



Développement d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications

Antoine Berrou

► To cite this version:

Antoine Berrou. Développement d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications. Physics [physics]. Ecole Polytechnique X, 2008. English. NNT: . pastel-00004884

HAL Id: pastel-00004884

<https://pastel.hal.science/pastel-00004884>

Submitted on 17 Mar 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Thèse présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique

par

Antoine Berrou

**Développement d'un oscillateur paramétrique optique
pour la spectroscopie des gaz et ses applications**

soutenue le 17 décembre 2008 devant le jury composé de :

Weidong Chen	LPCA, Dunkerque	Rapporteur
Jean-Pierre Huignard	Thales, Palaiseau	Rapporteur
Benoît Boulanger	Institut NÉEL, Grenoble	Président du jury
Michel de Labachellerie	Institut FEMTO-ST, Besançon	Directeur de thèse
Michel Lefebvre	Onera, Palaiseau	Co-directeur de thèse
Françoise Simonet	CEA, Arpajon	Examineur
Cyril Drag	LAC, Orsay	Examineur
Emmanuel Rosencher	Onera, Palaiseau	Examineur

Remerciements

Ce n'est pas tant l'aide de nos amis qui nous aide que notre confiance dans cette aide.

Επίκουρος (ÉPICURE)

omme il est possible que ce mémoire tombe entre des mains non averties, je dois souligner qu'une thèse, bien que conduite et associée à une personne, ne se réalise jamais seul. Il est donc temps, comme annoncé en préambule, de remercier les personnes qui ont permis la réalisation et l'aboutissement de ce travail de thèse. Cela pourrait être la première fois pour certains et la dernière pour d'autres, il est donc indispensable de ma part de leur rendre hommage. D'un autre côté j'invite le lecteur initié qui serait venu chercher avidement la part d'originalité de cette thèse, à se diriger sans plus attendre vers le cœur de ce document.

Contrairement à ce que pourraient croire certains (peu nombreux, je suppose) ou vouloir d'autres (encore moins nombreux, j'espère), pendant les trois années consacrées à cette thèse, mon emploi du temps n'a pas été uniquement dévoué à cette étude. J'ai ainsi continué la pratique du basket-ball en compétition et je confirme ici tout l'avantage que l'on tire d'un bon équilibre entre activité sportive et activité de recherche, par nature essentiellement intellectuelle. Je vais donc me servir d'une métaphore utilisant ce sport pour exprimer mes remerciements. Sachant qu'en procédant de la sorte on limite inévitablement la portée réelle des contributions de chacun.

La pratique sportive se met en place autour d'un lieu de rassemblement. Pour cette thèse ce lieu a été l'établissement de l'Onera à Palaiseau. Comme chacun peut l'imaginer, la pratique d'un sport collectif de compétition, suppose d'être sélectionné dans une équipe reconnue. Je dois donc remercier les dirigeants (Pierre Touboul, Brigitte Attal-Tretout) pour avoir pris la décision de m'engager dans leur équipe (DMPH-DOP devenue par la suite DMPH-SLM). Faisons momentanément un bond dans le temps pour remercier les personnes sans qui la compétition ne peut avoir lieu, je parle évidemment des arbitres (Weidong Chen, Jean-Pierre Huignard), des assesseurs (Françoise Simonet, Cyril Drag) et du représentant de la ligue (Benoît Boulanger).

Pour que les sportifs puissent se consacrer uniquement à leur passion, il faut que le directeur sportif (Michel de Labachellerie) et l'administration du club (Florence Baumgartner) remplissent parfaitement leur mission. Une équipe ne saurait être performante sans, à sa tête, un entraîneur (Michel Lefebvre) ayant une parfaite connaissance de son sport et ayant le goût, ainsi que le don, pour transmettre ses connaissances. La cerise sur le gâteau étant d'avoir un entraîneur qui n'hésite pas à mouiller le maillot avec talent, lorsque son téléphone lui accorde du répit. Par ailleurs, les bonnes équipes se doivent de recourir aux conseils avisés d'un expert (Emmanuel Rosencher), afin de se remettre en cause pour se maintenir au plus haut niveau.

Il est généralement admis que les meilleurs formations ne sont pas uniquement une association des meilleures individualités, bien que des exceptions existent, telle la dream team de Barcelona'92. La modestie voudrait que l'on n'ose pas la comparaison, néanmoins... Dans notre équipe on peut trouver des talents confirmés qui font profiter le reste du groupe de leur expérience (Antoine Godard, Ajmal-Khan Mohamed), mais également des talents en pleine explosion qui n'hésitent pas à prodiguer de bons conseils (Myriam Raybaut, Jean-Michel Melkonian) et des talents en devenir qui nous empêchent de nous reposer sur nos lauriers (Jean-Baptiste Dherbecourt, Fabien Boitier, Jérémie Courtois, Babacar Diop, Bertrand Hardy).

Pour être préparé à la compétition, il faut que les entraînements soient de haut niveau, accompagnés de soigneurs toujours prêts à vous apporter leur soutien (Jean Bonnet, Jean-Pierre Faléni, Thomas Schimd).

Une équipe ne saurait exister qu'au travers des yeux de ses supporters, dont la liste exhaustive prendrait le reste de cette page. Ils me pardonneront donc pour avoir gardé leur nom anonyme.

Finalement, je ne pourrais conclure ces remerciements sans avoir une pensée pour ma famille qui a toujours eu confiance en moi.

Table des matières

Remerciements	3
Table des matières	2
Introduction	9
1 Principes fondamentaux de la conversion paramétrique	15
Objectifs	15
1.1 La genèse de l'optique non-linéaire	16
1.2 Rappels des équations de la conversion paramétrique	16
1.3 La notion de quasi-accord de phase	19
1.4 Application aux cristaux ferroélectriques	21
1.4.1 Le niobate de lithium	22
1.4.2 Conditions de fonctionnement	24
1.4.3 Le tantalate de lithium	27
1.5 L'oscillation paramétrique	29
1.5.1 Fonctionnement	29
1.5.2 Le DROPO à cavités séparées	34
Synthèse	37
2 Synthèse sur les performances obtenues avec le DROPO à cavités imbriquées en début d'étude	39
Objectifs	39
2.1 Description du DROPO à cavités imbriquées	40
2.1.1 La pompe	40
2.1.2 La structure à cavités imbriquées	41
2.1.2.1 Contenu spectral	42
2.1.2.2 Réalisation mécanique	43
2.1.3 Le retour de pompe	44

2.2	Performances	45
2.2.1	Le balayage en fréquence	45
2.2.2	Les spectres d'absorption	46
	Synthèse	48
3	Développement du DROPO à cavités imbriquées	49
	Objectifs	49
3.1	Prise en main du montage	50
3.1.1	Modifications apportées au montage initial	50
3.1.1.1	Le laser de pompe	50
3.1.1.2	Optimisation du retour de pompe	51
3.1.1.3	Contrôle de la longueur d'onde	52
3.1.1.4	Cavité OPO	53
3.1.2	Caractéristiques du DROPO	55
3.1.2.1	Caractérisation spatiale et temporelle du rayonnement complé- mentaire	55
3.1.2.2	Énergie complémentaire	56
3.1.2.3	Évolution de la fréquence signal du DROPO en boucle ouverte .	57
3.1.2.4	Allure de la bande de gain paramétrique du DROPO	59
3.2	Analyse du comportement du DROPO en régime continu	60
3.2.1	Les modèles utilisés	60
3.2.2	Application à notre configuration expérimentale	62
3.3	Analyse des conditions de balayage en fréquence	66
3.3.1	Détermination des déplacements des miroirs	66
3.3.2	Efficacité de l'OPO avec et sans retour de pompe	68
3.3.2.1	Sans retour de pompe	68
3.3.2.2	Avec retour de pompe	69
3.4	Balayage continu de la fréquence de l'OPO	72
3.4.1	Balayage à partir d'un générateur de rampe	72
3.4.2	Balayage contrôlé par micro-ordinateur	74
3.4.2.1	Méthode mixte : générateur de rampe et micro-ordinateur . . .	74
3.4.2.2	Balayage contrôlé entièrement par micro-ordinateur	77
3.5	La stabilisation en fréquence	83
3.5.1	Procédure suivie	83
3.5.2	Avec un mesureur de longueur d'onde dans l'infrarouge	84
3.5.3	Avec un mesureur de longueur d'onde dans le visible	86
	Synthèse	92

4	Application à la spectroscopie de gaz	93
	Objectifs	93
4.1	Mesures d'absorption	94
4.1.1	Niveaux d'énergie et transitions	94
4.1.2	Description spectroscopique des espèces analysées	95
4.1.3	Profil de raie	102
4.1.4	Résultats expérimentaux	107
4.1.4.1	Expériences préliminaires	107
4.1.4.2	Développement du montage	112
4.1.4.3	Spectroscopie d'absorption de quelques molécules	114
4.1.4.4	Analyse de la forme des raies	120
4.1.4.5	Application de la stabilisation de la fréquence de l'OPO	123
4.2	Détection photoacoustique	125
4.2.1	Rappel sur la détection photoacoustique	125
4.2.2	Résultats expérimentaux	126
	Synthèse	133
5	Miniaturisation de l'OPO à cavités imbriquées	135
	Objectifs	135
5.1	Pompage par un micro-laser	136
5.1.1	Caractérisation du micro-laser	137
5.1.1.1	Forme des impulsions	137
5.1.1.2	Caractérisation spectrale	138
5.1.1.3	Qualité spatiale du faisceau	140
5.1.1.4	Puissance de sortie et polarisation	140
5.1.2	Résultats du pompage par micro-laser	141
5.1.2.1	Réponse temporelle	143
5.1.2.2	Réponse fréquentielle	143
5.1.2.3	Évolution de la fréquence	144
5.1.2.4	Balayage en fréquence	145
5.1.2.5	Énergie du faisceau complémentaire	145
5.2	La nouvelle architecture	147
5.2.1	Principe du DROPO avec retour de pompe achromatique	147
5.2.2	Contrôle de la température du cristal	148
5.2.3	Caractéristiques optiques	149
5.2.4	Le montage expérimental	152
5.2.5	Recherche de l'oscillation paramétrique	153

5.2.6	Les résultats expérimentaux	155
5.2.6.1	Comportement spatial du faisceau complémentaire	155
5.2.6.2	Comportement spectral du faisceau signal	155
5.2.6.3	Le balayage en fréquence	157
5.3	Dispositifs simples de contrôle de la longueur d'onde	160
5.3.1	Application du VBG à l'évaluation de la longueur d'onde	160
5.3.1.1	Rappels théoriques	161
5.3.1.2	Résultats expérimentaux	162
5.3.2	Évaluation de la longueur d'onde complémentaire à l'aide d'un Fabry-Perot en germanium	166
	Synthèse	168
Conclusion		169
A Modélisation du DROPO en régime continu		171
A.1	Simulation du seuil avec l'hypothèse de la pompe non dépeuplée	171
A.2	Simulation de l'efficacité avec l'hypothèse de la variation spatiale des ondes ré- sonnantes pratiquement constante	175
B Description du programme de contrôle des PZTs		181
C Modélisation du DROPO en régime impulsionnel		189
C.1	Monomode	189
C.2	Passage au cas multimode	193
Bibliographie		199

Introduction

Pour le savant, croire la science achevée
est toujours une illusion aussi complète
que le serait pour l'historien de croire
l'histoire terminée.

Louis Victor DE BROGLIE [Physique et
microphysique]

 e début de siècle a été marqué par une prise de conscience générale de l'impact de l'activité humaine sur l'environnement. Pour illustrer l'importance de cette évolution des mentalités, il suffit de se reporter au “*baromètre Google*”, qui nous donne pratiquement 65 millions de réponses en un dixième seconde lorsque l'on tape le mot pollution. Le réchauffement climatique, qui en est une des manifestations, se retrouve fréquemment en première page de nombreuses revues à très large diffusion. Rappelons aussi que le prix Nobel de la paix 2007 a été attribué à l'association “Intergovernmental Panel on Climate Change”. Dans ce contexte, les normes d'émission de polluants, que ce soit celles de l'industrie ou des transports, sont régulièrement revues à la baisse. Dès lors, il apparaît nécessaire de se munir de moyens technologiques fiables pour mesurer précisément les émissions de diverses espèces chimiques qui peuvent se trouver à l'état de traces. Parmi les nombreuses techniques de mesure envisageables, celles utilisant l'optique présentent un certain nombre d'atouts qui devraient permettre de progresser dans la problématique environnementale. Tout d'abord, les mesures optiques peuvent s'effectuer de manière non invasive, de façon locale ou à distance. Ensuite, les concentrations limites détectables sont très faibles. Ainsi, des concentrations de quelques ppt¹[Fri98] ont été mesurées grâce à des techniques optiques.

La plupart des techniques optiques utilisent le fait que les molécules polyatomiques (hormis les diatomiques homonucléaires) absorbent le rayonnement infrarouge. L'absorption change l'état de rotation et/ou de vibration de la molécule. Comme le spectre d'absorption dépend des propriétés physiques internes de la molécule, chaque espèce possède sa propre *signature spec-*

1. partie par trillion (1 part dans 10¹²)

trale. On peut ainsi observer sur la figure 1 les fortes disparités entre les spectres de différentes molécules.

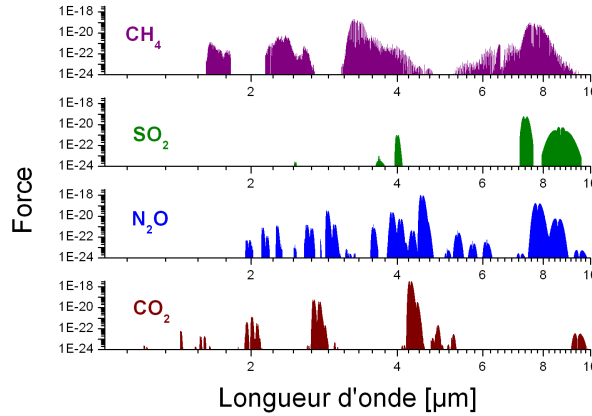


FIGURE 1: Force de raie de quelques polluants entre 1 et 10 μm [HIT]

Dès lors, on remarque l'importance de disposer de sources optiques aux fréquences de transitions des différentes espèces (ces transitions étant principalement situées dans l'infrarouge moyen²). Toutefois, dans ce domaine spectral, le nombre de sources est limité, comme l'illustre la figure 2 où sont répertoriées les sources les plus communément employées. Lorsque l'on regarde ce graphique, on constate qu'il existe deux grandes classes de sources cohérentes. Une classe qui correspond aux sources directement laser³ et une seconde classe, qui est basée sur la conversion de fréquence de sources laser émettant dans le proche infrarouge⁴. Outre le domaine spectral, le mode de fonctionnement de la source est aussi un élément important à prendre en compte, suivant le type d'application envisagé. Ainsi, si l'on souhaite effectuer des études de spectroscopie à haute résolution spectrale, il est indispensable de se diriger vers des sources ayant des largeurs d'émission très fines; et par conséquent de favoriser le fonctionnement en régime continu ou quasi-continu. En revanche, la réalisation d'expériences d'optique non linéaire qui nécessitent d'atteindre une puissance crête élevée nous conduira à choisir des sources impulsives fonctionnant en mode déclenché. On peut trouver un résumé des principales caractéristiques des différentes sources, émettant dans le moyen infrarouge, dans le tableau 1.

En ce qui concerne l'Onera, au département de mesures physiques, le besoin s'est clairement exprimé pour des sources infrarouge de grande finesse spectrale, largement accordables et fonctionnant en régime nanoseconde, afin de pouvoir entreprendre des mesures locales par optique non linéaire (mélange à quatre ondes) dans les milieux réactifs (combustion, soufflerie

2. Entre 2,5 μm et 10 μm

3. Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation

4. Entre 800 nm et 2,5 μm

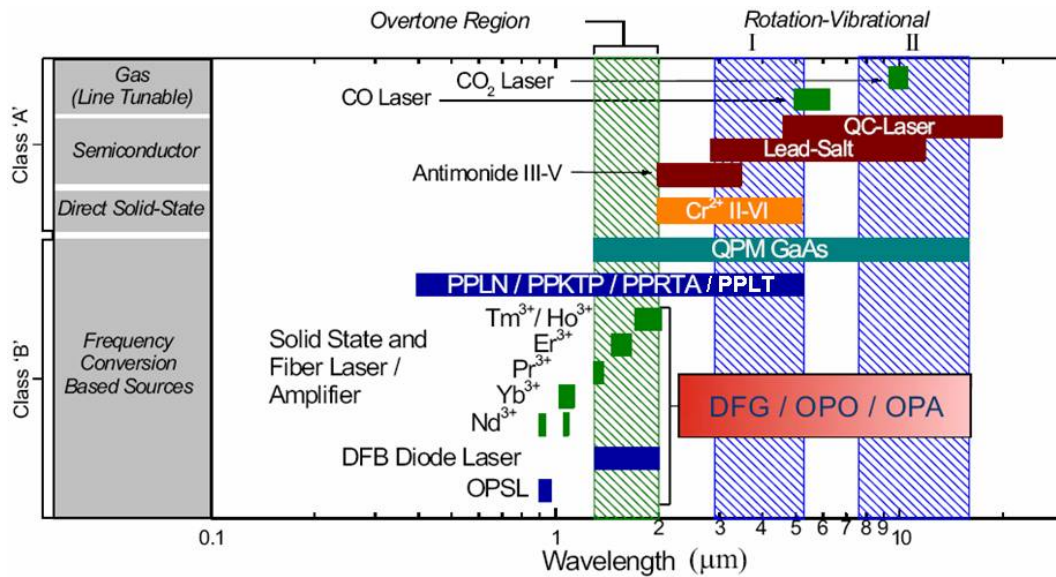


FIGURE 2: Sources laser et leurs domaines spectraux typiques. On retrouve également les 2 fenêtres de transparence de l'atmosphère : I (2,9 – 5,3 microns) and II (7,6–16 microns) ; OPSL : optically pumped semiconductor laser [Tit03].

Type de Laser	Domaine spectral (μm)	Accordabilité (grossière/fine)	Remarque
Semi-conducteur à sel de plomb	3 - 30	100 / 1-2 cm ⁻¹	Refroidissement cryogénique
Semi-conducteur à antimoine	2 - 3 3 - 5	1 - 2 cm ⁻¹	Refroidissement thermoélectrique cryogénique
Cascade quantique	4,3 - 24	35 / 3 cm ⁻¹	Refroidissement thermoélectrique cryogénique
Laser solide	2 - 5	600 nm / 1 cm ⁻¹	Faible bruit technique requis
Différence de fréquence (basé laser télécom)	2 - 5	15 cm ⁻¹ / 2 cm ⁻¹	Environnement télécom
OPO (basé PPLN)	1,3 - 5,2	1900 cm ⁻¹ / 0,05 cm ⁻¹	Faible bruit technique requis

TABLEAU 1: Résumé des caractéristiques des sources dans le moyen infrarouge en régime continu [Tit03]

à haute enthalpie) ou le suivi à distance par lidar⁵ des émanations gazeuses dans l'atmosphère. Par ailleurs, la source doit être compacte et robuste, afin de pouvoir être mise en œuvre sur site industriel ou satisfaire aux contraintes de mesures en vol. Enfin, les deux derniers points auxquels est soumise la source sont sa finesse spectrale et son accordabilité. La finesse spectrale est indispensable pour assurer une sélectivité de la mesure, tandis que l'accordabilité doit permettre d'atteindre les raies d'absorption de nombreuses espèces (CO_2 , N_2O , CH_4 , SO_2 ,...), sans avoir à modifier en profondeur la source. Dans la liste des sources infrarouge, on élimine les semi-conducteurs à sel de plomb et à antimoine du fait de leur refroidissement cryogénique, et de leur fonctionnement continu. Les laser à cascades quantiques ne répondent pas à nos attentes pour plusieurs raisons, premièrement ils requièrent un refroidissement cryogénique dans la plupart des cas, de plus ils ne fonctionnent pas en régime déclenché qui permettrait d'atteindre une puissance crête élevée, enfin leur accordabilité reste limitée. Les laser solides ont, pour leur part, une accordabilité fine trop faible et leur largeur de raie est élevée en régime nanoseconde. Concernant les sources utilisant la différence de fréquences, elles requièrent deux sources dans l'infrarouge proche, ce qui ne remplit pas les conditions de compacité et robustesse. De plus, l'accord fin nécessite, avec cette technique, de disposer de sources primaires accordables. Pour ce qui est des OPO en régime nanoseconde, les difficultés sont liées à la largeur de raie et à l'accordabilité fine qui requièrent un dispositif externe (injection, cavité sélective...). On se rend compte qu'aucune source ne répond de manière satisfaisante au cahier des charges. C'est pour cette raison que l'Onera/DMPH s'est engagé dans le développement d'une source pouvant répondre aux spécifications souhaitées. Ainsi, à la fin de la thèse d'Aude Desormeaux [Des05], effectuée à l'Onera/DMPH, une source OPO répondant en grande partie à ces exigences était disponible. Cependant des difficultés ont été rencontrées dans la maîtrise du balayage en fréquence et de la mise en œuvre de la source pour l'analyse de gaz.

Cette étude consiste donc à développer, à partir des travaux déjà accomplis à l'Onera/DMPH, une source optique infrarouge de haute sensibilité pour la détection multi-espèces. Afin d'appréhender les choix qui ont été faits à l'Onera, lors des travaux précédents, les principes fondamentaux de la conversion paramétrique sont rappelés dans le **chapitre 1**. Au **chapitre 2**, nous dressons un état des lieux des travaux réalisés avant notre travail de thèse. Une fois ce bilan réalisé, la démarche a consisté, au **chapitre 3**, à simuler, le comportement de la source OPO afin de déterminer les causes des limitations répertoriées dans le chapitre 2. Pour cela, nous avons développé un programme permettant de rendre compte de l'évolution du seuil de l'OPO, ceci en fonction des imperfections des miroirs diélectriques à la longueur d'onde de la pompe. Dans un second temps, nous avons procédé à l'automatisation du mon-

5. LIDAR est l'acronyme de l'expression anglosaxonne « Light Detection and Ranging » qui désigne une technologie de télédétection ou de mesure optique basée sur l'analyse des propriétés d'une lumière laser rétrodiffusée vers son émetteur.

tage afin d'assurer des balayages en fréquence rapides et répétitifs. Dans ce but, nous avons conçu un programme, sous Labview, permettant de contrôler la position des miroirs de notre OPO et ainsi de réaliser des balayages en fréquence sur plusieurs cm^{-1} sans saut de mode. Une évolution de ce programme nous a également permis de stabiliser la fréquence signal à $\pm 2,8$ MHz pendant plus de 10 minutes. Nous avons ensuite utilisé notre source pour réaliser des mesures d'absorption directe ainsi que des enregistrements de spectres photoacoustiques, présentés dans le **chapitre 4**. Pour cela nous avons développé les bancs de mesures associés aux deux techniques. Nous avons ainsi obtenu des spectres de plusieurs espèces gazeuses à différentes pressions, et nous avons comparé ces spectres avec les spectres théoriques calculés à partir de la base de données Hitran [HIT]. Le **chapitre 5** a pour objet de valider de nouvelles voies visant à faire évoluer le montage de laboratoire vers un dispositif plus compact et robuste, adapté aux applications en milieu industriel. Nous avons démontré qu'il était possible d'obtenir l'oscillation paramétrique à partir d'un micro-laser. D'autre part, une nouvelle architecture de cavité OPO doublement résonnant a pu être testée. Bien que les résultats actuels soient encore préliminaires, des progrès sensibles ont pu être obtenus par rapport à la version de laboratoire. Enfin nous explorons quelques pistes, en mesure d'assurer un contrôle de la fréquence émise par l'OPO, mettant en œuvre des composants simples et robustes.

Chapitre 1

Principes fondamentaux de la conversion paramétrique

Le commencement de toutes les sciences, c'est l'étonnement de ce que les choses sont ce qu'elles sont.

αριστοτέλης (ARISTOTE)
[Métaphysique]

Objectifs

Se premier chapitre va nous permettre de mettre en valeur les principes fondamentaux de la conversion paramétrique, qui vont être employés lors de cette étude. Ainsi nous mettrons en évidence les relations fondamentales qui existent entre les trois ondes qui interagissent dans un cristal non linéaire. Après avoir analysé l'importance de la phase relative entre ces trois ondes, nous décrirons les différents choix d'accord de phase et de cristaux non linéaires qui s'offrent à nous. Enfin, nous étudierons le cas particulier de l'oscillateur paramétrique optique doublement résonnant.

1.1 La genèse de l'optique non-linéaire

Ce n'est que quelques mois après la première réalisation du laser à Rubis, en 1960 par Theodore Maiman [Mai60], que fut conduite la première expérience non linéaire de doublage de fréquence par Franken [Fra61]. L'efficacité de conversion se révéla très faible $\approx 10^{-10} \%$ ¹ à cause du désaccord de phase entre l'onde fondamentale et l'onde convertie. L'étape suivante a été franchie en 1962 lorsque Giordmaine [Gio62] et Maker [Mak62] ont simultanément et indépendamment proposé une méthode pour réaliser l'accord de phase entre les deux ondes. Cette technique est basée sur la différence d'indice de réfraction entre les ondes de polarisations différentes. Finalement à la lecture des articles de Armstrong et Bloembergen de 1962 [Arm62, Blo62], on s'aperçoit que, moins de deux ans après le premier laser, les équations et les grands principes de la conversion paramétrique, tels que les techniques d'accord de phase, étaient déjà en place.

1.2 Rappels des équations de la conversion paramétrique

Bien que, comme nous venons de le voir, les équations du mélange à trois ondes sont connues depuis plus de quarante ans, il est important de rappeler les équations fondamentales qui décrivent ces processus, car elles nous seront utiles pour interpréter les résultats présentés dans les chapitres suivants. Considérons un faisceau incident se propageant suivant l'axe z et traversant un cristal non linéaire non-magnétique orienté suivant l'axe z . L'évolution du champ électrique (E) est obtenue à partir des équations de Maxwell :

$$\text{rot rot } E = -\mu_0 \frac{\partial^2 D}{\partial t^2} \quad (1.1)$$

L'induction électrique (D) est reliée au champ électrique par la relation $D = \varepsilon_0 E + P$. Notons que la polarisation (P) peut être séparée en deux termes, un terme linéaire et un terme non linéaire :

1. Si faible que lorsque l'on regarde l'article original, la trace du faisceau doublé y est indécélable, puisque supprimée par l'éditeur.

$$\begin{aligned}
 P_l &= \varepsilon_0 \chi^{(1)} * E \\
 P_{nl} &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} * (E, E) + \varepsilon_0 \chi^{(3)} * (E, E, E) + \dots \\
 \chi^{(j)} * (E, \dots, E) &= \int_{-\infty}^t dt_1 \dots \int_{-\infty}^t dt_j \chi^{(j)}(t - t_1, \dots, t - t_j) : E(t_1) \dots E(t_j)
 \end{aligned} \tag{1.2}$$

ε_0 et μ_0 sont, respectivement, la permittivité et la perméabilité du vide. La fréquence de l'onde électromagnétique est considérée suffisamment loin de toutes raies d'absorption du milieu, de sorte que les éléments du tenseur de susceptibilité $\chi^{(j)}$ sont réels. Notons que l'indice de réfraction n est donné par la relation : $n^2(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$. En vue de décrire le processus de conversion paramétrique, considérons maintenant que le champ optique incident est composé de 3 ondes planes colinéaires, polarisées rectilignement, quasi-monochromatiques, progressives et d'enveloppes lentement variables. Les trois ondes dénommées pompe, signal et complémentaire sont repérées par les indices $j = p, s$ et c respectivement. Le champ électrique s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 E &= E_p + E_s + E_c \\
 \text{avec } E_j(z, t) &= \frac{1}{2} A_j(z, t) e^{i(k_j z - \omega_j t)} + cc, \quad j \in \{p, s, c\} \\
 \text{et } \omega_p &= \omega_s + \omega_c
 \end{aligned} \tag{1.3}$$

la notation cc représente le complexe conjugué, ω_j la pulsation ou fréquence angulaire de l'onde j . Par souci de simplicité, les pulsations ou fréquences angulaires seront dénommées fréquences dans la suite du manuscrit. De plus, le module du vecteur d'onde scalaire k_j est défini par :

$$k_j = n(\omega_j) \frac{\omega_j}{c}, \quad j \in \{p, s, c\} \tag{1.4}$$

c étant la vitesse de la lumière dans le vide. On peut, à partir de ces notations, relier l'intensité (en W/m^2) au champ :

$$I_j = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_j |E_j|^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_j |A_j|^2, \quad j \in \{p, s, c\} \tag{1.5}$$

Afin d'introduire les effets de dispersion du cristal nonlinéaire, nous sommes amenés à considérer le développement limité du vecteur d'onde autour de la porteuse, ce qui nous donne :

$$k_j(\omega) \simeq k_j + k'_j(\omega - \omega_j) + \frac{1}{2}k''_j(\omega - \omega_j)^2 + \dots \quad (1.6)$$

On considère maintenant uniquement la polarisation non linéaire à son premier ordre de développement de l'équation 1.2². Par des considérations de symétrie, on peut montrer que les coefficients du tenseur non linéaire $\chi^{(2)}$ sont non nuls, lorsque le milieu est non centro-symétrique. Sous toutes ces hypothèses, l'équation 1.1 permet d'aboutir au système d'équations de propagation du champ dans le milieu non linéaire :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_p}{\partial z} + k'_p \frac{\partial A_p}{\partial t} + i \frac{k''_p}{2} \frac{\partial^2 A_p}{\partial t^2} + \dots &= \frac{i\omega_p}{2cn_p} \chi^{(2)} A_s A_c e^{-i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_c}{\partial z} + k'_c \frac{\partial A_c}{\partial t} + i \frac{k''_c}{2} \frac{\partial^2 A_c}{\partial t^2} + \dots &= \frac{i\omega_c}{2cn_c} \chi^{(2)} A_p A_s^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_s}{\partial z} + k'_s \frac{\partial A_s}{\partial t} + i \frac{k''_s}{2} \frac{\partial^2 A_s}{\partial t^2} + \dots &= \frac{i\omega_s}{2cn_s} \chi^{(2)} A_p A_c^* e^{i\Delta k z} \end{aligned} \quad (1.7)$$

Notons que le terme $\Delta k = k(\omega_p) - k(\omega_s) - k(\omega_c)$ est le désaccord de phase. Par ailleurs on remplace généralement le terme k'_j par la vitesse de groupe grâce à la relation $v_{g,j} = \frac{1}{k'_j}$. Les termes k''_j , quant à eux, décrivent la dispersion de vitesse de groupe. Ils ne sont à considérer que dans le cas où la largeur de bande de gain est supérieure à plusieurs centaines de cm^{-1} ³. Comme c'est rarement le cas pour les OPO nanoseconde, hormis à la dégénérescence⁴ pour l'accord de phase de type I, on les négligera par la suite [Smi99].

Un point important à souligner à propos du système 1.7 est qu'il comporte des termes croisés $A_p A_s^*$ et $A_p A_c^*$ dont l'importance croît au fur et à mesure que les champs A_s et A_c se construisent. Ainsi, le processus paramétrique est un processus à gain qui peut démarrer à partir du bruit. En plaçant le cristal dans une cavité et lorsque la pompe est suffisamment intense, on peut obtenir l'oscillation paramétrique [Bro79]. Notons que le doublage de fréquence n'est, quant à lui, pas un processus à gain. En règle générale, c'est lorsque l'on produit des photons moins énergétiques que le processus non linéaire peut comporter des termes de gain. Introduisons les amplitudes et les phases de chaque onde :

$$A_j(z, t) = \sqrt{\frac{\omega_j}{n_j}} u_j(z, t) e^{i\varphi_j(z, t)} \quad j \in \{s, c, p\} \quad (1.8)$$

On montre que si $u_p(z) \simeq cste$ (pompe non dépeuplée), le gain paramétrique pour l'onde signal

2. Cette hypothèse est vérifiée pour les cristaux que nous avons employés lors de cette étude (PPLN, PPLT), puisqu'ils possèdent un coefficient non linéaire $\chi^{(2)}$ élevé.

3. On exprime parfois les fréquences $\tilde{\nu} = \frac{\omega}{2\pi c}$ en cm^{-1}

4. On parle de dégénérescence lorsque $\omega_s = \omega_c$

vaut [She84][Mel07a] :

$$t_{\text{OPA}}(\Delta k) = \left(\cosh(\gamma L) - i \frac{\Delta k}{2\gamma} \sinh(\gamma L) \right) e^{i\Delta k L/2} \quad (1.9)$$

$$\gamma L = \sqrt{(q L)^2 - (\Delta k L/2)^2} \quad (1.10)$$

$$q = \kappa u_p, \quad (1.11)$$

$$\kappa = \frac{\chi^{(2)}}{2c} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_c \omega_p}{n_s n_c n_p}} \quad (1.12)$$

où L est la longueur du cristal, γ est le gain paramétrique réduit et q est le coefficient de gain dit “petit signal”, car la pompe n’est pas dépeuplée (OPA faisant référence à optical parametric amplifier). Il n’y aura amplification que si γL est réel, i.e. que si $q > \Delta k/2$. Le gain en intensité à la traversée du cristal s’écrit :

$$T_{\text{OPA}}(\Delta k) = t_{\text{OPA}} \cdot t_{\text{OPA}}^* = 1 + \frac{q^2}{\gamma^2} \sinh^2(\gamma L) \quad (1.13)$$

1.3 La notion de quasi-accord de phase

Dans le système d’équations 1.7, qui décrit la propagation des trois ondes électromagnétiques dans le cristal, on a supposé la conservation de l’énergie : $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c$ ⁵. Ainsi, les relations de Manley-Rowe [Man56] nous apprennent que, dans le cristal non linéaire, un photon de pompe se scinde en deux pour donner un photon signal et un photon complémentaire. De plus, on constate que ce processus est gouverné par la phase relative qui existe entre les trois ondes $\Delta k z$. Ceci a deux conséquences, la première est que le processus est réversible, c’est à dire qu’un photon signal et un photon complémentaire peuvent fusionner pour donner un photon pompe. La deuxième est que le transfert d’énergie pompe vers (signal et complémentaire) ne peut être efficace que si l’accord de phase est vérifié, c’est à dire si $\hbar k_p = \hbar k_s + \hbar k_c$ [Blo80]. Cette relation est associée à la conservation du mouvement dans une description particulière de l’interaction paramétrique. Obtenir cette égalité n’est, a priori, pas possible dans un milieu isotrope. Prenons le cas simple de la dégénérescence $\omega_s = \omega_c = \omega$ d’où $\omega_p = 2\omega$. Il faut donc obtenir la relation $n(2\omega) 2\omega = 2n(\omega)\omega$. Or la variation d’indice dans un milieu à dispersion normale nous donne $n(2\omega) > n(\omega)$. Il existe toutefois différentes techniques pour obtenir l’accord de phase, il s’agit de :

- l’accord de phase par biréfringence,

5. par définition on a $\omega_{\text{pompe}} > \omega_{\text{signal}} \geq \omega_{\text{complémentaire}}$

- le quasi-accord de phase par domaines alternés,
- le quasi-accord de phase par biréfringence de Fresnel,
- l'accord de phase en dispersion anormale,
- l'accord de phase modal,
- le quasi-accord de phase par radiation Čerenkov.

Les deux premières techniques sont les plus répandues. Lors de cette étude, nous avons uniquement utilisé des cristaux réalisant le quasi-accord de phase. C'est pourquoi nous nous limiterons à rappeler les principaux mécanismes qui interviennent dans le quasi-accord de phase.

La technique du quasi-accord de phase consiste à inverser, à chaque longueur de cohérence $l_c = \frac{\pi}{\Delta k}$, le signe de la polarisation non linéaire créée dans le cristal. L'article de référence sur le quasi-accord de phase date de 1992 [Fej92], il a été écrit après la mise au point des premiers cristaux périodiquement retournés par application d'un fort champ électrique. Pour du quasi-accord de phase de premier ordre, la période de retournement (Λ) est égale à deux fois la longueur de cohérence du cristal. La condition de quasi-accord de phase s'exprime alors ainsi (1.14) :

$$0 = k_p - k_s - k_c - \frac{2\pi}{\Lambda}$$

soit $\Lambda = \frac{2\pi c}{n_p \omega_p - n_s \omega_s - n_c \omega_c}$ (1.14)

Il est possible de représenter graphiquement cette condition de quasi-accord de phase en utilisant les différents vecteurs d'ondes et en introduisant le vecteur dû au réseau $k_\Lambda = \frac{2\pi}{\Lambda}$ (voir figure 1.1).

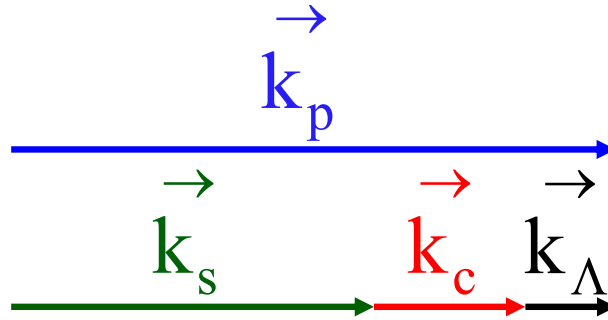


FIGURE 1.1: Quasi-accord de phase colinéaire. Représentation vectorielle.

La figure 1.2 permet de comparer l'évolution de l'efficacité de conversion du doublage de fréquence en fonction de l'épaisseur de cristal traversée pour différents accords de phase. Pour calculer les différentes courbes de la figure 1.2, on a utilisé le même coefficient non linéaire. Or en général le coefficient non linéaire du quasi-accord de phase est plus élevé que celui de

l'accord de phase, avec pour conséquence une meilleur efficacité.

La figure 1.2 montre qu'en première approximation, l'intensité en quasi-accord de phase croît de façon quadratique comme c'est le cas en accord de phase exact. Mais avec un coefficient non linéaire effectif différent. Ce coefficient non linéaire effectif est donné par :

$$d_{eff} = \frac{2}{\pi} d_{ij} \quad (1.15)$$

Le coefficient non linéaire d_{ij} est défini par $d_{ij} = \frac{\chi_{ij}^{(2)}}{2}$.

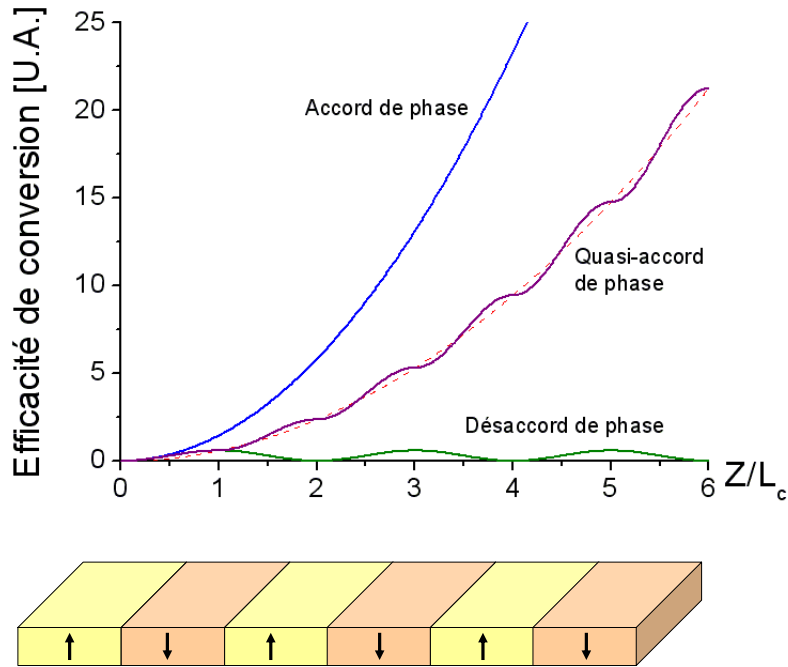


FIGURE 1.2: Cristal périodiquement retourné et évolution de l'efficacité de conversion en fonction de l'épaisseur de cristal traversée pour différents accord de phase.

1.4 Application aux cristaux ferroélectriques

Comme nous avons pu le dire en introduction générale, le domaine spectral qui nous intéresse est compris entre 3 et 5 μm . Parmi les quelques cristaux non linéaires couvrant ce domaine, on trouve les ferroélectriques, niobate et tantalate de lithium, dont l'orientation ferroélectrique peut être inversée pour obtenir le quasi-accord de phase.

1.4.1 Le niobate de lithium

Le cristal de niobate de lithium (LiNbO_3) est parmi les premiers à avoir été utilisé en optique non linéaire. Ainsi, le premier OPO a été réalisé avec ce cristal [Gio65]. Maintenant que la technique d'inversion de domaine ferroélectrique est bien maîtrisée, il est l'un des cristaux les plus employés en quasi-accord de phase. Le niobate de lithium est un cristal de symétrie rhomboédrique (classe $3m$, uniaxial négatif) dont la synthèse s'obtient par la méthode de Czochralski. La structure cristallographique du niobate de lithium est visible sur la figure 1.3.

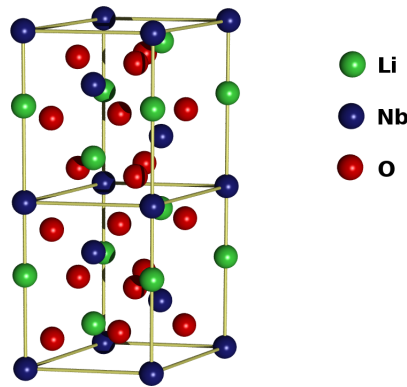


FIGURE 1.3: Structure cristallographique du niobate de lithium.

La croissance des cristaux se fait à une température supérieure à sa température de Curie (comprise entre 1130 et 1200°C) pour laquelle le cristal est dans sa phase para-électrique. Dans cette phase, les ions lithium sont situés dans les plans oxygène et les ions niobium sont localisés entre les plans oxygène. La polarisation électrique du cristal provient du fait que, lorsque le cristal refroidit, les ions migrent des plans médians définis par les atomes d'oxygène vers un état stable. Pour obtenir un cristal périodiquement retourné, le PPLN⁶ dans ce cas, il est nécessaire d'obtenir deux états stables de polarisation opposée. En appliquant un champ électrique suivant la direction de polarisation du cristal, il est possible de faire migrer les ions d'une des positions vers l'autre comme on peut le voir sur la figure 1.4. Le champ électrique minimal à appliquer est compris entre 4 kV/mm (valeur de champ coercitif d'un cristal stœchiométrique) et 20 kV/mm (pour un cristal congruent). Les procédures expérimentales permettant d'obtenir l'inversion de domaine sont décrites en détail dans la thèse de G. Miller [Mil98]. Sur la figure 1.5, on peut observer la marque laissée par les électrodes sur le cristal de PPLN.

L'avantage du retournement périodique est de pouvoir accéder au coefficient non linéaire le plus élevé du cristal. Le calcul des coefficients non linéaires est généralement effectué dans le

6. Periodically Poled Lithium Niobate

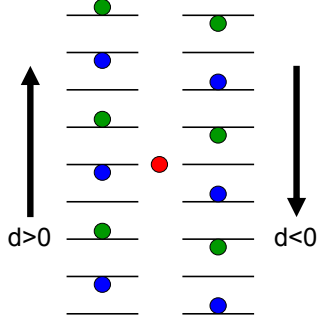


FIGURE 1.4: Les deux états de polarisation du LiNbO_3 .

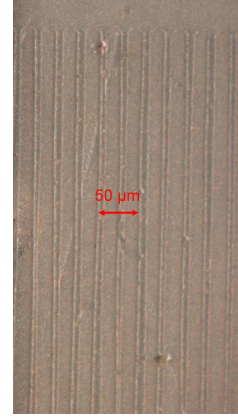


FIGURE 1.5: Photo à l'aide d'un microscope d'un cristal de PPLN.

cas de la génération de second harmonique où $\omega_s = \omega_c = \omega$. Dans ce cas de figure, on a :

$$P_i^{2\omega} = \varepsilon_0 d_{ijk} E_j^\omega E_k^\omega \quad (1.16)$$

Dans le cas particulier de l'accord de phase de type I, la polarisation peut se mettre sous la forme suivante [Kle62] :

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \varepsilon_0 \cdot \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{bmatrix} \quad (1.17)$$

où l'on a introduit la notation de Kleinman, dans laquelle les indices contractés d_{ij} sont obtenus à partir des correspondances suivantes :

$$\begin{aligned} xx &= 1 & yy &= 2 & zz &= 3 \\ yz &= zy = 4 & xz &= zx = 5 & xy &= yx = 6 \end{aligned} \quad (1.18)$$

Dans le cas du niobate de lithium, la matrice des coefficients non linéaires s'écrit :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.19)$$

On distingue deux types de niobate de lithium, en fonction des concentrations molaires relatives de niobate et de lithium. Le congruent a un rapport molaire $\frac{[Li]}{[Nb]}$ de 0,946, tandis que le stœchiométrique se caractérise, comme son nom l'indique par un rapport molaire de 1. Ces deux types de cristaux auront des indices de réfraction ainsi que des coefficients non-linéaires différents. De plus, pour limiter les effets photoréfractifs qui peuvent endommager le cristal, il peut être intéressant de doper le cristal avec quelques pourcents d'oxyde de magnésium. Il est également possible de limiter les éventuels dommages photoréfractifs en chauffant le cristal au delà de 50°C. Le tableau 1.1 répertorie les coefficients non linéaires du niobate de lithium à la longueur d'onde pompe de notre étude (1064 nm), pour un processus de doublage de fréquence.

Coefficient non linéaire	Valeur [pm/V]		
	Congruent	stœchiométrique	Dopé 5% MgO
$ d_{31} $	4,6	$4,64 \pm 0,66$	4,4
d_{31}	$-4,35 \pm 0,44$		
$ d_{33} $	25,2	$41,7 \pm 7,8$	25
d_{33}	$-27,2 \pm 2,7$		
$ d_{22} $		$2,46 \pm 0,23$	
d_{22}	$2,10 \pm 0,21$		

TABLEAU 1.1: Coefficients non linéaires du Niobate de Lithium à 1064 nm pour du doublage de fréquence [Nik05].

