallon, L. Bizet, B. Parvitte, G. Maisons, M. Carras, V. Zeninari, "Detectorless intracavity gas detection with quantum cascade laser", Congrès FLAIR, Assise (Italie), Septembre 2018.

Bibliographie

- [1] “univ-reims.fr/GSMA/SLA.”
- [2] J. Mikolajczyk, Z. Bielecki, M. Bugajski, J. Piotrowski, J. Wojtas, W. Gawron, D. Szabra, and A. Prokopiuk, “Analysis of Free-Space Optics Development,” *Metrol. Meas. Syst.*, vol. 24, no. 4, pp. 653–674, 2017.
- [3] E. B. Takeuchi, T. Rayner, M. Weida, S. Crivello, and T. Day, “Standoff detection of explosives and chemical agents using broadly tuned external-cavity quantum cascade lasers (EC-QCLs),” *Proc.SPIE*, vol. 6741, p. 674104, 2007.
- [4] B. D’Humières, É. Margoto, and Y. Fazilleau, “Cascade laser applications : trends and challenges,” *Spie Opto*, vol. 9767, p. 97671U, 2016.
- [5] A. Sijan, “Development of military lasers for optical countermeasures in the mid-IR,” *Proceedings of SPIE*, vol. 7483, p. 748304, 2009.
- [6] H. D. Tholl and J. Wagner, “Mid-IR semiconductor lasers for power projection and sensing,” *Spie Newsroom*, pp. 10–12, 2010.
- [7] F. J. Harren, J. Mandon, and S. M. Cristescu, “Photoacoustic Spectroscopy in Trace Gas Monitoring,” *Encyclopedia of Analytical Chemistry*, no. September, pp. 2203–2226, 2000.
- [8] J. A. Barnes, T. E. Gough, T. Q. Murdock, and M. Stoer, “Absolute intensities in photoacoustic spectroscopy,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 67, no. 2, pp. 371–374, 1996.
- [9] M. A. Lefsky, W. B. Cohen, G. G. Parker, and D. J. Harding, “Lidar Remote Sensing for Ecosystem Studies,” *BioScience*, vol. 52, no. 1, pp. 19–30, 2002.
- [10] D. Kaur, A. M. D. Souza, J. Wanna, S. A. Hammad, L. Mercorelli, and D. S. Perry, “Multipass cell for molecular beam absorption spectroscopy,” *Applied optics*, vol. 29, no. 1, pp. 119–124, 1990.
- [11] K. Liu, L. Wang, T. Tan, G. Wang, W. Zhang, W. Chen, and X. Gao, “Highly sensitive detection of methane by near-infrared laser absorption spectroscopy using a compact dense-pattern multipass cell,” *Sensors and Actuators, B : Chemical*, vol. 220, pp. 1000–1005, 2015.
- [12] M. Nowakowski, J. Wojtas, Z. Bielecki, and J. Mikolajczyk, “Cavity enhanced absorption spectroscopy sensor,” *Acta Physica Polonica A*, vol. 116, no. 3, pp. 363–367, 2009.

- [13] M. D. Wheeler, S. M. Newman, A. J. Orr-Ewing, and M. N. R. Ashfold, "Cavity ring-down spectroscopy," *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, vol. 94, no. 3, pp. 337–351, 1998.
- [14] V. M. Baev, I. N. Sarkisov, E. A. Sviridenkov, and A. F. Suchkov, "Intracavity laser spectroscopy," *Journal of Soviet Laser Research*, vol. 10, no. 1, pp. 61–85, 1989.
- [15] L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, M. Brun, G. Maisons, M. Carras, and V. Zeninari, "Multi-gas sensing with quantum cascade laser array in the mid-infrared region," *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 123, no. 5, pp. 1–6, 2017.
- [16] R. Vallon, B. Parvitte, L. Bizet, G. M. de Naurois, B. Simozrag, G. Maisons, M. Carras, and V. Zeninari, "External cavity coherent quantum cascade laser array," *Infrared Physics and Technology*, vol. 76, pp. 415–420, 2016.
- [17] L. Esaki and R. Tsu, "Superlattice and Negative Differential Conductivity in Semiconductors," *IBM Journal of Research and Development*, vol. 14, no. 1, pp. 61–65, 1970.
- [18] R. F. Kazarinov and R. A. Suris, "Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice," *Soviet Physics - Semiconductors*, vol. 5, no. 4, pp. 707–709, 1971.
- [19] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Quantum cascade laser," *Science*, vol. 264, no. 5158, pp. 553–556, 1994.
- [20] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Continuous wave operation of a vertical transition quantum cascade laser above $T=80$ K," *Applied Physics Letters*, vol. 67, p. 3057, 1995.
- [21] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, S.-N. G. Chu, and A. Y. Cho, "High power mid-infrared ($\lambda=5 \mu\text{m}$) quantum cascade lasers operating above room temperature," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, no. 26, pp. 3680–3683, 1996.
- [22] J. Faist, C. Gmachl, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, and A. Y. Cho, "Distributed feedback quantum cascade lasers," *Applied Physics Letters*, vol. 70, no. 20, pp. 2670–2672, 1997.
- [23] R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. Beere, E. Linfield, G. Davies, D. Ritchie, R. Iotti, and F. Rossi, "Terahertz semiconductor heterostructure laser," *Nature*, vol. 417, pp. 156–159, 2002.
- [24] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini, and H. Melchior, "Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature," *Science*, vol. 295, no. 5553, pp. 301–305, 2002.
- [25] M. P. Semtsiv, M. Wienold, S. Dressler, and W. T. Masselink, "Short-wavelength ($\lambda = 3.05 \mu\text{m}$) InP-based strain-compensated quantum-cascade laser," *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 5, pp. 3–6, 2007.
- [26] G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie, and J. Faist, "THz and sub-THz quantum cascade lasers," *Laser and Photonics Reviews*, vol. 3, no. 1-2, pp. 45–66, 2009.