1.4.2 Conditions de fonctionnement

Comme on peut s'en apercevoir à partir du tableau 1.1, le coefficient le plus élevé est d_{33} , c'est donc préférentiellement suivant cet axe que sont orientés les cristaux de PPLN. Les cristaux commerciaux sont généralement constitués de plusieurs réseaux ayant des pas différents, afin de couvrir différentes bandes de longueur d'onde. Pour accorder en longueur d'onde les cristaux

de PPLN il faut procéder en plusieurs étapes. La première étape consiste à choisir le pas du réseau. La deuxième étape est de fixer la température du cristal. Il est donc indispensable de connaître au préalable la variation de l'indice de réfraction en fonction de la température et de la longueur d'onde. Les équations de Sellmeier⁷ du niobate de lithium peuvent être trouvées pour différents types de cristaux dans les références [Jun97, Den06, Zel97], nous rappelons dans l'équation 1.20 celle de Jundt. Les milieux uniaxes ont deux indices de réfraction principaux que l'on appelle indices ordinaire n_o et extraordinaire n_e . Ces deux indices sont, respectivement, les indices de réfraction pour une onde se propageant suivant l'axe optique et perpendiculairement à l'axe optique.

$$n_e^2 = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2$$

$$f = (T - 24,5^\circ C)(T + 570,82) \quad (1.20)$$

La longueur d'onde λ est exprimée en μm et le coefficient de température T est en degrés Celsius. Les différents coefficients a et b sont réportés dans le tableau 1.2.

Paramètre	Valeur
a_1	5,35583
a_2	0,100473
a_3	0,20692
a_4	100
a_5	11,34927
a_6	$1,5334 \cdot 10^{-2}$
b_1	$4,629 \cdot 10^{-7}$
b_2	$3,862 \cdot 10^{-8}$
b_3	$-0,89 \cdot 10^{-8}$
b_4	$2,657 \cdot 10^{-5}$

TABLEAU 1.2: Coefficients de Sellmeier du niobate de lithium [Jun97]

La figure 1.6 présente l'évolution de l'indice du niobate de lithium en fonction de la longueur d'onde, à une température de 100°C , pour la gamme de longueurs d'onde couvertes lors de cette étude.

Les équations 1.14 et 1.20 nous permettent de tracer les courbes de la figure 1.7 et de la figure 1.8. La figure 1.7 représente l'évolution des longueurs d'onde, vérifiant la relation de quasi-accord de phase, en fonction du pas du réseau du cristal, lorsqu'il est pompé à $1,064 \mu\text{m}$

7. W. Sellmeier, Annalen der Physik und Chemie 143, 271 (1871)

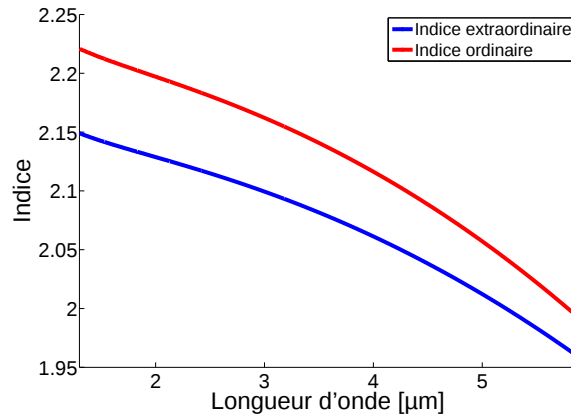


FIGURE 1.6: Évolution de l'indice du niobate de lithium en fonction de la longueur d'onde à 100°C

et pour une température de 50°C. La figure 1.8 représente l'évolution de la longueur d'onde émise par le cristal en fonction de sa température, pour différents pas de réseaux, lorsqu'il est pompé à 1,064 μm .

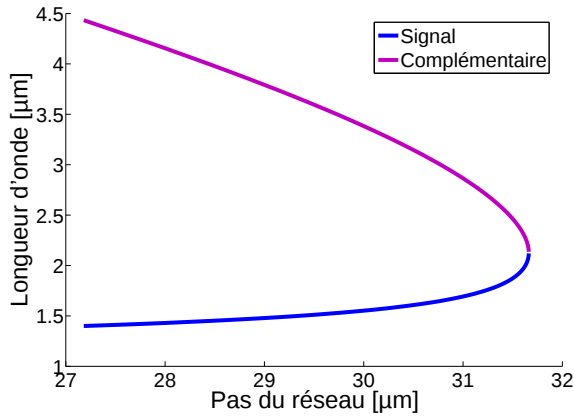


FIGURE 1.7: Longueur d'onde, vérifiant la relation de quasi-accord de phase, en fonction du pas du réseau (pompe à 1,064 μm et $T=50^\circ\text{C}$)

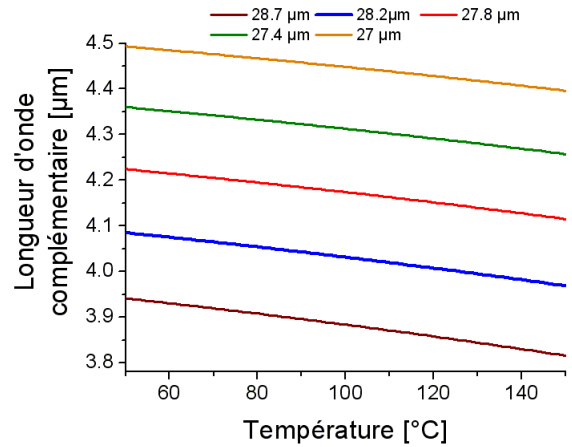


FIGURE 1.8: Évolution de λ_c en fonction de la température pour différents pas de réseaux

Comme on peut le voir sur la figure 1.9 l'absorption dans le PPLN devient non négligeable à partir de 4 μm . Ceci explique que le PPLN, bien que la conversion paramétrique ait pu être démontrée jusqu'à 6,5 μm [Sat99], soit rarement utilisé au delà 4,5 μm .

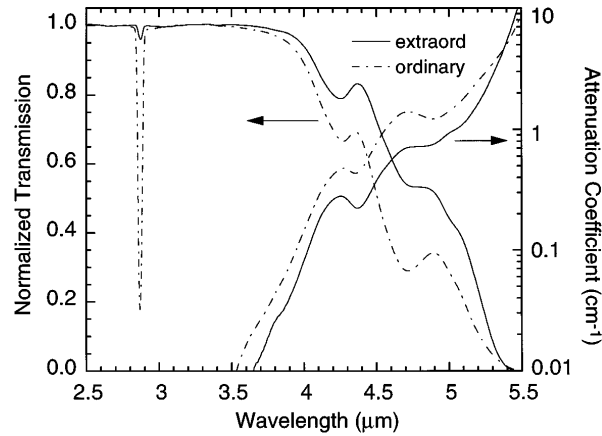


FIGURE 1.9: Absorption dans le niobate de lithium [Mye96]

1.4.3 Le tantalate de lithium

Le tantalate de lithium LiTaO_3 a des propriétés électro-optiques très proches du niobate de lithium. Ainsi, il est possible de produire des cristaux périodiquement retournés [Hat00] avec le tantalate de lithium. Notons que le champ coercitif pour un cristal de tantalate de lithium stœchiométrique est de 1.7 kV/mm (21 kV/mm pour un cristal congruent). Cela permet de réaliser des cristaux périodiquement retournés dont l'épaisseur peut atteindre 2 mm.

Coefficient non linéaire	Valeur [pm/V]		
	1,313 μm (SGH)	1,064 μm (SGH)	0,852 μm (SGH)
d_{33}	10,7	13,8	15,1
d_{31}		0,85	

TABLEAU 1.3: Coefficients non linéaires du Tantalate de Lithium pour du doublage de fréquence [Sho97]

Ses coefficients non linéaires sont répertoriés dans le tableau 1.3, on remarque que son coefficient d_{33} est inférieur à celui du niobate de lithium. Ce matériau est plus récent et possède une non linéarité plus faible que le niobate de lithium, ce qui explique que son utilisation soit encore limitée. Par contre, il est plus résistant aux dommages photoréfractifs, son seuil de dommage est plus élevé et son absorption dans le moyen infrarouge semble inférieure à celle du niobate de lithium [Sam07, Mel07b]. On peut observer sur la figure 1.10 une photo prise à l'aide d'un microscope d'un cristal de PPLT.



FIGURE 1.10: Photo à l'aide d'un microscope d'un cristal de PPLT

Les cristaux de PPLT⁸ qui nous ont été fournis possèdent cinq réseaux, et les gammes d'accord que l'on peut atteindre avec ces cristaux sont représentées sur la figure 1.11. Ces longueurs d'onde sont très proches de celles que l'on obtient avec les cristaux de PPLN (figure 1.8), de sorte que les mêmes miroirs peuvent être utilisés pour les deux types de cristaux. Pour obtenir les courbes de la figure 1.11, nous avons utilisé l'équation 1.21. Les coefficients de Sellmeier du tantalate de lithium stœchiométrique sont reportés dans le tableau 1.4, d'après l'article [Kol06].

$$n_e^2 = A + \frac{B + b(T)}{\lambda^2 - (C + c(T))^2} + \frac{E}{\lambda^2 - F^2} + \frac{G}{\lambda^2 - H^2} + D\lambda^2 \quad (1.21)$$

Paramètre	Valeur
A	4,528254
B	0,012962
C	0,242783
D	-0,02288
E	0,068131
F	0,177370
G	1,307470
H	7,031878
$b(T)$	$3,483933 \cdot 10^{-8}(T + 273,15)^2$
$c(T)$	$1,607839 \cdot 10^{-8}(T + 273,15)^2$

TABLEAU 1.4: Coefficients de Sellmeier du tantalate de lithium stœchiométrique [Kol06]

8. Periodically Poled Lithium Tantalate

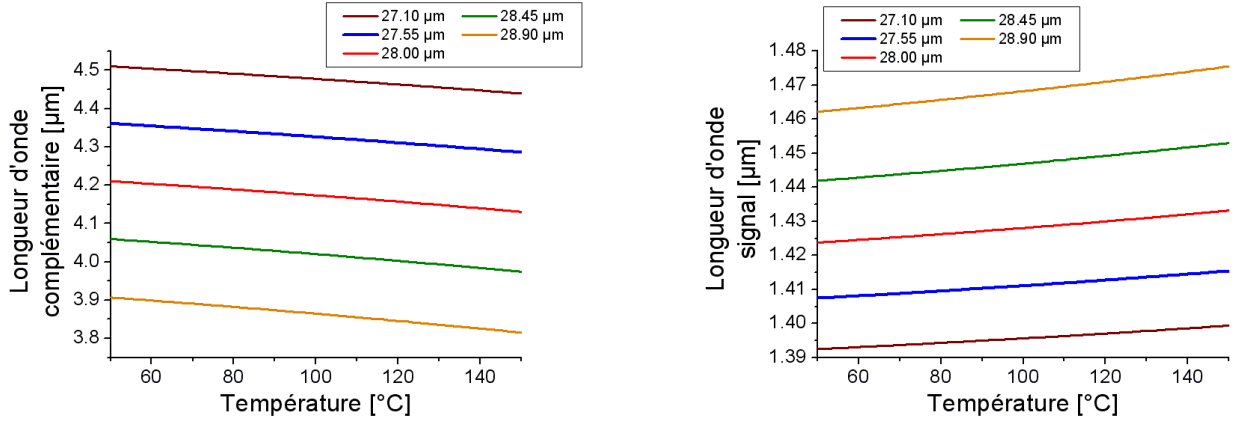


FIGURE 1.11: Évolution de la longueur d'onde, vérifiant la relation de quasi-accord de phase, en fonction de la température pour différents pas de réseau dans un cristal de PPLT stoechiométrique

1.5 L'oscillation paramétrique

1.5.1 Fonctionnement

Lorsque nous avons rappelé les concepts fondamentaux de la conversion paramétrique, nous avons souligné que ce processus se caractérisait par l'existence d'un terme de gain paramétrique. Dans ces conditions, nous sommes amenés à considérer les conditions de réalisation d'un oscillateur paramétrique optique. Le principe est simple, il consiste à mettre le cristal non linéaire dans une cavité pour faire résonner une, deux ou plus rarement les trois ondes couplées dans la conversion paramétrique. Contrairement au mécanisme d'amplification stimulée mis en jeu dans un laser, l'amplification paramétrique est instantanée puisque le photon de pompe se scinde en un photon signal et un photon complémentaire, sans passer par un stockage d'énergie dans les différents niveaux du milieu amplificateur. Pour qu'il y ait oscillation, il faut que les pertes (absorption, coefficients de réflexion des miroirs inférieurs à 100%, reconversion) subies par l'onde résonnante lors de son parcours dans la cavité, soient inférieures au gain paramétrique. Ainsi, on introduit la notion de seuil d'oscillation. Pour atteindre le seuil d'oscillation, il faut donc soit diminuer les pertes, soit augmenter la puissance de la pompe. Dans le premier cas, on utilise des miroirs très réfléchissants ($\sim 99,9\%$) et des cristaux ayant une très faible absorption aux différentes longueurs d'onde. Dans le second cas, un moyen simple pour obtenir des puissances élevées est d'utiliser une source de pompe impulsionnelle, compte tenu du fait que c'est le champ électrique instantané qui intervient dans l'amplification paramétrique. Dans ce cas, ce n'est plus la puissance moyenne qui détermine le seuil d'oscillation mais la puissance crête (ou l'énergie par impulsion). Pour des applications d'analyse de gaz, le principal problème

qui se pose lorsque l'on travaille en régime impulsif est la largeur spectrale d'émission de l'OPO.

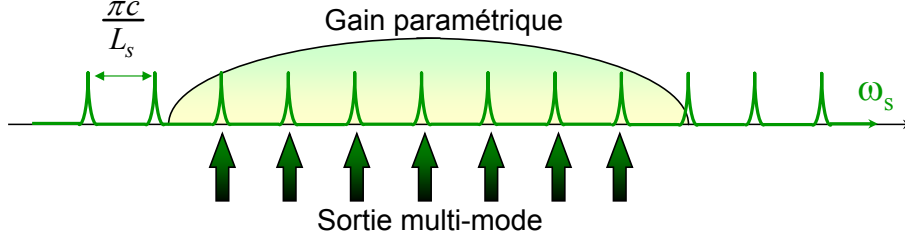


FIGURE 1.12: Comportement spectral d'un SROPO en régime nanoseconde

En régime nanoseconde, le comportement spectral d'un OPO simplement résonnant⁹, pour lequel seule une des ondes signal ou complémentaire oscille dans la cavité, est illustré par le diagramme de la figure 1.12, où L_s est la longueur optique de la cavité qui est résonnante à l'onde signal. On constate que l'émission est, en général, multimode. À partir de l'équation 1.22 [Hau95] qui donne la largeur de la bande de gain après un seul passage à travers le cristal, on peut obtenir la bande de gain paramétrique d'un cristal de PPLN.

$$\Delta\nu_s^{GSP} = \left| \frac{\frac{c}{L}}{(n_s - n_c) - \lambda_s \left(\frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} \right)_0 + \lambda_c \left(\frac{\partial n_c}{\partial \lambda_c} \right)_0} \right| \quad (1.22)$$

L est la longueur du cristal, λ_j est les longueurs d'onde dans le vide. On obtient ainsi les courbes de la figure 1.13. On peut y observer la largeur de la bande de gain paramétrique en fonction de la longueur d'onde, pour un cristal de PPLN de 5 mm, à une température de 100 °C, avec une pompe à 1,064 μm et ceci pour un accord de phase de type 0 ou de type II, associée à différents arrangements de polarisation, qui sont rappelés dans le tableau 1.5.

Type	Polarisation
0	$P_s = P_c = P_p$
I	$P_s = P_c \neq P_p$
II	$P_s \neq P_c$

TABLEAU 1.5: Classification des accords de phase.

9. Noté aussi SROPO pour Singly Resonant Optical Parametric Oscillator

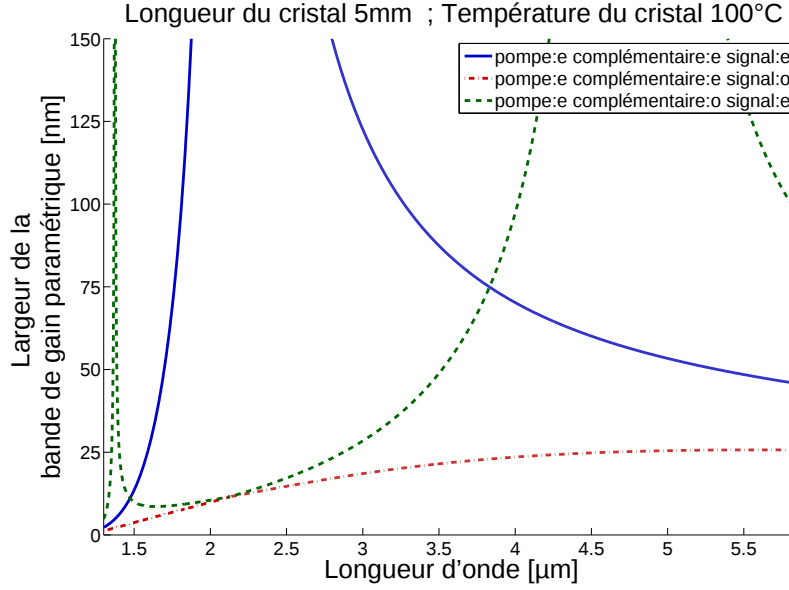


FIGURE 1.13: Largeur de la bande de gain paramétrique pour un PPLN de 5 mm pompé à 1,064 μm et pour différents types d'accord de phase

On constate que la configuration de polarisation qui permet de réduire au minimum la largeur de la bande de gain paramétrique est celle pour laquelle les polarisations pompe et complémentaire sont extraordinaire et ordinaire pour le signal (courbe rouge). Dans cette configuration de polarisation, dite de type II, la largeur de la bande de gain est à peu près constante sur la gamme de longueur d'onde de fonctionnement du PPLN. Le problème que pose cette configuration est que le coefficient non linéaire effectif est de 2,9 pm/V, alors qu'il est de 16 pm/V pour la configuration de polarisation où toutes les ondes sont extraordinaires (courbe bleu) [SNL]. Pour cette dernière configuration, dite de type 0, on se rend compte qu'il est préférable de travailler loin de la dégénérescence. Pour évaluer la largeur de la bande de gain paramétrique de l'OPO, il faut prendre en compte le nombre de passages à travers le cristal. Ainsi, pour obtenir la largeur de bande de gain paramétrique après p passages à travers le cristal, il faut multiplier la largeur, obtenue après un seul passage, par un facteur $\frac{1}{\sqrt{p}}$ [Hau95]. La largeur de cette bande se trouve alors fortement réduite. Appliquons cette expression à notre OPO, pour lequel le nombre de passages est de $\frac{c}{L_s} T_s = \frac{3 \cdot 10^8}{12 \cdot 10^{-3}} 7 \cdot 10^{-9} = 175$, où T_s est la durée de l'impulsion signal. Sur la figure 1.13, on mesure une largeur de 60 nm, ce qui nous donne finalement une largeur de la bande de gain de l'OPO de $\frac{60}{\sqrt{175}} = 4,5$ nm. Comme on pourra le constater dans le chapitre 3, la largeur de la bande de gain de notre OPO est proche de 5 nm, l'estimation de cette largeur est donc correcte.

Quoiqu'il en soit, que ce soit en accord de phase de type 0 ou 2, la largeur de la bande de gain paramétrique reste toujours très supérieure à l'intervalle spectral libre de la cavité et plusieurs

modes longitudinaux sont émis par un OPO nanoseconde. Pour obtenir un fonctionnement monomode, deux techniques inspirées des lasers ont été développées. La première consiste à insérer dans la cavité un élément sélectif (tel qu'un prisme, un réseau ou un étalon Fabry-Perot), qui va introduire des pertes supplémentaires de manière différente pour tous les modes, et ainsi sélectionner un seul mode. Le problème engendré par l'ajout de cet élément est qu'il accroît également les pertes à la longueur d'onde d'émission et par conséquent augmente le seuil d'oscillation. La deuxième solution va également favoriser un mode, mais cette fois en injectant l'OPO avec un faisceau laser monomode pour forcer l'oscillation d'un mode longitudinal. Cette technique a pour principal défaut de limiter l'accordabilité en longueur d'onde de l'OPO à celle de la source d'injection.

Pour s'affranchir de ces limitations, l'Onera a choisi de développer des OPO doublement résonnants. Notons que le premier DROPO¹⁰ a été réalisé par Giordmaine et Miller en 1965 à partir d'un cristal de niobate de lithium [Gio65]. Avec un DROPO, on parvient à réduire le seuil d'oscillation, mais avec une contrepartie importante en ce qui concerne la maîtrise du spectre d'émission. Rappelons la loi de conservation de l'énergie $\omega_p = \omega_s + \omega_c$, mettons la sous une forme plus symétrique faisant apparaître la dégénérescence ($\frac{\omega_p}{2}$) :

$$\frac{\omega_p}{2} - \omega_s = \omega_c - \frac{\omega_p}{2} \quad (1.23)$$

Dans un DROPO comme les deux ondes sont résonnantes, elles satisfont aux relations suivantes :

$$\omega_s = \frac{\pi c}{L_s} m = \Delta\omega_s m \quad m \in \mathbb{N} \quad (1.24)$$

$$\omega_c = \frac{\pi c}{L_c} n = \Delta\omega_c n \quad n \in \mathbb{N} \quad (1.25)$$

où L_s et L_c sont les longueurs optiques (en m) des cavités signal et complémentaire, et $\Delta\omega_s$ et $\Delta\omega_c$ sont les écarts entre deux modes longitudinaux consécutifs des cavités signal et complémentaire (en $rad.s^{-1}$). Les fréquences accessibles par un DROPO sont donc les solutions des équations 1.23, 1.24 et 1.25. Il est possible de déterminer les solutions de manière graphique, en traçant les fréquences de résonance des deux cavités sur deux axes de sens opposés, qui coïncident à la dégénérescence, afin de respecter la loi de conservation d'énergie (figure 1.14). Dans ce diagramme, chaque couple de modes signal et complémentaire alignés suivant la verticale pourront osciller à condition de se trouver dans la bande de gain. Comme on peut le constater sur la figure 1.14, les modes ont une certaine largeur spectrale, qui dépend de la finesse des cavités. Ainsi, il est possible d'obtenir une superposition partielle pour un couple de mode signal et complémentaire. Ce couple pourra donc également osciller.

10. Doubly Resonant Optical Parametric Oscillator

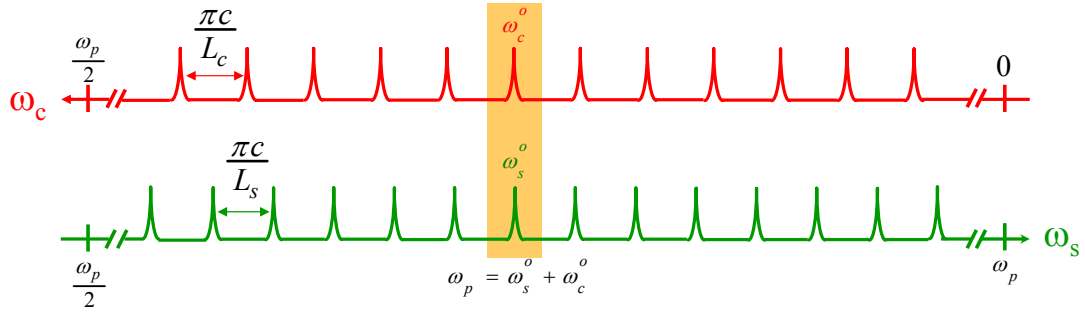


FIGURE 1.14: Diagramme de Giordmaine et Miller

Pour un DROPO constitué d'une cavité à deux miroirs, la différence entre les longueurs optiques des cavités signal et complémentaire est uniquement due à la dispersion optique dans le cristal. Les longueurs optiques L_s et L_c sont donc très voisines. Ceci a pour conséquence une émission en cluster¹¹ de modes autour d'une superposition exacte pour un couple de modes. Les couples de modes voisins ont, en effet, une superposition partielle suffisante pour pouvoir également osciller ; cette situation est illustrée sur la figure 1.15. L'écart spectral entre deux clusters est donné par la relation suivante :

$$\Delta\omega_{sc} = \left| \frac{\Delta\omega_c \Delta\omega_s}{\Delta\omega_c - \Delta\omega_s} \right| \quad (1.26)$$

Si $\Delta\omega_{sc}$ est inférieur à la largeur de la bande de gain, l'OPO pourra osciller sur plusieurs clusters de modes. Dans ces conditions, l'émission sera très instable car sensible aux très faibles variations de température et aux instabilités mécaniques. Par contre, si $\Delta\omega_{sc}$ est supérieur à la largeur de la bande de gain, l'OPO aura des zones spectrales où aucun mode ne pourra osciller. C'est pour ces raisons que la réalisation d'un DROPO avec une seule cavité à deux miroirs n'est pas envisageable si on veut maîtriser son contenu spectral.

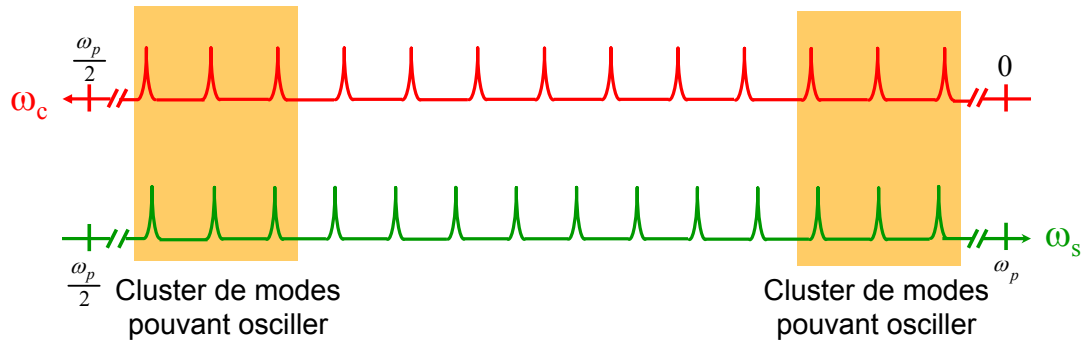


FIGURE 1.15: Émission en cluster de modes

11. groupe

1.5.2 Le DROPO à cavités séparées

Pour s'affranchir des limitations d'un DROPO à simple cavité, il faut pouvoir ajuster les longueurs des cavités signal et complémentaire de manière indépendante. Cela nous a conduits à envisager une architecture à double cavité (Fig. 1.16).

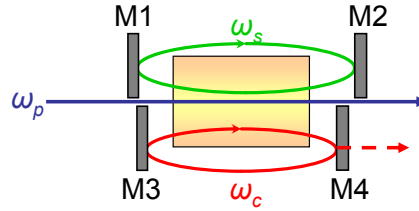


FIGURE 1.16: DROPO à cavités séparées

Avec un DROPO à deux cavités, il est possible de fixer l'écart entre les deux intervalles spectraux libres pour obtenir une seule coïncidence de modes, suffisante pour osciller, à l'intérieur de la bande de gain paramétrique (figure 1.17). C'est le principe de l'effet Vernier. Dans ces conditions, le spectre d'émission de l'OPO peut être limité par transformée de Fourier, soit de l'ordre de 80 MHz pour des impulsions de 10 ns.

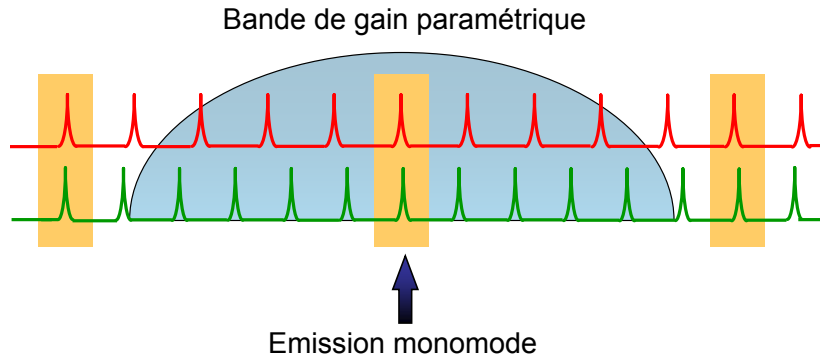


FIGURE 1.17: Émission monomode pour un DROPO à deux cavités

Pour déterminer les longueurs des deux cavités conduisant à un fonctionnement monomode longitudinal, une modélisation du recouvrement de modes a été développée durant les thèses de Bruno Scherrer [Sch98] et Isabelle Ribet [Rib01]. Dans ce modèle, on considère une coïncidence exacte au milieu de la bande de gain paramétrique dont la forme est supposée rectangulaire. En fonction de la différence relative entre les deux cavités, on calcule l'intégrale de recouvrement entre toutes les paires de modes signal et complémentaire (Fig. 1.18). La largeur des modes est définie par la finesse des cavités.

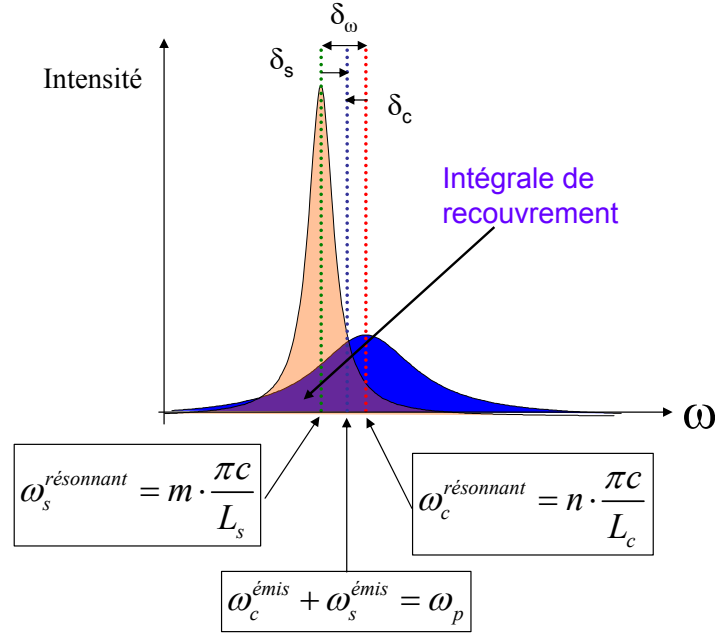


FIGURE 1.18: Superposition partielle entre les modes signal et complémentaire

Ainsi, pour que l'OPO fonctionne de manière monomode, il faut que, dans la bande de gain, aucune paire de modes autre que la coïncidence centrale ne se recouvre suffisamment pour osciller. Pour des conditions de fonctionnement typiques en régime nanoseconde, on évalue qu'un recouvrement de 33% permet d'atteindre le seuil d'oscillation [Sch00]. En portant l'évolution de l'intégrale de recouvrement en fonction de la différence de longueurs entre les cavités, on détermine ainsi les zones correspondant à un fonctionnement monomode (figure 1.19). Pour ce calcul, on doit connaître au préalable les finesse des cavités, ainsi que la largeur de la bande de gain paramétrique et la longueur approximative des cavités.

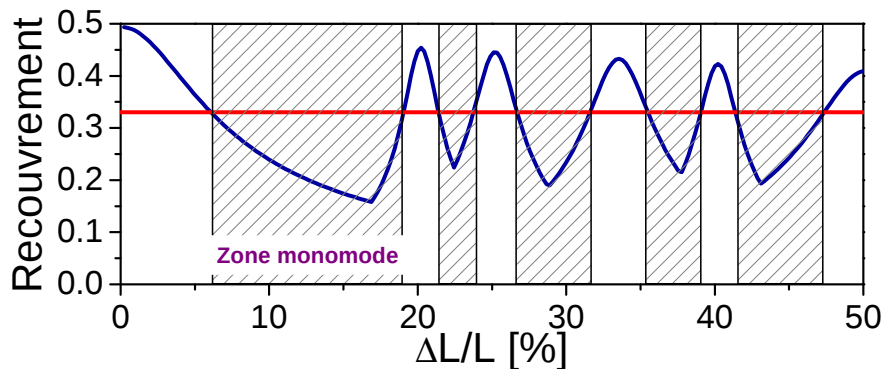


FIGURE 1.19: Zones monomodes pour 5 modes dans la demi bande de gain avec des finesse de 60 et 10 pour les cavités signal et complémentaire

On pourra constater par la suite que cette modélisation est très simplifiée et qu'elle per-

met essentiellement d'expliquer comment on peut obtenir un fonctionnement monomode. Une description plus précise de l'allure de la courbe de gain paramétrique est toutefois nécessaire si l'on veut rendre compte du comportement expérimental de l'OPO.

À présent que l'on a exposé le principe d'affinement spectral d'un OPO doublement résonnant à deux cavités, on peut déterminer l'architecture du DROPO qui va nous permettre de contrôler indépendamment ces deux cavités. Une configuration possible consiste en une cavité en L comme on peut l'observer sur la figure 1.20 et la figure 1.21. La cavité de la figure 1.20 a été mise en place lors de la thèse de Bruno Scherrer, elle est pompée à 355 nm et l'accord en longueur d'onde peut se faire de 510 nm à 630 nm. La largeur de la bande de gain est de 3 cm^{-1} . Le fonctionnement monomode longitudinal a pu être démontré, la largeur spectrale du DROPO est de $0,01\text{ cm}^{-1}$ (300 MHz) et la plage d'accord continu en fréquence se fait sur $0,2\text{ cm}^{-1}$ (6 GHz). L'énergie par impulsion est de l'ordre de 12 mJ pour des impulsions de pompe de 50 mJ, produites à une cadence de 12,5 Hz. La cavité de la figure 1.21 a été développée lors de la thèse d'Isabelle Ribet, le cristal utilisé est un cristal de KTP qui fonctionne en accord de phase de type II. Le miroir M_3 est partiellement réfléchissant à l'onde complémentaire ($R = 42\%$).

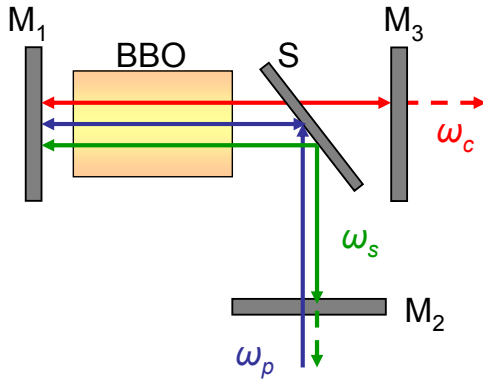


FIGURE 1.20: Cavité en L de Scherrer [Sch98]

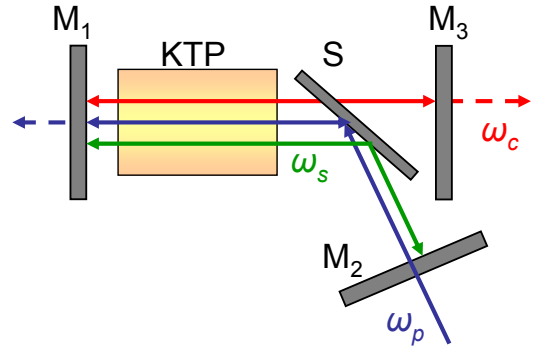


FIGURE 1.21: Cavité en L de Ribet [Rib01]

Cette configuration de cavité en L a pour défaut majeur la présence d'une séparatrice intracavité qui conduit à des longueurs de cavités optiques relativement grandes pour un fonctionnement optimal en régime nanoseconde. En régime impulsional, il est préférable d'avoir des cavités courtes pour augmenter le nombre de passages dans la cavité pendant la durée de l'impulsion et réduire le seuil d'oscillation. C'est pour cette raison qu'une architecture linéaire peut se révéler avantageuse, comme nous allons le voir dans le chapitre suivant.

Synthèse

ous venons de présenter les principes élémentaires qui régissent la conversion paramétrique. De plus, nous avons introduit le fonctionnement de l'oscillateur paramétrique optique doublement résonnant ainsi que quelques techniques employées pour séparer les cavités. Dans le chapitre suivant, nous allons étudier une autre solution, qui a été développée au cours de cette thèse.

Chapitre 2

Synthèse sur les performances obtenues avec le DROPO à cavités imbriquées en début d'étude

If I have seen further it is by standing
on the shoulders of giants.

Isaac NEWTON [Lettre à Robert Hooke,
5 Février 1675]

Objectifs

Du chapitre 1, nous avons introduit le fonctionnement de l'oscillateur paramétrique optique doublement résonnant, et plus particulièrement le cas où les deux cavités résonnantes sont séparées. Dans ce chapitre, nous allons faire le bilan des performances du DROPO à cavités imbriquées développé à l'Onera. Nous allons mettre en évidence les avantages et les limitations de cette architecture, qui sont apparus lors du travail de thèse d'Aude Desormeaux [Des05], antérieur à notre travail.

2.1 Description du DROPO à cavités imbriquées

2.1.1 La pompe

Comme nous avons pu le remarquer dans le chapitre précédent, l'OPO est avant tout un convertisseur de fréquence dont le comportement est très dépendant de la source de pompe. Ainsi, la façon la plus simple d'obtenir un fonctionnement impulsionnel est d'utiliser une pompe impulsionnelle. De même, la longueur d'onde de la pompe couplée avec le cristal non linéaire détermine les domaines de longueurs d'onde accessibles par l'OPO. De plus, il est très important que la source de pompe soit la plus stable possible, que ce soit en intensité ou en largeur spectrale, car les fluctuations résiduelles se retrouveront en général sur le rayonnement émis. C'est pourquoi, il apparaît important de rappeler les caractéristiques de la source de pompe employée durant la thèse d'Aude Desormeaux [Des05] ainsi que pendant cette étude.

En 1985, Kane et Byer [Kan85] développent un nouveau laser Nd:YAG continu pompé par une diode laser à 808 nm ; son originalité est liée à la cavité mise en œuvre : géométrie en anneau non planaire (Non Planar Ring Oscillator, NPRO). En 1997, I. Freitag et al. [Fre97] ajoutent au cristal NPRO un absorbant saturable, du $Cr^{4+} : YAG$, pour faire fonctionner le laser en mode impulsionnel tout en conservant un fonctionnement monomode longitudinal. C'est ce type de laser, actuellement commercialisé par la Société allemande *Innolight* [INO], qui est utilisé pour le pompage du DROPO. Les caractéristiques de ce laser sont répertoriées dans le tableau. 2.1.

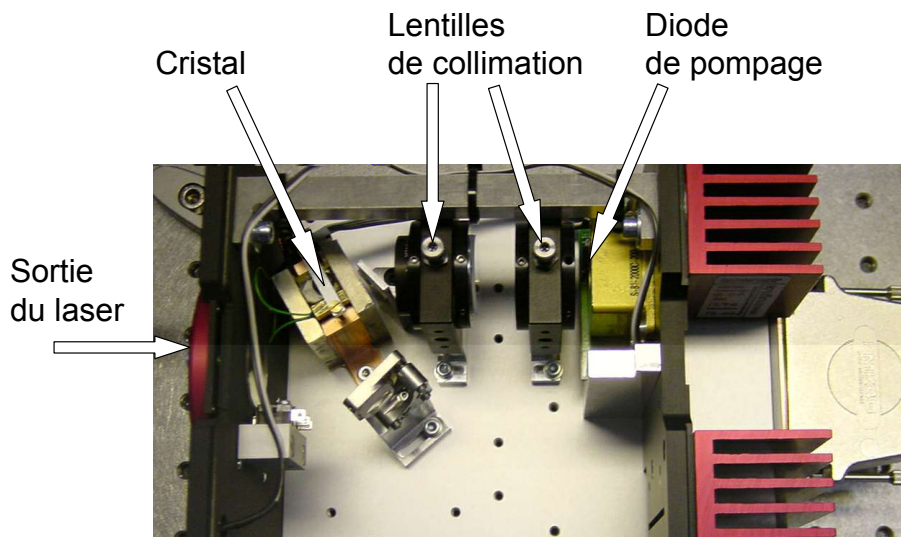


FIGURE 2.1: Photo de l'intérieur du laser *Mephisto Q*

Paramètres	Valeurs
Longueur d'onde	1,064 μm
Qualité spectrale	Monomode longitudinal
Accordabilité (en changeant la température du cristal)	10 GHz
Puissance moyenne	400 mW
Énergie par impulsion	40 μJ
Durée des impulsions	7,9 à 8,8 ns
Cadence	6 à 11,4 kHz
Qualité du faisceau	TEM_{00}
Facteur M^2	1,02

TABLEAU 2.1: Caractéristiques du laser de pompe *Mephisto Q*

2.1.2 La structure à cavités imbriquées

Le DROPO qui a été développé à l'Onera est constitué de deux cavités imbriquées dans une architecture linéaire, dont la qualité principale est sa compacité. Comme on peut le voir sur la figure 2.2, deux des miroirs (M_2 et M_3) sont directement déposés sur le cristal non linéaire (ici du PPLN). La cavité signal est définie par les miroirs M_1 et M_3 , tandis que la cavité complémentaire est formée par les miroirs M_2 et M_4 . De plus, les miroirs extérieurs (M_1 et M_4) sont concaves pour assurer une stabilité optique des cavités et un bon recouvrement des modes signal et complémentaire avec la pompe. Par ailleurs, ces deux miroirs sont montés sur des cales piézo-électriques, ce qui permet d'ajuster finement les longueurs de cavités et accorder ainsi les longueurs d'onde de l'OPO. La principale difficulté rencontrée avec cette architecture réside dans les dépôts multicouches, qui doivent être réalisés aux trois longueurs d'onde pompe, signal et complémentaire. Ainsi, les miroirs M_1 et M_3 doivent réfléchir l'onde signal et transmettre les ondes pompe et complémentaire. En revanche, les miroirs M_2 et M_4 doivent réfléchir l'onde complémentaire et transmettre les ondes pompe et signal. La difficulté supplémentaire est liée au traitement sur les faces du cristal de PPLN dont l'épaisseur est de 0,5 mm.

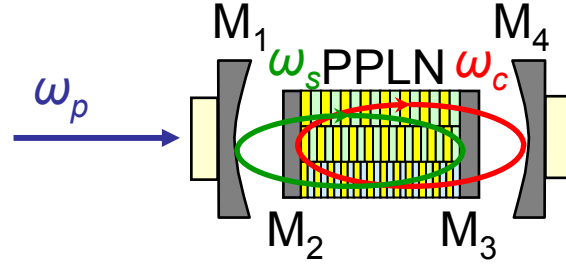


FIGURE 2.2: DROPO à cavités imbriquées

	Miroir signal M_1		Cristal de PPLN [5 mm]		Miroir complémentaire M_4	
	S_1	S_2	M_2	M_3	S_3	S_4
Pompe [1,064 μm]	0,1%	1%	0,75%	0,7%	1%	1,8%
Signal [1,40 à 1,48 μm]	0,2%	99,9%	0,05%	98,3%	1%	1%
Complémentaire [3,8 à 4,5 μm]	0,5%	2,5%	97,5%	0,5%	72%	0,7%

TABLEAU 2.2: Coefficients de réflexion des miroirs aux différentes longueurs d'onde

2.1.2.1 Contenu spectral

Avec une telle configuration on peut atteindre, si on se fixe les bonnes longueurs de cavités (voir 1.5.2), un fonctionnement monomode longitudinal avec un taux d'extinction des modes secondaires de près de 40 dB. La figure 2.3 illustre l'évolution du contenu spectral de l'OPO en fonction de la différence de longueurs entre les deux cavités. Lorsque la différence relative des deux cavités est trop faible, l'OPO oscille sur plusieurs modes longitudinaux et ce n'est que lorsque cette différence est supérieure à 5% que le DROPO fonctionne de manière monomode.

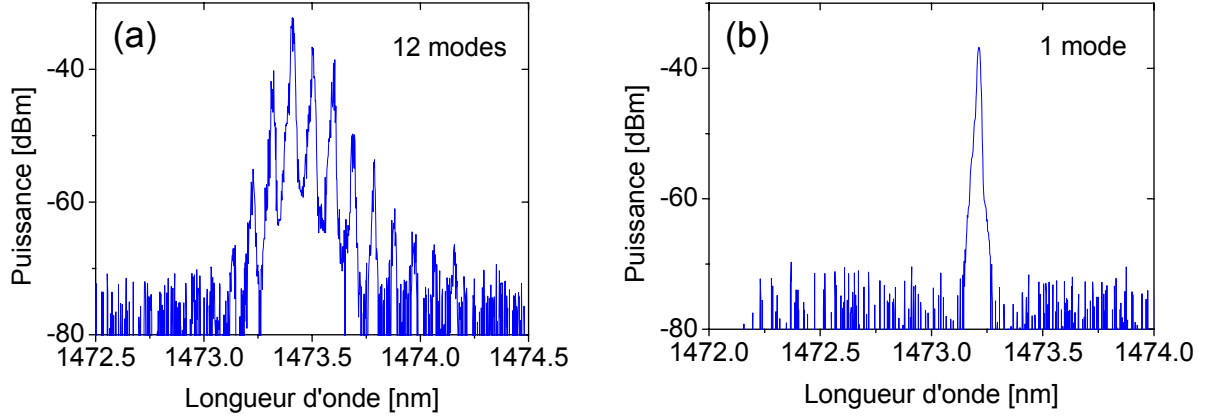


FIGURE 2.3: Spectre de l'onde signal enregistré avec un analyseur de spectre (ANDO, modèle AQ 6317B, résolution $0,1 \text{ cm}^{-1}$) (a) $\frac{\Delta L}{L} = 3 \%$ (b) $\frac{\Delta L}{L} = 6 \%$

2.1.2.2 Réalisation mécanique

Comme nous avons pu le voir dans la partie sur le PPLN (1.4.1), il est nécessaire de contrôler finement la température du cristal. C'est pour cette raison que celui-ci est placé dans un four asservi en température (figure 2.4). Ce four est réalisé en collant des éléments Peltier sur un support en laiton avec de la colle thermoconductrice (Loctite Output 315). Le cristal, d'une longueur de 5 mm pour une épaisseur de 1 mm et une largeur de 1 cm, est pris en sandwich par deux pièces en shapal¹ de 1 mm d'épaisseur et un film thermoconducteur (joint thermique GAP Pad 2000). L'ensemble est serré dans la monture en laiton. Le rôle des pièces en shapal est d'éviter que le faisceau laser touche le laiton en cours d'alignement, ce qui pourrait ablater le laiton et endommager le cristal. Le support en laiton du cristal est maintenu par deux petites colonnes en macor². Les éléments Peltier, alimentés en série sont commandés à l'aide d'un système PID (Proportionnel Intégral Dérivé) et la température est mesurée par une sonde Pt100. La température est asservie au centième de degré pour éviter toute dérive de la fréquence émise.

L'accord continu en fréquence du DROPO à cavités imbriquées s'est révélé plutôt limité ($0,17 \text{ cm}^{-1}$). Cette limitation est causée par des réflexions parasites à la longueur d'onde de la pompe sur les miroirs M_3 et M_4 . Nous analyserons dans le chapitre 3 l'influence sur le seuil du DROPO des réflexions parasites.

1. Le shapal est un matériau composé de Nitrure d'Aluminium et de Nitrure de Bore et il a une très grande conductivité thermique, environ cinq fois supérieure à l'Alumine.

2. Le macor est une céramique qui a une faible conductivité thermique

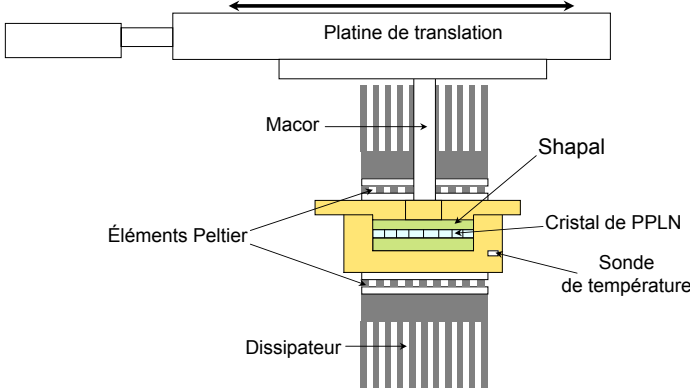


FIGURE 2.4: Vue de face du DROPO

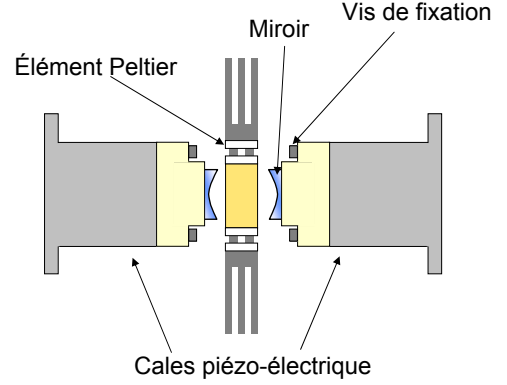


FIGURE 2.5: Vue de coté du DROPO

2.1.3 Le retour de pompe

Pour augmenter la plage d'accord continu en fréquence, il a été nécessaire de compléter cette architecture en rajoutant un miroir M_5 qui renvoie 20% de la pompe (figure 2.6), afin de contrôler la phase relative entre les trois ondes (voir A.13) au retour dans le cristal. Le miroir M_5 est placé sur une cale piézo-électrique. De plus, on place une lentille (focale 100 mm) sur le trajet de la pompe pour focaliser le faisceau pompe au retour dans le cristal. Par ailleurs, on a également placé une lame séparatrice entre le DROPO et le retour de pompe, pour extraire l'onde complémentaire avant le miroir M_5 , comme on peut le voir sur la figure 2.6.

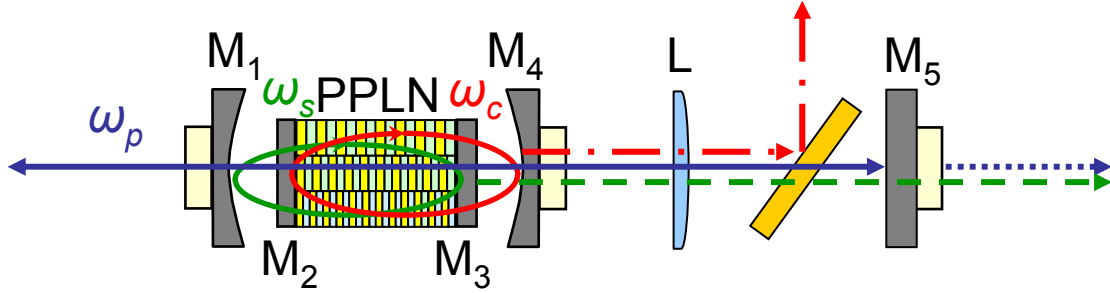
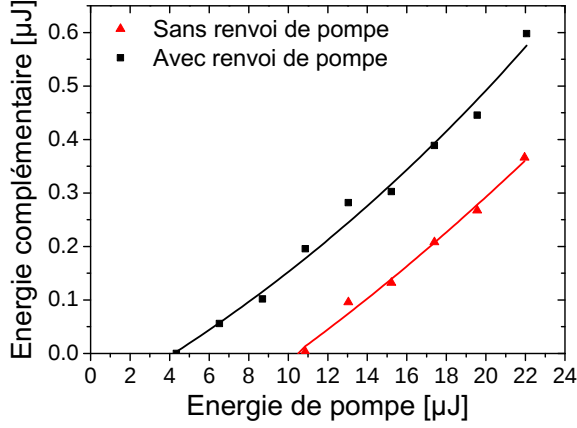
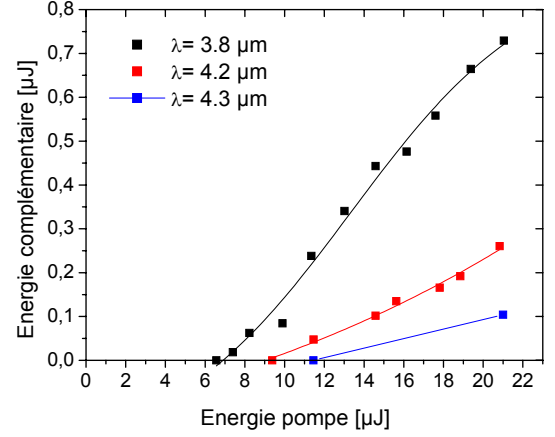


FIGURE 2.6: DROPO avec retour de pompe

Le retour de pompe a été mis en place pour réduire l'influence des réflexions parasites sur le comportement de l'OPO, mais il permet également de réduire le seuil du DROPO. Le seuil se trouve ainsi divisé par trois. Dans ces conditions, il est possible de faire fonctionner le DROPO à des longueurs d'onde plus élevées, là où le cristal de PPLN commence à absorber l'onde complémentaire. La figure 2.7 (a) montre la diminution du seuil grâce au renvoi de la pompe et la figure 2.7 (b) montre l'influence de l'absorption sur l'efficacité de conversion. Cette évolution de l'efficacité est à relier avec la courbe d'absorption du PPLN en fonction de la longueur d'onde (figure 1.9).



(a) Évolution de l'intensité en fonction de l'énergie de pompe avec et sans renvoi de pompe



(b) Evolution de l'énergie complémentaire en fonction de l'énergie de pompe à différentes longueurs d'onde

FIGURE 2.7: Comportement du DROPO avec retour de pompe

2.2 Performances

2.2.1 Le balayage en fréquence

Malgré les progrès réalisés grâce au retour de pompe, le balayage continu sans saut de mode se trouve toujours limité à $0,2 \text{ cm}^{-1}$. La figure 2.8 montre ainsi que le balayage sur 4 cm^{-1} se fait avec de nombreux sauts de modes. De plus, ce balayage est réalisé de manière semi-automatique. Une rampe de tension est appliquée à la piézo signal et les cales complémentaire et pompe sont ajustées manuellement. Avec cette procédure, non seulement on ne peut pas éviter l'apparition de modes secondaires, mais le balayage est très lent : 1 cm^{-1} nécessite environ 1 heure.

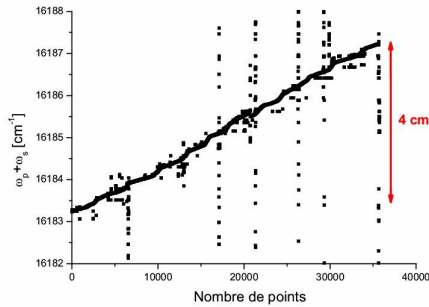


FIGURE 2.8: Balayage de la longueur d'onde OPO, mesurée avec un mesureur de longueur d'onde contrôlant la fréquence signal après avoir été sommée avec la fréquence pompe

2.2.2 Les spectres d'absorption

Comme nous venons de le voir, il est possible d'accorder la longueur d'onde de l'OPO sur plusieurs cm^{-1} . Ainsi, on peut entreprendre les premières mesures d'absorption³. La figure 2.9 montre le montage expérimental qui a été mis en place pour réaliser ces mesures d'absorption.

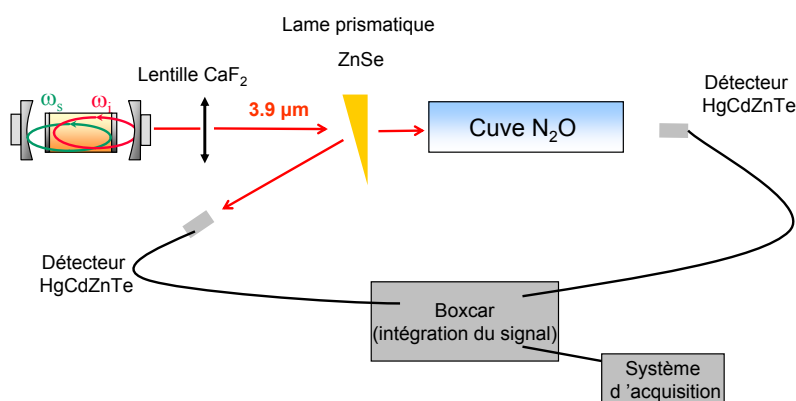


FIGURE 2.9: Montage pour la spectroscopie d'absorption

Les premières mesures ont été réalisées sur du N_2O à différentes pressions et pour une longueur d'interaction de 10 cm. Les figures 2.10 (a) et figure 2.10 (b) représentent des spectres d'absorption de N_2O à des pressions respectives de 100 hPa et 10 hPa. Sur ces figures sont représentés les spectres théoriques (en bleu) obtenus à partir de la base de données Hitran [HIT]. L'allure des spectres expérimentaux (en rouge) est en accord avec celle des spectres théoriques. On peut remarquer que la finesse spectrale de l'OPO permet de résoudre à basse pression des raies voisines $\sim 180 MHz$ (figure 2.11). Toutefois, on note de fortes variations de la ligne de base qui peuvent être supérieures à 30%. Ainsi, sur la figure 2.10 (a), on pourrait se convaincre de la présence d'une raie d'absorption (cercle violet) qui n'apparaît pas sur le spectre théorique. À ce stade, les performances de la source ne sont pas suffisantes pour pouvoir détecter des concentrations faibles en molécules de polluants.

3. On pourra trouver quelques éléments sur la spectroscopie d'absorption dans le chapitre 4.

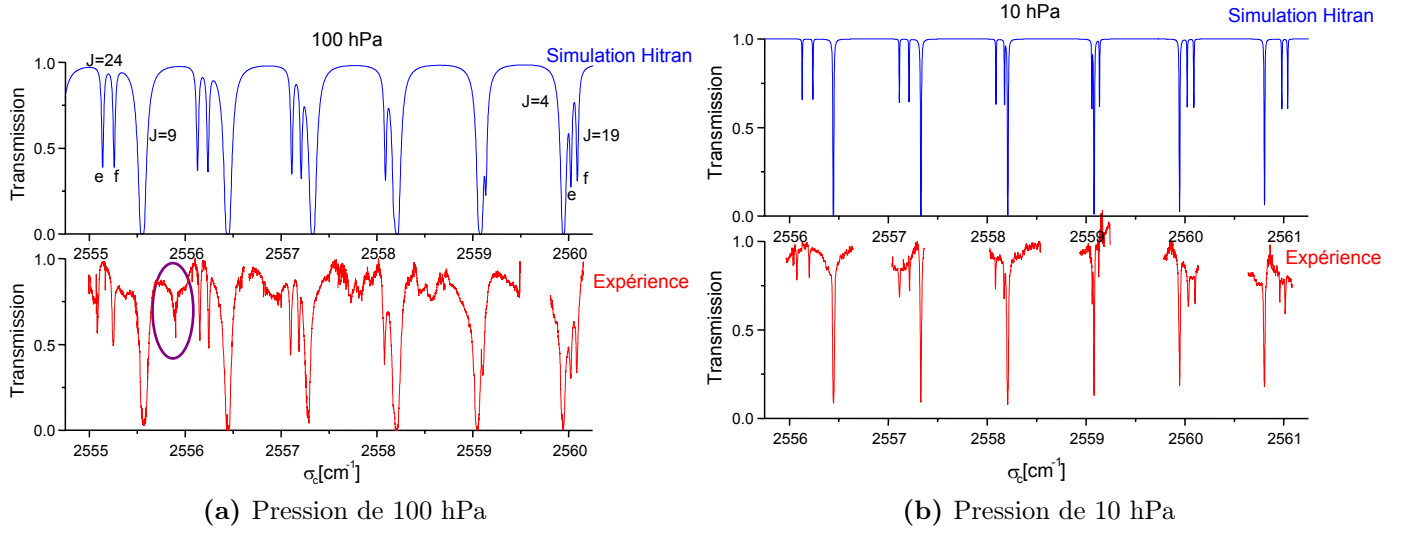


FIGURE 2.10: Raies d'absorption dans une cellule de N_2O calculées et mesurées

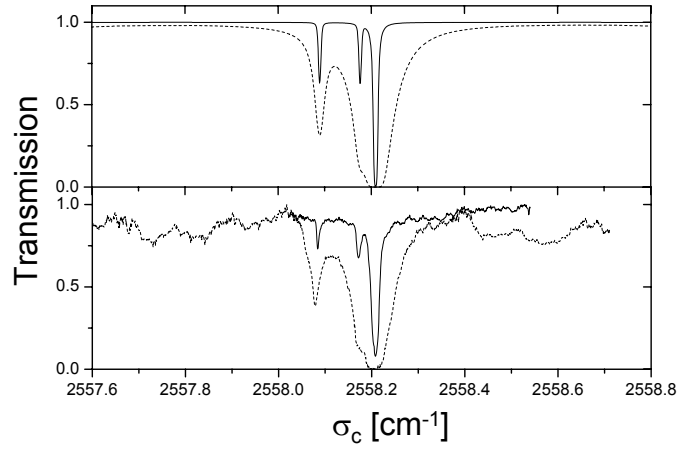


FIGURE 2.11: Raies d'absorption dans une cellule de N_2O à 10 et 100 hPa. Courbes théoriques (haut) et expérimentales (bas)

On peut remarquer qu'aucun spectre n'a pu être réalisé au delà de 4 μm . Ceci est dû au fait que le DROPO fonctionne beaucoup moins bien lorsque l'on monte en longueur d'onde à cause de l'absorption dans le PPLN. Ainsi, le balayage en longueur d'onde y est encore plus difficile, puisque les variations du seuil d'oscillation du DROPO entraînent la présence de zones où il n'y a plus d'oscillation.

Synthèse

Ce chapitre nous a permis de mettre en avant les points sensibles que présentait la source OPO de l'Onera au début de cette étude. C'est à dire un balayage continu en fréquence effectué de manière manuelle, présentant des sauts de modes et avec une forte variation de l'intensité. Ainsi, les spectres qui ont été enregistrés présentent de fortes oscillations de la ligne de base, ceci ne permettant pas de distinguer les raies de faibles intensités du bruit de détection. De plus, aucune raie de CO_2 n'a pu être enregistrée ; l'OPO ne fonctionnant pas de façon continue au delà de 4 μm .

Chapitre 3

Développement du DROPO à cavités imbriquées

Toutes les sciences ont leur chimère,
après laquelle elles courent, sans la
pouvoir attraper ; mais elles attrapent
en chemin d'autres connaissances fort
utiles.

Bernard LE BOVIER DE FONTENELLE

Objectifs

 e chapitre 2 nous a permis de faire un état des lieux des performances du DROPO, développé à l'Onera, en début de thèse. Dans ce chapitre, nous allons, après une rapide prise en main du montage, étudier le comportement du DROPO à l'aide de simulations ; ceci nous permettra de mettre à jour les causes de la limitation du balayage continu en fréquence. Après avoir apporté des solutions pour réduire ces limitations, nous mettrons en place un programme pour automatiser le balayage en fréquence de l'OPO. De plus, ce programme sera modifié pour verrouiller la fréquence de la source à une valeur prédéterminée par l'utilisateur, on réalise ainsi un synthétiseur de fréquence optique.

3.1 Prise en main du montage

La figure 3.1 représente le montage d'origine. On y retrouve la source de pompe *Mephisto Q* décrite dans la section 2.1.1, suivie par une lame quart-d'onde qui permet de corriger de l'ellipticité de polarisation du faisceau. La lame demi-onde nous permet de régler l'orientation de la polarisation du faisceau et aussi de contrôler l'intensité de la pompe en entrée du DROPO. Ensuite, on trouve un isolateur de Faraday pour limiter les risques de retour de la pompe dans le laser. Afin de régler la position du faisceau pompe dans la cavité OPO, on place ensuite deux miroirs à 45 degrés. Une lentille de 150 mm de focale est insérée entre les miroirs de renvoi pour régler le col du faisceau pompe au milieu du cristal. Le reste du montage a été détaillé précédemment dans les sections 2.1.2 et 2.1.3.

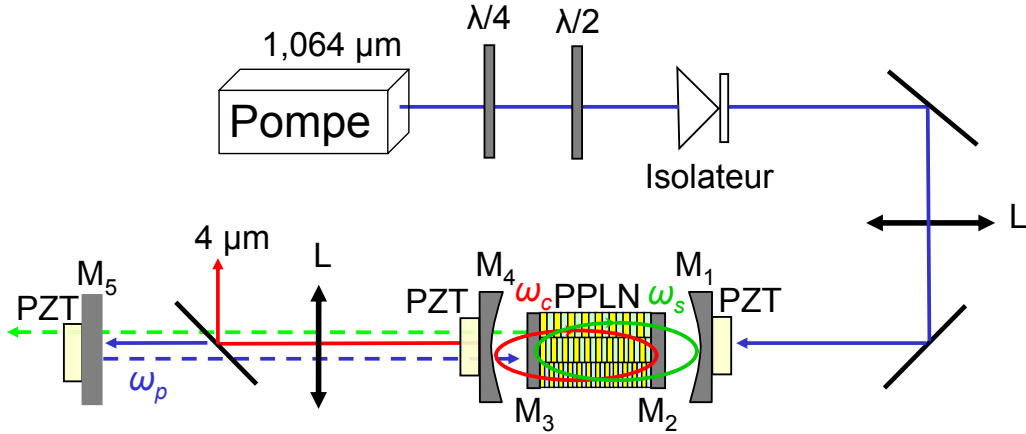


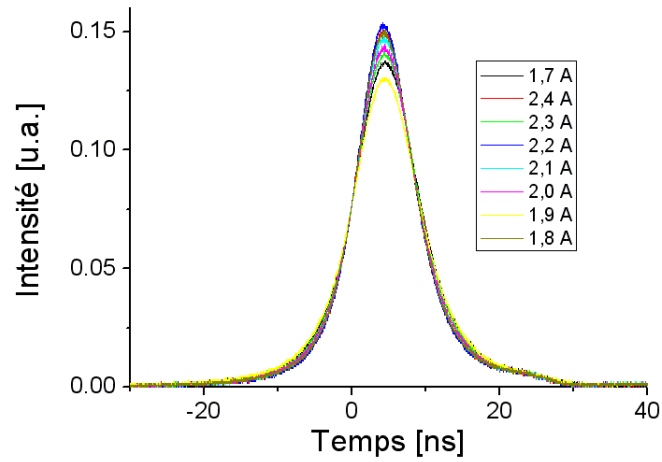
FIGURE 3.1: Montage expérimental du DROPO

3.1.1 Modifications apportées au montage initial

3.1.1.1 Le laser de pompe

Comme nous avons pu le voir dans la section 2.1.1, le laser *Mephisto Q* est composé d'une diode laser à 808 nm qui pompe un barreau de Nd:YAG. Cette diode a une durée de vie qui a trouvé sa limite en début d'étude. Nous avons donc dû la remplacer. Les performances du laser à son retour sont répertoriées dans le tableau 3.1. La figure 5.2 nous montre que la forme de l'impulsion est la même quelle que soit l'intensité de la diode. On peut rappeler que pour un OPO nanoseconde il est important, pour atteindre le seuil d'oscillation, de se placer à la puissance crête maximale. Nous choisissons donc de travailler avec une intensité de diode supérieure à 2 A. Pour la suite de cette étude nous fixons l'intensité de la diode à 2,1 A.

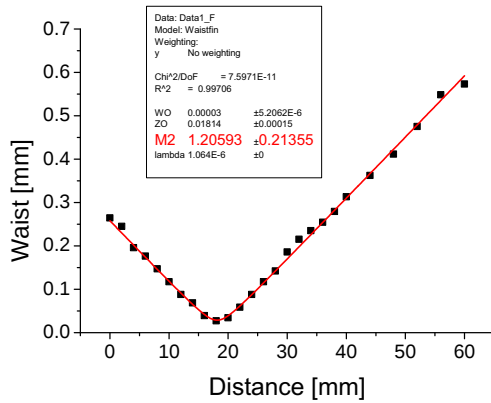
I_{diode} [A]	Durée d'impulsion [ns]	Taux de répétition [kHz]	Puissance [mW]	Intensité par impulsion [μ J]
1,7	9,78	1,75	50	28,5
1,8	8,73	3,47	110	31,7
1,9	10,2	4,8	160	33,3
2	8,89	6,05	214	35,3
2,2	8,51	8,4	296	35,2
2,3	9,46	9,57	339	35,4
2,4	8,62	10,61	385	36,3

TABLEAU 3.1: Performances du Laser Mephisto Q**FIGURE 3.2:** Forme temporelle de l'impulsion du laser de pompe

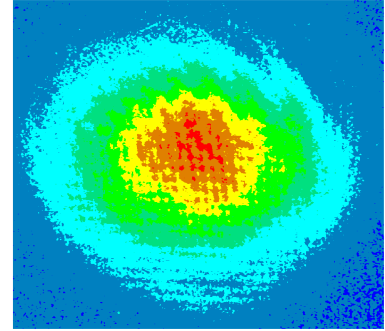
3.1.1.2 Optimisation du retour de pompe

Nous avons testé différents miroirs de renvoi pour réduire les modulations d'intensité de l'OPO lorsque l'on balaie la fréquence. On a ainsi remplacé le miroir de renvoi de pompe qui était de 20 % par un miroir de réflectivité $R_{\max}$ à $1,064 \mu\text{m}$. Dans ces conditions, le renvoi de pompe effectif est de 80 %, compte tenu des pertes aux deux traversées de la lame séparatrice et de la lentille. Notons que nous avons également ajusté très précisément l'inclinaison de cette lame séparatrice, car la transmission du faisceau pompe est très sensible à l'angle d'incidence sur la face d'entrée. La crainte que nous avons en modifiant ce miroir de renvoi de pompe

était de perturber le laser de pompe. Toutefois, nous n'avons pas constaté de perturbations¹ du laser de pompe, qui auraient pu être provoquées par des retours de la pompe. L'isolateur de 40 dB est donc suffisant. De plus, pour rendre ce retour de pompe le plus efficace possible, il est nécessaire d'avoir une bonne focalisation de la pompe au retour dans le cristal. Après avoir calculé la position optimale de la lentille, située entre le DROPO et le retour de pompe, en tenant compte du comportement gaussien du faisceau pompe, nous avons déplacé la lentille de quelques centimètres. Pour conduire cette simulation, nous avons mesuré au préalable le facteur M^2 du laser de pompe ainsi que la largeur du faisceau au milieu du cristal. La mesure du facteur M^2 a été réalisée par la technique du couteau. Comme on peut le voir sur la figure 3.3 (a), on obtient un facteur $M^2 = 1,2$ qui est légèrement supérieur à celui fourni par le fabricant (voir Tab 2.1). Il faut noter que le passage à travers l'isolateur détériore légèrement la qualité du faisceau (figure 3.3 (b)).



(a) Mesure du facteur M^2 du faisceau de pompe



(b) Image à la caméra du faisceau pompe

FIGURE 3.3: Faisceau pompe après l'isolateur

3.1.1.3 Contrôle de la longueur d'onde

Une amélioration importante apportée au montage est la mesure de la longueur d'onde. Précédemment, la mesure de la longueur d'onde était indirecte puisque l'on réalisait un étage de somme de fréquences, dans un cristal de KTP, entre les fréquences pompe et signal. Ce faisceau était ensuite envoyé vers un mesureur de longueur d'onde sensible dans le visible. Maintenant, on utilise un mesureur de longueur d'onde fibré (WS6-IR High Finesse, Ångstrom [HFG]) qui nous permet de mesurer directement la longueur d'onde signal (voir figure 3.4). Par ailleurs, nous avons intégré au montage expérimental un micro interféromètre de Fabry-Perot

1. Fluctuations d'intensités, de fréquences ; jitter ...

fibré (Micron Optics [MIC]), sensible à la longueur d'onde signal, pour contrôler le spectre de l'OPO. Grâce à ce Fabry-Perot, il nous est possible de déterminer si le rayonnement de l'OPO est monomode. Notons que ce Fabry-Perot a un intervalle spectral libre de 30 GHz, et que sa finesse ne nous permet pas de mesurer la largeur spectrale de la fréquence signal de l'OPO.

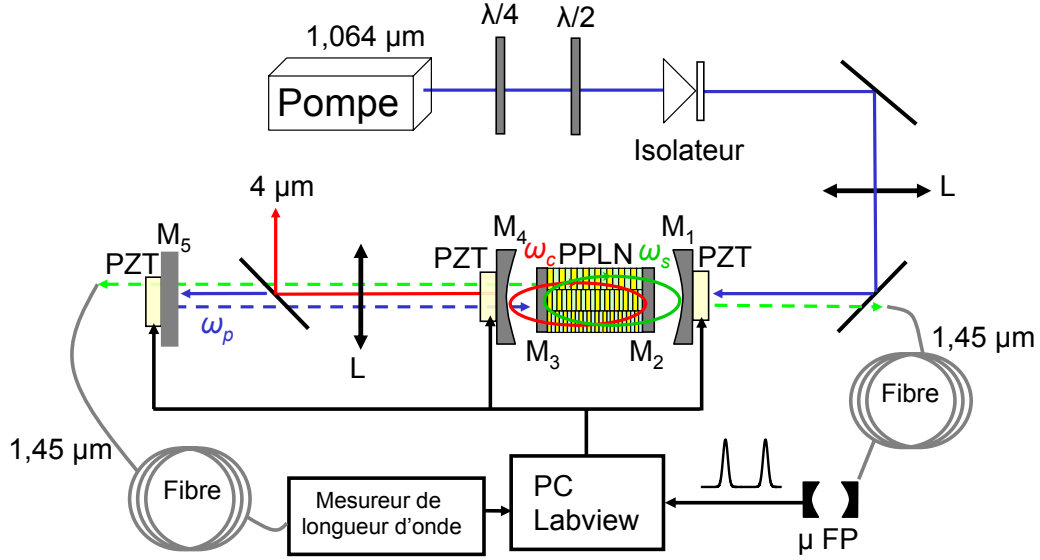


FIGURE 3.4: Montage expérimental pour la mesure de longueur d'onde

3.1.1.4 Cavité OPO

Un autre paramètre sur lequel on a tenté d'agir, pour améliorer le balayage en fréquence de notre OPO, est la réflexion parasite à la longueur d'onde de la pompe sur le miroir M_4 . De nouveaux miroirs, avec des dépôts multicouches réalisés par la méthode IBS², ont été approvisionnés ; sachant que les miroirs précédents étaient réalisés avec la méthode PVD³. Cependant, les réflexions parasites demeurent sensiblement les mêmes (légèrement inférieures à 1%). Ces réflexions résiduelles illustrent la difficulté à réaliser des miroirs hautement réfléchissants entre 3,7 et 4,5 μm, et réfléchissant moins de 0,1 % à 1,064 μm et entre 1,39 et 1,48 μm.

Dans la section 2.1.2.2, nous avons rappelé que le contrôle en température du cristal est important si l'on souhaite rester stable. Dans ce but, le câblage du four a été modifié pour assurer une stabilité en température au 1 centième de degré Celsius, ce qui n'était pas le cas auparavant. L'amélioration du câblage permet une translation du cristal, pour changer de réseau, sans trop désaligner la cavité. Nous reviendrons dans le chapitre 5 sur ce point.

Nous avons vu dans la section 1.5.2 qu'un programme simulant le recouvrement entre les modes des cavités signal et complémentaire permet de définir les longueurs de cavité pour ob-

2. Ion Beam Sputtering (pulvérisation par faisceau d'ions)

3. Physical vapor deposition (dépôt physique en phase vapeur)

tenir un fonctionnement monomode. Dans notre cas, le programme de simulation nous donne une première zone de fonctionnement monomode pour une différence relative entre les cavités de 4 à 8 %. On règle donc les cavités de manière à se placer dans cette zone. Pour connaître précisément les longueurs optiques des cavités, on utilise la technique suivante. Lorsque l'on fait fonctionner l'OPO sans renvoi de la pompe et que l'on déplace uniquement la cale complémentaire, on réalise des sauts de modes dont l'écart en fréquence correspond à un multiple d'intervalle spectral libre de la cavité signal (figure 3.5). De même si on ne déplace que la cale signal, on effectue des sauts de modes de la cavité complémentaire.

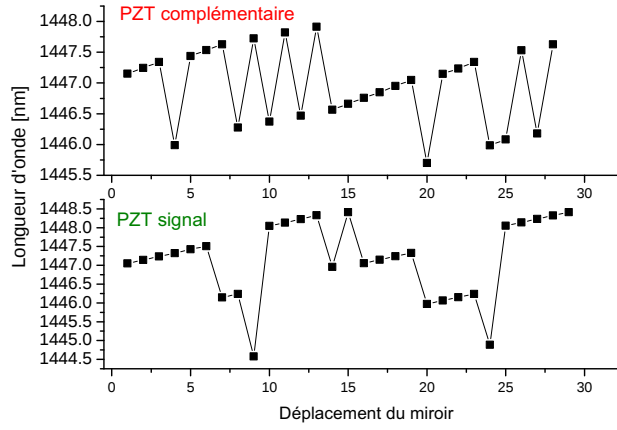


FIGURE 3.5: Sauts de modes lorsque l'on déplace un seul miroir

Lorsque l'on relève les longueurs d'onde à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde (WS6-IR [HFG]), on peut déduire l'intervalle spectral libre de chaque cavité et ainsi les longueurs associées :

$$\Delta\lambda_s (\text{PZT complémentaire}) = \frac{\lambda_s^2}{2 L_s^{opt}} = 96,4 \text{ pm} \quad \text{soit} \quad L_s^{opt} = 10,9 \text{ mm} \quad (3.1)$$

$$\Delta\lambda_s (\text{PZT signal}) = \frac{\lambda_s^2}{2 L_c^{opt}} = 91,5 \text{ pm} \quad \text{soit} \quad L_c^{opt} = 11,5 \text{ mm} \quad (3.2)$$

On mesure donc, dans le cas présent, une différence relative entre les cavités de 5,5 %. Ce calcul nous permet de vérifier que les longueurs des cavités sont compatibles avec un fonctionnement monomode. Cependant, cela ne garantit pas que l'émission reste monomode lorsque l'on balaye continûment la longueur d'onde. Finalement, on ajuste l'intensité de pompe pour limiter l'apparition des modes secondaires tout en maximisant l'intensité en sortie d'OPO.

3.1.2 Caractéristiques du DROPO

3.1.2.1 Caractérisation spatiale et temporelle du rayonnement complémentaire

Les enregistrements de la forme temporelle de l'impulsion complémentaire sont présentés sur la figure 3.6(a). Pour obtenir ces courbes nous avons enregistré les impulsions complémentaires à l'aide d'un détecteur magnéto-optique en HgCdZnTe, sans amplification, sensible entre 1 et 10 μm et dont le temps de montée est de l'ordre de la nanoseconde. Nous avons utilisé un oscilloscope dont le déclenchement était fixé sur l'impulsion de pompe. De plus nous avons réalisé ces mesures pour différents niveaux de puissance de pompe. Lors de ces mesures, le seuil d'oscillation était de 30 mW. Ces enregistrements montrent que, plus le niveau de pompage est élevé, plus l'impulsion démarre tôt et plus elle est modulée. Ainsi, il est possible d'obtenir un rebond dans l'impulsion complémentaire lorsque le démarrage de l'oscillation a lieu tôt, alors que l'impulsion est asymétrique pour un temps de construction élevé. Comme le montre la figure 3.6(b), ce comportement est bien décrit par le code de simulation numérique (introduit en annexe C), bien que, à fort pompage la profondeur de modulation soit plus marquée sur la courbe expérimentale que sur le calcul.

La présence d'un rebond à fort niveau de pompage illustre l'importance de l'effet de re-conversion (signal + complémentaire $\rightarrow$ pompe). La courbe simulée est moins modulée que la courbe expérimentale, cela peut s'expliquer par le fait que le calcul intègre toute la surface du faisceau, alors qu'expérimentalement les impulsions enregistrées ne concernent que le centre du faisceau. Or, au centre du faisceau, l'intensité est plus grande et donc le phénomène de re-conversion est plus marqué. Pour éviter cet effet de re-conversion, nous nous plaçons par la suite à un niveau de pompe compris entre 2 à 3 fois le seuil d'oscillation.

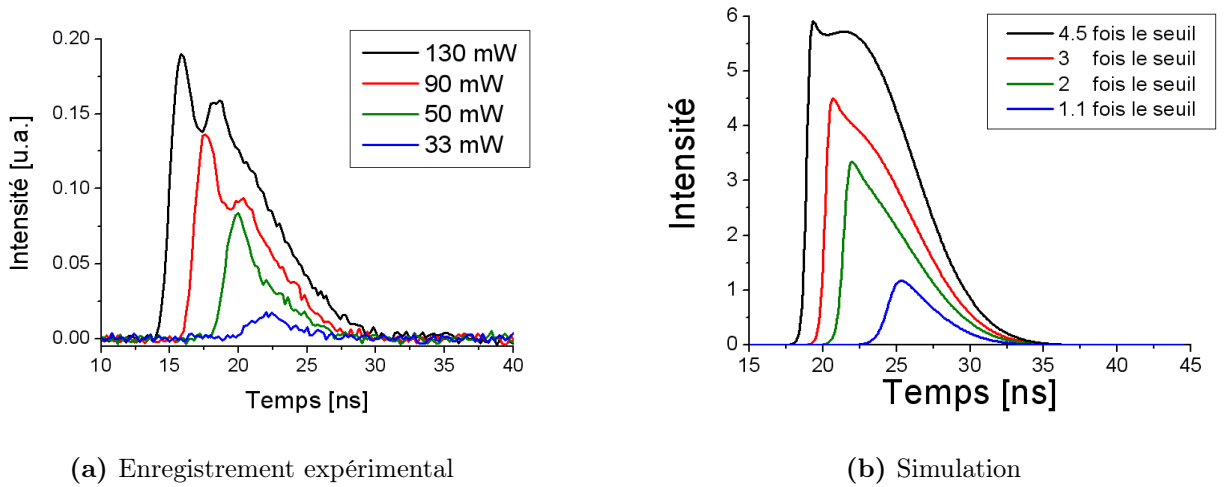


FIGURE 3.6: Profil temporel des impulsions complémentaires pour différentes intensités de pompe

La qualité spatiale du faisceau complémentaire est aussi à prendre en compte, en particulier si on souhaite amplifier ou effectuer des expériences d'optique non linéaire. Pour ce type d'expériences, il est en effet indispensable d'avoir un faisceau de bonne qualité. On enregistre à l'aide d'une caméra pyroélectrique, sensible entre 1 et 10 μm , le profil spatial du faisceau complémentaire un mètre après la sortie de l'OPO (Fig 3.7). On constate que les coupes verticale et horizontale du faisceau complémentaire sont gaussiennes ; le faisceau complémentaire est bien TEM00. De plus, le déplacement des miroirs montés sur des cales piézoélectriques ne modifie pas la qualité du faisceau.

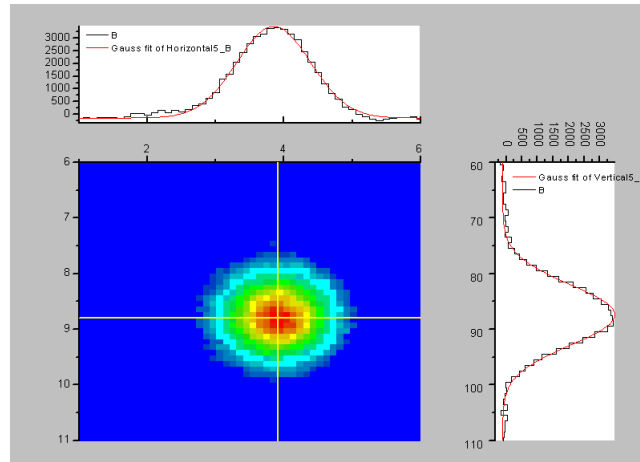


FIGURE 3.7: Forme spatiale des impulsions complémentaires

3.1.2.2 Énergie complémentaire

L'énergie produite dépend de la longueur d'onde complémentaire comme on a pu le voir sur la figure 2.7. Pour quantifier cette dépendance, nous fixons la température du cristal à 60°C et nous mesurons l'énergie complémentaire en fonction de l'énergie de la pompe, et ceci pour les cinq réseaux où l'on obtient l'oscillation (figure 3.8). Pour la longueur d'onde la plus courte (3,88 μm), on obtient le maximum d'énergie complémentaire, soit 1 μJ pour 17 μJ de pompe et un seuil minimum situé à 3,5 μJ . En augmentant la longueur d'onde émise par l'OPO, on observe l'effet d'absorption dans le cristal qui se manifeste par une augmentation du seuil et une diminution de l'énergie produite. Soulignons que par rapport aux expériences antérieures (figure 2.7), les performances obtenues sont légèrement meilleures. Ainsi sur la courbe 2.7(a), réalisée à 4,17 μm , on peut voir que l'énergie complémentaire obtenue en pompant à 18 μJ est de 0,4 μJ , or sur la figure 3.8 on constate que pour ce niveau de pompe on a 0,5 μJ pour une longueur d'onde plus élevée de 4,21 μm . Cette amélioration peut être attribuée au renvoi de pompe plus important.

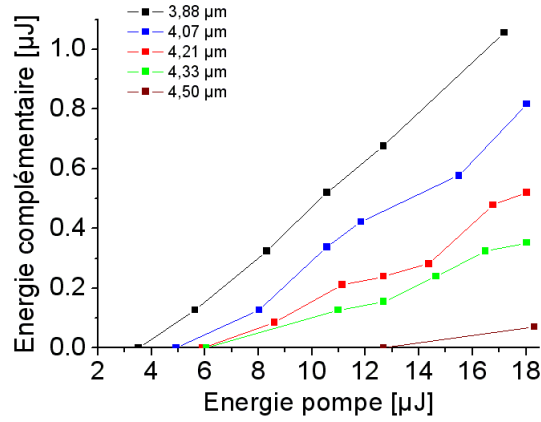


FIGURE 3.8: Énergie complémentaire en fonction de l'énergie de pompe pour les cinq premiers réseaux et une température du cristal de 60°C

3.1.2.3 Évolution de la fréquence signal du DROPO en boucle ouverte

Avant d'entreprendre le balayage en fréquence de l'OPO, il est indispensable que celui-ci émette un rayonnement monomode stable en fréquence. Comme nous avons pu le souligner, la stabilité en température du cristal joue un rôle important dans la stabilité en fréquence. Le deuxième point important pour parvenir à une bonne stabilité fréquentielle est la stabilité mécanique du montage. La compacité de la cavité est ici un élément essentiel pour y parvenir. Par ailleurs, il faut que la source de pompe soit suffisamment stable en fréquence pour ne pas provoquer, par ses variations, de sauts de modes.

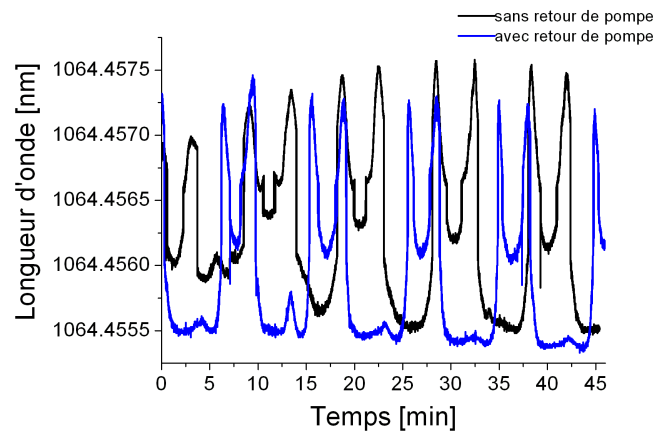


FIGURE 3.9: Évolution de la longueur d'onde pompe

Dans un premier temps, nous avons enregistré l'évolution de la fréquence du laser de pompe

avec et sans retour de pompe. Les évolutions obtenues sont présentées sur la figure 3.9. On peut remarquer sur la figure 3.9 que la longueur d'onde pompe présente des oscillations dont l'amplitude est de 2 pm. La période de ces oscillations, d'environ 10 min, est attribuée à la régulation de la température du cristal du laser. Pour confirmer que le renvoi de la pompe ne change pas l'évolution de la longueur d'onde de la pompe, on a enregistré la longueur d'onde pompe lorsque l'on renvoie la pompe dans l'OPO ; l'enregistrement est réalisé avec une puissance de pompe légèrement inférieure au seuil d'oscillation. On constate le même comportement pour les deux enregistrements, ce qui démontre que le comportement du laser n'est pas affecté par le retour de pompe.

L'évolution en longueur d'onde du DROPO en boucle ouverte est représentée sur la figure 3.10. On remarque que la longueur d'onde évolue régulièrement par sauts de modes et que la stabilité pour un mode est en moyenne inférieure à la minute (figure 3.10 (a)), bien qu'une stabilité monomode sur 7 min soit possible mais vraiment exceptionnelle (figure 3.10 (b)). Ceci s'explique par le fait que lorsque le laser change brusquement de longueur d'onde, cela provoque à chaque fois des sauts de modes de l'OPO, ces variations étant de l'ordre de 500 MHz et se produisant toutes les cinq minutes. Dès lors, si on n'agit pas sur l'OPO, la stabilité monomode longitudinale de l'OPO ne peut pas excéder les 5 minutes de "stabilité relative" du laser de pompe que l'on peut observer sur la figure 3.9. Des essais réalisés à différentes longueurs d'onde montrent que l'OPO fonctionne de façon stable sur une plage de 6 nm, qui correspond à la largeur de la bande de gain.

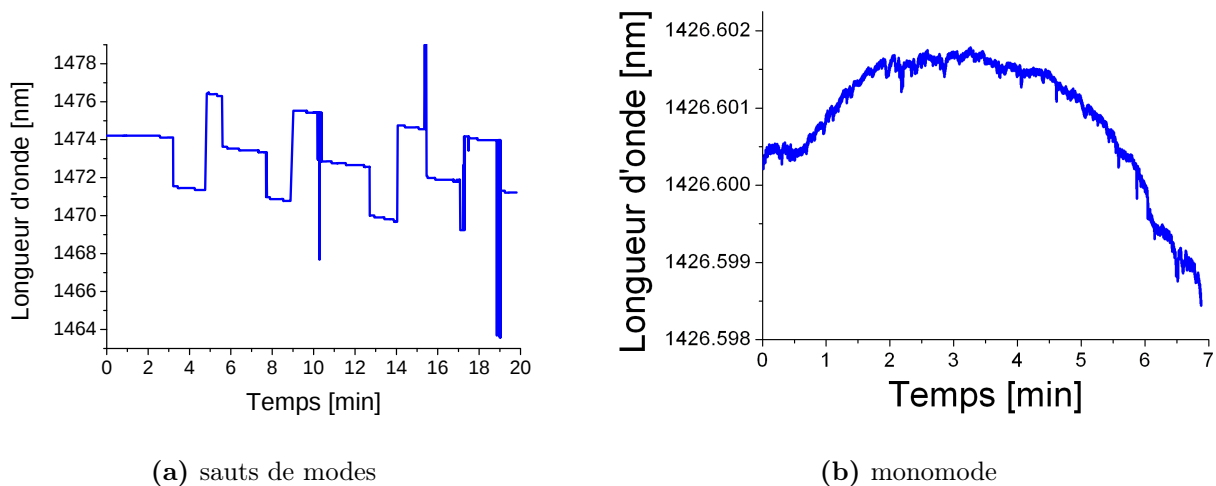


FIGURE 3.10: Évolution de la longueur d'onde signal du DROPO non asservi

Cette première caractérisation de la stabilité en fréquence de l'OPO montre que diverses instabilités (fréquence de pompe, longueurs des cavités OPO, température du cristal) conduisent

à des instabilités de fréquence. Dans ces conditions, il est nécessaire de disposer d'un système d'asservissement en fréquence, pour garder un fonctionnement monomode stable à moyen et long termes.

3.1.2.4 Allure de la bande de gain paramétrique du DROPO

Comme nous l'avons précisé dans les paragraphes précédents, l'allure de la bande de gain joue un rôle primordial sur le comportement spectral de l'OPO et sur ses capacités à être balayé en fréquence. Il est donc utile de connaître la forme de la bande de gain. La technique que nous avons utilisée pour évaluer l'allure de la bande de gain paramétrique est la suivante : après avoir désaligné le renvoi de pompe, nous modulons rapidement (30 Hz) une des cales piézo-électriques sur laquelle est fixée un des miroirs signal ou complémentaire, ce qui provoque successivement différentes coïncidences parmi tous les couples de modes signal et complémentaire. En même temps, on enregistre lentement (environ 30 s pour 20 cm^{-1}) le spectre de l'onde signal en sortie d'OPO à l'aide d'un analyseur de spectre optique (ANDO, modèle AQ 6317B, résolution $0,1\text{ cm}^{-1}$). Cette procédure est suivie pour différentes distances L_{34} entre les miroirs M_3 et M_4 .