- [27] A. Lyakh, C. Pflügl, L. Diehl, Q. J. Wang, F. Capasso, X. J. Wang, J. Y. Fan, T. Tanbun-Ek, R. Maulini, A. Tsekoun, R. Go, and C. K. N. Patel, “1.6 W high wall plug efficiency, continuous-wave room temperature quantum cascade laser emitting at 4.6 μm ,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 11, pp. 2006–2009, 2008.
- [28] A. L. M. Suttinger, J. Leshin, R. Go, P. Figueiredo, H. Shu, “Continuous wave power scaling in high power broad area quantum cascade lasers,” 2018.
- [29] Y. Bai, S. Slivken, S. R. Darvish, A. Haddadi, B. Gokden, and M. Razeghi, “High power broad area quantum cascade lasers,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 22, pp. 2007–2010, 2009.
- [30] A. P. M. Michel, P. Q. Liu, J. K. Yeung, P. Corrigan, M. L. Baeck, X. Pan, H. Dong, Z. Wang, T. Day, J. A. Smith, F. Moshary, and C. F. Gmachl, “Design and Deployment of a Quantum Cascade Laser Absorption Spectrometer in an Open-Path Sensor System For Trace Gas Analysis,” in *2009 Conference on Lasers and Electro-Optics and 2009 Conference on Quantum electronics and Laser Science Conference*, pp. 1–2, 2009.
- [31] R. Maamary, X. Cui, E. Fertein, P. Augustin, M. Fourmentin, D. Dewaele, F. Cazier, L. Guinet, and W. Chen, “A quantum cascade laser-based optical sensor for continuous monitoring of environmental methane in Dunkirk (France),” *Sensors (Switzerland)*, vol. 16, no. 224, 2016.
- [32] D. D. Nelson, J. H. Shorter, J. B. McManus, and M. S. Zahniser, “Sub-part-per-billion detection of nitric oxide in air using a thermoelectrically cooled mid-infrared quantum cascade laser spectrometer,” *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 75, no. 2-3, pp. 343–350, 2002.
- [33] R. Maulini, A. Lyakh, A. Tsekoun, M. Lane, T. Macdonald, R. Go, and C. K. N. Patel, “High power and efficiency quantum cascade laser systems for defense and security applications,” *Proc.SPIE*, vol. 7483, p. 73250L, 2009.
- [34] A. Mukherjee, S. Von der Porten, and C. K. N. Patel, “Standoff detection of explosive substances at distances of up to 150 m.,” *Applied optics*, vol. 49, no. 11, pp. 2072–8, 2010.
- [35] M. Papantonakis, R. Furstenberg, C. Kendziora, S. V. Stepnowski, J. Stepnowski, V. Nguyen, M. Rake, and R. A. McGill, “Stand-off detection of trace explosives by infrared photo-thermal spectroscopy,” *2009 IEEE Conference on Technologies for Homeland Security, HST 2009*, vol. 7304, pp. 465–471, 2009.
- [36] J. Kottmann, J. M. Rey, and M. W. Sigrist, “Mid-infrared photoacoustic detection of glucose in human skin : Towards non-invasive diagnostics,” *Sensors (Switzerland)*, vol. 16, no. 10, pp. 1–14, 2016.
- [37] S. Slivken, N. Bandyopadhyay, Y. Bai, Q. Y. Lu, and M. Razeghi, “Extended electrical tuning of quantum cascade lasers with digital concatenated gratings,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 23, 2013.
- [38] N. Balkan, *Hot Electrons in Semiconductors : Physics and Devices*. Clarendon Press, 1998.