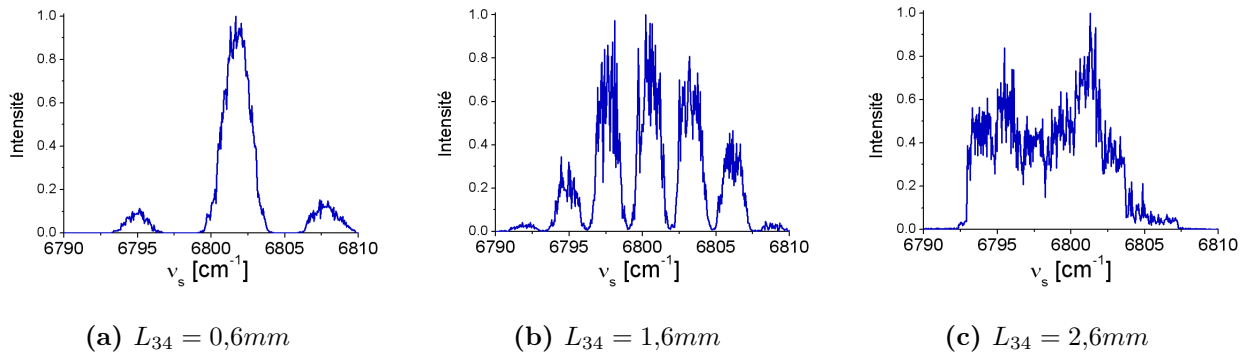


FIGURE 3.11: Spectre de l'OPO lorsque l'on module le miroir M_1

Pour obtenir les courbes de la figure 3.11, on ne déplace que le miroir signal M_1 . On constate que la bande de gain paramétrique de l'OPO est fortement modulée. Ainsi, pour les deux premières distances L_{34} , la modulation est telle qu'il y a des trous dans la bande de gain. Cela explique le fait que l'on ne parvienne pas à réaliser des balayages monomodes continus sur de grandes plages de fréquences, comme on a pu le constater dans le chapitre 2.

Pour obtenir les courbes de la figure 3.12, on ne déplace que le miroir complémentaire M_4 . On observe également une forte modulation de la bande de gain paramétrique.

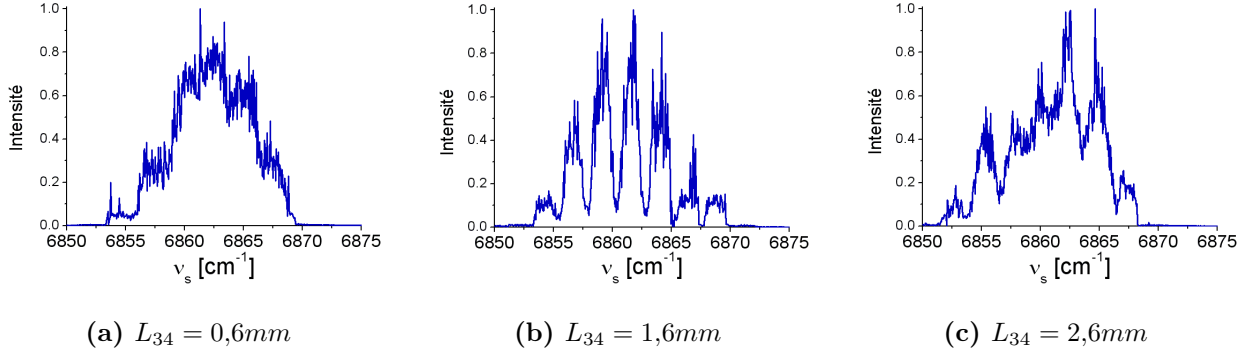


FIGURE 3.12: Intensité du signal de l'OPO lorsque l'on module le miroir M_4

3.2 Analyse du comportement du DROPO en régime continu

Malgré les améliorations que l'on a pu apporter au montage expérimental initial, on constate toujours des modulations importantes dans la bande de gain paramétrique du DROPO. Afin de préciser l'origine de ces variations, nous avons mené une modélisation de notre source. Cette modélisation est réalisée en régime continu afin d'obtenir des solutions analytiques des équations couplées (1.7), qui permettront de préciser l'influence des différentes réflexions parasites des miroirs sur l'allure de la courbe de gain. Bien que cette modélisation soit entreprise en supposant un fonctionnement en régime continu de l'OPO, nous verrons qu'elle permet de rendre compte de l'évolution de la forme du gain paramétrique.

3.2.1 Les modèles utilisés

Dans ce paragraphe, nous allons exprimer le seuil d'un DROPO à double cavités en régime continu. Les détails de calcul sont reportés dans l'annexe A. Nous allons faire deux types de calcul. Dans le premier cas, nous faisons l'hypothèse que la pompe n'est pas dépeuplée, et nous évaluons le seuil de l'OPO en fonction de la fréquence. Dans le second cas, nous reprenons les hypothèses développées par Siegman [Sie62] en vue de calculer le seuil et l'efficacité de conversion du DROPO ; la répartition longitudinale des champs résonnants est alors supposée constante dans la cavité. Les résultats ainsi obtenus sont pour partie analogues à ceux démontrés par Bjorkholm [Bjo69, Bjo70].

La démarche suivie lors des deux modélisations est schématisée par la figure 3.13. Dans un premier temps, on détermine des miroirs équivalents r^{in} et r^{out} pour l'ensemble des miroirs M_1 à M_5 du DROPO à cavités imbriquées. Dans un deuxième temps, on calcule l'évolution de l'intensité des ondes signal et complémentaire en supposant une pompe non dépeuplée (1^{er} cas), ou bien on calcule l'évolution de l'intensité de l'onde pompe en supposant une répartition

longitudinale des intensités signal et pompe constante (2nd cas).

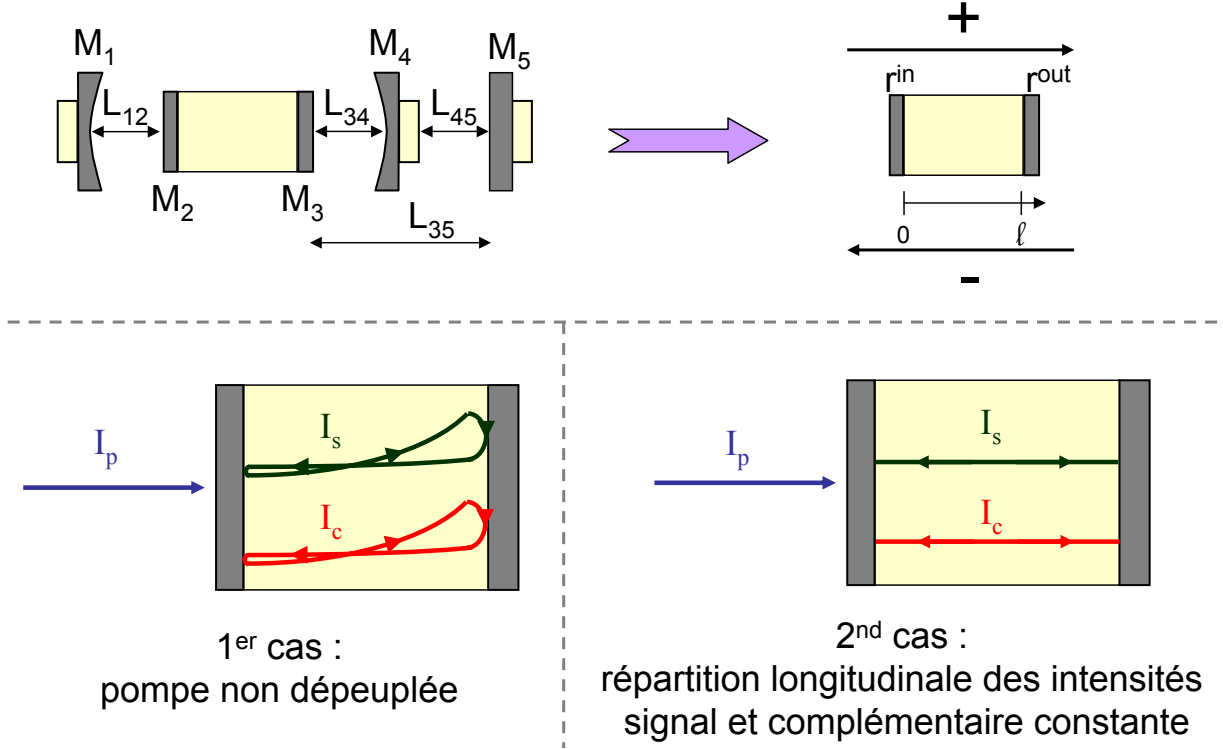


FIGURE 3.13: Illustration de la démarche suivie lors de la modélisation

Sur le schéma 3.13, on a utilisé des miroirs équivalents pour les différentes longueurs d'onde. Dans un premier temps, on considère le DROPO sans retour de pompe contrôlé, c'est-à-dire sans le miroir M_5 . Les retours éventuels de la pompe dans le cristal sont donc provoqués par des réflexions parasites sur les miroirs M_3 et M_4 . Les miroirs équivalents sont donnés par les relations suivantes [God98] :

$$r_j^{out} = \frac{|r_j^3| + |r_j^4| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{34}}{\lambda_j}\right)}{1 + |r_j^3| |r_j^4| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{34}}{\lambda_j}\right)} \quad j \in \{s, c, p\} \quad (3.3)$$

$$r_j^{in} = \frac{|r_j^2| + |r_j^1| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{12}}{\lambda_j}\right)}{1 + |r_j^2| |r_j^1| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{12}}{\lambda_j}\right)} \quad j \in \{s, c\} \quad (3.4)$$

où $|r_j^k|$ est le coefficient de réflexion en amplitude de l'onde j sur le miroir M_k . On peut noter que les relations 3.3 et 3.4 sont obtenues en négligeant tout saut de phase à la réflexion sur les miroirs. Cette approximation ne change rien à l'étude que nous menons, où seules les variations de phase avec les distances L_{12} , L_{34} et L_{45} influent. Lorsque l'on introduit le miroir de renvoi

de pompe, le miroir de sortie équivalent à la pompe devient :

$$\begin{aligned} r_p^{45} &= \frac{|r_p^4| + |r_p^5| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{45}}{\lambda_p}\right)}{1 + |r_p^4| |r_p^5| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{45}}{\lambda_p}\right)} \\ r_p^{out} &= \frac{|r_p^3| + |r_p^{45}| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{34}}{\lambda_p}\right)}{1 + |r_p^3| |r_p^{45}| \exp\left(-4i\pi \frac{L_{34}}{\lambda_p}\right)} \end{aligned} \quad (3.5)$$

L'expression du seuil obtenu dans le premier cas est la suivante :

$$I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)} \frac{(1 - |r_s|)(1 - |r_c|)}{|r_s| |r_c| \left(1 + |r_p^{out}|^2 + |r_p^{out}| \cos(\theta) \left(\frac{1}{|r_s^{out}| |r_c^{in}|} + \frac{1}{|r_s^{in}| |r_c^{out}|}\right)\right)} \quad (3.6)$$

avec les définitions suivantes :

$$r_j = r_j^{in} r_j^{out} \exp\left(-4i\pi \frac{n_j l}{\lambda_j}\right) = |r_j| \exp(-i\varphi_j) \quad j \in \{s, c, p\} \quad (3.7)$$

$$r_j^{out} = |r_j^{out}| \exp(-i\varphi_j^{out}) \quad (3.8)$$

$$\Delta\varphi^{out} = \varphi_p^{out} - \varphi_s^{out} - \varphi_c^{out} \quad (3.9)$$

$$\theta = \Delta k l + \Delta\varphi^{out} \quad (3.10)$$

Les équations du seuil d'oscillation et de l'efficacité de conversion η que l'on obtient dans le second cas sont les suivantes :

$$I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)} \frac{(1 - |r_s|)(1 - |r_c|)}{(1 + |r_p^{out}| \cos(\theta))^2} \quad (3.11)$$

$$\eta = \frac{I_s + I_c}{I_p} = (1 + |r_p^{out}| \cos(\theta)) \frac{2}{N} (\sqrt{N} - 1) \quad (3.12)$$

où N est le niveau de pompage exprimé en nombre de fois au dessus du seuil. On remarque, dans ces différents résultats, que le déphasage relatif θ entre les trois ondes joue un rôle clé sur les valeurs du seuil et de l'efficacité.

3.2.2 Application à notre configuration expérimentale

Dans ce paragraphe, nous appliquons les relations précédentes à notre configuration expérimentale en vue de rendre compte des allures des courbes de gain expérimentales données dans

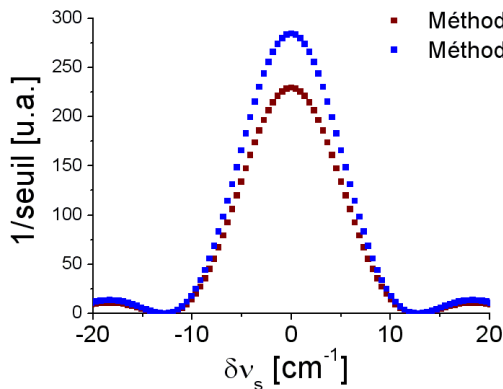
la partie 3.1.2.4. Les coefficients de réflexion des miroirs aux différentes longueurs d'onde sont répertoriés dans le tableau 3.2. Il n'y a pas de miroir de retour de pompe M_5 . La longueur de notre cristal est de 5 mm et les distances approximatives entre les miroirs sont : $L_{12} = 1 \text{ mm}$ et $L_{34} = 0,6 \text{ mm}$. On considère un niveau de pompage deux fois au dessus du seuil.

	signal	complémentaire	pompe
$ r_j^1 $	0,99	0	0
$ r_j^2 $	0	0,98	0
$ r_j^3 $	0,99	0	0,10
$ r_j^4 $	0	0,84	0,12

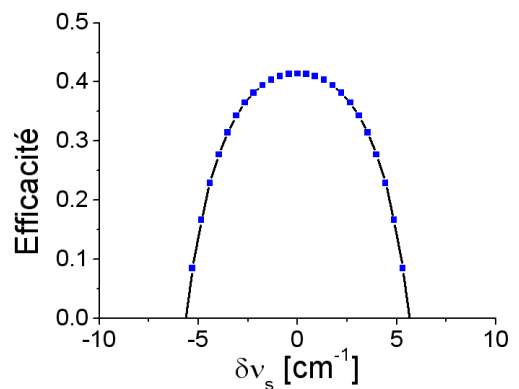
TABLEAU 3.2: Coefficients de réflexion en amplitude

Par ailleurs, les courbes expérimentales ont été enregistrées en ne modulant qu'un seul miroir à la fois. Or, lorsque l'on déplace un seul miroir, la fréquence de l'OPO évolue par sauts de mode. Par conséquent, nous réalisons les calculs du seuil pour ces fréquences, que nous avons calculées au préalable.

Dans un premier temps, nous allons calculer le seuil à partir des expressions 3.6 et 3.11 ainsi que l'efficacité de conversion 3.12 pour un cas idéal, c'est à dire sans réflexions parasites $|r_p^3| = |r_p^4| = 0$. De plus, nous présentons les résultats uniquement pour le cas où l'on module le miroir M_4 , car en absence de réflexions parasites, les courbes obtenues en modulant M_1 sont identiques. Nous traçons l'inverse du seuil pour rendre compte de la plage de fonctionnement de l'OPO ; ainsi le maximum de la courbe représente la fréquence où le seuil est le plus faible.



(a) Inverse du seuil de l'OPO en fonction de la longueur d'onde



(b) Efficacité de l'OPO pompé deux fois au dessus du seuil (méthode 2)

FIGURE 3.14: Simulation du seuil lorsque l'on déplace M_1 et que $r_p^3 = r_p^4 = 0$

La courbe 3.14 (a) nous montre le sinus cardinal au carré attendu [Bjo70]. L'écart que l'on peut observer entre les deux méthodes correspond principalement au terme $|r_s| |r_c|$ en facteur du dénominateur de l'équation 3.6. En ce qui concerne la courbe 3.14 (b), on retrouve bien une efficacité maximale de $\frac{2}{N} (\sqrt{N} - 1) = 0,41$ ($N=2$).

Dans un second temps, nous introduisons des réflexions parasites, à la longueur d'onde pompe, sur les miroirs M_3 et M_4 . Les courbes 3.15 ont été obtenues avec les coefficients de réflexion répertoriés dans le tableau 3.2 et pour trois longueurs L_{34} de 0,6 mm, 1,6 mm et 2,6 mm, lorsque l'on module le miroir M_1 . Le calcul de l'efficacité est mené pour une puissance de pompe de 2,5 fois le seuil. On observe une forte modulation, par rapport à la courbe 3.14(b) obtenue sans réflexions parasites, de l'intensité en fonction de la fréquence. La profondeur des modulations est telle que l'OPO ne fonctionne plus à certaines longueurs d'onde (pour les deux premières configurations). On constate par ailleurs que la période des modulations est inversement proportionnelle à la distance L_{34} .

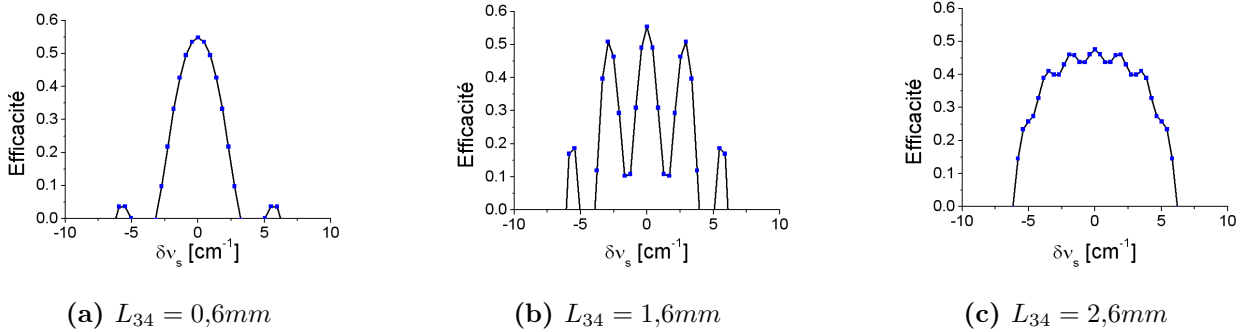


FIGURE 3.15: Simulations de l'efficacité pour $I_p = 2,5 I_{seuil}$ lorsque l'on déplace le miroir M_1

Les courbes 3.15 sont en bon accord avec les courbes expérimentales 3.11. Ainsi, la période des modulations, de même que son évolution avec la distance L_{34} , sont bien rendues. De plus, l'amplitude relative entre les différents maxima est également bien reproduite.

Appliquons maintenant le modèle à la modulation du miroir M_4 . On remarque un comportement différent par rapport à la situation précédente où l'on modulait M_1 . Les modulations de la courbe de gain sont moins marquées, en particulier lorsque la distance L_{34} est faible.

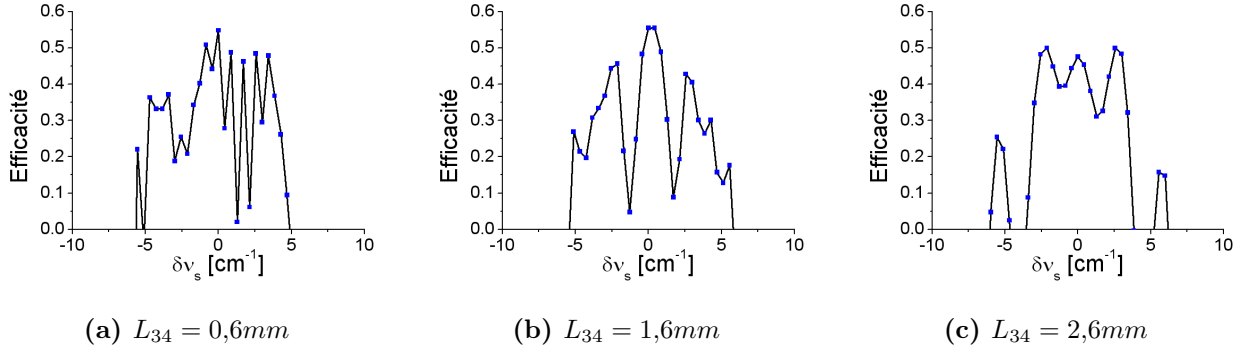


FIGURE 3.16: Simulations de l'efficacité pour $I_p = 2,5 I_{seuil}$ lorsque l'on déplace le miroir M_4

Les simulations 3.16 représentent bien les comportements expérimentaux 3.12. Cependant, l'accord est moins bon que lorsque l'on balaie le miroir M_1 . Ceci peut s'expliquer par le fait que les modulations du seuil sont provoquées par les réflexions parasites à la fréquence pompe sur les miroirs M_3 et M_4 , dont on ne connaît pas exactement les coefficients de réflexion ainsi que la distance L_{34} .

L'analyse que nous venons de faire nous a permis de quantifier l'influence des réflexions parasites du rayonnement de pompe sur le seuil d'oscillation et sur l'allure de la courbe de gain pour un OPO doublement résonnant à cavités imbriquées. Nous avons pu montrer que de faibles réflexions de pompe (de l'ordre de 1% en intensité) sur les miroirs M_3 et M_4 , placés en aval du cristal non linéaire, entraînaient de fortes modulations de la courbe de gain paramétrique, préjudiciables à l'accordabilité en fréquence de la source. Après avoir approvisionné d'autres miroirs, nous avons pu constater les mêmes limitations, ce qui démontre la difficulté à atteindre les spécifications souhaitées (réflexions résiduelles $< 0,2\%$).

Ainsi qu'il a été démontré dans la thèse d'A. Desormeaux et comme nous avons pu le confirmer dans notre analyse, l'ajout d'un miroir M_5 , assurant un double passage de la pompe, permet de réduire très sensiblement l'importance de ces modulations, à condition d'optimiser la phase relative entre les trois ondes au retour. La maîtrise du balayage continu de la fréquence de l'OPO apparaît donc accessible à condition de maintenir le fonctionnement monomode de l'OPO tout en optimisant la phase relative entre les ondes. Les paragraphes suivants permettent de préciser ces deux aspects.

3.3 Analyse des conditions de balayage en fréquence

3.3.1 Détermination des déplacements des miroirs

Afin de maintenir la coïncidence de modes tout au long de l'accordabilité en fréquence, il faut ajuster simultanément les longueurs des cavités signal et complémentaire dans des proportions que nous précisons ci-dessous.

Chaque mode signal et complémentaire se caractérise par une condition de résonance qui s'écrit ⁴ :

$$k_j 2L_j^{opt} = 2\pi m \quad (m \in \mathbb{Z}, j \in \{s, c\}) \quad (3.13)$$

$$\text{soit } \frac{2\pi}{\lambda_j} 2L_j^{opt} = 2\pi m \quad (m \in \mathbb{Z}, j \in \{s, c\}) \quad (3.14)$$

$$\text{ou encore } \omega_j = \frac{\pi c}{L_j} m \quad (m \in \mathbb{Z}, j \in \{s, c\}) \quad (3.15)$$

Toute variation de la longueur de la cavité (δL_j^{opt}) s'accompagne d'une variation de la longueur d'onde telle que :

$$\frac{\delta L_j^{opt}}{L_j^{opt}} = \frac{\delta \lambda_j}{\lambda_j} + o\left(\frac{\delta \lambda_j}{\lambda_j}\right) \quad (j \in \{s, c\}) \quad (3.16)$$

$$\frac{\delta L_j^{opt}}{L_j^{opt}} = -\frac{\delta \omega_j}{\omega_j} + o\left(\frac{\delta \omega_j}{\omega_j}\right) \quad (j \in \{s, c\}) \quad (3.17)$$

Afin de maintenir la coïncidence de modes lors du balayage ; les variations de longueurs des cavités signal et complémentaire doivent être réalisées en respectant la loi de conservation de l'énergie :

$$\delta \omega_s = -\delta \omega_c \quad (3.18)$$

À partir des équations 3.17 et 3.18, on obtient la relation de proportionnalité entre les deux variations de longueurs des cavités signal et complémentaire permettant de maintenir la coïncidence de modes :

$$\delta L_s = -\frac{\omega_c}{\omega_s} \frac{L_s^{opt}}{L_c^{opt}} \delta L_c \quad (3.19)$$

4. On suppose une cavité passive où il n'y a pas d'effet du milieu actif (tirage de fréquence, phase non linéaire...) sur la condition de résonance

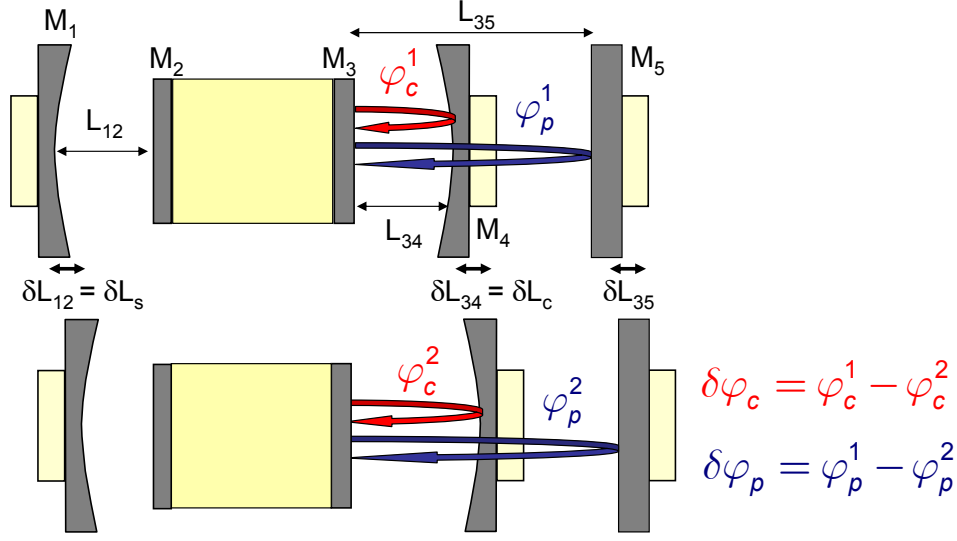


FIGURE 3.17: Définition des phases à la réflexion en sortie d'OPO

Lors du déplacement des miroirs signal M_1 et complémentaire M_4 , il faut également ajuster la position du miroir de retour de pompe M_5 pour que la phase relative entre les trois ondes au retour dans le cristal reste optimale ($\Delta\varphi = \varphi_p - \varphi_s - \varphi_c = -\frac{\pi}{2}$ pour $\Delta k = 0$). On suppose que le déphasage est optimal avant de déplacer les miroirs. Notre configuration impose $\delta\varphi_s = 0$, puisque le miroir signal est déposé sur le cristal et que l'on ne considère pas de saut de phase à la réflexion (voir figure 3.17), on doit donc avoir $\delta\varphi_p = \delta\varphi_c$. Les variations de phase que l'on obtient, si on néglige les réflexions parasites, sont :

$$\delta\varphi_p = \frac{2\pi}{\lambda_p} (2L_{35} - 2(L_{35} + \delta L_{35})) \quad (3.20)$$

$$\delta\varphi_c = 4\pi \left(\frac{L_{34}}{\lambda_c} - \frac{L_{34} + \delta L_{34}}{\lambda_c + \delta\lambda_c} \right) \quad (3.21)$$

À partir des relations 3.16 et avec $\delta L_{34} = \delta L_c$ et $\delta L_{35} = \delta L_p$ on obtient :

$$\delta\varphi_p = -4\pi \frac{\delta L_p}{\lambda_p} \quad (3.22)$$

$$\delta\varphi_c = -4\pi \frac{\delta L_c}{\lambda_c} \left(\frac{L_c^{opt} - L_{34}}{L_c^{opt} + \delta L_c} \right) \quad (3.23)$$

La proportionnalité entre les déplacements des miroirs M_4 et M_5 est donc :

$$\delta L_p = \frac{\omega_c}{\omega_p} \left(\frac{L_c^{opt} - L_{34}}{L_c^{opt} + \delta L_c} \right) \delta L_c \quad (3.24)$$

Compte tenu que $L_c \gg \delta L_c$, on obtient :

$$\delta L_p \approx \frac{\omega_c}{\omega_p} \left(1 - \frac{L_{34}}{L_c^{opt}} \right) \delta L_c \quad (3.25)$$

3.3.2 Efficacité de l'OPO avec et sans retour de pompe

3.3.2.1 Sans retour de pompe

À présent que nous avons déterminé les déplacements à appliquer aux miroirs pour assurer les deux conditions : coïncidence de modes et phase optimale à respecter pour obtenir un accord continu de la fréquence de l'OPO, nous pouvons, à partir du modèle continu, préciser les variations de l'efficacité lors d'un balayage en fréquence.

On considère un niveau de pompage 2 fois au dessus du seuil et on suppose dans un premier temps qu'il n'y a pas de retour de pompe ($|r_p^5| = 0$) ; la distance L_{34} est fixée à 1 mm pour le centre de la courbe de gain lors du balayage en fréquence effectué en respectant la relation 3.19 (figure 3.18).

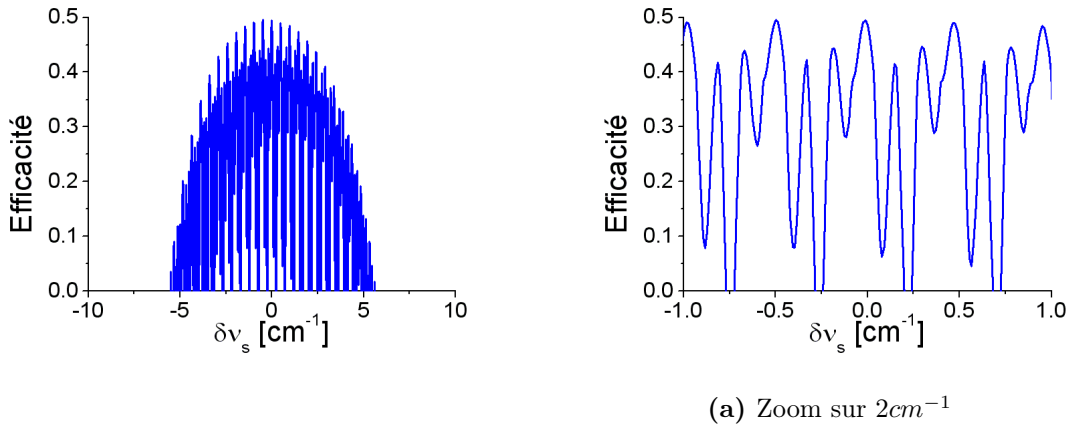


FIGURE 3.18: Efficacité du DROPO lorsque l'on déplace les miroirs M_1 et M_4 , en respectant la relation 3.19, de manière à balayer continûment la fréquence avec $|r_p^5| = 0$

On remarque sur la figure 3.18(a) que l'efficacité du DROPO est fortement modulée. Ainsi, le zoom (figure 3.18(b)) nous permet de voir que l'efficacité s'annule tous les $0,5\text{ cm}^{-1}$. De plus, si on pompait un peu moins fort, d'autres modulations de l'efficacité retomberaient également à zéro. Pour comprendre pourquoi l'efficacité est si fortement modulée, on trace le déphasage

accumulé par les trois ondes à la réflexion (figure 3.19). On s'aperçoit que le déphasage accumulé varie très rapidement. Ainsi, la conversion paramétrique au retour dans le cristal passe d'une phase constructive à une phase destructive. Ceci a lieu assez rapidement lorsque l'on change la longueur d'onde. Ces calculs illustrent la difficulté d'atteindre un accord continu de l'OPO sur un intervalle $> 0,5\text{cm}^{-1}$ en absence de retour de pompe.

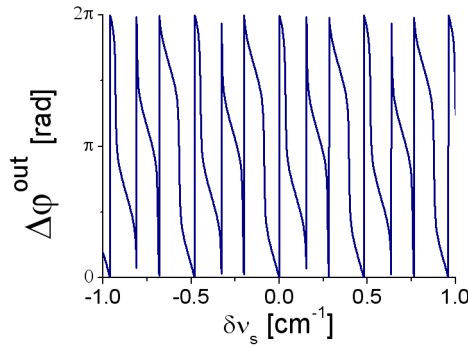


FIGURE 3.19: Déphasage accumulé par les trois ondes à la réflexion

3.3.2.2 Avec retour de pompe

On peut maintenant simuler le comportement du DROPO avec un retour de pompe contrôlé. Imposons un coefficient de retour de pompe de $|r_p^5| = 0,9$. Pour cette simulation, on utilise les déplacements des miroirs donnés par les relations 3.19 et 3.25. On pompe également deux fois au dessus du seuil et les distances sont $L_{34} = 1\text{ mm}$ et $L_{45} = 10\text{ cm}$ pour $\delta\nu_s = 0$.

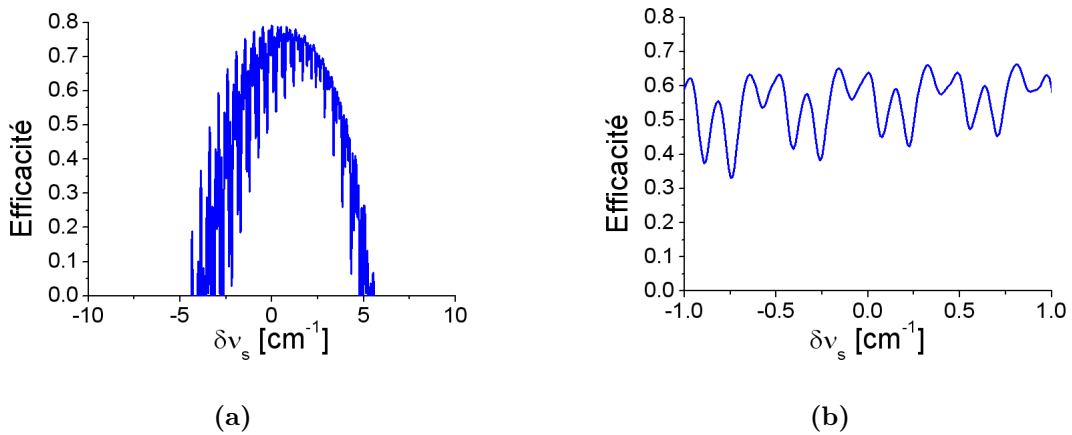
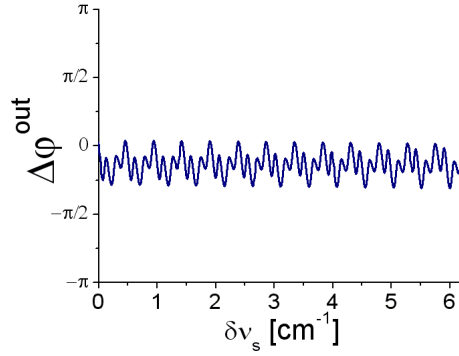


FIGURE 3.20: Efficacité du DROPO lorsque l'on déplace les miroirs M_1 , M_4 et M_5 , conformément aux relations 3.19 et 3.25, de manière à balayer continûment la fréquence du DROPO pour $|r_p^5| = 0,9$



(a) Déphasage accumulé entre les 3 ondes à la réflexion

FIGURE 3.21: Déphasage accumulé par les trois ondes à la réflexion lorsque l'on déplace les miroirs M_1 , M_4 et M_5 conformément aux relations 3.19 et 3.25

La figure 3.20 (a) nous montre que l'ajout d'un miroir qui renvoie la pompe permet de réduire considérablement les fluctuations de l'efficacité du DROPO. Sur le zoom 3.20 (b), on observe un motif similaire à celui la courbe 3.18 (b), la différence principale étant la profondeur de la modulation. On constate d'ailleurs sur la figure 3.21 que le déphasage accumulé varie beaucoup moins que sur figure 3.19. Les fluctuations résiduelles sont, dans ce cas, provoquées par les réflexions parasites à la fréquence pompe sur les miroirs M_3 et M_4 . Il apparaît donc indispensable d'utiliser un miroir qui renvoie la pompe et qui permet de fixer la phase de la pompe au retour dans le cristal.

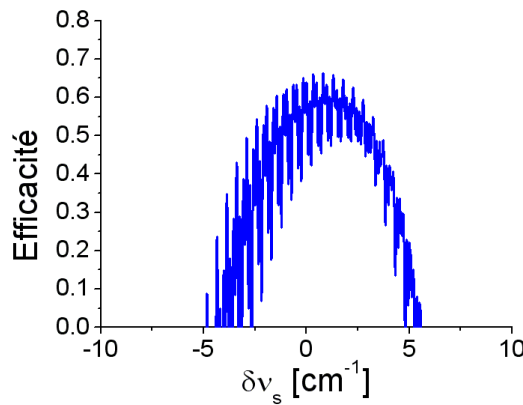
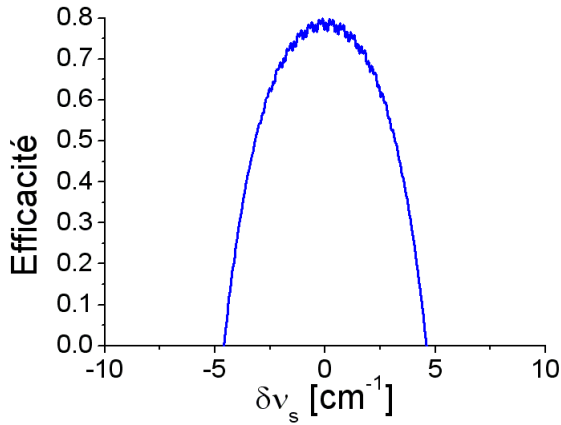


FIGURE 3.22: Comportement du DROPO lorsque l'on déplace les miroirs M_1 , M_4 et M_5 de manière à balayer continûment la fréquence du DROPO pour $|r_p^5| = 0,5$

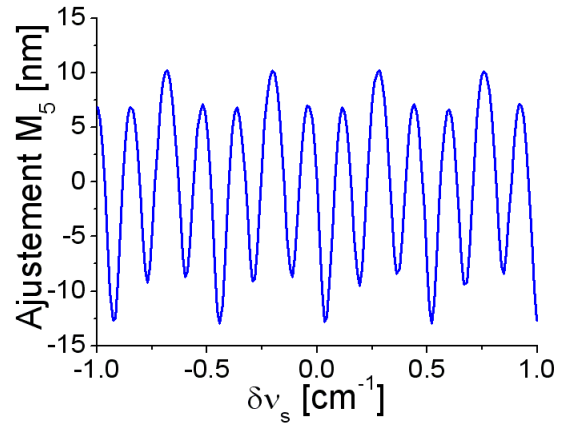
Afin de préciser l'influence de l'amplitude du renvoi de pompe, on a réalisé une simulation

pour $|r_p^5| = 0,5$. Comme le montre la figure 3.22, la zone où on peut balayer de manière continue est à peu près la même, par contre les fluctuations relatives sont plus importantes. La zone de balayage continu correspond à celle comprise entre deux annulations successives de l'efficacité de l'OPO.

Par ailleurs, on peut constater que le retour de pompe permet d'augmenter de façon significative l'efficacité de conversion du DROPO, pour un niveau de pompage identique en nombre de fois le seuil (en l'occurrence 2). Sachant que pour un retour de pompe élevé le seuil est plus faible et par conséquent le niveau de pompage absolu est également plus faible. L'efficacité passe de 0,41 lorsqu'il n'y a pas de retour de pompe (figure 3.14 (b)), à pratiquement 0,8 lorsque $|r_p^5| = 0,9$ (figure 3.20 (a)). De même, lorsque $|r_p^5| = 0,5$, le maximum de l'efficacité n'est plus que de 0,65 (figure 3.22). Il apparaît donc que le retour contrôlé de la pompe dans la cavité permet, non seulement de limiter les fluctuations de l'efficacité, mais également d'en augmenter la valeur. Dès lors, il est préférable de fixer le retour de la pompe au maximum, tout en prenant soin de ne pas dépasser le seuil de dommage des dépôts multicouches. Un autre point à considérer est l'effet du retour de pompe vers le laser : il est indispensable d'isoler la source de pompe des retours qui pourraient perturber sa stabilité, que ce soit en intensité ou en fréquence.



(a) Efficacité de l'OPO



(b) Ajustement du miroir M_5 par rapport à la consigne linéaire

FIGURE 3.23: Comportement du DROPO lorsque l'on déplace les miroirs M_1 , M_4 et M_5 de manière à balayer la fréquence du DROPO et à minimiser les fluctuations de l'efficacité

Une dernière chose que l'on peut évaluer avec la simulation est le déplacement idéal que devrait avoir le miroir de renvoi de pompe pour que $\Delta\varphi^{out}$ reste nulle lorsque que l'on déplace les miroirs M_1 et M_4 . La figure 3.23 (a) nous montre qu'il est possible de réduire pratique-

ment totalement les fluctuations de l'efficacité si on déplace le miroir M_5 de manière à annuler $\Delta\varphi^{out}$. Il est d'ailleurs logique de retrouver que les ajustements à apporter au miroir M_5 (figure 3.23 (b)) correspondent aux modulations du déphasage accumulé de la figure 3.21. Par ajustement, on entend les variations autour du déplacement prévu par l'équation 3.25. Une information importante que nous permet d'obtenir cette simulation est que le positionnement des miroirs est très sensible. En effet, comme le montre la figure 3.23 (b), les ajustements à apporter au miroir M_5 sont de l'ordre de la dizaine de nm.

3.4 Balayage continu de la fréquence de l'OPO

3.4.1 Balayage à partir d'un générateur de rampe

Dans le paragraphe 3.3, nous avons montré que l'accordabilité continue de la fréquence de l'OPO peut être obtenue, au premier ordre, en déplaçant les miroirs M_1 , M_4 et M_5 proportionnellement. Par conséquent, dans une première approche, nous avons essayé de balayer continûment la fréquence de l'OPO en appliquant trois rampes aux différentes PZT. La figure 3.24 illustre le schéma de l'expérience.

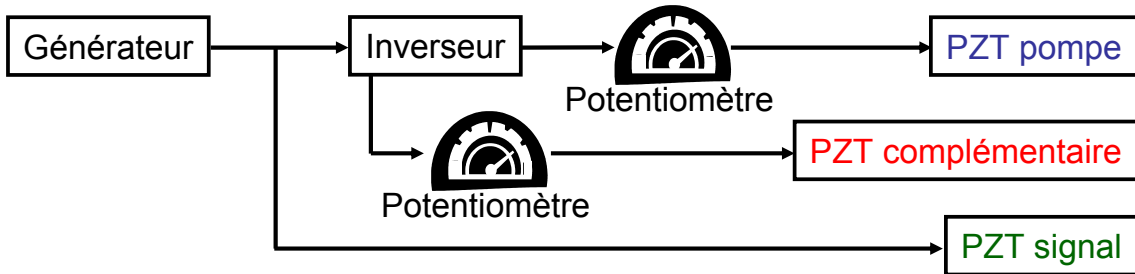


FIGURE 3.24: Schéma du balayage à partir d'un générateur

Les déplacements des miroirs M_1 , M_4 et M_5 , permettant de balayer la longueur d'onde de l'OPO sont déterminés à partir des équations 3.19 et 3.25. La mesure de la longueur d'onde de l'OPO est réalisée à l'aide du mesureur de longueur d'onde fibré décrit précédemment. Ce mesureur de longueur d'onde possède un temps d'intégration minimum de 1 ms, qui nous conduit à limiter la fréquence de balayage de l'OPO à quelques Hz. Les cales piézo-électriques que nous avons utilisées sont les S314.10 de chez PI [PI]. Leur course est de 12 μm , leur fréquence de résonance est de 4 kHz et elles sont commandées en tension de -20 à 120 V par un amplificateur E503 qui est monté dans un châssis E500. L'amplificateur E503 délivre une tension entre -20 à 120 V. Un offset peut être appliqué à la tension de sortie au moyen d'un potentiomètre.

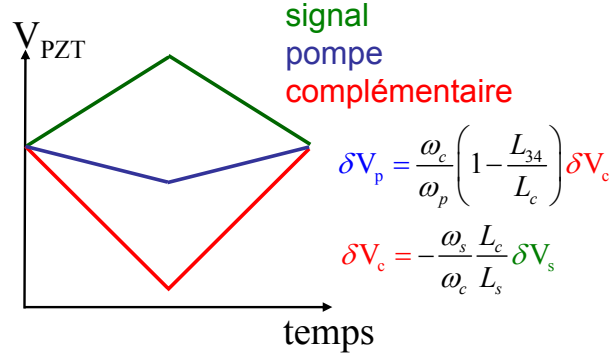


FIGURE 3.25: Principe du déplacement automatique des miroirs

Préalablement à tout balayage, on ajuste les tensions d'offset pour obtenir une coïncidence de modes signal et complémentaire et atteindre ainsi un fonctionnement monomode dont l'intensité est maximale. On impose ensuite, à l'aide du générateur, une tension sinusoïdale à la PZT complémentaire, et des tensions proportionnelles aux PZTs signal et pompe (figure 3.25). On augmente ensuite peu à peu l'amplitude de modulation de la sinusoïde tout en réajustant les rapports pour maintenir un fonctionnement monomode sur toute l'amplitude de la sinusoïde. Notons que l'optimisation de ce rapport est difficile à obtenir précisément sur la faible largeur de bande balayée, qui n'atteint ici que $0,3 \text{ cm}^{-1}$. Cette limitation s'explique par le fait qu'il faudrait appliquer des déplacements non linéaires aux PZT afin de : premièrement, annuler les réflexions parasites à la fréquence pompe qui induisent des variations du seuil de l'OPO lorsque l'on change la longueur d'onde (voir paragraphe 3.2.2) ; deuxièmement, compenser les défauts des cales piézo-électriques : non linéarité, hystérésis, vieillissement, inhomogénéités sur une série de cales.

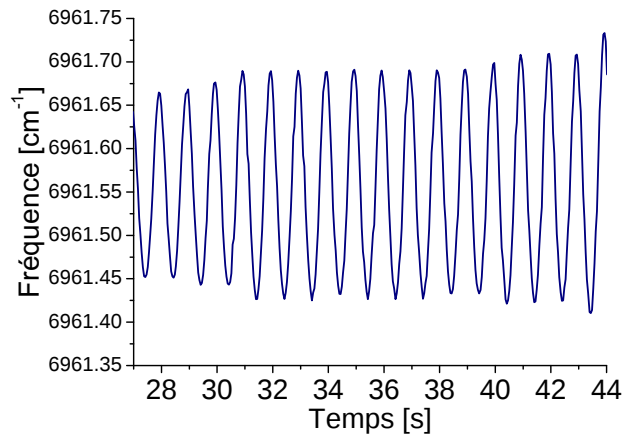


FIGURE 3.26: Balayage automatique de l'OPO

Pour augmenter les plages de balayages continus monomodes, il faut donc contrôler la position des miroirs de manière plus précise. C'est pour cette raison que nous avons mis en place un programme sous Labview qui permet de contrôler finement la position des différents miroirs.

3.4.2 Balayage contrôlé par micro-ordinateur

3.4.2.1 Méthode mixte : générateur de rampe et micro-ordinateur

Comme nous venons de le démontrer, il est indispensable d'avoir un moyen de contrôle de la bonne position des miroirs lors du balayage en fréquence. Le moyen que nous avons choisi d'utiliser est un micro Fabry-Perot fibré fonctionnant à la longueur d'onde signal qui est proche des bandes télécoms. Nous pouvons voir sur le schéma 3.27 que, puisque le miroir M_1 n'est pas parfaitement réfléchissant à la longueur d'onde signal, nous pouvons utiliser un rayonnement résiduel à cette longueur d'onde et le coupler dans le Fabry-Perot. Plusieurs informations peuvent être déduites de la réponse du Fabry-Perot. On peut savoir si le DROPO est monomode ou bien s'il y a plusieurs modes qui oscillent. Il est possible de connaître l'intensité du ou des modes. Enfin, la dernière information que l'on peut retirer est la valeur de la fréquence signal, mais uniquement de façon relative. Notons que ce Fabry-Perot a un intervalle spectral libre de 30 GHz, et que sa finesse ne nous permet pas de mesurer la largeur spectrale de la fréquence signal de l'OPO. Par ailleurs, pour connaître la fréquence signal de manière absolue, on utilise un mesureur de longueur d'onde fibré (WS6-IR [HFG]) éclairé par une autre perte à la fréquence signal, à travers le miroir M_5 .

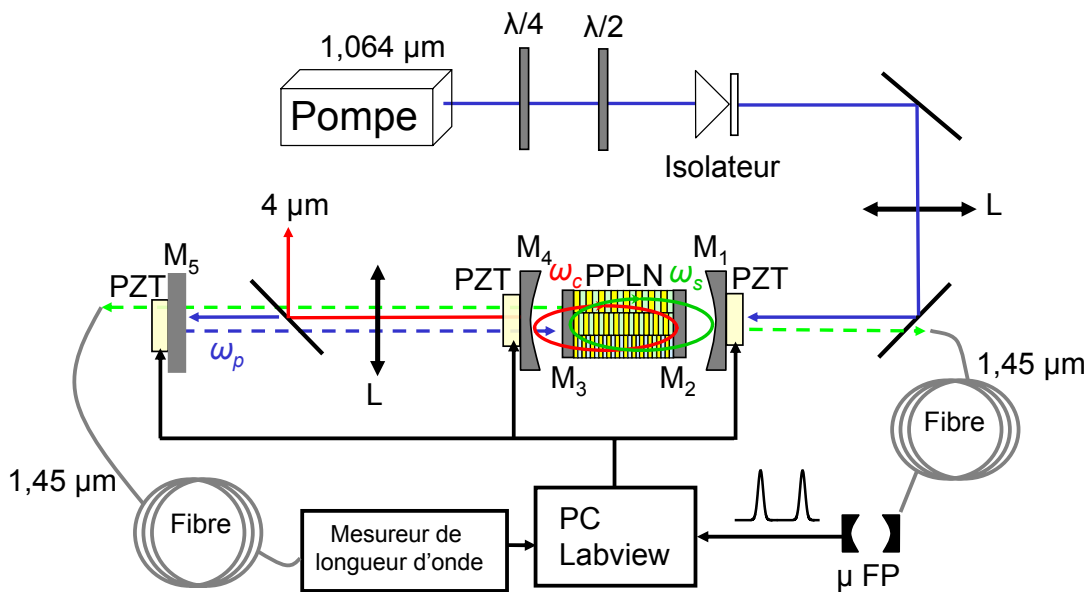


FIGURE 3.27: Montage expérimental pour le balayage en fréquence

La mise en place du programme de balayage s'est réalisée en plusieurs étapes. Avant toute chose, il a fallu déterminer quel était le bon paramètre à prendre en compte pour la contre-réaction. La première hypothèse a été de considérer l'apparition d'un mode secondaire, détecté grâce au Fabry-Perot, comme signal d'erreur. On modifie alors la position des miroirs M_4 et M_5 en fonction de l'apparition d'un deuxième mode et de son intensité, avec pour objectif de le supprimer. Mais cette technique souffre d'un inconvénient majeur : il faut attendre l'apparition d'un deuxième mode pour ajuster la position des miroirs. C'est pour cela que l'utilisation de ce signal d'erreur a été abandonnée. Le signal de contre-réaction que l'on a finalement décidé d'utiliser est l'intensité du mode principal au Fabry-Perot. En effet, si l'on optimise l'intensité du mode principal, on maximise le recouvrement du couple de modes signal et complémentaire au détriment des autres couples de modes. Ainsi, l'OPO fonctionne de façon monomode et l'intensité est optimisée. Une fois le critère de contre-réaction déterminé, il s'agit de choisir la procédure de contre-réaction.

Dans un premier temps, nous étions limités par le nombre de miroirs que nous pouvions commander à partir du micro-ordinateur, car notre carte d'acquisition ne possédait que deux sorties analogiques 0-10V. Ainsi, nous devons utiliser un générateur de signal pour commander le miroir M_1 et ajuster par ordinateur la position des deux autres miroirs M_4 et M_5 . Le désavantage de cette technique est que, lorsque l'on réajuste la position des miroirs M_4 et M_5 , le générateur poursuit sa rampe et déplace le miroir M_1 . On est donc amené à corriger en permanence les positions des miroirs M_4 et M_5 , comme on peut le voir sur le schéma 3.28. Dès lors la vitesse de balayage est très réduite. Notons qu'avec cette technique, il nous est inutile de connaître la proportionnalité, a priori, entre les déplacements des différents miroirs puisque les miroirs M_4 et M_5 oscillent en permanence autour de la position optimale, ceci en suivant les déplacements du miroir M_1 . Si on déplace les miroirs sur de grandes distances, on peut ensuite comparer les déplacements avec les prévisions pour confirmer les déplacements théoriques.

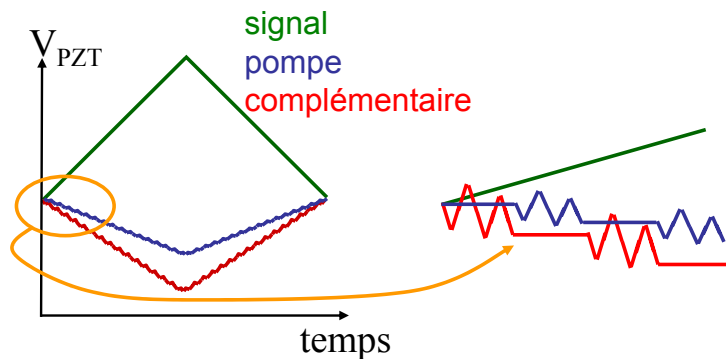


FIGURE 3.28: Principe I du déplacement des miroirs

Étant donné que nous devons optimiser les positions de deux miroirs alors que nous ne

disposons que d'un seul signal de contre-réaction, nous procédons par cycle. Nous réglons, en fonction de l'intensité du mode principal lu au Fabry-Perot, les positions des miroirs M_4 et M_5 l'une après l'autre. Pour cela, on fait osciller le miroir autour de sa position et à chaque déplacement on relève l'intensité du mode. On peut ainsi évaluer le déplacement à réaliser pour optimiser l'intensité. On effectue cette opération plusieurs fois pour un miroir avant de passer à l'autre et ainsi de suite. Lorsque l'on fait osciller un miroir, on lui applique une plus forte déviation dans le sens de déplacement déterminé les fois précédentes. Ainsi, un autre problème, provoqué par le fait que le générateur fonctionne indépendamment du contrôle de la position de deux miroirs, est que l'on ne connaît pas le moment où la pente change de sens. Dans cette procédure, un problème que l'on rencontre du fait de l'utilisation d'un générateur externe est que l'on ne connaît pas, a priori, le sens du déplacement. Ainsi, lors des changement de sens du balayage, nous devons adapter la fréquence de modulation des PZTs.

La figure 3.29 (a) montre l'enregistrement de la longueur d'onde lorsque l'on impose un signal triangulaire de $\pm 1,8$ V à 1 mHz à la PZT signal. On constate la présence de quelques sauts de modes. De plus le balayage s'est interrompu avant d'avoir fini la rampe, ceci à cause d'un saut de mode qui n'a pu être évité. On décide donc de réduire la vitesse de balayage. La figure 3.29 (b) montre l'enregistrement de la longueur d'onde lorsque l'on impose un signal triangulaire de $\pm 1,8$ V à 0,5 mHz à la PZT signal. On remarque toujours quelques sauts de modes pendant le balayage, ce qui montre que les miroirs ne sont pas toujours à la bonne position. La conséquence est qu'un autre mode s'est mis à osciller. Le balayage est tout de même répétitif, avec une variation de la fréquence de 65 GHz en 16 min. Pour la figure 3.29 (c) on a imposé un signal sinusoïdal de $\pm 0,9$ V à 0,5 mHz à la PZT signal. Il n'y a plus de saut de modes mais la plage balayée n'est plus que de 38 GHz pendant le même laps de temps.

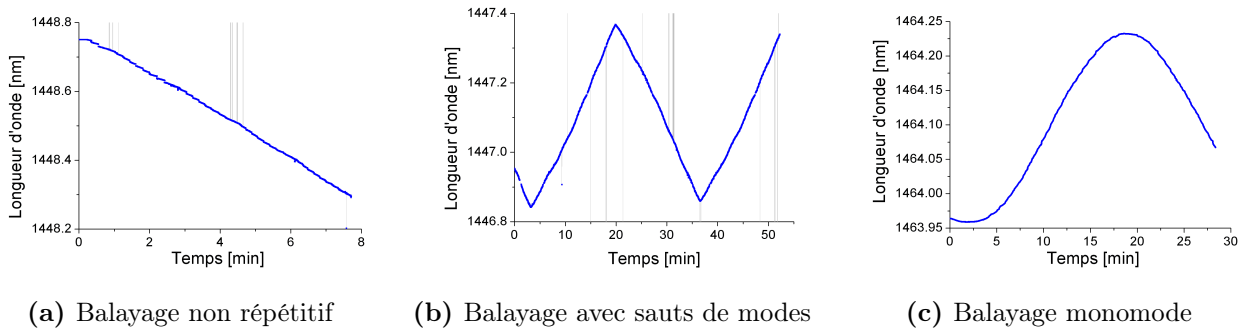


FIGURE 3.29: Longueur d'onde signal expérimentale

3.4.2.2 Balayage contrôlé entièrement par micro-ordinateur

La deuxième étape dans le développement du balayage automatique de l'OPO a été de remplacer le générateur qui commandait la PZT signal par un premier module E516. Ce module est commandé par ordinateur à l'aide d'un câble RS232, il permet de contrôler une seule voie des PZTs. Les deux autres PZTs étant toujours commandées par les sorties analogiques de la carte d'acquisition via l'offset de l'amplificateur E503. Grâce à cette modification, on a pu améliorer la technique de balayage. La figure 3.30 schématise la procédure de cette nouvelle technique.

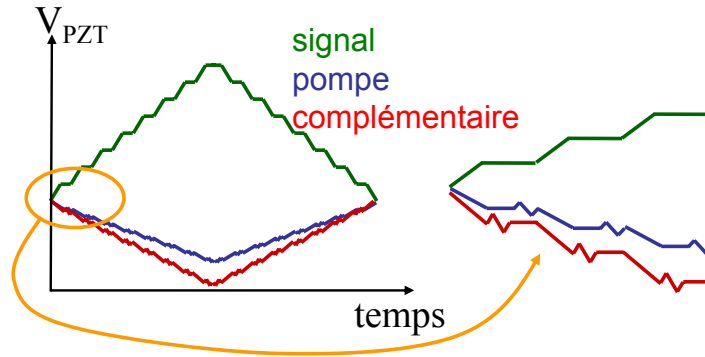


FIGURE 3.30: Principe II du déplacement des miroirs

Pour cette technique de balayage, on est amené à utiliser les équations donnant la proportionnalité, a priori, entre les déplacements des miroirs (3.19 et 3.25). Par contre, on modifie toujours la position des miroirs M_4 et M_5 en fonction de l'intensité du mode principal lu au Fabry-Perot. Le programme est repris plus en détail dans l'annexe B.

Lorsque l'on souhaite asservir, un critère important à considérer est le temps de réponse de la boucle de contre-réaction. Dans notre cas, le premier élément qui limite le temps de réponse de cette boucle est le temps de balayage du Fabry-Perot. Pour balayer un intervalle spectral libre il est de plus de 30 ms. Vient ensuite la carte d'acquisition, dont la cadence n'est que de 20 kHz (ce qui est loin d'être optimal, à l'heure actuelle). Par ailleurs, pour les expériences d'absorption, il est important de connaître la longueur d'onde. Une possibilité est de relever la longueur d'onde signal à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde. Or, le temps d'intégration de ce mesureur de longueur d'onde peut grandement réduire la vitesse de balayage. Dans notre cas, suivant l'intensité couplée dans la fibre du mesureur de longueur d'onde, le temps d'intégration peut varier de 10 ms dans de bonnes conditions, à plusieurs centaines de ms lorsque l'OPO fonctionne à des longueurs d'onde élevées. D'ailleurs lorsque l'on souhaite stabiliser la fréquence de l'OPO, comme nous le verrons dans la section 3.5, le temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde est primordial.

Si le temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde est suffisamment court, on peut observer expérimentalement les paliers provoqués par cette technique de balayage décrits sur le zoom de la figure 3.30. Sur la figure 3.31 le temps d'intégration est plus long que les modifications successives que l'on impose, mais suffisamment court pour pouvoir observer le comportement en palier. On constate également (voir figure 3.31 (a)) que la longueur d'onde varie pendant que l'on réajuste la position des miroirs complémentaire et pompe pour optimiser l'intensité du mode.

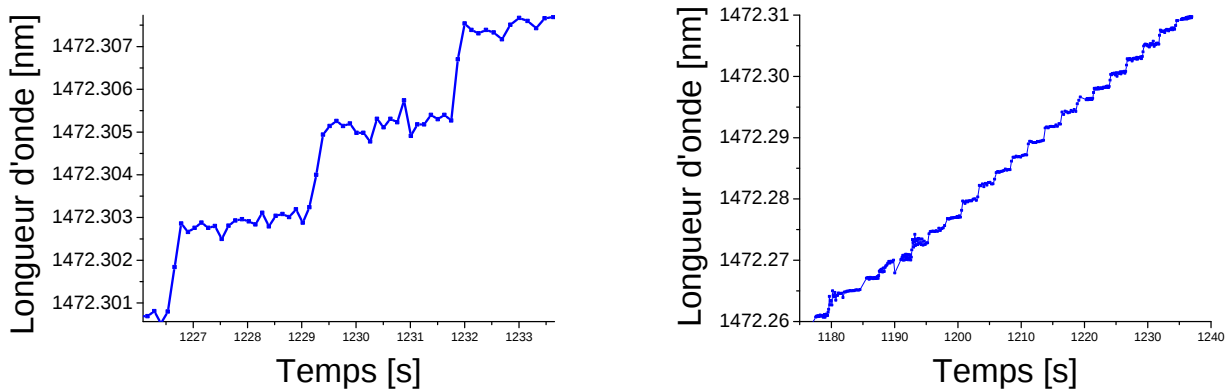
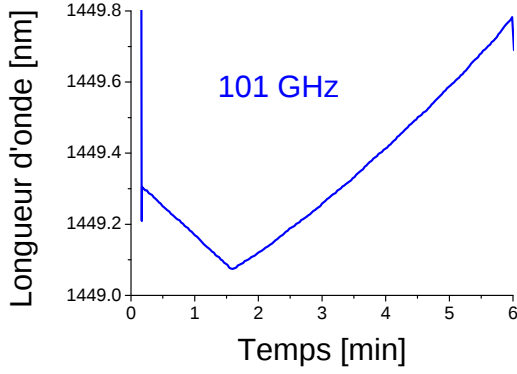
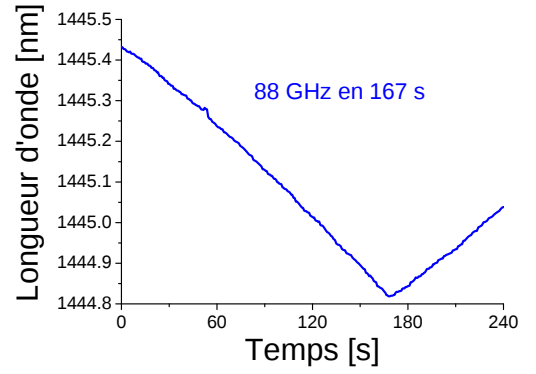


FIGURE 3.31: Longueur d'onde signal expérimentale

Les performances obtenues avec cette méthode de balayage sont illustrées sur les figures 3.32 et 3.33. Sur la figure 3.32 (a), on peut observer le balayage maximum réalisé, qui est proche du maximum possible avec les cales piézo-électriques dont nous disposons. Ces cales ont une course maximale de 12 μm pour une variation de tension de 140 V. Or, pour l'enregistrement de la figure 3.32 (a), on a fait varier la tension de la cale complémentaire, qui est celle que l'on doit déplacer le plus, de 125 V ce qui correspond à un accord en fréquence de 101 GHz. Il serait possible de continuer le balayage en repositionnant le miroir complémentaire en début de course, afin d'obtenir une nouvelle coïncidence de modes. Ensuite, on peut reprendre le balayage continu tant que l'on se maintient dans la bande de gain paramétrique. Le balayage continu le plus rapide, sur une plage de plusieurs dizaines de GHz, que l'on a pu obtenir est représenté sur la figure 3.32 (b). On constate que les vitesses de balayage, que l'on peut atteindre avec une telle technique, sont légèrement supérieures à $0,5 \text{ GHz.s}^{-1}$. Cette vitesse est donc bien plus faible que celle que l'on peut obtenir en balayant uniquement à l'aide d'un générateur de rampe (voir figure 3.26).



(a) Balayage continu maximal pour la course des PZTs utilisées



(b) Balayage continu rapide de 88 GHz

FIGURE 3.32: Performance expérimentale en balayage continu de la longueur d'onde signal

Si on balaye avec une vitesse légèrement inférieure à la vitesse maximale, on obtient des balayages continus monomodes répétitifs sur environ 3 cm^{-1} (figure 3.33). Pour augmenter la vitesse de balayage, il faudrait diminuer le nombre d'ajustements des miroirs, réalisé en cours de balayage, le risque dans ce cas est qu'un second mode longitudinal oscille.

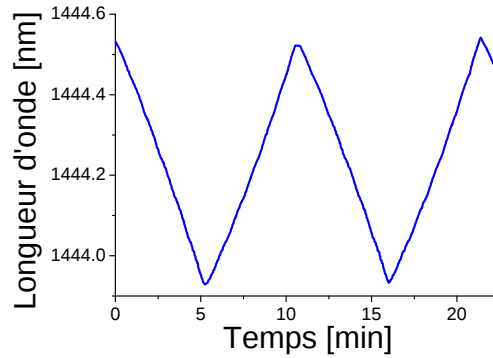
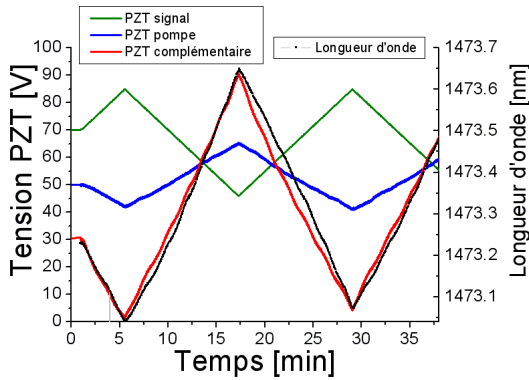


FIGURE 3.33: Courbe expérimentale d'un balayage continu répétitif sur 85 GHz

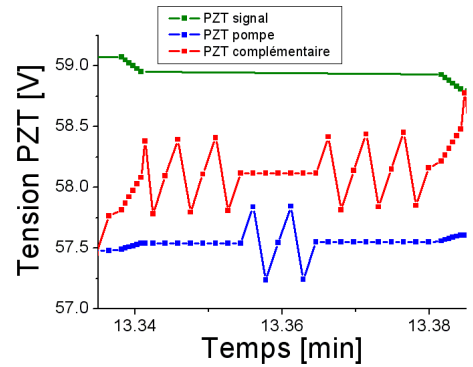
Finalement, nous avons remplacé les sorties analogiques de la carte d'acquisition qui commandaient les PZTs pompe et complémentaire par un deuxième module E516. Ce module est commandé par le micro-ordinateur à l'aide d'un câble RS232 ; il permet de contrôler les trois voies des PZTs. Cette modification simplifie le montage mais ne change pas la technique de balayage de la longueur d'onde. La plage de tension accessible est alors limitée de 0 à 100 V. Le reste de la plage n'est accessible que par l'offset que l'on ne contrôle plus avec ce nouvel arrangement.

Optimisation du déplacement des PZT

La figure 3.34 représente l'évolution expérimentale des tensions appliquées aux cales piézo-électriques au cours du balayage continu. Le zoom nous permet d'observer les deux séquences du programme de balayage. La séquence où l'on déplace les trois miroirs de façon proportionnelle suivie de la séquence, la plus coûteuse en temps, où l'on réajuste la position des miroirs pompe et complémentaire. Les déplacements linéaires s'effectuent par pas de 24 mV et avec les rapports $\frac{PZTp}{PZTc} = 0,18$ et $\frac{PZTs}{PZTc} = 0,45$, déterminés par itérations successives en partant des valeurs théoriques. On remarque que les variations des tensions appliquées lors de la phase de repositionnement sont assez élevées par rapport aux tensions de la partie linéaire, ce qui entraîne des petites variations de la longueur d'onde lors de cette phase (voir figure 3.31(a)). La figure 3.34 (a) nous montre que la variation de la longueur d'onde signal n'est pas parfaitement linéaire en fonction de la variation de la position du miroir complémentaire.



(a) Tension PZT et longueur d'onde



(b) Zoom sur la procédure de réajustement

FIGURE 3.34: Évolution expérimentale de la tension des cales piézo-électriques

Nous avons reporté sur la figure 3.35 les écarts, par rapport aux consignes triangulaires, des tensions des cales complémentaire et pompe résultant des modifications apportées aux cales pour optimiser le signal en sortie de Fabry-Perot. On constate sur cette figure que les modifications apportées à la PZT pompe suivent le même profil que les déplacements linéaires (triangulaires) de base. Cela signifie que la proportionnalité entre les déplacements des miroirs n'est pas bien réglée. Si on modifie cette proportionnalité $\frac{PZTp}{PZTc} = 0,30$, on obtient la figure 3.36 (b) où les modifications de la tension pompe ont été réduites. Par contre, on observe toujours une modulation périodique des ajustements de la tension complémentaire, à laquelle il faut rajouter une dérive plus lente (qui n'est pas corrélée avec le motif triangulaire). La modulation de la tension PZT complémentaire s'effectue avec une période de 1,97 min pendant

laquelle la fréquence de l'OPO a changé de 13,8 GHz, ce qui correspond à peu près à la fréquence d'un Fabry-Perot formé par la cavité complémentaire (longueur optique 11,5 mm). Dans ces conditions, la modulation résiduelle peut être attribuée à un effet de couplage entre les cavités signal et complémentaire.

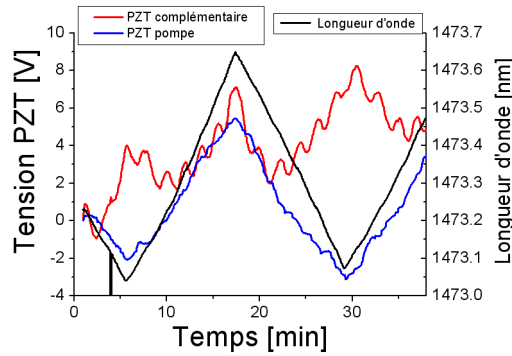
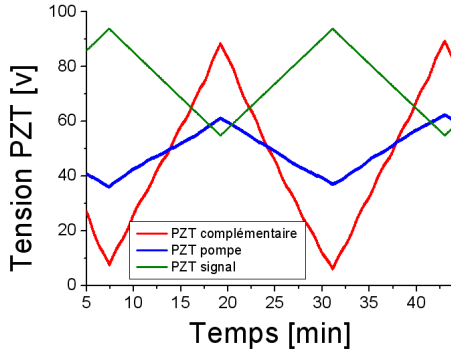


FIGURE 3.35: Représentation de l'écart des tensions des PZTs signal et complémentaire par rapport aux consignes triangulaires introduites dans le programme

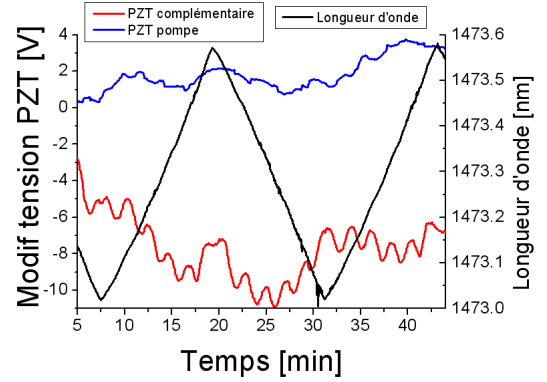
Comparons maintenant les rapports des tensions PZT expérimentales avec les rapports attendus. Pour cela on relève les extréma de la figure 3.36 (a) et on calcul les rapports entre les déplacements pour les trois portions complètes de triangle. On reporte dans le tableau 3.3 les valeurs mesurées et théoriques. On note une différence importante (30 %) entre les rapports $PZTs / PZTc$. Cet écart entre la théorie et l'expérience s'explique en grande partie par le fait que les différentes cales n'ont pas la même sensibilité en tension. Cette différence peut, en effet, aller jusqu'à 20% sur les cales que l'on a examinées. D'ailleurs, on peut remarquer, en comparant la figure 3.36 et la figure 3.37, la non-linéarité dans le déplacement des cales piézo-électriques. Ceci est frappant sur la figure 3.37 (b) où l'on voit que les modifications de la PZT complémentaire deviennent très importantes lorsque la tension de la PZT approche de la limite de 100 V. Il faut noter que le rapport $PZTs / PZTc$ est le plus sensible aux réglages lorsque l'on optimise le balayage.

Rapport des tensions	Expérimentale			Attendu
	a	b	c	
$PZTp / PZTc$	0.30	0.29	0.30	0.26
$PZTs / PZTc$	-0.48	-0.47	-0.46	-0.34

TABLEAU 3.3: Rapports entre les tensions des différentes PZTs, mesurés et attendus, sachant que les valeurs a, b et c correspondent aux trois morceaux linéaires les plus long du triangle de la figure 3.36(b)

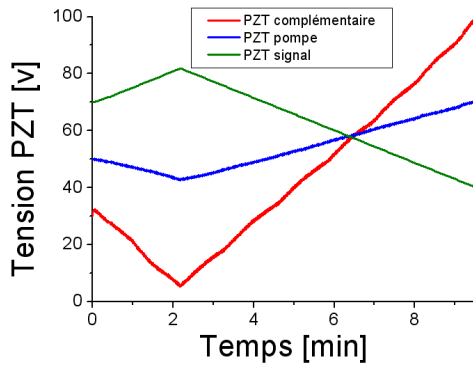


(a) Tensions des PZTs

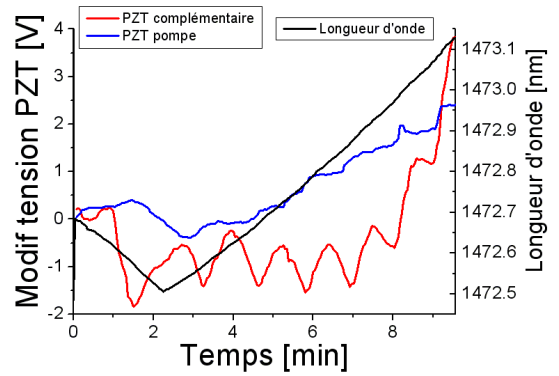


(b) Représentation des ajustements des tensions des PZTs

FIGURE 3.36: Tensions des cales piézo-électriques, après modification des proportionnalités



(a) Tension des PZTs



(b) Représentation des ajustements des tensions des PZTs

FIGURE 3.37: Ajustement au cours du balayage de la tension des cales piézo-électriques

Par ailleurs, on a constaté une évolution au cours du temps de la valeur des rapports comme le montre le tableau 3.4. On constate ainsi que la proportionnalité entre les voies pompe et complémentaire reste stable au cours du temps, par contre la proportionnalité entre les voies signal et complémentaire a beaucoup évolué.

Les ajustements réalisés sur la position des miroirs, que l'on peut voir sur la figure 3.36, nous confirment que, si on veut effectuer un balayage monomode sur de grandes plages, le déplacement proportionnel linéaire des miroirs n'est pas suffisant. De plus, on constate que les modifications appliquées ne sont pas parfaitement répétitives. Cela exclut d'enregistrer les

Rapport \ Date	février 2007	août 2007	février 2008
PZT_p / PZT_c	0.30	0.30	0.30
PZT_s / PZT_c	-0.39	-0.43	-0.47

TABLEAU 3.4: Évolution des rapports de tensions à long terme

courbes de déplacements des miroirs et de les reproduire plus rapidement pour réaliser un balayage.

3.5 La stabilisation en fréquence

3.5.1 Procédure suivie

Certaines techniques de mesures de concentration ne requièrent pas un grand balayage en longueur d'onde mais plutôt une très grande stabilité en longueur d'onde accompagnée d'une accordabilité réduite. C'est pourquoi nous nous sommes également attachés à contrôler la stabilité en longueur d'onde de notre OPO. Le programme que nous avons utilisé est une extension du programme qui nous sert à balayer la longueur d'onde (voir annexe B).

Pour atteindre une longueur d'onde prédéterminée, on procède en plusieurs étapes. La première étape consiste à positionner le cristal sur le bon réseau à partir des courbes de la figure 1.8, puis de régler la température du four pour se placer grossièrement à la longueur d'onde voulue, toujours à partir de cette même figure. La zone spectrale que l'on peut couvrir avec un réseau est de l'ordre de 100 nm. Pour une température fixée, on peut atteindre des longueurs d'onde sur une plage d'environ 6 nm. Pour le moment, ces deux étapes ne sont pas encore gérées automatiquement par ordinateur. Par contre, les étapes suivantes sont totalement pilotées par micro-ordinateur. Elles consistent, d'abord, en une série de sauts de modes pour atteindre une longueur d'onde proche à moins de 0,05 nm de la valeur finale. Ensuite, on procède en accordant la longueur d'onde de façon continue jusqu'à une longueur d'onde proche à moins de 0,002 nm de la valeur finale. Finalement, on stabilise la longueur d'onde en utilisant comme signal d'erreur l'écart entre la longueur d'onde obtenue grâce au mesureur de longueur d'onde et la longueur d'onde prédéterminée. Le signal d'erreur obtenu permet de modifier la position du miroir signal. En plus du repositionnement du miroir signal, on réajuste régulièrement la position des miroirs pompe et complémentaire à l'aide du signal obtenu au Fabry-Perot pour optimiser l'intensité du mode. L'ajustement de l'intervalle de temps entre deux mesures du Fabry-Perot est un paramètre important. Ainsi, si on ne réajuste pas régulièrement la position des miroirs complémentaire M_4 et pompe M_5 , on risque l'apparition d'un mode secondaire.

Par contre, si on effectue trop régulièrement ces réajustements, la boucle de rétroaction sur le miroir signal sera ralentie et la stabilisation fréquentielle sera moins bonne.

Il faut noter qu'il est nécessaire d'utiliser une fibre monomode pour injecter le mesureur de longueur d'onde, car nous avons constaté que la longueur d'onde obtenue au mesureur de longueur d'onde est bruitée avec une fibre multimode. Par ailleurs, il faut rappeler que notre laser fonctionne à 8 kHz, or le temps d'intégration de chaque mesureur de longueur d'onde dont nous disposons est au minimum de 1 ms. Par conséquent, ces instruments ne sont pas en mesure de nous donner la fréquence tir à tir du rayonnement signal mais une moyenne sur plusieurs impulsions.

3.5.2 Avec un mesureur de longueur d'onde dans l'infrarouge

Dans un premier temps nous avons utilisé le mesureur de longueur d'onde fibré WS6-IR comme référence pour la longueur d'onde signal, le montage expérimental associé est représenté sur la figure 3.27.

Avant de stabiliser la longueur d'onde à une valeur fixe, on peut observer l'évolution de la longueur d'onde signal au cours du temps lorsque l'on procède uniquement à l'optimisation de l'intensité par l'intermédiaire du Fabry-Perot. La figure 3.38 nous montre que cette procédure permet de garder un fonctionnement monomode sur plusieurs heures. On observe, d'une part, une modulation de période légèrement supérieure à 10 min et, d'autre part, une légère pente pendant la première demi-heure. La période de la modulation correspond à celle des modulations de la longueur d'onde pompe, comme on peut le voir sur la figure 3.9. Ceci signifie que les modulations de la longueur d'onde pompe sont directement transmises à la longueur d'onde signal. Par contre, la pente que l'on peut observer en début de courbe semble plutôt provenir de la régulation en température du mesureur de longueur d'onde dès sa mise en fonctionnement.

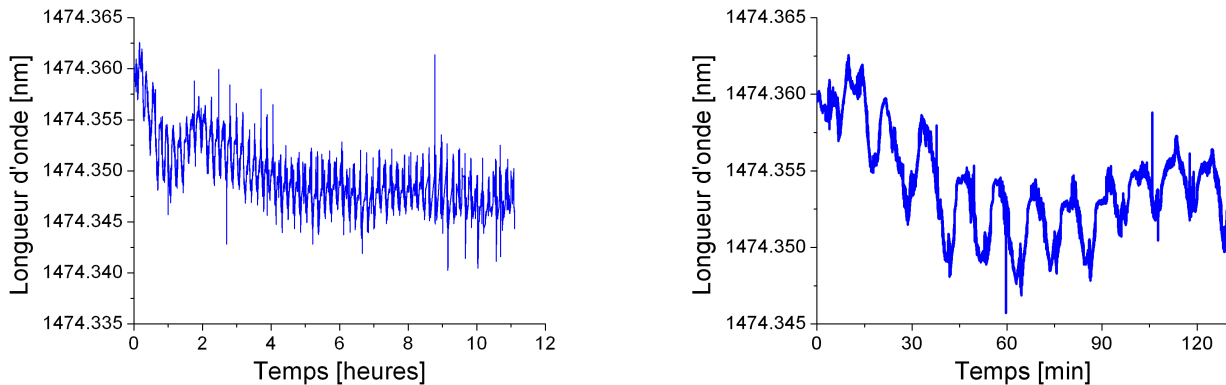


FIGURE 3.38: Courbe expérimentale de la stabilisation monomode de l'OPO

Maintenant que l'on connaît l'influence de l'optimisation de l'intensité sur la fréquence de l'OPO, on peut stabiliser cette fréquence à une valeur prédéterminée. La figure 3.39 nous montre une stabilisation de la longueur d'onde signal, autour de la valeur 1444,8644 nm, sur plus de 30 min avec un écart type de 11,5 MHz. Cette valeur est à comparer avec l'écart minimal entre deux fréquences donné par ce mesureur de longueur d'onde qui est d'approximativement 15 MHz (en fait 0,1 pm comme on peut le voir sur la figure 3.39). La courbe de la figure 3.39 a été obtenue en ajustant la position des miroirs M_4 et M_5 à chaque fois que l'on modifie la position du miroir signal M_1 . Le repositionnement du miroir signal ne se fait que toutes les 1,5 s. Sur ce laps de temps la dérive de la longueur d'onde signal est supérieure à la résolution ultime du mesureur de longueur d'onde ($\pm 0,1$ pm).

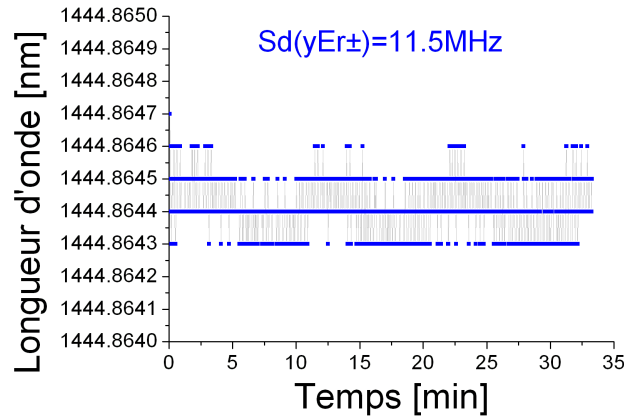


FIGURE 3.39: Courbe expérimentale de la stabilisation de la longueur d'onde signal

La figure 3.40 (a) a été réalisée pour un temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde de 88 ms. On observe sur cette figure une stabilité pendant plusieurs minutes avec un écart type de 4,7 MHz, limitée par le pas de discrétisation du mesureur de longueur d'onde. Le fait d'optimiser l'intensité moins régulièrement a donc amélioré la stabilité, par contre la durée de stabilisation a été réduite à 3 min. Sur les figures 3.40 (b) et (c) le temps d'intégration est de 63 ms, respectivement 55 ms, avec à un écart type de 8,8 MHz, respectivement 8,4 MHz. Il est difficile de tirer des conclusions sur le temps d'intégration idéal pour stabiliser la longueur d'onde de l'OPO étant donné que l'on est en limite de résolution de l'appareil de mesure.

Il faut signaler que la stabilité thermique et mécanique de l'environnement de l'OPO devient un facteur non négligeable dans les performances réalisées. De plus, la longueur d'onde choisie pour réaliser la stabilisation a également son importance. En effet, toutes les longueurs d'onde ne sont pas équivalentes, ainsi, suivant qu'elle se trouve ou non en bord de bande de gain paramétrique, les risques d'apparition d'un mode secondaire se trouvent changés. Cela change

également l'intensité émise par l'OPO et donc le temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde.

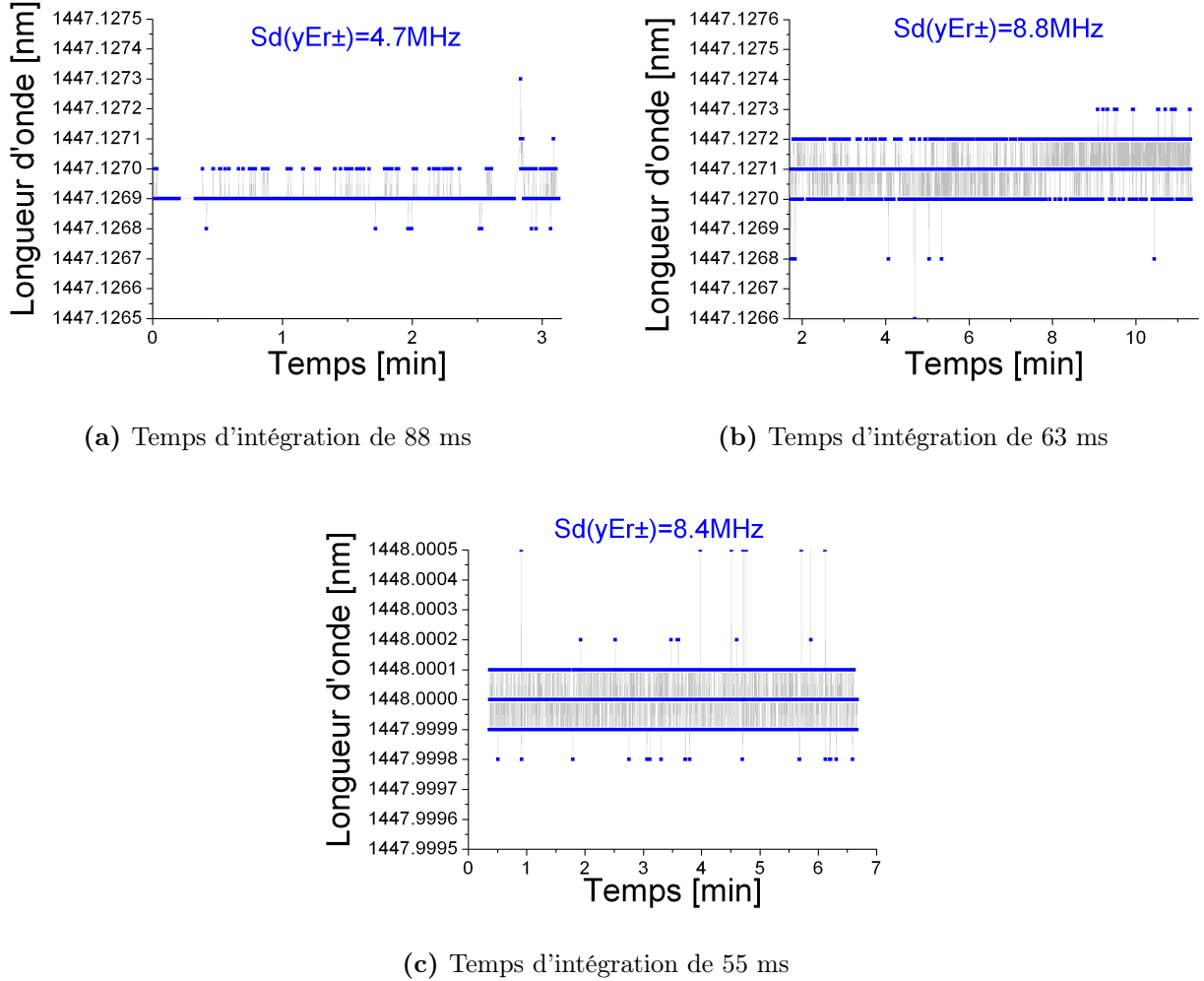


FIGURE 3.40: Stabilisation de la longueur d'onde signal pour différents temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde.

3.5.3 Avec un mesureur de longueur d'onde dans le visible

On s'aperçoit que la limitation principale à la stabilisation en longueur d'onde vient de la résolution du mesureur de longueur d'onde. Dans cette partie, nous utilisons le mesureur de longueur d'onde HighFinesse WSU-standard [HFG] dont la résolution est bien meilleure : 0,5 MHz. Ceci nous permet d'améliorer la précision sur la mesure de la longueur d'onde. Toutefois, cet appareil n'est pas sensible au delà de 1120 nm et nous choisissons d'utiliser un rayonnement parasite à 725 nm qui est émis par l'OPO. Dans le tableau 3.5 sont représentées les longueurs d'onde produites dans le cristal de PPLN. Notons que le rayonnement provenant de la fré-

quence pompe doublée (vert à 532 nm) est visible dès que le cristal est aligné avec la pompe. Par ailleurs le rayonnement provenant de la somme des fréquences pompe et signal (rouge vif à 613 nm) apparaît dès lors que la cavité est bien alignée, ce qui est fort utile lorsque l'on cherche à aligner l'OPO. Il est possible de stabiliser la longueur d'onde signal en utilisant, non plus directement la mesure de la longueur d'onde signal, mais sa fréquence doublée qui émet dans le visible à approximativement 725 nm. Ceci nous impose une modification de notre montage expérimental pour injecter cette longueur d'onde parasite dans le mesureur.

Longueur d'onde observée [nm]	Processus mis en jeu	
4000	Effet Paramétrique	$\omega_p + \omega_s \rightarrow \omega_c$
1450		$\omega_p + \omega_c \rightarrow \omega_s$
1064		ω_p
2000	Doublage de fréquence	$\omega_c + \omega_c$
725		$\omega_s + \omega_s$
532		$\omega_p + \omega_p$
840	Somme de fréquences	$\omega_p + \omega_c$
613		$\omega_p + \omega_s$
483		$\omega_s + \omega_s + \omega_s$
431		$\omega_p + \omega_s + \omega_s$

TABLEAU 3.5: Liste des différentes longueurs d'onde émises par l'OPO

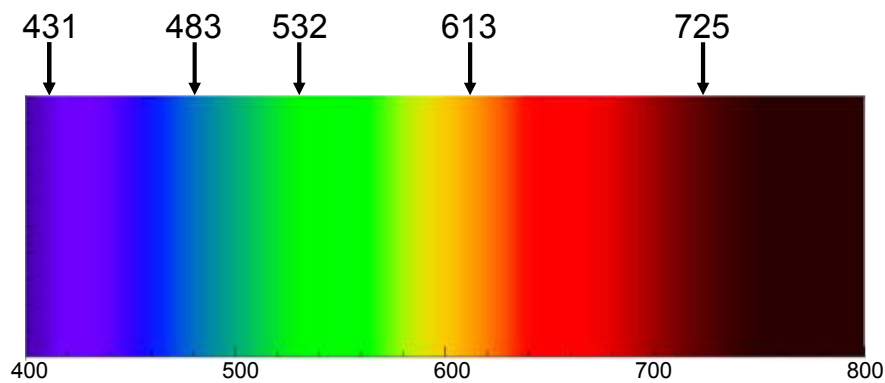


FIGURE 3.41: Diagramme illustrant les différents rayonnements visibles pouvant être émis par l'OPO

Avant d'utiliser ce nouveau mesureur de longueur d'onde, nous avons caractérisé ses performances au moyen d'une source continue verrouillée sur une transition du rubidium. Il s'agit d'un laser fibré doublé en fréquence émettant autour de 780 nm et dont la largeur de raie est de l'ordre de 10 kHz. Dans un premier temps, on a enregistré pendant 60 heures la fréquence de ce laser (voir figure 3.42). Pendant les premières 36 heures, on observe une dérive de la mesure de l'onde de 0,1 pm qui est attribuée à la thermalisation de l'instrument. La différence qui persiste entre la longueur d'onde mesurée et la transition du rubidium (780,243856 nm) peut être corrigée par calibration logicielle. On remarque sur le zoom des oscillations d'une période d'une demi-heure qui correspondent à la stabilisation en température de l'instrument à court terme. Pour connaître la sensibilité du mesureur de longueur d'onde, on module la fréquence du laser avec une amplitude crête à crête de 4 MHz. On peut observer sur figure 3.43 que le mesureur de longueur d'onde suit parfaitement ces modulations.