- [39] M. Henini, *Molecular Beam Epitaxy : From Research to Mass Production*. Elsevier Science, 2012.
- [40] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, M. S. Hybertsen, and A. Y. Cho, “Quantum Cascade Lasers without Intersubband Population Inversion,” *Physical Review Letters*, vol. 76, no. 3, pp. 411 – 414, 1996.
- [41] C. Gmachl, A. Tredicucci, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, F. Capasso, and A. Y. Cho, “Bidirectional semiconductor laser,” *Science*, vol. 286, no. 5440, pp. 749–752, 1999.
- [42] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, “Vertical transition quantum cascade laser with Bragg confined excited state,” *Applied Physics Letters*, vol. 538, pp. 538–540, 1995.
- [43] D. Hofstetter, M. Beck, T. Aellen, and J. Faist, “High-temperature operation of distributed feedback quantum-cascade lasers at $5.3 \mu\text{m}$,” *Applied Physics Letters*, vol. 78, no. 4, pp. 396–398, 2001.
- [44] A. Tredicucci, F. Capasso, C. Gmachl, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, “High performance interminiband quantum cascade lasers with graded superlattices,” *Applied Physics Letters*, vol. 2101, no. 15, pp. 10–13, 1998.
- [45] J. Faist, D. Hofstetter, M. Beck, T. Aellen, M. Rochat, and S. Blaser, “Bound-to-continuum and two-phonon resonance quantum-cascade lasers for high duty cycle, high-temperature operation,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 38, no. 6, pp. 533–546, 2002.
- [46] J. Faist, *Quantum Cascade Lasers*. EBSCO ebook academic collection, OUP Oxford, 2013.
- [47] R. Paiella, *Intersubband transitions in quantum structures*. McGraw-Hill nanoscience and technology series, McGraw-Hill, 2006.
- [48] C. Gmachl, F. Capasso, A. Tredicucci, D. L. Sivco, R. Köhler, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, “Dependence of the device performance on the number of stages in quantum-cascade lasers,” *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 5, no. 3, pp. 808–816, 1999.
- [49] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, C. Sirtori, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho, “Quantum cascade laser : Temperature dependence of the performance characteristics and high T_0 operation,” *Applied Physics Letters*, vol. 65, no. 23, pp. 2901–2903, 1994.
- [50] R. Nelander and A. Wacker, “Temperature dependence of the gain profile for terahertz quantum cascade lasers,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 8, pp. 15–18, 2008.
- [51] D. Pierścińska, K. Pierściński, P. Gutowski, M. Badura, G. Sobczak, O. Serebrennikova, B. Ściana, M. Tłaczała, G. Sobczak, and M. Bugajski, “Heat Dissipation Schemes in AlInAs/InGaAs/InP Quantum Cascade Lasers Monitored by CCD Thermorefectance,” *Photonics*, vol. 4, no. 4, p. 47, 2017.

- [52] Q. K. Yang, B. Hinkov, F. Fuchs, W. Bronner, K. Köhler, J. Wagner, R. Maulini, and J. Faist, “Rate equations analysis of external-cavity quantum cascade lasers,” *Journal of Applied Physics*, vol. 107, no. 4, p. 043109, 2010.
- [53] G. Durry and G. Megie, “Atmospheric CH₄ and H₂O monitoring with near-infrared InGaAs laser diodes by the SDLA, a balloonborne spectrometer for tropospheric and stratospheric in situ measurements,” *Applied Optics*, vol. 38, no. 36, p. 7342, 1999.
- [54] B. Van Well, S. Murray, J. Hodgkinson, R. Pride, R. Strzoda, G. Gibson, and M. Padgett, “An open-path, hand-held laser system for the detection of methane gas,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, vol. 7, no. 6, pp. 420–424, 2005.
- [55] T. Le Barbu, B. Parvitte, V. Zéninari, I. Vinogradov, O. Korablev, and G. Durry, “Diode laser spectroscopy of H₂O and CO₂ in the 1.877- μ m region for the in situ monitoring of the Martian atmosphere,” *Applied Physics B*, vol. 82, no. 1, pp. 133–140, 2005.
- [56] J. Dang, H. Yu, F. Song, Y. Wang, Y. Sun, and C. Zheng, “An early fire gas sensor based on 2.33 μ m DFB laser,” *Infrared Physics and Technology*, vol. 92, pp. 84–89, 2018.
- [57] M. Germer, M. Wolff, and H. Harde, “Photoacoustic no detection for asthma diagnostics,” *Proceedings of SPIE*, vol. 7371, p. 73710Q, 2009.
- [58] E. T. Ooi, X. Q. Zhang, J. H. Chen, P. H. Soh, K. Ng, and J. H. Yeo, “Noninvasive blood glucose measurement using multiple laser diodes,” *Proceedings of SPIE*, vol. 6445, no. 65, p. 64450K, 2007.
- [59] S. Kim, P. Klimecky, J. B. Jeffries, F. L. Terry, and R. K. Hanson, “In situ measurements of HCl during plasma etching of poly-silicon using a diode laser absorption sensor,” *Measurement Science and Technology*, vol. 14, no. 9, pp. 1662–1670, 2003.
- [60] Y. Bidaux, A. Bismuto, C. Tardy, R. Terazzi, T. Gresch, S. Blaser, A. Muller, and J. Faist, “Extended and quasi-continuous tuning of quantum cascade lasers using superstructure gratings and integrated heaters,” *Applied Physics Letters*, vol. 107, no. 22, pp. 3–6, 2015.
- [61] P. Macko, D. Romanini, S. N. Mikhailenko, O. V. Naumenko, S. Kassi, A. Jenouvrier, V. G. Tyuterev, and A. Campargue, “High sensitivity CW-cavity ring down spectroscopy of water in the region of the 1.5 μ m atmospheric window,” *Journal of Molecular Spectroscopy*, vol. 227, no. 1, pp. 90–108, 2004.
- [62] B. G. Lee, M. A. Belkin, R. Audet, J. MacArthur, L. Diehl, C. Pflügl, F. Capasso, D. C. Oakley, D. Chapman, A. Napoleone, D. Bour, S. Corzine, G. Höfler, and J. Faist, “Widely tunable single-mode quantum cascade laser source for mid-infrared spectroscopy,” *Applied Physics Letters*, vol. 91, no. 23, pp. 89–92, 2007.
- [63] F. Capasso, “High-performance midinfrared quantum cascade lasers,” *Optical Engineering*, vol. 49, no. 11, p. 111102, 2010.

- [64] F. L. Yan, J. C. Zhang, Z. W. Jia, N. Zhuo, S. Q. Zhai, S. M. Liu, F. Q. Liu, and Z. G. Wang, “High-power phase-locked quantum cascade laser array emitting at λ - 4.6 μm ,” *AIP Advances*, vol. 6, no. 3, 2016.
- [65] M. Razeghi, “Efficient laser arrays for infrared spectroscopy,” *Spie Newsroom*, 2011.
- [66] N. Yulianto, B. Widiyatmoko, and P. S. Priambodo, “Temperature Effect towards DFB Laser Wavelength on Microwave Generation Based on Two Optical Wave Mixing,” *International Journal of Optoelectronic Engineering*, vol. 5, no. 2, pp. 21–27, 2015.
- [67] L. S. Rothman, I. E. Gordon, Y. Babikov, A. Barbe, D. C. Benner, P. F. Bernath, M. Birk, L. Bizzocchi, V. Boudon, L. R. Brown, A. Campargue, K. Chance, E. A. Cohen, L. H. Coudert, V. M. Devi, B. J. Drouin, A. Fayt, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, J. J. Harrison, J.-M. Hartmann, C. Hill, J. T. Hodges, D. Jacquemart, A. Jolly, J. Lamouroux, R. J. L. Roy, G. Li, D. A. Long, O. M. Lyulin, C. J. Mackie, S. T. Massie, S. Mikhailenko, H. S. P. Müller, O. V. Naumenko, A. V. Nikitin, J. Orphal, V. Perevalov, A. Perrin, E. R. Polovtseva, C. Richard, M. A. H. Smith, E. Starikova, K. Sung, S. Tashkun, J. Tennyson, G. C. Toon, V. Tyuterev, and G. Wagner, “The HITRAN2012 molecular spectroscopic database,” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 130, pp. 4–50, 2013.
- [68] R. Lewicki, M. Witinski, B. Li, and G. Wysocki, “Spectroscopic benzene detection using a broadband monolithic DFB-QCL array,” *Proceedings of SPIE*, vol. 9767, p. 97671T, 2016.
- [69] W. Zhou, N. Bandyopadhyay, D. Wu, R. McClintock, and M. Razeghi, “Monolithically, widely tunable quantum cascade lasers based on a heterogeneous active region design,” *Scientific Reports*, vol. 6, pp. 1–7, 2016.
- [70] M. K. Smit and C. Van Dam, “PHASAR-based WDM-devices : Principles, design and applications,” *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 2, no. 2, pp. 236–250, 1996.
- [71] J. Zhou, N. Q. Ngo, C. Ho, L. Petti, and P. Mormile, “Design of low-loss and low crosstalk arrayed waveguide grating through Fraunhofer diffraction analysis and beam propagation method,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, vol. 9, no. 7, pp. 709–715, 2007.
- [72] P. Barritault, M. Brun, P. Labeye, J.-M. Hartmann, F. Boulila, M. Carras, and S. Nicoletti, “Design, fabrication and characterization of an AWG at 4.5 μm ,” *Optics Express*, vol. 23, no. 20, p. 26168, 2015.
- [73] M. Brun, P. Labeye, G. Grand, J.-M. Hartmann, F. Boulila, M. Carras, and S. Nicoletti, “Low loss SiGe graded index waveguides for mid-IR applications,” *Optics Express*, vol. 22, no. 1, p. 508, 2014.
- [74] S. Pathak, M. Vanslebrouck, P. Dumon, D. Van Thourhout, and W. Bogaerts, “Optimized silicon awg with flattened spectral response using an MMI aperture,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. 31, no. 1, pp. 87–93, 2013.