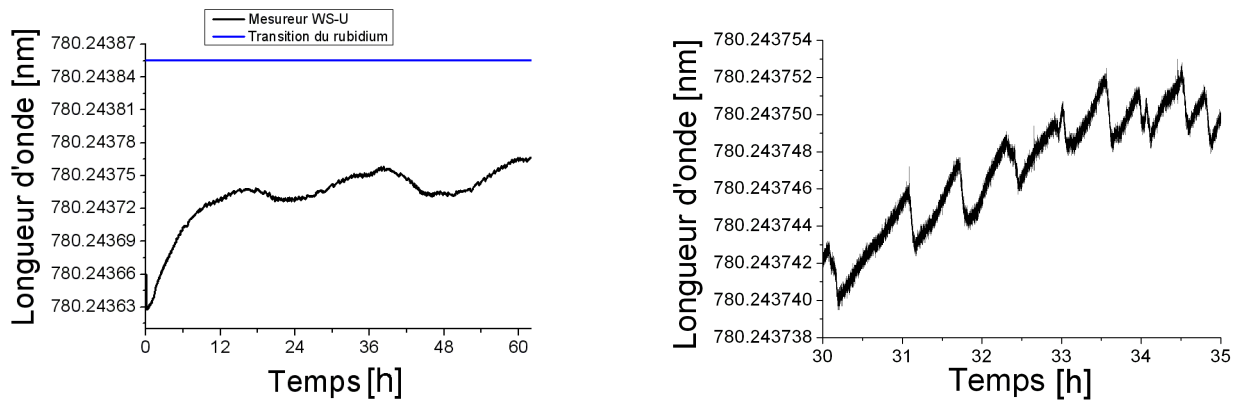


FIGURE 3.42: Caractérisation des performances du mesureur de longueur d'onde WSU

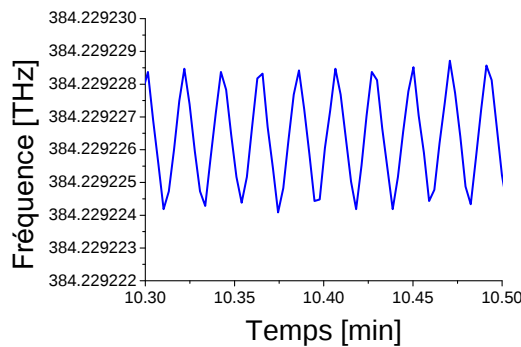


FIGURE 3.43: Enregistrement de la fréquence du second harmonique du laser fibré lorsque l'on module sa fréquence

Le nouveau montage expérimental est présenté sur la figure 3.44. Comme l'intensité maximale que l'on peut extraire à la fréquence signal doublée est située en entrée d'OPO nous avons inversé le positionnement du Fabry-Perot et du mesureur de longueur d'onde. De plus, nous avons dû ajouter un filtre en entrée de fibre du mesureur de longueur d'onde pour supprimer les autres rayonnements visibles. En effet, ces rayonnements perturbent la mesure de la longueur d'onde qui nous est utile. En dépit de toutes ces pertes, nous avons suffisamment d'intensité pour que le temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde soit de l'ordre de la dizaine de ms.

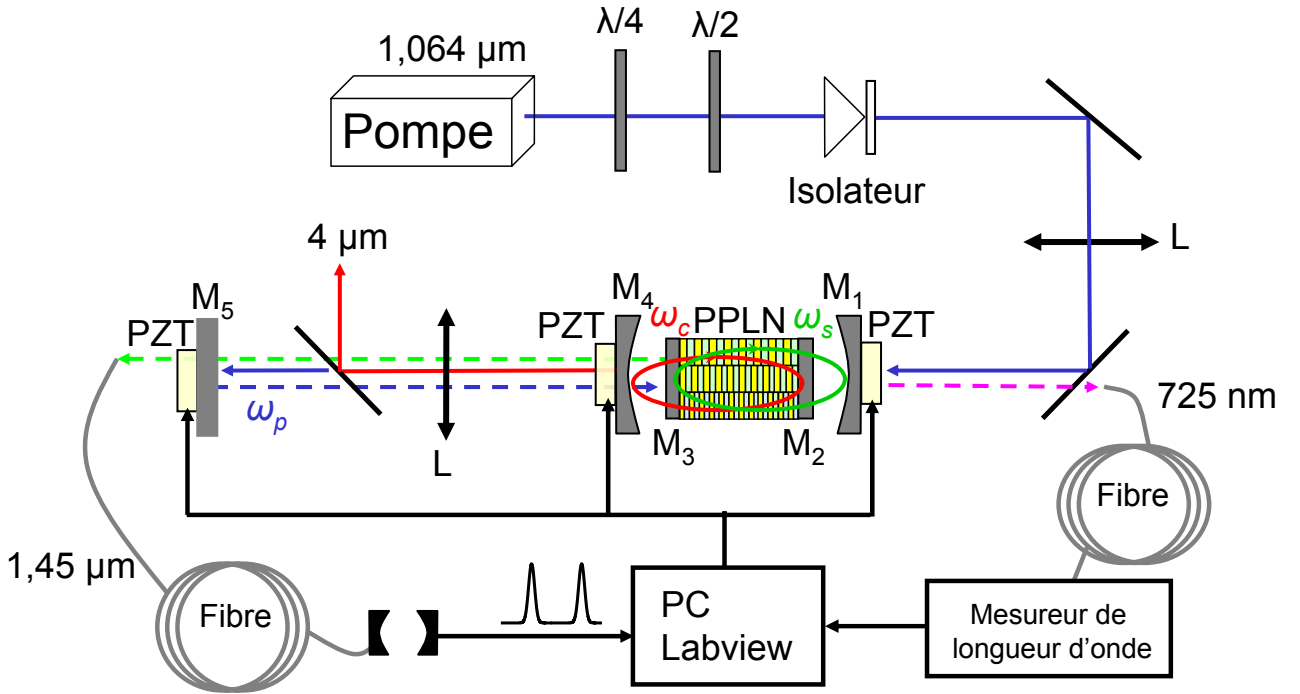


FIGURE 3.44: Différents processus paramétriques réalisés dans le cristal de PPLN

Sur la figure 3.45 on peut voir les étapes successives suivies par le programme pour atteindre la longueur d'onde souhaitée. La première étape, qui consiste en des sauts de modes, se déroule en quelques secondes selon l'écart entre la position initiale de l'OPO et la longueur d'onde à atteindre. La deuxième étape, qui consiste en un balayage continu de la longueur d'onde, se déroule en quelques dizaines de secondes. Finalement, la dernière étape est la stabilisation autour de la longueur d'onde choisie, qui est ici de 1448.0005 nm. Sachant bien sûr que cela revient dans le programme à stabiliser autour de 724.00025 nm pour la fréquence signal doublée.

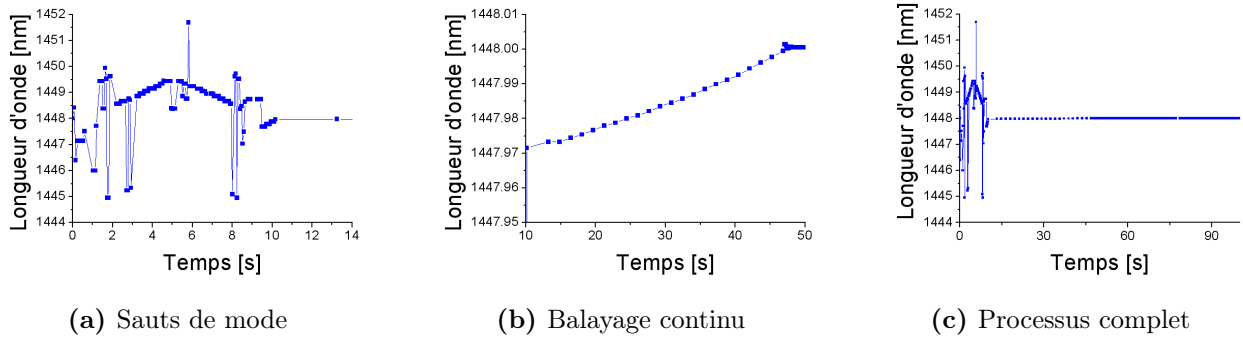


FIGURE 3.45: Détails sur les étapes successives pour atteindre la longueur d'onde signal choisie

Les performances en stabilisation que l'on a obtenues avec ce mesureur de longueur d'onde sont représentées sur la figure 3.46. Sur la figure 3.46(b), on peut observer l'amélioration dans les performances en stabilisation que l'on a pu obtenir en changeant de mesureur de longueur d'onde. On peut voir que la longueur d'onde de l'OPO stabilisée avec le mesureur de longueur d'onde ultra reste confinée dans une bande spectrale bien inférieure à la discrétisation du mesureur de longueur d'onde WS6-IR ($\pm 0,1$ pm). Par contre, on constate qu'avec cet appareil on n'est plus limité par sa résolution ultime, on observe donc les fluctuations de fréquence de l'OPO dont l'écart type mesuré est de 2,8 MHz.

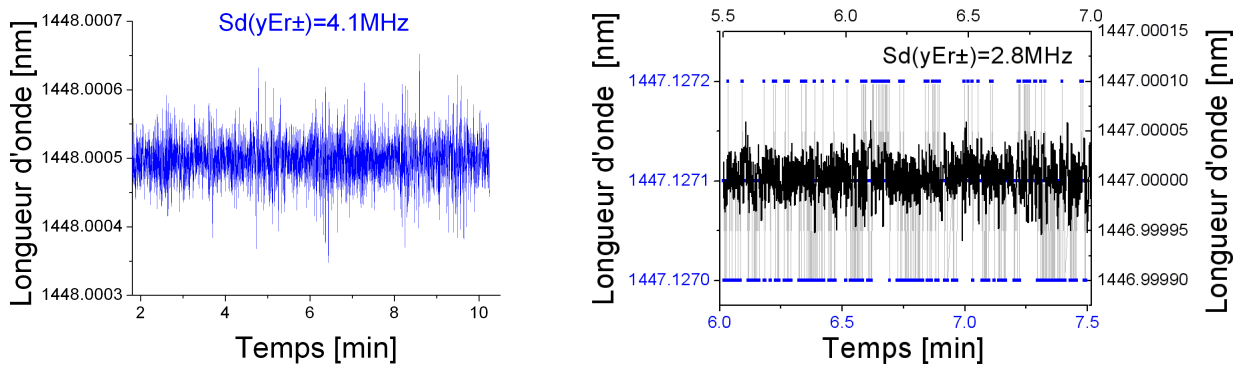


FIGURE 3.46: Stabilisation de la longueur d'onde signal avec le mesureur de longueur d'onde ultra

Il faut noter que la stabilisation de la fréquence signal est d'autant plus difficile à réaliser que la fréquence pompe fluctue dans des proportions pouvant aller jusqu'à 500 MHz. Ainsi, sur la figure 3.47, on peut observer l'enregistrement simultané des fréquences pompe et signal. Pour

réaliser cet enregistrement, on a utilisé le mesureur de longueur d'onde WS-6 pour enregistrer la fréquence pompe et le mesureur de longueur d'onde WS-U pour la fréquence signal doublée. Ensuite, on a divisé par deux l'enregistrement de la fréquence signal doublée pour représenter sur une même figure les fréquences pompe et signal. De plus, on utilise les mêmes échelles de fréquences sur le graphique afin de pouvoir comparer les fluctuations du laser de pompe et de l'OPO. Il apparaît que, malgré les fluctuations de la pompe, la fréquence signal reste stable au cours du temps. La conséquence immédiate de la stabilisation de la fréquence signal en dépit des fluctuations de la fréquence pompe, est que les fluctuations de pompe sont répercutées sur la fréquence complémentaire. On pourra voir dans le chapitre 4 les conséquences de ces fluctuations induites sur les expériences d'absorption.

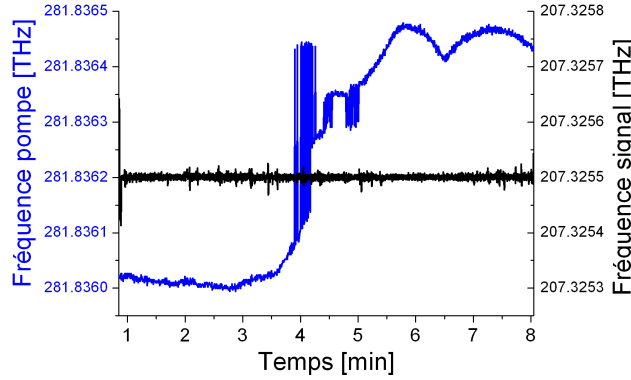
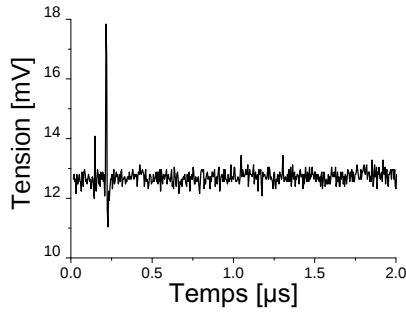
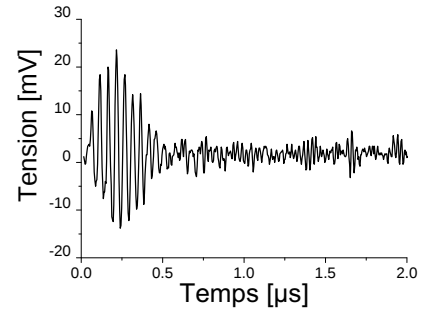


FIGURE 3.47: Comparaison entre l'évolution de la fréquence pompe (en bleu) et de la fréquence signal stabilisée (en noir)

À ce niveau, on peut s'interroger sur les causes des fluctuations de fréquence résiduelles de l'OPO. Une réponse à cette question vient des mesures de bruit réalisées sur l'alimentation des cales piézo-électriques. En mesurant le bruit en sortie de l'alimentation des cales piézo-électriques, nous avons constaté, voir figure 3.48, que le bruit de l'alimentation, en dehors du pic, est inférieur à 1 mV en l'absence de contrôleur et d'environ 5 mV avec le contrôleur. Faisons le calcul de la variation en fréquence que peut provoquer une variation de tension de 2 mV. Rappelons que pour une variation de tension de 100 V la cale se déplace de 10 μm , d'où un déplacement de 0,2 nm pour 2 mV. Cela nous donne une variation de fréquence de $\Delta\omega = \frac{\Delta L}{L}\omega \approx 4 \text{ MHz}$, sachant que la longueur de la cavité est de 11 mm. On s'aperçoit que, d'une part l'utilisation du contrôleur augmente le bruit de l'alimentation, et que d'autre part les performances en stabilisation de fréquence sont actuellement limitées par le bruit des alimentations piézo-électrique.



(a) En absence de contrôleur



(b) Avec le contrôleur

FIGURE 3.48: Bruit en sortie de l'alimentation des cales piézo-électriques

Il n'en reste pas moins vrai que les performances actuelles sont très bonnes, puisque nous sommes en mesure de stabiliser la fréquence avec une précision relative de :

$$\frac{2.8 \times 10^6}{207 \times 10^{12}} = 1,3 \times 10^{-8}$$

Cette précision relative permet de stabiliser la fréquence de l'OPO au sommet d'une raie d'absorption moléculaire.

Synthèse

Nous avons consacré une partie de ce chapitre à la modélisation de notre architecture de DROPO. Dans un premier temps, grâce à une modélisation en régime continu, nous avons déterminé les causes qui limitaient le bon fonctionnement de cette architecture. Ce chapitre a ensuite porté sur les solutions apportées pour minimiser les conséquences de ces points faibles sur les performances de cette source. Puis, nous avons développé un programme d'automatisation du montage. Nous avons ainsi pu balayer la fréquence de notre source sur 100 GHz de manière continue, et ceci en moins de cinq minutes. De plus, nous sommes parvenus à stabiliser la fréquence à $\pm 2,8$ MHz pendant plus de 10 minutes à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde à haute résolution.

Chapitre 4

Application à la spectroscopie de gaz

La mathématique est une science
dangereuse : elle dévoile les supercheries
et les erreurs de calcul.

GALILEO GALILEI (GALILÉE)

Objectifs

Du chapitre 3, nous avons pu vérifier les performances en balayage de fréquence de notre système. Dans ce chapitre, nous allons utiliser cette source pour enregistrer des spectres d'absorption de différentes espèces gazeuses. Ainsi, nous mettrons en avant les qualités de finesse spectrale de l'OPO que nous avons développé. Par ailleurs, différentes approches peuvent être mises en œuvre pour l'analyse des gaz. C'est pourquoi, nous nous intéressons à deux techniques pour enregistrer des spectres d'absorption. La première méthode sera une mesure d'absorption directe à travers une cellule contenant l'espèce à analyser. La seconde méthode sera la détection photoacoustique. Cette dernière offre une grande sensibilité, mais n'est pas adaptée aux mesures à faible pression.

4.1 Mesures d'absorption

Pour évaluer les performances de notre source par l'analyse de gaz, il est nécessaire de réaliser des mesures élémentaires. Ainsi, nous avons entrepris des mesures d'absorption en enregistrant la transmission du faisceau complémentaire à travers une cellule contenant un gaz connu, à une pression déterminée. Cela nous permet, dans un premier temps, de nous concentrer sur la source. Avant de présenter les résultats obtenus et de caractériser ses performances, nous rappelons quelques notions de base de spectroscopie qui seront utiles dans la reconnaissance des spectres obtenus.

4.1.1 Niveaux d'énergie et transitions

L'énergie d'une molécule peut être décrite par la relation suivante :

$$E = E^{elec} + E^{vib} + E^{rot} \quad (4.1)$$

Le premier terme est associé au mouvement des électrons (énergie électronique), le deuxième aux oscillations effectuées par les noyaux autour de leurs positions d'équilibre (énergie de vibration) et le dernier à la rotation d'ensemble de la molécule (énergie de rotation). Ainsi, les transitions entre les différents états d'énergie conduisent à un spectre discret dont les écarts d'énergie entre les raies sont données par :

$$\Delta E = \Delta E^{elec} + \Delta E^{vib} + \Delta E^{rot} \quad (4.2)$$

De manière générale, les différents écarts d'énergie vérifient les inégalités suivantes :

$$\Delta E^{elec} \gg \Delta E^{vib} \gg \Delta E^{rot} \quad (4.3)$$

On obtient ainsi trois types de spectres que l'on peut observer dans trois domaines spectraux relativement séparés :

- spectre de rotation pure $\Delta E^{elec} = \Delta E^{vib} = 0$ observable dans le domaine micro-onde ou infrarouge lointain.
- spectre de vibration-rotation $\Delta E^{elec} = 0$ observable dans l'infrarouge.
- spectre électronique $\Delta E^{elec} \neq 0$ observable dans le visible et l'ultraviolet.

Dans cette étude, nous nous intéresserons uniquement aux spectres de vibration-rotation qui sont constitués de bandes associées chacune à une valeur de ΔE^{vib} . Chaque bande est constituée

des raies associées aux différentes valeurs de ΔE^{rot} . La position des différents niveaux d'énergie est donnée par la relation suivante :

$$E^{vib-rot} = E^{vib} + B X - D X^2 + H X^3 + L X^4 \quad \text{avec} \quad X = J(J+1) \quad (4.4)$$

où les coefficients $B, D, \dots$ ont été répertoriés pour la plupart des molécules. Par exemple la transition $(00011) \rightarrow (00001)$ du CO_2 , dont nous préciserons la dénomination dans la section suivante, possède deux branches $P(\Delta J = -1)$ et $R(\Delta J = 1)$. Les valeurs des coefficients de l'équation 4.4 pour ces deux niveaux d'énergie de vibration sont répertoriées dans le tableau 4.1.

Niveau	E^{vib}	B	D ($\times 10^{-7}$)	H ($\times 10^{-13}$)
00001	0	0,3390211817	1,33204	0,055
00011	2349,1433	0,3871414	1,33034	0,17

TABLEAU 4.1: Constantes de vibration-rotation du CO_2 (en cm^{-1})

4.1.2 Description spectroscopique des espèces analysées

Parmi les molécules ayant des raies d'absorption dans la gamme de longueurs d'onde accessibles par notre OPO, nous avons choisi les quatre espèces suivantes : CO_2 , N_2O , SO_2 et CH_4 . Ceci nous permet de démontrer que notre source est capable d'analyser diverses espèces, sans pour autant que cette étude soit exhaustive. Les données spectroscopiques sont tirées de la base de données Hitran [HIT, Rot05] et des articles de référence de cette base.

Rappelons que le nombre de modes de vibration possibles d'une molécule polyatomique se déduit du nombre de degrés de liberté de la molécule. Pour une molécule constituée de N atomes, on est amené à considérer $3N$ degrés de liberté auxquels il faut enlever 6 degrés de liberté, 3 pour la translation et 3 pour la rotation soit $3N - 6$ modes de vibration possible. Dans le cas d'une molécule linéaire, le nombre de degrés de liberté associé à la rotation n'est que de 2, on a ainsi $3N - 5$ degrés de liberté dans ce cas.

La molécule de CO_2

La molécule de CO_2 est triatomique et linéaire, elle a donc $3 \times N - 5 = 4$ modes normaux de vibration. Parmi ces modes, deux ont la même fréquence (ν_2) car ils correspondent à la même déformation dans deux directions perpendiculaires. Ces deux modes sont dit doublement dégénérés. La figure 4.1 représente les modes de vibration de la molécule de CO_2 . Notons que ν_1 est une vibration complètement symétrique, ainsi elle n'entraîne pas de variation de

moment dipolaire. Elle est donc inactive dans l'infrarouge¹. Par contre, les modes de vibration ν_2 et ν_3 entraînent une apparition d'un moment dipolaire non nul à l'extrémité de chaque vibration, alors que le moment dipolaire est nul à la position d'équilibre. Elles sont donc actives dans l'infrarouge.

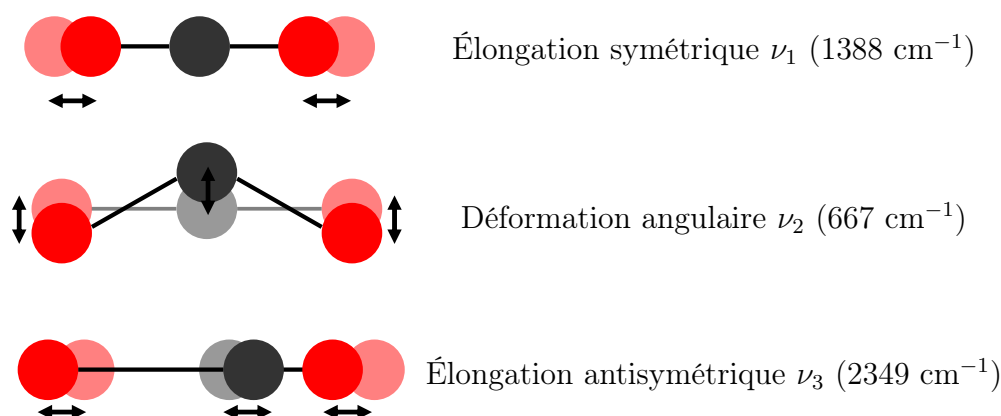


FIGURE 4.1: Modes de vibration de la molécule de CO_2

Les transitions vibrationnelles qui se situent dans la gamme de longueurs d'onde accessibles par notre OPO sont répertoriées dans le tableau 4.2. La molécule de CO_2 est décrite par les nombres $(\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3 r)$, où l_2 représente le nombre quantique rotationnel et r donne le niveau dans le groupe de résonance de Fermi. Toutes ces bandes font intervenir une transition entre différents niveaux d'excitations du mode ν_3 . Notons que les forces des raies de la bande centrée à $2429,4\text{ cm}^{-1}$ sont trop faibles pour pouvoir être détectées par une simple transmission à travers une cellule². Par contre la bande centrée à $2349,1\text{ cm}^{-1}$, faisant intervenir une transition entre le niveau fondamental et le mode normal ν_3 , a des forces de raies très intenses. Afin de ne pas absorber toute la lumière incidente et ainsi ne pas déformer l'allure des raies d'absorption, nous nous plaçons en bord de bande de vibration où les raies sont moins intenses. C'est pour cela que, comme nous le verrons dans la sections 4.1.4, nous avons balayé la fréquence complémentaire de notre OPO entre 2380 et 2390 cm^{-1} . Par ailleurs, nous avons reporté dans le tableau 4.3 les différents isotopes du CO_2 . La force de raie intense de certaines transitions du CO_2 nous permet de mesurer la présence d'isotopes dont l'abondance relative est faible.

1. Par contre, elle a une activité Raman

2. Sauf si on utilise une cellule multipassage

Centre de la bande (cm ⁻¹)	Niveau supérieur $\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3 r$	Niveau inférieur $\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3 r$	ν_{min} (cm ⁻¹)	ν_{max} (cm ⁻¹)
2311,7	0 1 1 2 1	0 1 1 1 1	2246	2350
2324,1	0 2 2 1 1	0 2 2 0 1	2227	2371
2324,2	0 0 0 2 1	0 0 0 1 1	2244	2366
2326,6	1 0 0 1 1	1 0 0 0 1	2231	2372
2327,4	1 0 0 1 2	1 0 0 0 2	2231	2374
2336,6	0 1 1 1 1	0 1 1 0 1	2227	2384
2349,1	0 0 0 1 1	0 0 0 0 1	2230	2397
2429,4	1 0 0 1 1	1 0 0 0 2	2364	2467

TABLEAU 4.2: Bandes du ¹²C¹⁶O₂ accessibles par notre OPO [HIT]

Isotopologue (AFGL, notation) ^a	Abondance naturelle relative
[¹² C ¹⁶ O ₂] 626	0,98420
[¹³ C ¹⁶ O ₂] 636	0,01106
[¹⁶ O ¹² C ¹⁸ O] 628	0,0039471
[¹⁶ O ¹² C ¹⁷ O] 627	0,000734
[¹⁶ O ¹³ C ¹⁸ O] 638	0,00004434
[¹⁶ O ¹³ C ¹⁷ O] 637	0,00000825
[¹⁸ O ¹² C ¹⁸ O] 828	0,0000039573
[¹⁷ O ¹² C ¹⁸ O] 728	0,00000147

TABLEAU 4.3: Abondance naturelle relative des isotopes du CO₂

^a. AFGL : Air Force Geophysics Laboratory

La molécule de N₂O

La molécule de N₂O est également linéaire, elle a donc le même nombre de modes normaux de vibration que la molécule de CO₂. Leurs valeurs sont reportées dans le tableau 4.4.

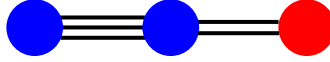


FIGURE 4.2: La molécule de N_2O

ν_1	Élongation symétrique	1285 cm^{-1}
ν_2	Déformation angulaire	589 cm^{-1}
ν_3	Élongation antisymétrique	2224 cm^{-1}

TABLEAU 4.4: Modes de vibration de la molécule de N_2O

Contrairement à la molécule de CO_2 , la vibration ν_1 est active dans l'infrarouge, car la molécule de N_2O n'est pas complètement symétrique (voir figure 4.2). Les niveaux d'énergie de la molécule de N_2O sont représentés par : $(\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3)$. La transition dont la bande a les forces de raies les plus élevées est la suivante : $(0001) \rightarrow (0000)$. Elle correspond à la transition entre le mode fondamental et le mode normal de vibration ν_3 . Malheureusement, cette transition se situe aux alentours de $4,5 \mu\text{m}$, elle est donc difficilement accessible avec notre OPO. Les transitions qui nous ont intéressés lors de cette étude, c'est à dire entre 2553 et 2569 cm^{-1} , sont répertoriées dans le tableau 4.6. Les deux lignes en bleu correspondent aux transitions dont les forces de raies sont les plus élevées. On remarquera la présence de plusieurs isotopes dont les abondances naturelles relatives sont répertoriées dans le tableau 4.6. Nous verrons dans la section 4.1.4.2 que, dans la zone étudiée, nous avons été capables de détecter les trois isotopes les plus abondants, malgré la faible concentration relative de deux d'entre eux.

Isotopologue (AFGL, notation)	Abondance naturelle relative
446	0,9903
456	0,0036
546	0,0036
448	0,0020
447	0,0004

TABLEAU 4.5: Abondance naturelle relative des isotopes du N_2O

Centre de la bande (cm ⁻¹)	Isotope (AFGL)	Niveau supérieur $\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3$	Niveau inférieur $\nu_1 \nu_2 l_2 \nu_3$	ν_{min} (cm ⁻¹)	ν_{max} (cm ⁻¹)
2524,7	447	2 0 0 0	0 0 0 0	2471	2561
2534,5	546	2 0 0 0	0 0 0 0	2470	2575
2551,5	446	3 0 0 0	1 0 0 0	2483	2594
2552,4	456	2 0 0 0	0 0 0 0	2486	2591
2563,3	446	2 0 0 0	0 0 0 0	2477	2609
2550,3	546	2 1 1 0	0 1 1 0	2501	2586
2561,5	456	2 1 1 0	0 1 1 0	2509	2596
2577,1	446	2 1 1 0	0 1 1 0	2498	2623
2580,1	446	2 2 0 0	0 2 0 0	2513	2619
2586,7	446	2 3 1 0	0 3 1 0	2537	2621
2580,1	446	2 2 2 0	0 2 2 0	2524	2629
3466,5	446	3 1 1 0	1 1 1 0	2514	2604

TABEAU 4.6: Bandes du N₂O présentes dans la zone spectrale balayée avec la technique d'absorption directe [HIT]

La molécule de SO₂

La molécule de SO₂ n'est pas linéaire, elle a donc $3 \times N - 6 = 3$ modes normaux de vibration. Aucun de ces modes n'est dégénéré et ils sont tous actifs dans l'infrarouge. Les fréquences des modes propres de la molécule de SO₂ sont répertoriées dans la figure 4.3. La zone spectrale que l'on a balayée avec notre OPO est comprise entre 2500 et 2516 cm⁻¹. Les transitions présentes dans cette région du spectre sont répertoriées dans le tableau 4.7.

Centre de la bande (cm ⁻¹)	Niveau supérieur $\nu_1 \nu_2 \nu_3$	Niveau inférieur $\nu_1 \nu_2 \nu_3$	ν_{min} (cm ⁻¹)	ν_{max} (cm ⁻¹)
2492,4	1 1 1	0 1 0	2463	2516
2499,9	1 0 1	0 0 0	2463	2527

TABEAU 4.7: Bandes du SO₂ présentes dans la zone spectrale balayée durant cette étude [HIT]

Isotopologue (AFGL, notation)	Abondance naturelle relative
626	0,94568
646	0,04195

TABLEAU 4.8: Abondance naturelle relative des isotopes du SO₂

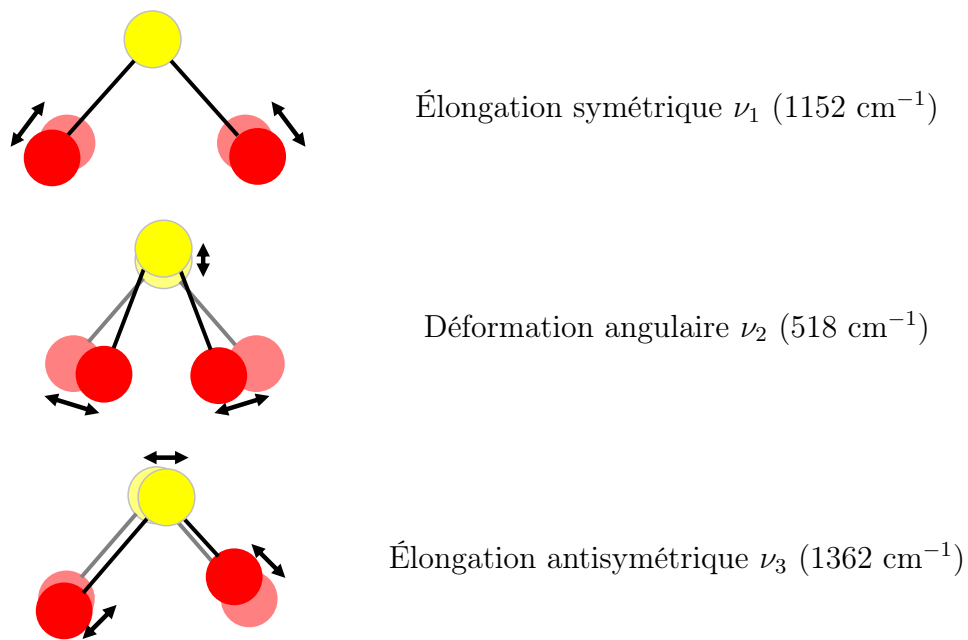


FIGURE 4.3: Modes de vibration de la molécule de SO₂

La molécule de CH₄

La molécule de CH₄ possède $3 \times N - 6 = 9$ modes normaux de vibration dont 8 sont dégénérés du fait de la symétrie élevée de la molécule. Certains modes de vibration sont inactifs dans l'infrarouge, comme on peut le voir dans le tableau 4.9. La représentation des modes propres de la molécule de CH₄ est illustrée par la figure 4.4. La zone spectrale que l'on a balayée avec notre OPO est comprise entre 2606 et 2623 cm⁻¹. Les transitions présentes dans cette région du spectre sont répertoriées dans tableau 4.10.

ν_1	Élongation symétrique	2917 cm^{-1}	Inactive dans IR	
ν_2	Déformation symétrique	1534 cm^{-1}	Inactive dans IR	Doublement dégénérée
ν_3	Élongation antisymétrique	3019 cm^{-1}		Triplement dégénérée
ν_4	Déformation antisymétrique	1306 cm^{-1}		Triplement dégénérée

TABLEAU 4.9: Modes de vibration de la molécule de CH_4

Centre de la bande (cm^{-1})	Isotope	Niveau supérieur	Niveau inférieur	ν_{min} (cm^{-1})	ν_{max} (cm^{-1})
2596	311	0 0 0 0 0 2 2 2	0 0 0 0 0 0 0 0	2461	2728
2596	211	0 0 0 0 0 2 0 2	0 0 0 0 0 0 0 0	2461	2682
2612	211	0 0 0 0 0 2 2 2	0 0 0 0 0 0 0 0	2468	2848
2830	211	0 1 1 0 0 1 1 2	0 0 0 0 0 0 0 0	2573	3168

TABLEAU 4.10: Bandes du CH_4 présentes dans la zone spectrale balayée durant cette étude [HIT]

Isotopologue (AFGL, notation)	Abondance naturelle relative
211	0,98827
311	0,01110
212	0.00061575

TABLEAU 4.11: Abondance naturelle relative des isotopes du CH_4

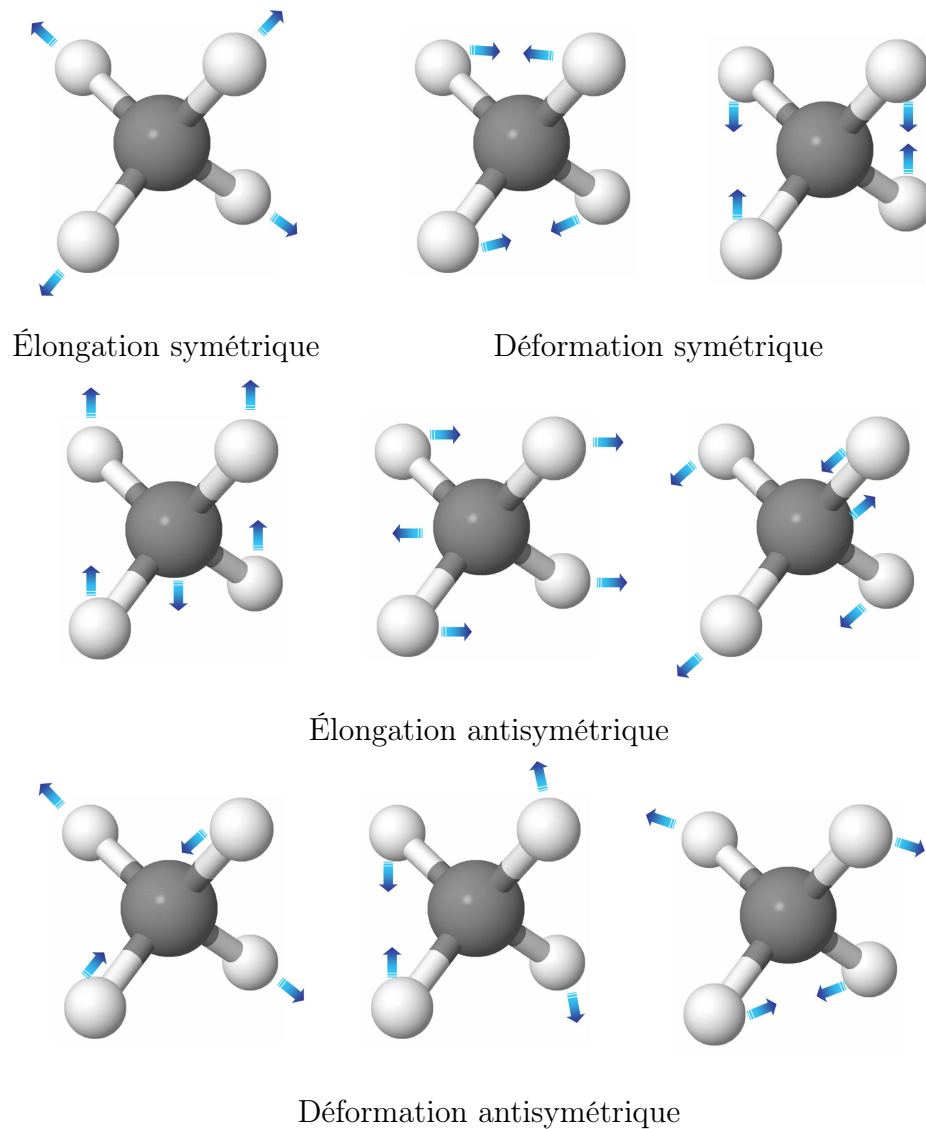


FIGURE 4.4: Représentation des modes de vibration de la molécule de CH_4

4.1.3 Profil de raie

Une fois que l'on a déterminé la position des différentes raies d'absorption d'une molécule, il nous faut évaluer la forme et l'intensité de chacune de ces raies. Pour cela, on utilise la loi de Beer-Lambert en absorption pour un milieu homogène et isotherme, ce qui nous donne la relation :

$$I(\tilde{\nu}) = I_0(\tilde{\nu}) \exp(-\tau(\tilde{\nu})) \quad (4.5)$$

où I_0 est l'intensité incidente et $\tau(\tilde{\nu})$ est l'épaisseur optique³. Pour un gaz pur à la température T , à la pression P et absorbant au voisinage d'une raie centrée en $\tilde{\nu}_{si}$, on a la relation suivante :

$$\tau(\tilde{\nu}) = \eta S_{\tilde{\nu}_{si}}^N(T) \Phi(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}, P, T) L \quad (4.6)$$

- η est la densité volumique exprimée en $[molécules.cm^{-3}]$
- $S_{\tilde{\nu}_{si}}^N$ est l'intensité de la raie exprimée en $[cm^{-1}/(molécules.cm^{-2})]$
- $\Phi(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}, P, T)$ est le profil spectral normalisé de la raie exprimée en $[cm^{-1}]$
- L est la distance parcourue exprimée en $[cm]$.

Nous rappelons ci-dessous l'expression des trois premières quantités.

La densité volumique du gaz est donnée par la relation :

$$\eta = \mathcal{L} \frac{P}{P_0} \frac{T_0}{T} \quad (4.7)$$

Avec $P_0 = 1013,25 \text{ hPa} = 1 \text{ atm}$, $T_0 = 273,15 \text{ K}$ et $\mathcal{L} = 2,6867775 \times 10^{19} \text{ molécules.cm}^{-3}$ appelé nombre de Loschmidt.

L'intensité de la raie dépend de la population de l'état quantique inférieur N_i et de la probabilité de la transition entre le niveau supérieur $|s\rangle$ et inférieur $|i\rangle$:

$$S_{\tilde{\nu}_{si}}^N(T) = \frac{1}{\eta} \frac{h \tilde{\nu}_{si}}{c} B_{si} N_i(T) \left[1 - \exp\left(-\frac{h c \tilde{\nu}_{si}}{k_B T}\right) \right] \quad (4.8)$$

$$N_i(T) = \frac{\eta g_i}{Q_{int}(T)} \exp\left(-\frac{h c E_i}{k_B T}\right) \quad (4.9)$$

Où B_{si} est le coefficient d'Einstein qui correspond à la probabilité de transition entre les niveaux $|s\rangle$ et $|i\rangle$, c la vitesse de la lumière, $k_B = 1,3806 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ la constante de Boltzmann, $h = 6,62606896 \times 10^{-34} \text{ J s}$ la constante de Planck, g_i la dégénérescence du niveau inférieur et Q_{int} est la fonction de partition interne totale. Lors de cette étude, nous avons utilisé les intensités de raies provenant de la base de donnée Hitran [HIT]. Ces coefficients sont donnés pour une température de $T_{ref} = 296 \text{ K}$, ce qui correspond approximativement à la température de nos mesures. Pour obtenir l'intensité de raie à une autre température, on utilise la relation suivante :

$$S_{\tilde{\nu}_{si}}^N(T) = S_{ref} \frac{Q_{int}(T_{ref})}{Q_{int}(T)} \frac{T_{ref}}{T} \frac{\left[1 - \exp\left(-\frac{h c \tilde{\nu}_{si}}{k_B T}\right) \right]}{\left[1 - \exp\left(-\frac{h c \tilde{\nu}_{si}}{k_B T_{ref}}\right) \right]} \exp\left(-\frac{h c E_i}{k_B} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right) \quad (4.10)$$

3. $\tilde{\nu}$ est exprimé en cm^{-1}

Le profil spectral normalisé de la raie dépend de trois processus. Le premier est l'élargissement, dit naturel, qui conduit à la largeur spectrale minimale de la raie. Hormis le niveau fondamental ("métastable"), chaque niveau d'énergie a une durée de vie donnée par la relation :

$$\frac{1}{\tau_s} = \gamma_s^{rad} = \sum_{j=1}^n A_{sj} \quad (4.11)$$

où A_{sj} est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée et n est le nombre total de niveaux vers lesquels le niveau d'énergie s peut se désexciter. Si maintenant on introduit γ^{rad} qui représente l'élargissement radiatif (ou naturel) de la transition on a :

$$\gamma^{rad} = \gamma_s^{rad} + \gamma_i^{rad} \quad (4.12)$$

$$\Delta \tilde{\nu}_{si}^{nat} = \frac{1}{2\pi c} \gamma^{rad} \quad (4.13)$$

$$= \frac{1}{2\pi c} \left(\sum_j A_{sj} + \sum_l A_{il} \right) \quad (4.14)$$

Notons que $\Delta \tilde{\nu}_{si}^{nat}$ est proportionnelle au cube de la fréquence ce qui induit des élargissements pour des niveaux électroniques d'environ 30 MHz, pour des niveaux vibrationnels de 3 à 20 MHz et pour des niveaux rotationnels de 10^{-4} à 10^{-5} Hz. Ainsi pour les transitions rovibrationnelles, ces élargissements naturels sont négligeables devant les autres élargissements (collisionnel et Doppler) qui sont de l'ordre de la centaine de MHz. L'élargissement naturel sera donc négligé par la suite.

Le deuxième processus qui provoque un élargissement spectral est lié à la désexcitation des niveaux d'énergie par collisions⁴. On obtient ainsi une durée de vie collisionnelle (ou non radiative) :

$$\frac{1}{T_1^s} = \gamma_s^{coll} \quad (4.15)$$

Ce processus de désexcitation par collision conduit à un élargissement homogène de la raie dont le profil spectral est donné par une fonction de Lorentz :

4. collisions dans un gaz, transfert d'énergie aux phonons dans un solide

$$\Phi^L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}) = \frac{\Delta \tilde{\nu}_{si}^L}{\pi \left[(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si})^2 + (\Delta \tilde{\nu}_{si}^L)^2 \right]} \quad (4.16)$$

$$\text{où} \quad \Delta \tilde{\nu}_{si}^L = \frac{1}{2\pi c} \left[\frac{1}{T_1^s} + \frac{1}{T_1^i} \right] \quad (4.17)$$

Cet élargissement fait intervenir les collisions entre molécules, ainsi, dans le cas d'un mélange gazeux, il faut tenir compte des différentes espèces moléculaires et leurs pressions relatives. Considérons une raie de la molécule A et les molécules perturbatrices B_j , cela nous donne :

$$\gamma^L = \gamma_{A-A} P_A + \sum_j \gamma_{A-B_j} P_{B_j} \quad (4.18)$$

Typiquement $\gamma_{A-air} \sim 0,1 \text{ cm}^{-1} \text{ atm}^{-1}$. Par ailleurs, il faut également tenir compte de la dépendance en température :

$$\gamma_{A-air}(T) = \gamma_{A-air}(T_{ref}) \left(\frac{T_{ref}}{T} \right)^f \quad (4.19)$$

Sachant que f varie selon les espèces et qu'il est habituellement $\sim 0,7$. Le temps entre deux collisions étant plus court lorsque la pression est élevée, l'élargissement collisionnel est majoritaire dans ces conditions.