- [75] T. Ye, Y. Fu, L. Qiao, and T. Chu, “Low-crosstalk Si arrayed waveguide grating with parabolic tapers,” *Optics Express*, vol. 22, no. 26, p. 31899, 2014.
- [76] L. Wang and T. R. Sharples, “Intrapulse quantum cascade laser spectroscopy : pressure induced line broadening and shifting in the ν_6 band of formaldehyde,” *Applied Physics B*, vol. 108, no. 2, pp. 427–435, 2012.
- [77] B. Grouiez, V. Zeninari, L. Joly, and B. Parvitte, “Pulsed quantum-cascade-laser spectroscopy with intermediate-size pulses : Application to NH₃ in the 10 μm region,” *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 100, no. 2, pp. 265–273, 2010.
- [78] J. A. Nwaboh, S. Persijn, K. Heinrich, M. Sowa, P. Hering, and O. Werhahn, “QCLAS and CRDS-Based CO Quantification as Aimed at in Breath Measurements,” *International Journal of Spectroscopy*, vol. 2012, pp. 1–10, 2012.
- [79] J. U. White, “Long Optical Paths of Large Aperture,” *Journal of the Optical Society of America*, vol. 32, no. 5, p. 285, 1942.
- [80] M. W. Fleming and A. Mooradian, “Spectral Characteristics of External-Cavity Controlled Semiconductor Lasers,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 17, no. 1, pp. 44–59, 1981.
- [81] A. S. Arnold, J. S. Wilson, and M. G. Boshier, “A simple extended-cavity diode laser,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 69, no. 3, pp. 1236–1239, 1998.
- [82] C. J. Hawthorn, K. P. Weber, and R. E. Scholten, “Littrow configuration tunable external cavity diode laser with fixed direction output beam,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 72, no. 12, pp. 4477–4479, 2001.
- [83] D. Mammez, R. Vallon, B. Parvitte, M.-H. Mammez, M. Carras, and V. Zéninari, “Development of an external cavity quantum cascade laser spectrometer at 7.5 μm for gas detection,” *Applied Physics B*, vol. 116, no. 4, pp. 951–958, 2014.
- [84] M. Pushkarsky, M. Weida, T. Day, D. Arnone, R. Pritchett, D. Caffey, and S. Crivello, “High-power tunable external cavity quantum cascade laser in the 5-11 micron regime,” *Lasers and Applications in Science and Engineering*, vol. 6871, pp. 68711X–68711X–8, 2008.
- [85] A. Mohan, A. Wittmann, A. Hugi, S. Blaser, M. Giovannini, and J. Faist, “Room-temperature continuous-wave operation of an external-cavity quantum cascade laser,” *Optics Letters*, vol. 32, no. 19, pp. 2792–4, 2007.
- [86] C. Petridis, I. D. Lindsay, D. J. Stothard, and M. Ebrahimzadeh, “Mode-hop-free tuning over 80 GHz of an extended cavity diode laser without antireflection coating,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 72, no. 10, pp. 3811–3815, 2001.
- [87] G. Wysocki, R. F. Curl, F. K. Tittel, R. Maulini, J. M. Bulliard, and J. Faist, “Widely tunable mode-hop free external cavity quantum cascade laser for high resolution spectroscopic applications,” *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 81, no. 6, pp. 769–777, 2005.
- [88] T. Tsai and G. Wysocki, “Active Wavelength Control of an External Cavity Quantum Cascade Laser,” *Applied physics. B, Lasers and optics*, vol. 109, no. 3, pp. 415–421, 2012.

- [89] K. Liu and M. G. Littman, “Novel geometry for single-mode scanning of tunable lasers,” *Optics Letters*, vol. 6, no. 3, p. 117, 1981.
- [90] H. Gong, Z. Liu, Y. Zhou, and W. Zhang, “Extending the mode-hop-free tuning range of an external-cavity diode laser by synchronous tuning with mode matching,” *Applied Optics*, vol. 53, no. 33, p. 7878, 2014.
- [91] D. Mammez, *Détection de molécules gazeuses d'intérêt atmosphérique par spectro-métrie infrarouge avec laser à cascade quantique largement accordable*. PhD thesis, 2013.
- [92] M. G. Littman and H. J. Metcalf, “Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander,” *Applied Optics*, vol. 17, no. 14, p. 2224, 1978.
- [93] S. Ferré, L. Jumpertz, M. Carras, R. Ferreira, and F. Grillot, “Beam shaping in high-power broad-area quantum cascade lasers using optical feedback,” *Scientific Reports*, vol. 7, pp. 1–9, 2017.
- [94] J. A. Nolde, J. Abell, M. Kim, C. S. Kim, I. Vurgaftman, and J. R. Meyer, “Broad-Area Quantum Cascade Lasers with Pulsed Output Power up to 53 W,” pp. 5–6, 2009.
- [95] S. S. Howard, S. Member, Z. Liu, C. F. Gmachl, and S. Member, “Thermal and Stark-Effect Roll-Over of Quantum-Cascade Lasers,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 44, no. 4, pp. 319–323, 2008.
- [96] S. Höfling, V. D. Jovanović, D. Indjin, J. P. Reithmaier, A. Forchel, Z. Ikonić, N. Vukmirović, P. Harrison, A. Mirčetić, and V. Milanović, “Dependence of saturation effects on electron confinement and injector doping in GaAs/Al_{0.45}Ga_{0.55}As quantum-cascade lasers,” *Applied Physics Letters*, vol. 88, no. 25, pp. 86–89, 2006.
- [97] J. R. Marciante and G. P. Agrawal, “Nonlinear mechanisms of filamentation in broad-area semiconductor lasers,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 32, no. 4, pp. 590–596, 1996.
- [98] O. Hess, S. W. Koch, and J. V. Moloney, “Filamentation and Beam Propagation in Broad-Area Semiconductor Lasers,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 31, no. 1, pp. 35–43, 1995.
- [99] D.F. Welch, D. Scifres, P. Cross, H. Kung, W. Streifer, R.D. Burnham, , and J. Yaeli, “High-power (575 mW) single-lobed emission from a phased-array laser,” *Electronics Letters*, vol. 21, no. 14, pp. 2–4, 1985.
- [100] E. Kapon, L. Lu, and Z. Rav-Noy, “Phased arrays of buried-ridge InP/InGaAsP diode lasers,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. L, no. 7, pp. 10–13, 1985.
- [101] G.-M. de Naurois, *Combinaison monolithique de lasers à cascade quantique par couplage évanescent*. PhD thesis, 2013.
- [102] A. Hardy and W. Streifer, “Coupled mode theory of parallel waveguides,” *Journal of Lightwave Technology*, vol. 3, no. 5, pp. 1135–1146, 1985.
- [103] L. Pakhomycheva and E. A. Sviridenkov, “Line structure of generation spectra of lasers with inhomogeneous broadening of the amplification line,” *JETP Letters*, vol. 12, no. 2, pp. 60–3, 1970.