Lorsque la pression est basse (quelques centaines de Pascal), l'élargissement qui devient majoritaire est l'élargissement Doppler. Il est provoqué par le troisième processus qui est à prendre en compte du fait du mouvement des molécules. Dans le référentiel de la molécule, les molécules ne "voient" pas la fréquence de la source mais une fréquence décalée :

$$\tilde{\nu}_{si} = \tilde{\nu} - \frac{1}{2\pi c} \vec{k} \cdot \vec{v} = \tilde{\nu} - \frac{k v_z}{2\pi c} \quad (4.20)$$

$$k = 2\pi \tilde{\nu}_{si} \quad (4.21)$$

Ce qui nous donne :

$$v_z = c \frac{\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}}{\tilde{\nu}_{si}} \quad (4.22)$$

Dans un gaz à l'équilibre thermique à la température T , les molécules ont une composante v_z de vitesse donnée par la loi de probabilité de Maxwell :

$$P(v_z) dv_z = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} \exp\left(-\frac{m v_z^2}{2 k_B T}\right) dv_z \quad (4.23)$$

Si maintenant on remplace l'expression de v_z de l'équation 4.22 dans l'équation 4.23, et que l'on utilise la relation $\frac{m}{k_B} = \frac{M}{R}$, on obtient l'expression du profil spectral normalisé, dit à élargissement inhomogène, ayant la forme d'une Gaussienne :

$$\Phi^D(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}) = \frac{1}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^D} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \exp\left(-\ln(2) \left(\frac{\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^D}\right)^2\right) \quad (4.24)$$

$$\Delta\tilde{\nu}_{si}^D = \frac{\tilde{\nu}_{si}}{c} \sqrt{\frac{2 R T \ln(2)}{M}} \quad (4.25)$$

où $\Delta\tilde{\nu}_{si}^D$ est la demi-largeur à mi-hauteur en cm^{-1} , $R = 8,3144 J mol^{-1} K^{-1}$ la constante des gaz parfaits, T la température en K et M la masse molaire en kg/mol . On vient de décrire les profils spectraux pour les gaz à pression élevée ou faible, pour une pression intermédiaire le profil spectral effectif est la convolution entre ces deux profils. Cela donne un profil de Voigt :

$$\Phi^V(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi^D(x') \Phi^L(x) dx' = \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi^L(x') \Phi^D(x) dx' \quad (4.26)$$

Le profil de Voigt normalisé est donné par :

$$\begin{aligned} \Phi^V(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}) &= \frac{1}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^V} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{b}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-c^2)}{(a-c)^2 + b^2} dc \\ a &= \frac{\sqrt{\ln(2)}}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^D} (\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si}) \\ b &= \sqrt{\ln(2)} \frac{\Delta\tilde{\nu}_{si}^L}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^D} \\ c &= \frac{\sqrt{\ln(2)}}{\Delta\tilde{\nu}_{si}^D} (\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{si})' \end{aligned}$$

Maintenant que nous avons les outils nécessaires, nous pouvons calculer les spectres théoriques afin de les comparer avec nos spectres expérimentaux.

4.1.4 Résultats expérimentaux

Rappelons, dans un premier, les principaux paramètres de la source OPO à la longueur d'onde complémentaire (tableau 4.12).

Paramètres	Valeurs
Longueur d'onde	3,8 - 4,3 μm
Accordabilité continu	100 GHz
Puissance moyenne	2,5 - 7,5 mW
Cadence	7,1 kHz
Énergie par impulsion	0,35 - 1,05 μJ
Durée des impulsions	5 - 6 ns

TABLEAU 4.12: Paramètres de la source OPO

4.1.4.1 Expériences préliminaires

Suite aux différentes améliorations qui ont été apportées à la source en vue de réduire l'influence néfaste des réflexions parasites, d'une part, et de piloter automatiquement le balayage en fréquence, d'autre part, nous pouvons à présent tester les capacités de la source pour l'analyse de gaz. Afin d'évaluer les progrès réalisés sur le DROPO, nous avons jugé utile d'entreprendre les premières expériences d'absorption dans les mêmes conditions que lors du travail précédant cette étude (figure 2.9). Nous avons donc rempli la cellule avec le même gaz à la même pression, c'est à dire du N_2O à 10 hPa. De même, pour pouvoir atteindre la même zone spectrale, on a réglé l'OPO sur le premier réseau du cristal de PPLN et on a fixé sa température à 50°C . La figure 4.5 nous montre les transmissions, théorique et expérimentale, à travers une cellule de 10 cm remplie de N_2O à 10 hPa. On remarque que par rapport à la figure 2.10, la qualité de chaque raie prise individuellement est à peine meilleure, la légère amélioration vient de ce que les fluctuations du rapport entre la voie signal et référence sont un peu plus faibles. Par contre, des progrès significatifs ont été réalisés en ce qui concerne le balayage en fréquence. Les zones balayées de façon monomode sont plus grandes, la plage totale parcourue est plus grande d'un tiers, et surtout le temps mis pour réaliser ces enregistrements est beaucoup plus court, puisqu'il a été divisé par un facteur 60. On a pu enregistrer un spectre sur plus de 12 cm^{-1} (hormis une zone entre 2564 et 2565 que nous n'avons simplement pas mesurée), avec une résolution nous permettant de séparer des raies proches de moins de 500 MHz. Le fait de se mettre à basse pression permet, en effet, d'utiliser au mieux la finesse de raie de notre OPO.

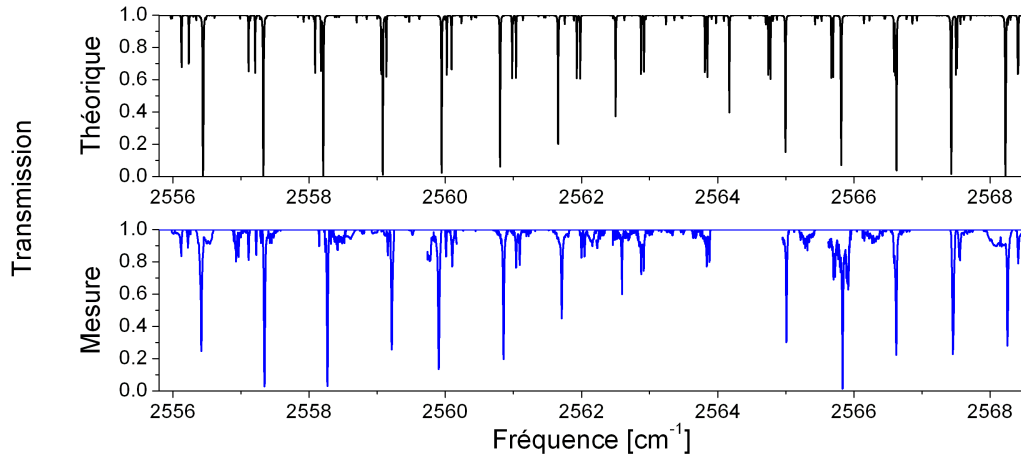


FIGURE 4.5: Raies d'absorption de N_2O à 10 hPa

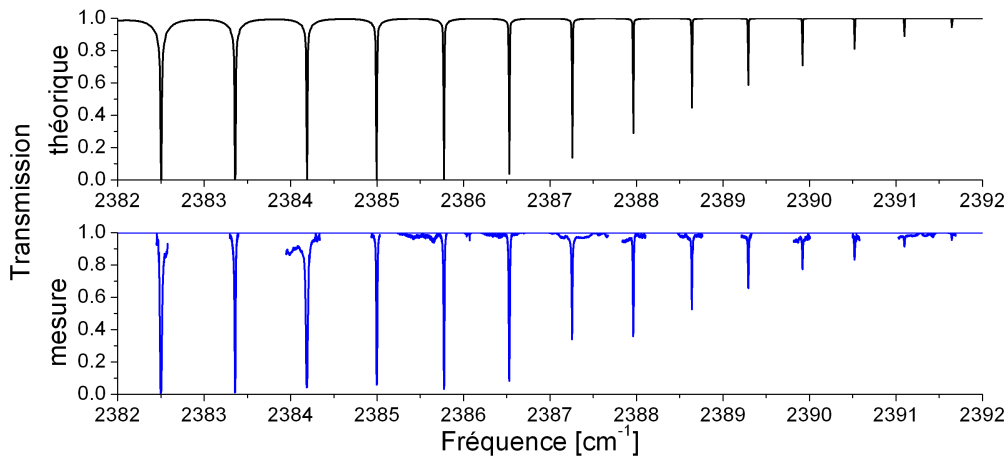


FIGURE 4.6: Raies d'absorption du CO_2 à 10 hPa

Les progrès réalisés sur le DROPO nous ont également permis d'enregistrer des spectres pour une autre espèce gazeuse, à des longueurs d'onde plus élevées. Ainsi, des mesures d'absorption ont été réalisées à travers une cellule de 10 cm remplie de CO_2 à 10 hPa. On a réglé la température du cristal de PPLN à 85°C sur le troisième réseau, de sorte que la bande paramétrique complémentaire de l'OPO soit centrée à approximativement 2385 cm^{-1} . Ceci nous permet d'atteindre le bord de la bande R de la transition $(00011) \rightarrow (00001)$. Sur la figure 4.6, on peut voir un spectre sur 10 cm^{-1} . Le spectre mesuré a été réalisé en plusieurs étapes, car

à cette longueur d'onde l'OPO fonctionnait très peu au dessus du seuil et donc le balayage sur de grandes plages de fréquences était rendu difficile. Les plages de balayage continu étaient donc inférieures à 1 cm^{-1} . Malgré cette difficulté et le fait que la normalisation en intensité peut fluctuer de 20 %, la courbe expérimentale (figure 4.6) correspond assez bien à la courbe théorique calculée à partir de la base de données Hitran. On a donc pour la première fois pu réaliser des mesures sur du CO_2 , ce qui n'avait pas pu être fait précédemment à cause du mauvais fonctionnement de l'OPO à ces longueurs d'onde.

En dépit des progrès réalisés, on constate toujours la qualité moyenne des spectres. Nous allons tenter de déterminer les causes qui peuvent expliquer ces résultats. Le montage expérimental que nous avons mis en place pour réaliser ces mesures d'absorption est représenté sur la figure 4.7.

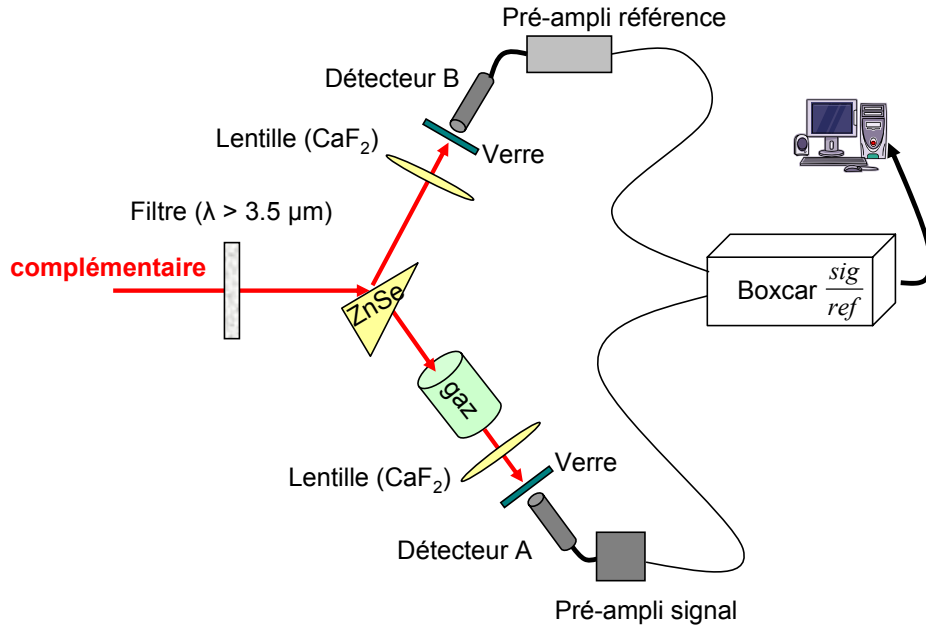
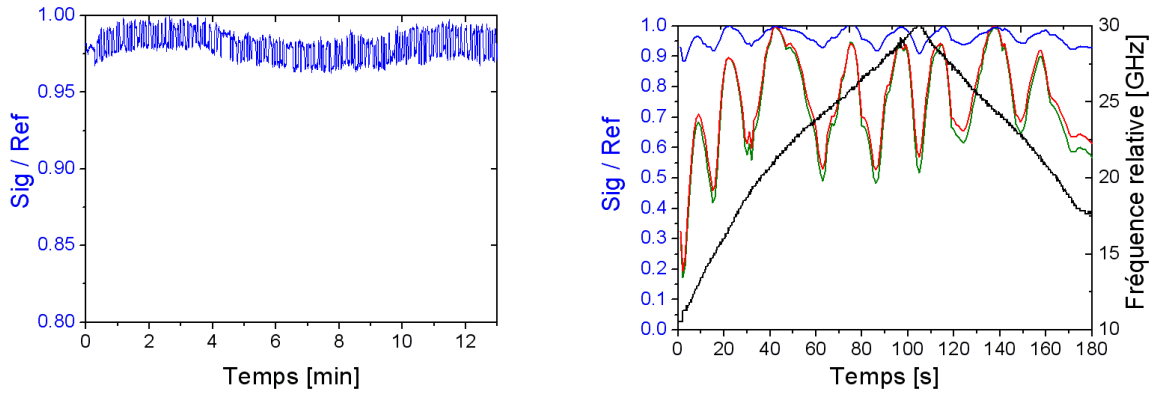


FIGURE 4.7: Premier montage expérimental pour les mesures d'absorption

Pour ne pas perturber la réponse des détecteurs par différents rayonnements parasites (tableau 3.5) produits par l'OPO, nous avons placé un filtre qui coupe toutes les fréquences inférieures à $3,5\text{ }\mu\text{m}$. Afin de s'affranchir des fluctuations d'intensité tir à tir de l'OPO, nous avons divisé le faisceau en deux voies (signal et référence) à l'aide d'un prisme en ZnSe. Ensuite, nous avons placé une lentille en CaF_2 sur chacune des voies pour focaliser les faisceaux sur les détecteurs. Les détecteurs sont des photoconducteurs de la société Vigo [VIG], ce sont des semi-conducteurs à gap variable en (HgCdZnTe) sensibles entre $2\text{ }\mu\text{m}$ et $12\text{ }\mu\text{m}$, et dont le temps de réponse est de $1\text{ à }2\text{ ns}$. Ces détecteurs ont l'avantage de fonctionner à température ambiante. Compte tenu de l'énergie de l'ordre du μJ du faisceau complémentaire, nous devons

utiliser des pré-amplificateurs pour sortir le signal du bruit. Nous avons à notre disposition deux pré-amplificateurs, le premier est un Hamamatsu C5185 et le deuxième un Judson PA300, ils amplifient le signal d'un facteur 100 à 1000. Pour éviter de saturer ces pré-amplificateurs, nous atténuons le signal optique au moyen de lames en silice placées devant chaque détecteur (voir figure 4.7). Cet arrangement implique que les détecteurs travaillent avec très peu de photons, avec pour conséquence l'augmentation de la sensibilité aux bruits des deux voies. Le signal amplifié est envoyé à un Boxcar qui permet d'intégrer le signal uniquement pendant la durée d'une impulsion et ainsi filtrer une partie du bruit de la chaîne de détection. De plus grâce au Boxcar il est possible d'intégrer plusieurs impulsions, et ainsi d'améliorer le rapport signal à bruit.



(a) Rapport sig/ref lorsque la fréquence n'est pas balayée
(b) Rapport normalisé sig/ref (bleu), intensité normalisée des voies sig et ref (rouge, vert), fréquence relative de l'OPO (noir)

FIGURE 4.8: Évolution du rapport entre les deux voies du Boxcar sig/ref (en bleu) suivant que la fréquence de l'OPO est balayée ou non

Afin de mesurer la stabilité du rapport entre les deux voies, nous retirons la cellule de gaz. Nous mesurons ainsi l'évolution du rapport $\frac{sig}{ref}$ au cours du temps. Après normalisation, on peut observer (figure 4.8(a)) que, lorsque l'on ne balaye pas la fréquence de l'OPO, le rapport entre les voies varie de 3 %, avec une variation à court terme d'un peu plus de 1 %. Cette variation à court terme peut être réduite en effectuant un moyennage sur un grand nombre d'impulsions, sachant que, pour ces courbes, le nombre d'impulsions moyennées était de 1000. Par contre, la variation du rapport atteint plus de 10 %⁵ lorsque la fréquence de l'OPO est balayée sur 20 GHz (figure 4.8(b)). On remarque que pendant ce balayage en fréquence, l'intensité en sortie d'OPO varie d'un facteur cinq, passant de 0,2 à 1. Or, les pré-amplificateurs, n'étant pas identiques, n'amplifient pas le signal dans les mêmes proportions sur une telle dynamique. On remarque

5. Ces variations dans le rapport allant parfois jusqu'à 25 %

que cette variation d'intensité est reliée à la fréquence de l'OPO, car on retrouve le même rapport lorsque l'on balaye la fréquence dans les deux sens. Il est donc important de diminuer les fluctuations d'intensité pour pouvoir limiter les variations du rapport $\frac{sig}{ref}$.

D'autres hypothèses peuvent justifier de telles variations dans le rapport $\frac{sig}{ref}$. Lorsque l'on observe le signal en sortie des pré-amplificateurs (figure 4.9), on peut noter un rebond négatif. Or, lorsque l'on intègre ces impulsions avec le Boxcar le rebond négatif perturbe la mesure. Ainsi lorsque l'on divise par deux l'intensité qui arrive sur le détecteur, l'intégrale du signal en sortie de pré-amplificateurs n'est pas divisée par deux. D'ailleurs, on peut remarquer que ce rebond, provoqué par le préamplificateur, n'a pas la même intensité sur les deux voies. Dès lors, une forte variation de l'intensité de l'OPO provoque des variations dans le rapport entre les voies.

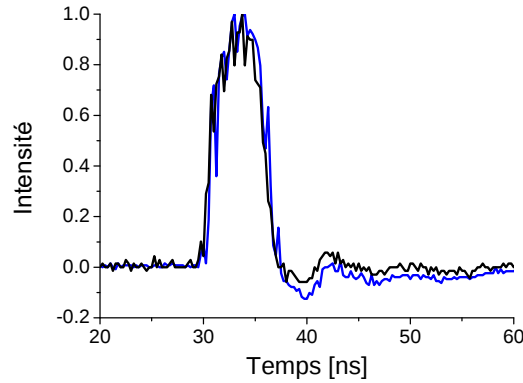


FIGURE 4.9: Signal normalisé en sortie des pré-amplificateurs (en noir détecteur A, bleu détecteur B)

Une dernière hypothèse, pour expliquer la variation du rapport, est que l'éclairement des deux détecteurs évolue au cours du balayage car la direction du faisceau change au cours du balayage en fréquence. On constate qu'avec de telles variations dans le rapport $\frac{sig}{ref}$, les mesures d'absorption que l'on pourra réaliser seront fortement modulées.

Les mesures d'absorption présentées dans cette section ont été réalisées avec la technique de balayage décrite sur la figure 3.28. On a enregistré le signal en sortie de Boxcar pendant que le miroir signal était déplacé grâce au générateur, et que les deux autres miroirs étaient ajustés avec l'ordinateur pour conserver le maximum de signal au Fabry-Perot. Pendant le balayage la longueur d'onde signal était relevée grâce au mesureur de longueur d'onde. Ensuite, on recalcule chaque mesure au Boxcar en fonction de la longueur d'onde signal mesurée. Finalement, en considérant que la fréquence pompe ne change pas au cours du balayage, on repositionne la courbe en fonction de la fréquence complémentaire.

La figure 4.10 montre les courbes expérimentale et théorique de la raie R64. Si on réalise un ajustement de la courbe expérimentale par une fonction Lorentzienne on obtient une largeur de

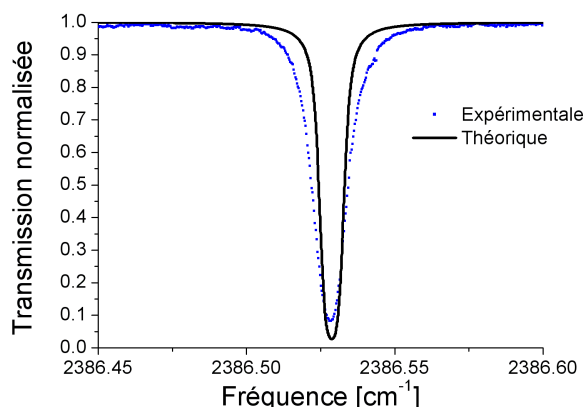


FIGURE 4.10: Raie d'absorption du CO_2 à 10 hPa

$11,6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ (348 MHz). Or, la courbe théorique nous donne une largeur de $7,3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ (219 MHz). Une hypothèse, pour expliquer la différence entre ces deux largeurs de raies, est que le balayage ne se fait pas de manière linéaire, compte tenu que les miroirs complémentaire et pompe sont déplacés en permanence autour de la position optimale. De plus, le fait que la largeur de raie d'émission ne soit pas négligeable devant les largeurs des raies d'absorption impose de convoluer le spectre théorique par la raie d'émission de l'OPO. Cela n'a pas été réalisé sur cette courbe théorique. Ceci pourrait également expliquer le fait que la profondeur de la raie d'absorption ne soit pas parfaitement rendue.

Pour améliorer la qualité de ces mesures, il semble clair qu'il faille, avant tout, régler le problème de la normalisation. Ensuite, il faut faire évoluer la technique de balayage pour ne plus moduler en permanence la position des miroirs complémentaire et pompe. En effet cela provoque une modulation de la fréquence complémentaire, qui est celle utilisée pour la mesure. Ces différentes évolutions du montage font l'objet des paragraphes suivants.

4.1.4.2 Développement du montage

Dans cette partie, nous avons non seulement changé la technique de balayage de la fréquence de l'OPO (figure 3.30) mais également modifié le montage. Le nouveau montage est représenté sur figure 4.11. La lentille de focalisation est placée sur la partie commune aux deux voies. Le prisme est remplacé par une lame à face parallèle, car malgré la présence du filtre qui coupait les fréquences parasites, une partie de l'intensité de la pompe risquait de perturber la voie référence. Toutefois une lame à face parallèle introduit de multiples réflexions qu'il faut éliminer par un diaphragme. Une amélioration importante par rapport au montage précédent vient du fait que l'on a approvisionné deux pré-amplificateurs identiques adaptés aux détecteurs.

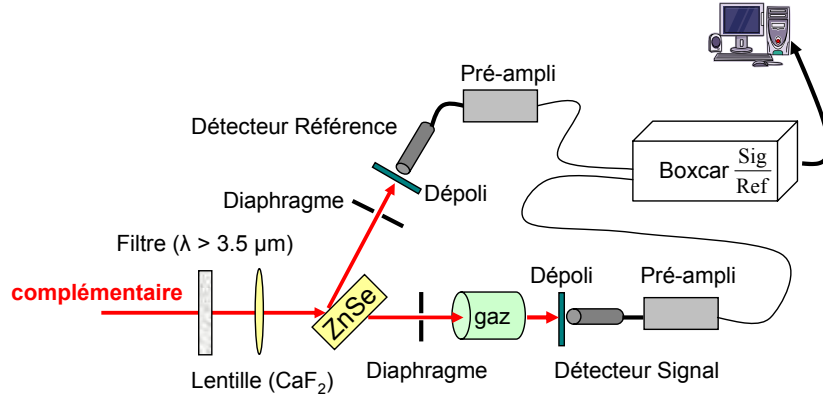


FIGURE 4.11: Deuxième montage expérimental pour les mesures d'absorption

En dépit de toutes ces modifications le rapport $\frac{sig}{ref}$ est toujours modulé d'un peu plus de 10 % lorsque l'on balaie la fréquence sur près de 80 GHz, comme on peut le voir sur la figure 4.12.

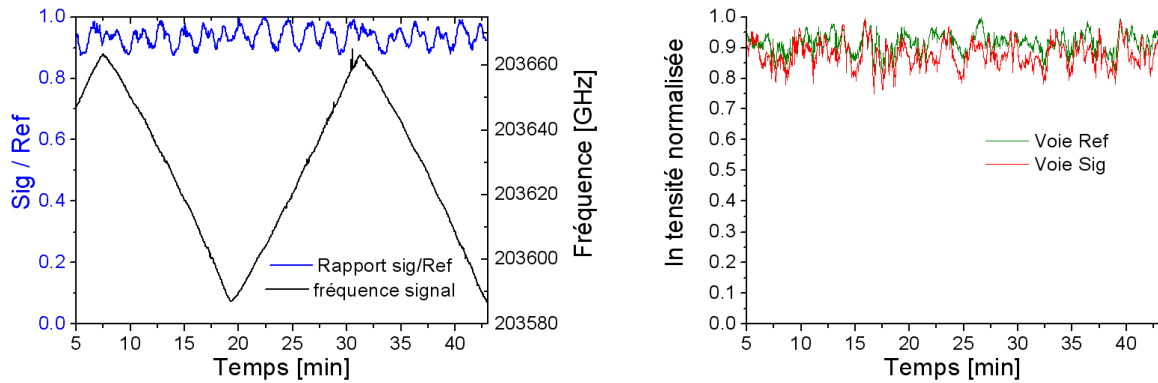


FIGURE 4.12: Évolution du rapport entre les deux voies du Boxcar

On retrouve cette modulation du rapport entre les deux voies en fonction de la fréquence de l'OPO, mais cela ne peut plus être attribué aux variations d'intensité de l'OPO. En effet, comme on peut le voir figure 4.12 l'intensité de l'OPO ne varie plus que de 20 % de la valeur maximale, en comparaison avec une variation de 80 % de la valeur maximale sur figure 4.8. Or, dans les deux situations, le rapport fluctue d'un peu plus de 10 %. De plus, chacune des voies prise indépendamment ne semble pas être modulée en fonction de la fréquence, les variations d'intensité ne sont pas reproductibles comme peut l'être le rapport. Le fait que l'intensité de l'OPO soit plus stable provient d'un meilleur réglage des cavités de l'OPO. Notons que lorsque l'OPO est parfaitement aligné, il est possible de pomper avec toute la puissance disponible et de pouvoir réaliser des balayages monomodes sur toute la plage de fréquence accessible. Ce qui n'est pas le cas lorsqu'il y a une légère imperfection d'alignement, car dans ce cas l'intensité de

l'OPO est fortement modulée et il faut diminuer la puissance de pompe pour pouvoir balayer de façon monomode.

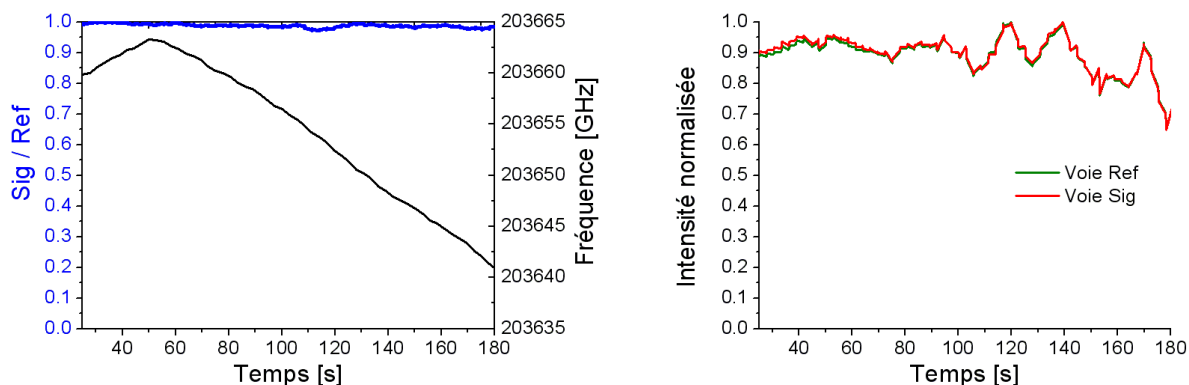


FIGURE 4.13: Évolution du rapport entre les deux voies du Boxcar avec les dépolis

Pour expliquer les fluctuations du rapport $\frac{sig}{ref}$, on s'est intéressé à la stabilité de pointé du faisceau de l'OPO en fonction de la fréquence balayé. En utilisant une caméra sensible à la longueur d'onde complémentaire, on a pu noter que la répartition de l'énergie n'était pas constante lorsque l'on balayait la fréquence de l'OPO. Notons que le faisceau reste bien monomode transverse en permanence. Cette variation de la répartition spatiale de l'énergie semble être reproductible en fonction de la fréquence de l'OPO, ce qui pourrait expliquer les modulations du rapport. Il est clair que si les cavités sont mal alignées les fluctuations spatiales sont plus grandes, mais elles n'ont pas pu être supprimées même en optimisant l'alignement. Pour résoudre cette difficulté, on a donc décidé de placer des dépolis devant les détecteurs pour diffuser le faisceau et minimiser les effets de variations spatiales de l'intensité sur les détecteurs. Cette modification du montage semble porter ses fruits comme on peut le voir sur figure 4.13. Ainsi sur un balayage de 20 GHz le rapport entre les voies fluctue de moins de 3 %, et ce malgré le fait que l'intensité de l'OPO varie de 30 % de sa valeur maximale. De plus on ne remarque plus de modulations régulières du rapport en fonction de la fréquence de l'OPO.

4.1.4.3 Spectroscopie d'absorption de quelques molécules

Après avoir réduit les fluctuations du rapport $\frac{sig}{ref}$ et modifié le balayage en longueur d'onde de l'OPO, on peut reprendre les mesures d'absorption dans les conditions expérimentales du paragraphe précédent. Nous fixons donc la température du cristal à 50°C et on règle l'OPO sur le premier réseau, on remplit ensuite la cellule avec 10 hPa de N₂O.

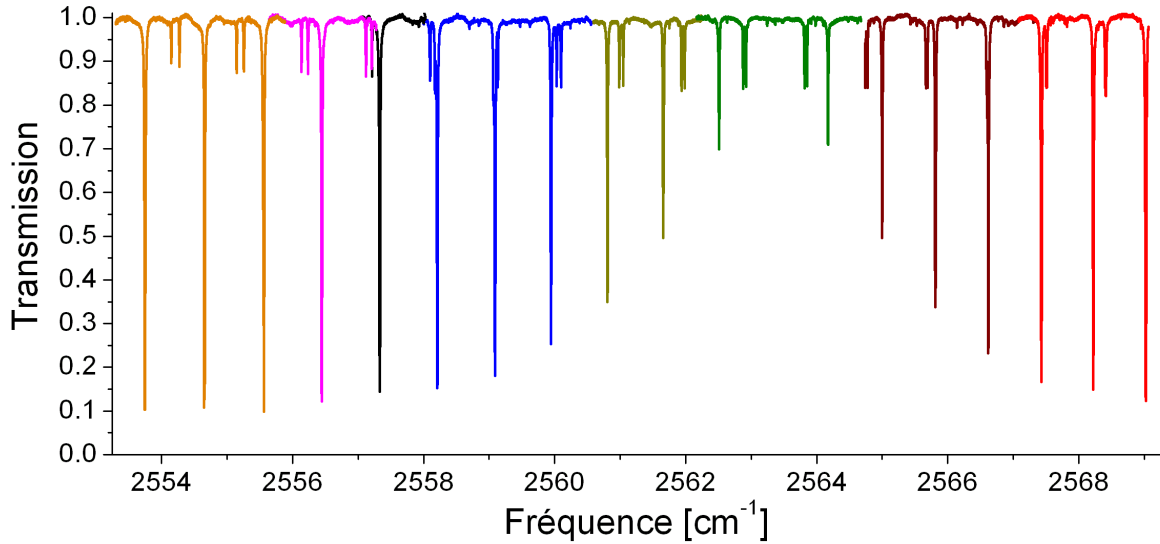


FIGURE 4.14: Raies d'absorption du N_2O à 10 hPa

Sur la figure 4.14 chaque couleur est associée à un balayage continu. On peut ainsi remarquer que les balayages continus les plus longs font plus de $2,5\text{ cm}^{-1}$. La plage totale étudiée, avec une température de cristal fixe, est de plus de 15 cm^{-1} , sachant que la bande de gain fait approximativement 25 cm^{-1} . On peut noter une nette amélioration des résultats par rapport à la courbe expérimentale de la figure 4.5. Non seulement le balayage continu de l'OPO est réalisé sur des plages plus grandes, permettant ainsi de couvrir l'ensemble d'une zone spectrale beaucoup plus rapidement, mais en plus la stabilité du rapport entre les voies au cours du balayage permet de conserver l'amplitude de l'absorption des raies les unes par rapport aux autres.

Comme on peut le constater sur la figure 4.15 les variations résiduelles de la ligne de base sont de $\pm 1\%$, tandis que le bruit à court terme est de l'ordre de $0,3\%$, ce qui permet de détecter des raies dont l'absorption est de l'ordre de $0,5\%$. En mesurant la simple transmission à travers une cellule de 10 cm à une pression de seulement 10 hPa, on a été en mesure de détecter des absorptions dont la force de raie est de $2 \cdot 10^{-23}\text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$. De plus, comme on peut le constater sur la figure 4.15, la résolution de notre système nous permet de reproduire la déformation théorique de la raie R8 provoquée par la raie R35 à cette pression. Notons que les centres de ces deux raies ne sont séparés que de 340 MHz. Dans le tableau 4.13 on peut retrouver les différentes transitions que l'on a été capable d'enregistrer et celles qui se sont révélées trop faibles pour être détectées. Précisons que sur la figure 4.5 nous n'étions capables

de détecter que les trois raies les plus intenses (P5 et P20e/f).

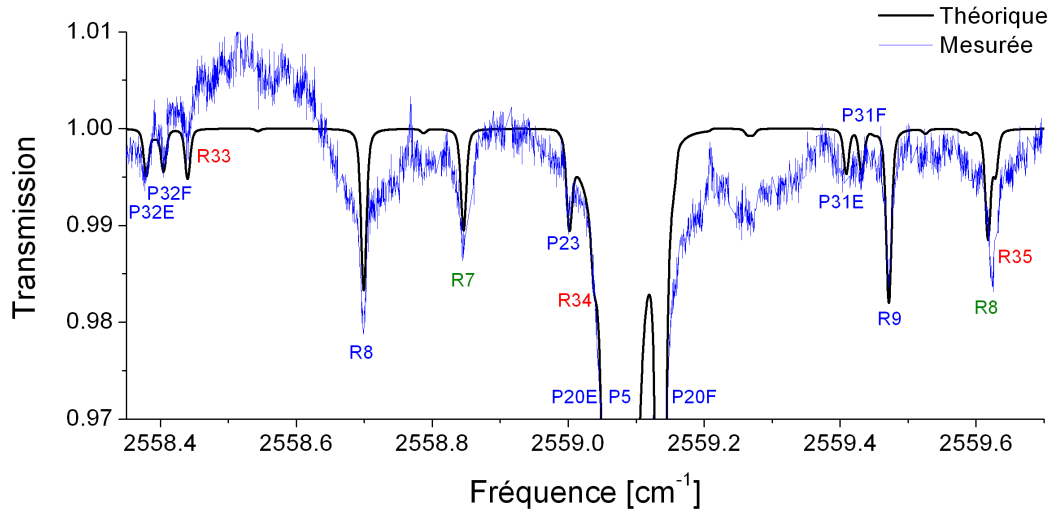


FIGURE 4.15: Zoom de la figure 4.14

Isotope / Transition	446	456	546	447
(2000) → (0000)	P5	R7 R8	R33 R34 R35	R51 R52 R53
(2110) → (0110)	P20e/f	P3e/f	R10e/f R11e/f	
(3000) → (1000)	R8 R9			
(2200) → (0200)	P23			
(2220) → (0220)	P31e/f P32e/f			
(3110) → (1110)	P9e/f P8e/f			
(2310) → (0310)	P29e/f P30e/f			

TABLEAU 4.13: Liste des raies présentes dans la zone spectrale de la figure 4.15 (en magenta les raies non détectées lors de la mesure)

Ainsi que nous l'avons rappelé dans le paragraphe 4.1.3, la forme des raies d'absorption dépend de la pression du gaz. Afin d'illustrer cet effet, nous avons enregistré des spectres de N_2O à différentes pressions : 10, 100 et 500 hPa. On constate bien l'élargissement des raies avec la pression. Lorsque la concentration est de 500 hPa, le rayonnement complémentaire est

toujours en partie absorbé dans ce domaine spectral, car les raies sont suffisamment intenses et proches les unes des autres pour se recouvrir. D'ailleurs pour une pression de 1000 hPa, on n'est en mesure de discerner que la bande $(2000) \rightarrow (0000)$ de l'isotope le plus présent, car les autres raies sont masquées.

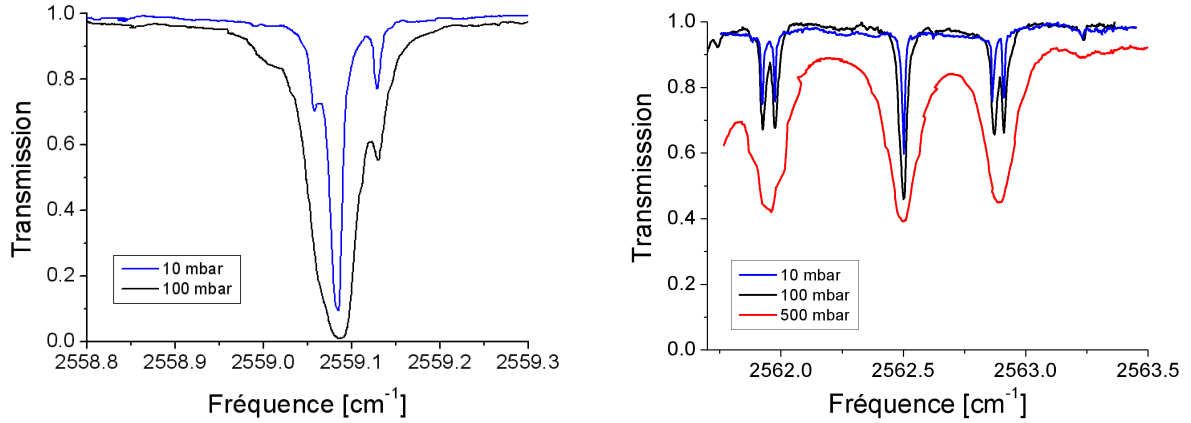


FIGURE 4.16: Raies d'absorption expérimentales du N_2O à différentes pressions

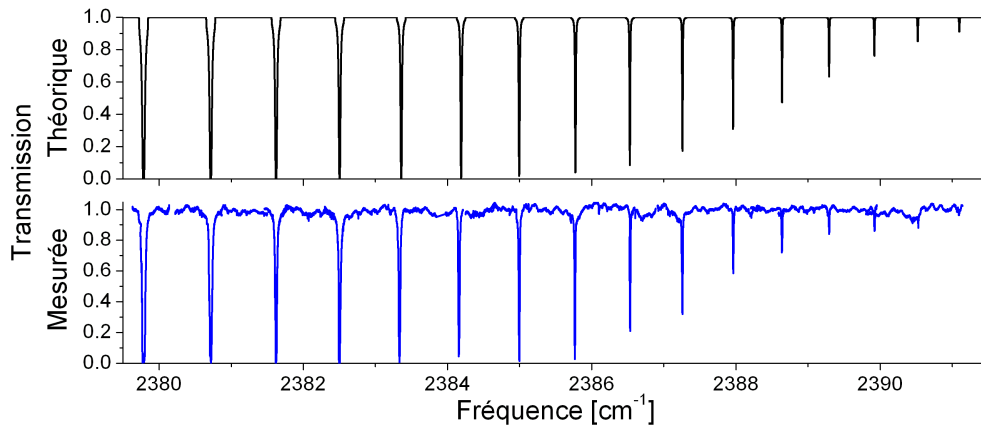


FIGURE 4.17: Raies d'absorption du CO_2 à 10 hPa

Analysons maintenant les performances du montage à une autre longueur d'onde, sur la molécule de CO_2 . On change de réseau de notre cristal de PPLN et on fixe sa température à $80^\circ C$. Les raies du CO_2 présentes dans cette région du spectre sont répertoriées dans le tableau 4.14. Les seules raies que nous avons été en mesure de détecter sont celles de la transition $(00011) \rightarrow (00001)$ qui ont des forces comprises entre 1.10^{-19} et $2.10^{-22} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$,

les autres raies ayant des forces inférieures à $4.10^{-24} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$. On note tout de même une nette amélioration de la mesure par rapport à figure 4.6 : les différents balayages continus sont maintenant réalisés sur de plus grandes plages, ce qui évite d'avoir un spectre trop morcelé ; de plus les fluctuations du rapport entre les voies sont plus faibles.

Isotope Transition	626	636	627
(00011) $\rightarrow$ (00001)	R48 R50... R76 R78		R74... R89
(01111) $\rightarrow$ (01101)	R81... R101		
(10011) $\rightarrow$ (10012)	P52 P50... P44 P42	R18 R20... R36 R38	

TABEAU 4.14: Liste des raies présentes dans la zone spectrale de la figure 4.17 (en magenta les raies non détectées lors de la mesure)

Comme nous avons pu l'indiquer en introduction générale, un des objectif que nous poursuivons est de réaliser un capteur de gaz multi-espèces. Nous avons donc également réalisé des mesures sur d'autres molécules : SO_2 et CH_4 qui présentent un intérêt en temps que gaz à effet de serre. Les résultats que l'on a obtenus sur la molécule de SO_2 sont représentés sur la figure 4.18. On a réglé notre OPO sur le deuxième réseau à une température de 120°C . On remarque le nombre très important de raies qui se recouvrent partiellement malgré la faible pression de 50 hPa. De plus l'absorption n'est au maximum que de 18 %. Néanmoins on peut observer un bon accord entre les résultats expérimentaux et théoriques, comme on peut le voir sur le zoom (figure 4.19), et ceci en dépit des fluctuations du rapport entre les deux voies qui peut atteindre ici 3 %.

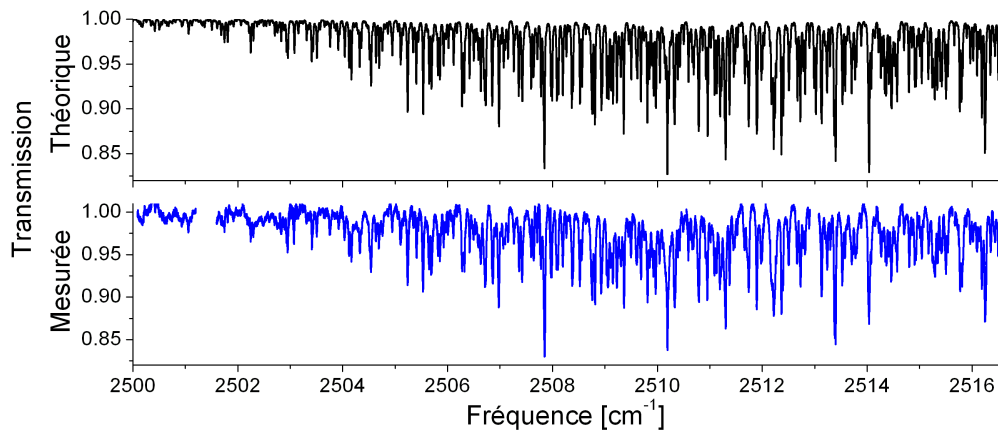


FIGURE 4.18: Raies d'absorption du SO_2 à 50 hPa

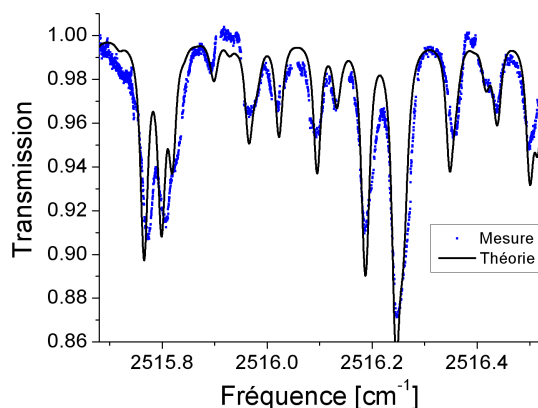


FIGURE 4.19: Zoom sur une partie de la figure 4.18

À l'opposé des courbes que l'on vient d'analyser pour le dioxyde de soufre, les résultats que l'on a obtenus pour le méthane présentent peu de raies. Pour obtenir la courbe expérimentale de la figure 4.20, on a réglé l'OPO sur le premier réseau du cristal et fixé sa température à 110°C. On observe également que nous sommes en mesure de détecter des raies dont l'intensité est d'environ $2.10^{-23} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$, car dans nos conditions expérimentales ces raies nous donnent des absorptions de l'ordre de 1 %.