- [104] D. Gilmore, P. Vujkovic Cvijin, and G. Atkinson, "Intracavity absorption spectroscopy with a titanium- Sapphire laser," *Optics Communications*, vol. 77, no. 5, pp. 385–389, 1990.
- [105] A. Campargue, M. Chenevier, and F. Stoeckel, "Intracavity-laser-absorption spectroscopy of the visible overtone transition of methane in a supersonically cooled jet," *Chemical Physics Letters*, vol. 183, no. 1-2, pp. 153–157, 1991.
- [106] V. M. Baev, J. Eschner, E. Paeth, R. Schüler, and P. E. Toschek, "Intra-cavity spectroscopy with diode lasers," *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry*, vol. 55, no. 6, pp. 463–477, 1992.
- [107] A. Kachanov, A. Charvat, and F. Stoeckel, "Intracavity laser spectroscopy with vibronic solid-state lasers I Spectro temporal transient behavior of a Ti :sapphire laser," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 11, no. 12, pp. 2412–21, 1994.
- [108] T. P. Belikova, E. A. Sviridenkov, and A. F. Suchkov, "Investigation of weak absorption and gain lines of some gases by the method of selective losses in a laser resonator," *Soviet Journal of Quantum Electronics*, vol. 4, no. 4, pp. 454–456, 1974.
- [109] G. Medhi, A. V. Muravjov, H. Saxena, C. J. Fredricksen, T. Brusentsova, R. E. Peale, and O. Edwards, "Intracavity laser absorption spectroscopy using mid-IR quantum cascade laser," *Proceedings of SPIE*, vol. 1, no. 1, pp. 80320E–80320E–7, 2011.
- [110] J. Wojtas, A. Gluszek, A. Hudzikowski, and F. Tittel, "Mid-Infrared Trace Gas Sensor Technology Based on Intracavity Quartz-Enhanced Photoacoustic Spectroscopy," *Sensors*, vol. 17, no. 3, p. 513, 2017.
- [111] J. Cheng, H. Lin, S. Hu, S. He, Q. Zhu, and A. Kachanov, "Infrared intracavity laser absorption spectroscopy with a continuous-scan Fourier-transform interferometer," *Applied Optics*, vol. 39, no. 13, pp. 2221–2229, 2000.
- [112] J. Sierks, V. M. Baev, and P. E. Toschek, "Enhancement of the sensitivity of a multimode dye laser to intracavity absorption," *Optics Communications*, vol. 96, no. 1-3, pp. 81–86, 1993.
- [113] A. Garnache, A. A. Kachanov, F. Stoeckel, and R. Planel, "High-sensitivity intracavity laser absorption spectroscopy with vertical-external-cavity surface-emitting semiconductor lasers.," *Optics letters*, vol. 24, no. 12, pp. 826–8, 1999.
- [114] V. M. Baev, T. Latz, and P. E. Toschek, "Laser intracavity absorption spectroscopy," *Applied Physics B*, vol. 202, pp. 171–202, 1999.
- [115] K. Strong, T. J. Johnson, and G. W. Harris, "Visible intracavity laser spectroscopy with a step-scan Fourier-transform interferometer.," *Applied optics*, vol. 36, no. 33, pp. 8533–40, 1997.
- [116] N. Picqué, G. Guelachvili, and A. A. Kachanov, "High-sensitivity time-resolved intracavity laser Fourier transform spectroscopy with vertical-cavity surface-emitting multiple-quantum-well lasers.," *Optics letters*, vol. 28, no. 5, pp. 313–5, 2003.

- [117] B. Scherer, W. Salzmann, J. Wöllestein, and M. Weidemüller, “Injection seeded single mode intra-cavity absorption spectroscopy,” *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 96, no. 2-3, pp. 281–286, 2009.
- [118] S. J. Harris, “Power dependence of continuous-wave intracavity spectroscopy,” *Opt Lett*, vol. 7, no. 10, pp. 497–499, 1982.
- [119] H. J. Kimble, “Calculated Enhancement for Intracavity Spectroscopy with a Single-Mode Laser,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 16, no. 4, pp. 455–461, 1980.
- [120] L. Sinitas, M. Makogon, and S. Luk’yanenko, “Intracavity laser spectroscopy using dispersive and dynamic resonators,” *SPIE Proceedings*, vol. 3342, pp. 22–72, 1998.
- [121] Y. Mitsuhashi, J. Shimada, and S. Mitsutsuka, “Voltage Change Across the Self-Coupled Semiconductor Laser,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 17, no. 7, pp. 1216–1225, 1981.
- [122] Y. Mitsuhashi, T. Morikawa, K. Sakurai, A. Seko, and J. Shimada, “Self-coupled optical pickup,” *Optics Communications*, vol. 17, no. 1, pp. 95–97, 1976.
- [123] D. Hofstetter, M. Beck, and J. Faist, “Quantum-cascade-laser structures as photo-detectors,” *Applied Physics Letters*, vol. 81, no. 15, pp. 2683–2685, 2002.
- [124] J. Von Staden, T. Gensty, W. Elsässer, G. Giuliani, C. Mann, W. Elsässer, G. Giuliani, and C. Mann, “Measurements of the alpha factor of a distributed-feedback quantum cascade laser by an optical feedback self-mixing technique.,” *Optics letters*, vol. 31, no. 17, pp. 2574–2576, 2006.
- [125] K. B. Rochford and A. H. Rose, “Simultaneous laser-diode emission and detection for fiber-optic sensor applications,” *Optics Letters*, vol. 20, no. 20, p. 2105, 1995.
- [126] M. C. Phillips, M. S. Taubman, B. E. Bernacki, B. D. Cannon, J. T. Schiffern, and T. L. Myers, “Design and performance of a sensor system for detection of multiple chemicals using an external cavity quantum cascade laser,” vol. 7608, p. 76080D, 2010.
- [127] T. Aellen, M. Beck, N. Hoyler, M. Giovannini, J. Faist, and E. Gini, “Doping in quantum cascade lasers. I. InAlAs-InGaAs/InP midinfrared devices,” *Journal of Applied Physics*, vol. 100, no. 4, 2006.
- [128] P. Laffaille, *Lasers à cascade quantique moyen infrarouge à base d’InAs*. PhD thesis, 2014.
- [129] M. C. Phillips and M. S. Taubman, “Intracavity sensing via compliance voltage in an external cavity quantum cascade laser,” *Optics Letters*, vol. 37, no. 13, p. 2664, 2012.
- [130] M. C. Phillips, M. S. Taubman, and J. Kriesel, “Use of external cavity quantum cascade laser compliance voltage in real-time trace gas sensing of multiple chemicals,” *Proceedings of SPIE*, vol. 9370, p. 93700Z, 2015.

Spectrométrie laser avec sources moyen infrarouge largement accordables et application à la détection de gaz

Résumé : La détection de gaz est un domaine d'intérêt pour de nombreuses applications telles que la surveillance de la pollution atmosphérique, la détection d'explosifs, l'analyse des émissions respiratoire de patients, etc... La spectrométrie par lasers accordables permet la réalisation d'instruments compacts et bénéficiant de performances élevées (sélectivité, résolution spectrale et résolution temporelle). Par ailleurs, l'utilisation de lasers à cascade quantique (QCL) permet d'accéder au moyen infrarouge (Mid-IR), où les raies d'absorption des molécules d'intérêt sont plus intenses, ce qui améliore la sensibilité des dispositifs. Les travaux de cette thèse ont porté sur le développement de dispositifs basés sur des QCL pour la détection de gaz. La première partie des travaux porte sur l'exploitation de nouvelles sources Mid-IR telles que les barrettes de QCL multiplexées et les barrettes de QCL cohérents. La seconde partie concerne le développement d'un dispositif intracavité sur lequel une technique de détection par mesure de la tension du laser a été validée. Cette technique possède l'avantage de ne pas nécessiter de détecteur optique et de fonctionner quelle que soit la longueur d'onde du laser.

Mots clés : Spectrométrie laser, QCL, Moyen infrarouge, Détection de gaz, Barrette de QCL, Intracavité

Laser spectrometry with widely tunable mid-infrared sources and application to gas detection

Abstract: The field of gas detection is interesting for many applications such as monitoring of air pollution, explosives detection, breath analysis, etc. Tunable laser spectrometry allows to create compact instruments with high performances (selectivity, spectral and temporal resolution). Mid-Infrared (Mid-IR) region can be accessed with the use of Quantum Cascade Laser (QCL). In this region, absorption lines of the molecules of interest are more intense, which improves the devices sensitivity. The work presented in this thesis is focused on the development of QCL-based gas detection devices. First part presents the use of new Mid-IR sources such as multiplexed QCL array and coherent QCL array. Second part is focused on the development of an intracavity setup and a detection technique based on the QCL voltage measurement. This technique does not need the use of an optical detector and can be performed whatever the laser wavelength.

Keywords : Laser spectrometry, QCL, Mid-infrared, Gas detection, QCL array, Intracavity

Discipline : Physique

Spécialité : Milieux dilués et Optique

UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE
Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique (GSMA),
UMR CNRS 7331, UFR Sciences Exactes et Naturelles
Moulin de la Housse, Bt. 6, BP 1039
51687 Reims Cedex 2 - FRANCE