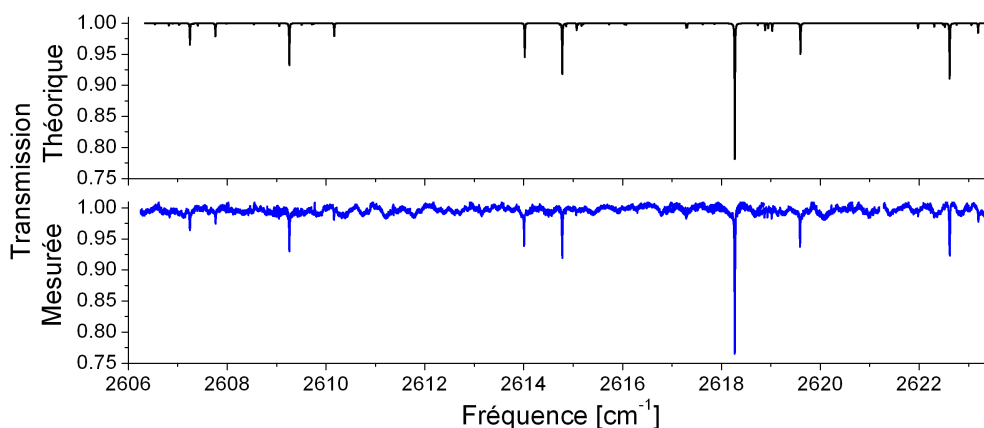


FIGURE 4.20: Raies d'absorption du CH_4 à 40 hPa

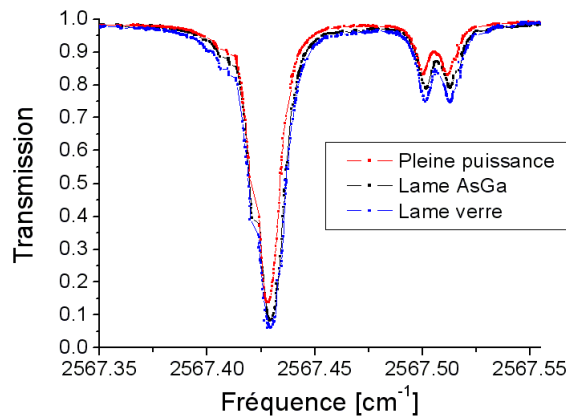
Le tableau 4.15 récapitule les plages fréquentielles analysées pour les différentes molécules avec les conditions d'utilisation du cristal de PPLN (température, réseau).

Molécule	Zone spectrale		Cristal de PPLN	
	$[cm^{-1}]$	$[\mu m]$	Réseau	Température $[^{\circ}C]$
CO ₂	2379,5 $\Rightarrow$ 2391	4,202 $\Rightarrow$ 4,182	III	80
SO ₂	2500 $\Rightarrow$ 2516,5	4,000 $\Rightarrow$ 3,973	II	120
N ₂ O	2553,5 $\Rightarrow$ 2569,25	3,916 $\Rightarrow$ 3,892	I	50
CH ₄	2606 $\Rightarrow$ 2623,5	3,837 $\Rightarrow$ 3,811	I	110

TABLEAU 4.15: Bilan des zones analysées pour chacune des molécules

4.1.4.4 Analyse de la forme des raies

La figure 4.21 a été obtenue avec une cellule remplie de N₂O à 20 hPa. Les courbes de cette figure ont été enregistrées à différentes puissances incidentes en plaçant, ou non, un élément d'atténuation sur le trajet du faisceau complémentaire avant sa séparation en deux voies. On constate que le fait d'atténuer l'intensité du faisceau complémentaire, modifie la forme des raies. Cela démontre une non-linéarité de la chaîne de détection.

**FIGURE 4.21:** Raies d'absorption du N₂O à 20 hPa pour différentes intensités complémentaires

Pour caractériser la linéarité de cette chaîne, nous avons décidé, dans un premier temps, de mesurer la réponse du détecteur en fonction de la puissance incidente à la longueur d'onde pompe. Pour cela, nous avons utilisé le montage du DROPO (figure 3.1). En plaçant une lame épaisse à 45° en amont de l'entrée de l'OPO et en dirigeant le faisceau pompe vers le détecteur, il nous est possible de mesurer la tension en sortie de chaîne de détection en fonction du niveau de puissance de la pompe, en tournant la lame demi-onde placée avant l'isolateur. Sur la figure 4.22 on peut observer la non linéarité des deux chaînes voies sig et ref. On constate

également l'importance de centrer le faisceau au milieu du détecteur pour éviter les effets de bord.

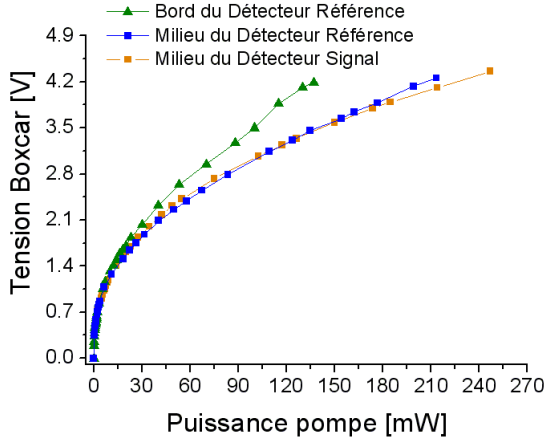


FIGURE 4.22: Mesure de la linéarité de la chaîne de détection à 1 μm

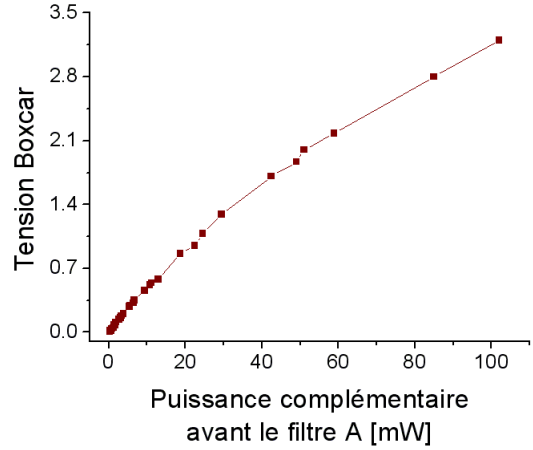


FIGURE 4.23: Mesure de la linéarité de la chaîne de détection à 4 μm

Au regard de la non-linéarité de la chaîne de détection à 1 μm , nous avons décidé de réaliser le même type de mesure à 4 μm . Pour cela, on a utilisé un autre OPO délivrant suffisamment de puissance à 4 μm pour utiliser avec un calorimètre. La durée d'impulsion de cet OPO est d'environ 20 ns pour un taux de répétition de 10 kHz, ce qui est équivalent à notre OPO. L'autre différence avec notre OPO, hormis la puissance, est sa finesse spectrale puisque cette source est multimode longitudinal.

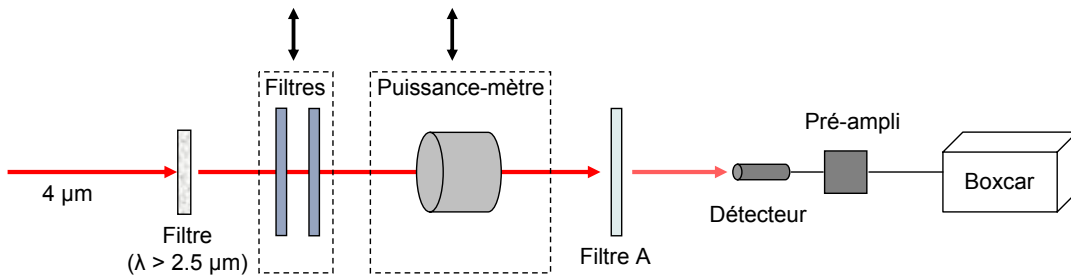


FIGURE 4.24: Montage expérimental pour la mesure de la linéarité de la chaîne de détection à 4 μm

Le schéma du montage utilisé pour cette mesure est reporté sur la figure 4.24. On a représenté les différents filtres permettant de faire varier la puissance incidente, ainsi que le filtre A qui permet d'ajuster la puissance incidente sur le détecteur pour que celui-ci fonctionne dans la même gamme que lors de nos mesures d'absorption. Pour augmenter le nombre de points

expérimentaux nous avons réalisé cette expérience pour deux puissances de pompe de l'OPO, et donc deux puissances du faisceau complémentaire. La figure 4.23 présente les résultats obtenus, on constate que la non-linéarité est moins marquée que sur les courbes réalisés à 1 μm . Il semble donc que la non-linéarité observée provienne essentiellement du détecteur puisque la réponse du préamplificateur est indépendante de la longueur d'onde.

La figure 4.25 montre les courbes de la figure 4.21 corrigées de la non-linéarité de la chaîne de détection. On constate que la profondeur des raies d'absorption du doublet est plus grande une fois la correction réalisée, passant d'une transmission d'environ 75% à 67% pour la courbe bleue. On observe le même effet pour la raie la plus intense mais dans des proportions moindres. Les trois courbes de cette figure ont été enregistrées à différentes puissances incidentes en disposant sur le trajet du faisceau complémentaire soit une lame de GaAs qui réduit la puissance d'un facteur 2, soit une lame de verre en silice qui réduit la puissance d'un facteur 15. La correction de la non-linéarité aurait dû donner trois courbes superposées. Il apparaît donc que la correction de non-linéarité ne permet pas de corriger totalement les courbes expérimentales.

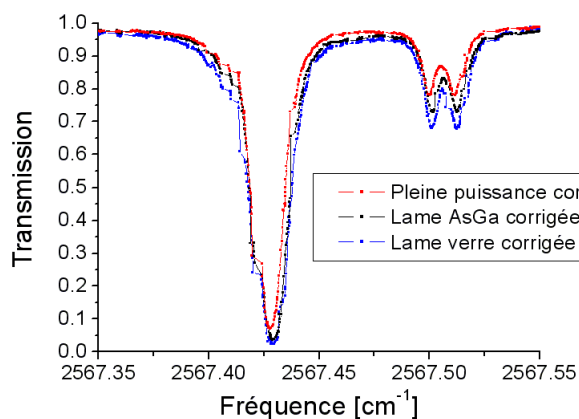


FIGURE 4.25: Raies d'absorption du N_2O à 20 hPa corrigées de la non linéarité à 4 μm

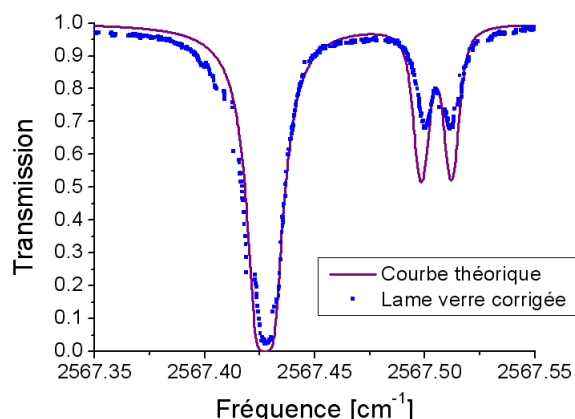


FIGURE 4.26: Comparaison entre la courbe théorique et la courbe corrigée

Un autre point qui peut expliquer l'écart entre l'expérience et la théorie est la largeur de la raie OPO, d'environ 100 MHz, qui est non négligeable devant la raie d'absorption. Toutefois, ne connaissant pas le profil spectral de notre impulsion complémentaire, nous calculons la convolution du spectre théorique en considérant soit une raie OPO de forme gaussienne soit lorentzienne, ayant une largeur à mi-hauteur de $0,35\text{ cm}^{-1} = 105\text{ MHz}$. Sur la figure 4.27 on observe que la convolution par une gaussienne ne modifie que très peu la forme de la courbe théorique, et donc l'écart avec la courbe expérimentale reste sensiblement le même. Par contre,

la convolution par une lorentzienne réduit visiblement la profondeur des raies d'absorption, ainsi cette nouvelle courbe est plus proche de la courbe expérimentale pour ce qui est du doublet. Par contre le reste de la courbe est moins bien rendu.

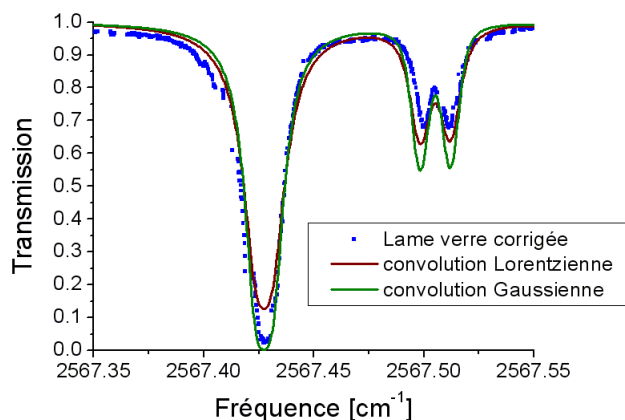


FIGURE 4.27: Comparaison entre la courbe théorique convoluée et la courbe corrigée

Il semble donc que la convolution du spectre ne permet pas d'expliquer les écarts que l'on constate entre les spectres expérimentaux et théoriques. Pour améliorer la qualité de la courbe expérimentale, il faudrait changer la chaîne de détection pour supprimer les non-linéarités. Ensuite, il faudrait mesurer le profil spectral de l'impulsion complémentaire pour la convolution du spectre. On peut donc conclure que, par rapport au premier montage de détection on a amélioré très sensiblement la qualité des spectres en réduisant les fluctuations de la ligne de base, mais la non-linéarité de la chaîne de détection reste une limitation pour les mesures quantitatives de la concentration.

4.1.4.5 Application de la stabilisation de la fréquence de l'OPO

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il était possible de stabiliser très finement la fréquence signal de l'OPO à partir d'un mesureur de longueur d'onde. Toutefois, pour les expériences d'absorption, ce qui est important de connaître c'est la stabilisation de fréquence du rayonnement complémentaire. Dans ce but, nous avons réalisé une expérience d'absorption sur N_2O à basse pression (10 hPa).

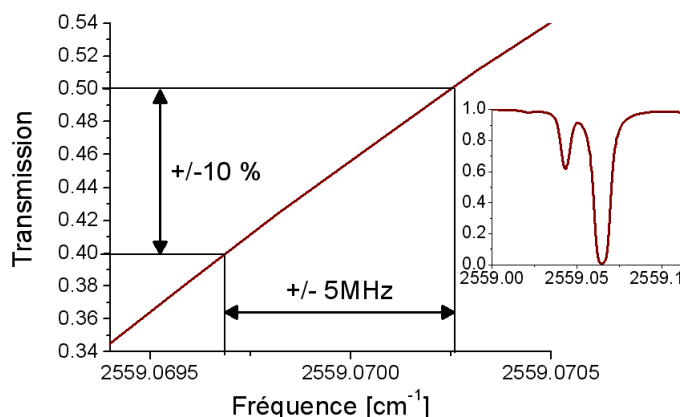


FIGURE 4.28: Transmission à travers une cellule de 10 cm remplie de N_2O à 10 hPa en fonction de la fréquence

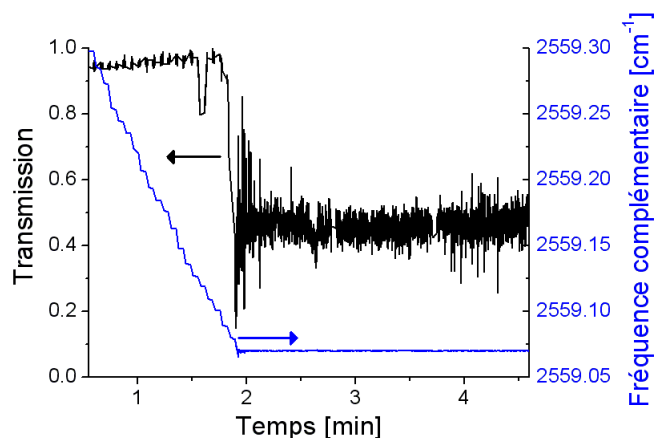


FIGURE 4.29: Stabilisation de la longueur d'onde signal sur le flanc d'une raie d'absorption du N_2O à 10 hPa

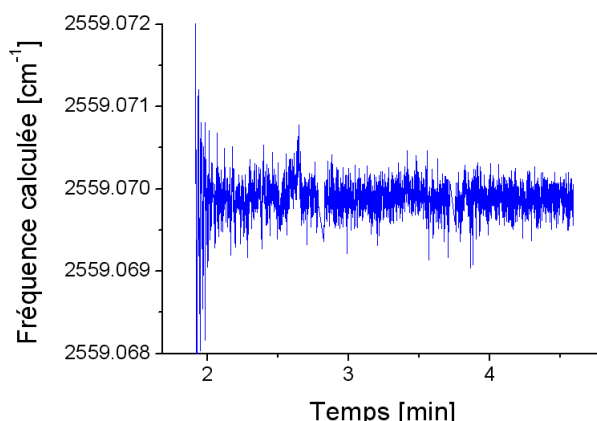


FIGURE 4.30: Évolution de la fréquence complémentaire obtenue lorsque l'on stabilise de la longueur d'onde signal à l'aide du mesureur de longueur d'onde WS-U et en supposant une fréquence pompe parfaitement stable

Comme le montre la figure 4.29, nous accordons finement la fréquence de l'OPO sur $0,25 \text{ cm}^{-1}$ afin de balayer une première raie d'absorption à $2559,12 \text{ cm}^{-1}$ puis, on arrête le balayage à la fréquence complémentaire de $2559,12 \text{ cm}^{-1}$ de sorte que l'on se situe sur le flanc de la raie de N_2O à $2559,07 \text{ cm}^{-1}$ (voir figure 4.28). À partir de la figure 4.29, on observe clairement une augmentation du bruit suivant que la fréquence de l'OPO est en dehors de toute absorption ou sur le flanc de la raie de N_2O . Cette augmentation du bruit reflète les fluctuations de fréquence du rayonnement complémentaire. Afin de déterminer l'origine de ces

fluctuations, nous avons supposé dans un premier temps que la fréquence du laser était parfaitement stable, dans ce cas, les fluctuations de la fréquence complémentaire sont directement liées aux fluctuations de l'onde signal, avec un écart type de 5,7 MHz (voir figure 4.30). À partir de l'évolution de la transmission optique en fonction de la fréquence autour de $2559,07 \text{ cm}^{-1}$ (voir figure 4.28), on obtient des fluctuations de l'intensité transmise de $\pm 10\%$ pour des fluctuations de la fréquence de $\pm 5,7 \text{ MHz}$, ce qui est observé sur la figure 4.29. Ainsi, à court terme, les fluctuations de la fréquence complémentaire sont essentiellement liées aux fluctuations de la fréquence signal.

4.2 Détection photoacoustique

4.2.1 Rappel sur la détection photoacoustique

L'effet photoacoustique a été découvert par A. G. Bell [Bel81] en 1880. En fait, il a fallu attendre l'apparition des lasers, puis les sources cohérentes accordables, pour que cette technique montre toutes ses capacités. Le principe de la détection photoacoustique repose sur la génération d'ondes sonores par une illumination périodique d'un milieu absorbant. Cet effet se décompose en plusieurs étapes comme on peut le voir sur la figure 4.31. L'énergie absorbée par le gaz sous forme d'excitation vibrationnelle, provoque un échauffement local du gaz par désexcitation collisionnelle. Cet échauffement du gaz entraîne une variation de pression locale à l'origine de la création de l'onde acoustique. Etant donné que l'échauffement du gaz est lié à une désexcitation collisionnelle, il est préférable de travailler avec des pressions élevées. Notons de plus que la pression élevée permet une meilleure propagation de l'onde sonore produite vers le détecteur. Ajoutons que la modulation de la source lumineuse est généralement inférieure à la durée du processus collisionnel.

La génération du signal photoacoustique se modélise à partir de l'équation 4.27, où p est la pression acoustique, H l'enthalpie et $c_s = \sqrt{\frac{\gamma RT}{M}}$ avec γ le rapport des capacités calorifiques du gaz. Cette équation n'inclut pas les termes de perte dus à la viscosité et à la conduction thermique. Ces termes sont en général inclus ultérieurement sous forme de perturbation [Ros80].

$$\Delta^2 p - \frac{1}{c_s^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = -\frac{(\gamma - 1)}{c_s^2} \frac{\partial H}{\partial t} \quad (4.27)$$

Notons que pour atteindre une grande sensibilité de détection avec la détection photoacoustique, il est indispensable de concevoir une cellule photoacoustique qui soit résonante avec le taux de répétition (ou modulation) du rayonnement, avec une finesse la plus grande possible. Or notre laser de pompe est à déclenchement passif, avec pour conséquence un taux de répétition qui n'est pas suffisamment stable pour envisager la mise en place d'une cavité résonnante ayant

un coefficient de qualité élevé pour améliorer de façon significative la limite de détection.

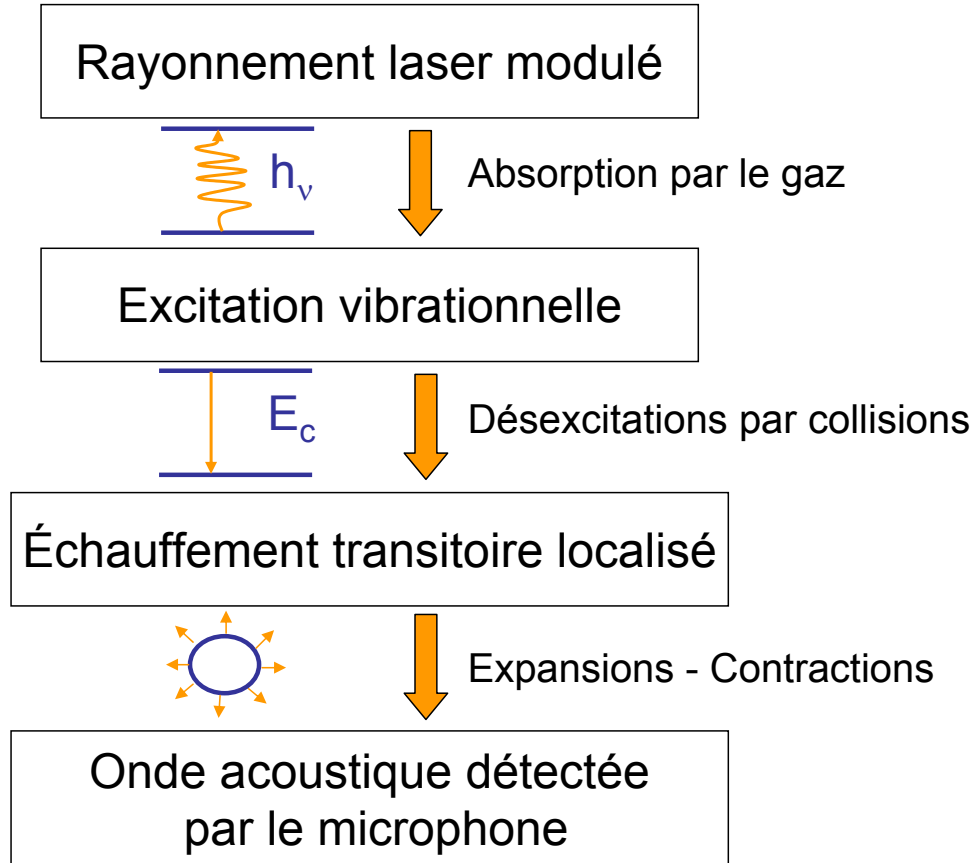


FIGURE 4.31: Principe de la détection photoacoustique

4.2.2 Résultats expérimentaux

Le montage expérimental que nous avons mis en place pour réaliser les mesures de détection photoacoustique est représenté sur la figure 4.32. Comme pour les mesures d'absorption en transmission, on sépare le faisceau complémentaire en deux voies (sig et ref) pour corriger des fluctuations d'intensité du DROPO. La voie référence comprend un détecteur en HgCdTe refroidi par un élément Peltier et un intégrateur boxcar. La voie signal contient la cellule photoacoustique équipée d'un microphone relié à un amplificateur à gain réglable de 10 à 70 dB et d'une détection synchrone, déclenchée sur le taux de répétition du laser de pompe. Les fenêtres de la cellule en CaF_2 sont inclinées à Brewster. La distance parcourue par le faisceau dans la cellule est approximativement de 5 cm. Durant les acquisitions, la durée de moyennage du boxcar est ajustée au temps d'intégration de la détection synchrone.

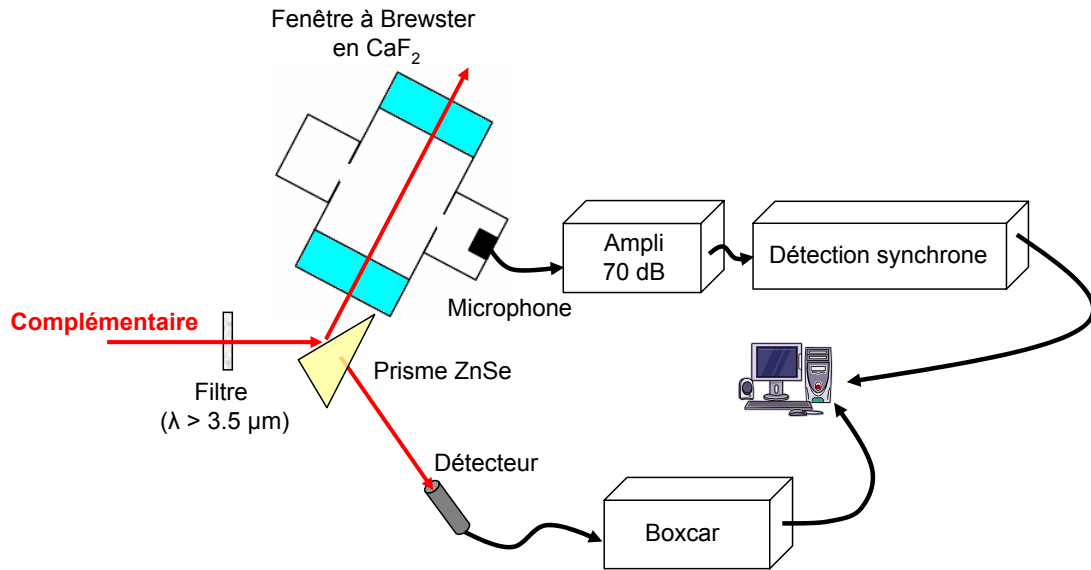


FIGURE 4.32: Montage expérimental pour les mesures de photoacoustique

Comme on a pu le préciser dans la section 4.2.1, il est préférable de ne pas travailler à basse pression en détection photoacoustique, donc les pressions choisies seront un peu plus élevées avec cette technique de mesure que pour les mesures d'absorption directe. Notons par ailleurs que la cellule photoacoustique utilisée n'est pas résonnante avec le taux de répétition de notre laser, ce qui limite beaucoup les performances en sensibilité de notre appareillage. Le but est, dans un premier temps, d'étudier les capacités de mise en œuvre de notre source OPO pour cette technique de mesure et non pas d'atteindre la limite de sensibilité de la technique.

On règle la température du cristal à 70°C et on le positionne sur le premier réseau. On remplit la cellule photoacoustique avec 105 hPa de N_2O . On règle l'ampli audio sur +70 dB, la sensibilité de la détection synchrone est fixée à 300 mV et le temps d'intégration est de 300 ms. Sachant que le taux de répétition du laser est de 9 kHz, on règle le moyennage du boxcar sur 3000 impulsions. La figure 4.33 présente un spectre photoacoustique enregistré dans ces conditions. La plage totale balayée est de 13 cm^{-1} , sur un intervalle de temps de 60 min. L'examen du spectre obtenu montre qu'avec une technique de détection photoacoustique on n'a plus de problème de fluctuations de ligne de base. Compte tenu de la grande plage d'accord de l'OPO, il est possible d'enregistrer différentes zones du spectre d'absorption de N_2O . Ainsi, si on règle le DROPO sur le deuxième réseau du cristal et on fixe la température à 100°C , on obtient le spectre de la figure 4.34 enregistré sur 6 cm^{-1} , dans les mêmes conditions de détection que pour la figure 4.33.

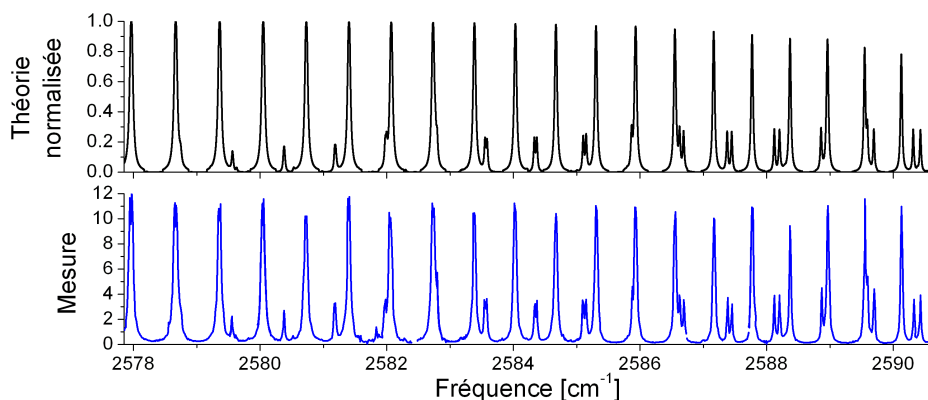


FIGURE 4.33: Détection photoacoustique dans une cellule de N_2O à 105 hPa.

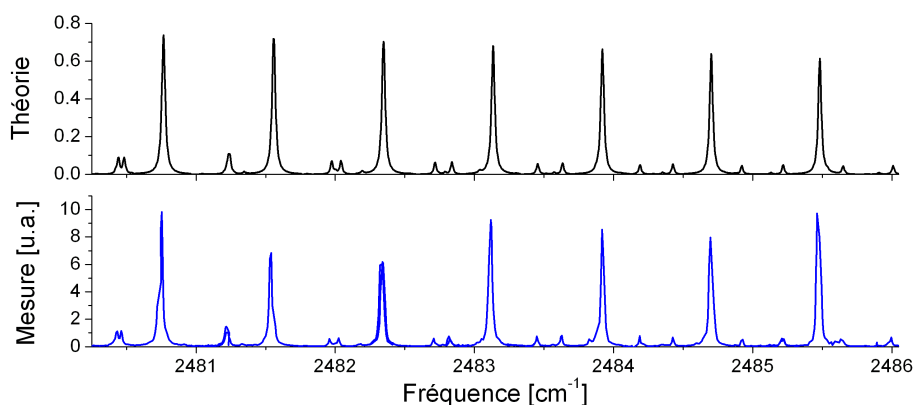


FIGURE 4.34: Détection photoacoustique dans une cellule de N_2O à 105 hPa.

La figure 4.35 présente un zoom d'une partie de la figure 4.33. On peut constater un bon accord entre notre courbe expérimentale et la courbe théorique calculée à partir de la base de données Hitran. La largeur des raies est bien rendue, montrant qu'à cette pression l'influence de la largeur de la raie OPO est négligeable. De plus malgré la pression un peu plus élevée, que pour les mesures d'absorption directe, nous sommes toujours en mesure de séparer les raies proches de quelques centaines de MHz, comme on peut le voir pour la raie à $2589,595\text{ cm}^{-1}$. On remarque que la discrétisation de la mesure n'est toutefois pas suffisante pour décrire finement le maximum de chaque pic. Cela explique également que sur la figure 4.34 la correspondance entre les courbes expérimentale et théorique ne soit pas meilleure concernant les raies les plus intenses. Il est ici important de noter que les rapports d'intensité entre les raies les plus intenses

et les plus faibles sont maintenant bien rendus. On confirme ainsi, a posteriori, le fait que la forme des spectres obtenus en absorption directe était affectée par la non-linéarité de la chaîne de détection.

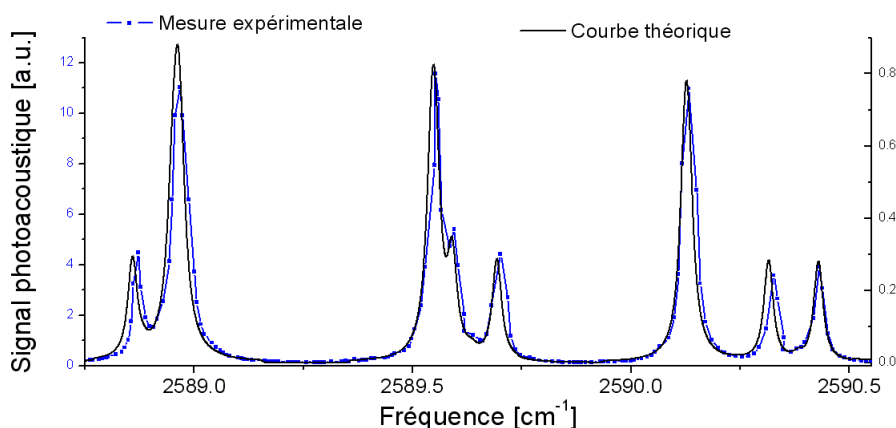


FIGURE 4.35: Zoom sur la figure 4.33

La figure 4.36 présente un zoom d'une autre partie de la figure 4.33. On observe alors un trou dans le profil des raies les plus intenses (en deçà de 2583 cm^{-1} pour la figure 4.33). Ceci s'explique par le fait que, pour les pics les plus intenses, la totalité du faisceau complémentaire est absorbée par la cellule. Dans ces conditions, la zone où est créée l'onde sonore dépend de la force de raie et l'intensité acoustique ne varie plus proportionnellement à l'absorption.

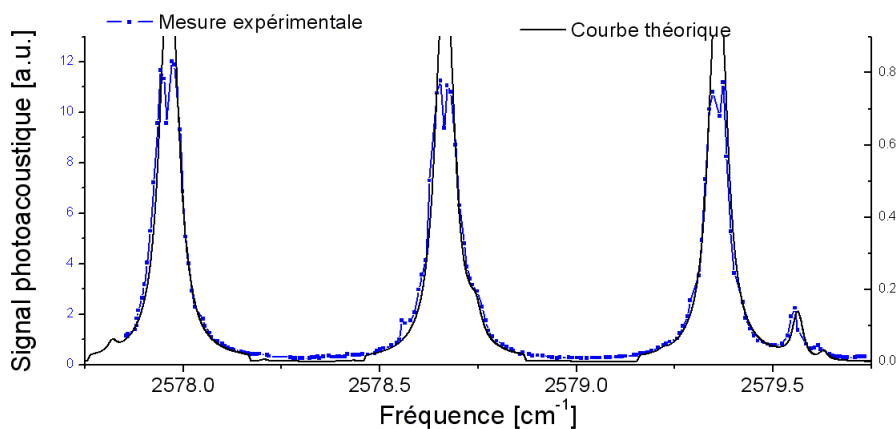


FIGURE 4.36: Autre zoom sur la figure 4.33

Changeons la sensibilité de la détection synchrone pour tester la sensibilité de cette mesure photoacoustique. Au lieu de 300 mV, on se fixe à 30 mV. Sur la figure 4.37 nous présentons un zoom du signal photoacoustique qui permet de faire ressortir la raie R39e de la transition $(1420) \rightarrow (0220)$. Nous avons reporté dans le tableau 4.16 la liste de raies présentes dans l'intervalle spectral couvert par la figure 4.37. La raie R39e qui est la moins intense que l'on puisse repérer sur cette courbe a une intensité de $5.10^{-24} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$. Notons pour comparaison que la raie R29 a une intensité de $2,9.10^{-21} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$ et que la raie la plus intense de la figure 4.33 a une intensité de $2,3.10^{-20} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$. Il est possible de détecter la raie R39e car à cette pression elle n'est pas masquée par l'intensité d'une autre raie plus forte. Ce qui est le cas de plusieurs raies présentes dans cette zone et qui ont pourtant des intensités plus élevées. Si on compare l'intensité de raie minimale que l'on arrive à détecter par cette méthode avec celle obtenue avec la technique d'absorption directe, on se rend compte que l'on n'a pas tout à fait gagné un facteur dix. Rappelons toutefois qu'une cellule résonnante au taux de répétition du laser permettrait d'augmenter de façon significative la limite de détectivité de la technique. Notre but n'est pas ici de chercher à détecter des traces, mais simplement de montrer les capacités de la source pour ce type de technique.

Isotope Transition	446	546	448	447
$(1200) \rightarrow (0000)$	R29	R61		
$(1310) \rightarrow (0110)$	R35e R34f R36e			
$(2000) \rightarrow (0110)$	P72	P51	P6	P41
$(2200) \rightarrow (1000)$	R27			
$(1420) \rightarrow (0220)$	R39e R40f			
$(1400) \rightarrow (0200)$	R42			
$(1220) \rightarrow (0000)$	R13			
$(3000) \rightarrow (1000)$	P64			
$(2110) \rightarrow (0110)$			P27e/f	

TABLEAU 4.16: Liste des raies de N_2O présentes dans l'intervalle spectral de la figure 4.37 ; en bleu les raies que l'on peut repérées sur cette figure

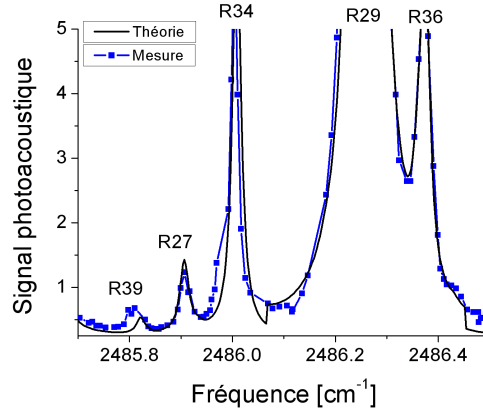


FIGURE 4.37: Détection photoacoustique dans une cellule de N_2O à 105 hPa.

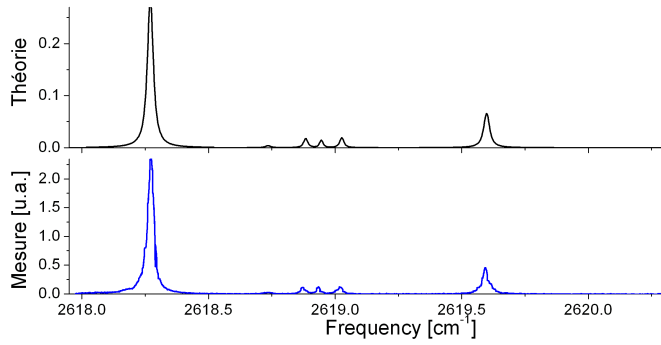


FIGURE 4.38: Détection photoacoustique dans une cellule de CH_4 à 100 hPa.

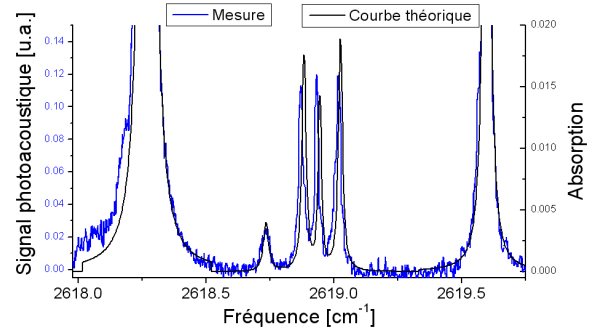


FIGURE 4.39: Zoom sur la courbe de la figure 4.38

Nous avons réalisé des mesures de détection photoacoustique pour la molécule de CH_4 dans la même zone spectrale que pour les mesures d'absorption en transmission. On replace donc le cristal pour qu'il soit aligné sur le premier réseau et on fixe la température à 110°C . Pour ne pas saturer la raie la plus intense dans la zone comprise entre 2618 et $2620,5 \text{ cm}^{-1}$, tout en détectant les raies les plus faibles on règle la sensibilité de la détection synchrone à 30 mV. On balaie la fréquence de notre OPO sur plus de $2,5 \text{ cm}^{-1}$ de façon continue, on obtient ainsi la courbe expérimentale de la figure 4.38. Le nombre de raies de CH_4 présentes dans cet intervalle spectral est de 6. On est donc en mesure de toutes les détecter comme on peut le voir grâce au zoom sur les faibles intensités de la figure 4.38 représenté sur la figure 4.39. L'intensité de la raie la moins intense, située à $2618,735 \text{ cm}^{-1}$, est de $9 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^{-1}/\text{molécules.cm}^{-2}$ cela nous

permet de bien la décrire par la méthode photoacoustique. Sur le triplet, on remarque un léger décalage fréquentiel entre le spectre théorique et mesuré qui montre que la fréquence pompe a évolué durant le temps d'acquisition du spectre.

Le tableau 4.17 récapitule les plages fréquentielles analysées, avec la détection photoacoustique, pour les différentes molécules avec les conditions d'utilisation du cristal de PPLN (température, réseau).

Molécule	Zone spectrale		Cristal de PPLN	
	$[cm^{-1}]$	$[\mu m]$	Réseau	Température $[^{\circ}C]$
N ₂ O	2578 $\Rightarrow$ 2590	3,878 $\Rightarrow$ 3,861	I	70
	2480 $\Rightarrow$ 2487	4,032 $\Rightarrow$ 4,021	II	100
CH ₄	2618 $\Rightarrow$ 2620,5	3,819 $\Rightarrow$ 3,811	I	105

TABLEAU 4.17: Bilan des zones analysées pour chacune des molécules en détection photoacoustique

En conclusion de cette partie, il est clair que la mise en œuvre du DROPO avec une cellule photoacoustique présente un réel intérêt pour détecter des espèces à l'état de traces dans un mélange à pression atmosphérique. Le fonctionnement en régime impulsif est ici bien adapté bien que le déclenchement passif de notre laser est une limitation certaine pour l'utilisation d'une cellule acoustique résonnante où le taux de répétition du laser doit être ajusté en fonction de la fréquence de résonance de la cellule. Ainsi, pour bénéficier totalement des capacités de la méthode photoacoustique il serait important d'utiliser un laser de pompe déclenché de façon active.

Synthèse

Nous avons pu évaluer dans ce chapitre les performances de notre OPO. Ainsi, des mesures spectroscopiques à des longueurs d'onde allant de 3,8 μm jusqu'à 4,2 μm ont été réalisées. Ces mesures sont en bon accord avec les spectres théoriques obtenus à partir de la base de données Hitran [HIT]. Ces résultats sont très encourageants. Néanmoins, on a pu constater au chapitre 3 que des points sensibles technologiques, tels que les miroirs déposés sur le cristal, limitaient toujours les capacités de notre source. Dès lors, il semble nécessaire de faire évoluer notre système pour s'affranchir totalement de ces réflexions parasites. Dans ce but, nous verrons au chapitre suivant une nouvelle architecture de cavité qui permet de tester une nouvelle approche.

Chapitre 5

Miniaturisation de l'OPO à cavités imbriquées

La science cherche le mouvement
perpétuel. Elle l'a trouvé : c'est
elle-même.

VICTOR HUGO

Objectifs

Ce chapitre a pour objectif de valider de nouvelles approches permettant de simplifier l'architecture d'OPO doublement résonnant avec retour de pompe développée dans les chapitres précédents. L'accent est mis sur une plus grande compacité de la source. Nous abordons aussi en fin de chapitre, la possibilité d'utiliser d'autres moyens de contrôle de la fréquence émise par la source.

Au cours des chapitres précédents, nous avons développé l'architecture du DROPO avec retour de pompe et nous avons pu démontrer ses capacités pour la détection et l'analyse de gaz. À ce stade, l'ensemble de la source (laser, OPO, voies signal et référence, électronique) constitue un outil de laboratoire qui reste difficile à mettre en œuvre dans des installations d'essais à caractère industriel ou dans le cadre d'applications embarquées qui intéressent l'Onera. C'est pourquoi, dans ce chapitre, nous analysons les potentialités de nouvelles approches permettant de réaliser un système plus compact et plus robuste capable de supporter les contraintes extérieures au laboratoire. Trois points sont tout particulièrement abordés : pompage de la source par un micro-laser, évolution et simplification de l'architecture à cinq miroirs et étude de dispositifs simples de contrôle de la longueur d'onde.

5.1 Pompage par un micro-laser

Le premier micro-OPO a été réalisé en 1997 [Zay97] en combinant un OPO KTP doublement résonnant monobloc avec un laser Nd:YAG à déclenchement passif dont la durée des impulsions est sub-nanoseconde. Dans cette étude, un fonctionnement monomode longitudinal a été obtenu à la dégénérescence, par contre son comportement en sauts de mode proche de la dégénérescence exclut toute possibilité de balayer finement la fréquence de l'OPO. Dans une autre étude [Con99] R. S. Conroy et al ont proposé de pomper un OPO nanoseconde avec un laser déclenché activement. Le résonateur OPO est basé sur une structure intra-cavité simplement résonnante qui délivre des impulsions monomodes. Cependant des sauts de modes adjacents ont été observés sur de courtes périodes de l'ordre de la minute excluant le balayage continu de la fréquence.

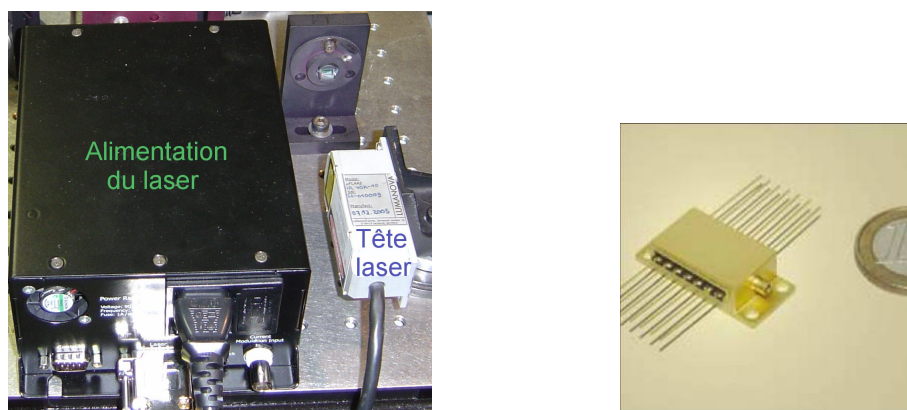


FIGURE 5.1: Le microlaser Lumanova [LUM]

Afin de réduire l'encombrement général du montage expérimental, il est indispensable d'utiliser un laser de pompe compact fonctionnant à partir d'une électronique de faibles dimensions.

C'est pour cette raison que nous avons envisagé d'utiliser un micro-laser pour pomper notre OPO. Comme on peut le voir sur la figure 5.1, il existe un système commercial [LUM] capable de répondre aux spécifications souhaitées. On constate que l'ensemble a des dimensions comparables au laser Mephisto-Q sans son alimentation. On peut également observer la taille de la tête laser sans le "packaging" externe. La tête laser est essentiellement constituée de quatre composants : une diode laser à 808 nm qui pompe un cristal de Nd:YAG, des optiques permettent de focaliser le faisceau provenant du cristal sur son mode fondamental et enfin le déclenchement passif est obtenu en incorporant un absorbant saturable ($\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$) intra-cavité. Par ailleurs il est possible de régler le taux de répétition du laser, entre 4 et 7 kHz, par l'intermédiaire d'un potentiomètre. Pour utiliser ce laser pour notre application OPO, il faut toutefois que ses performances remplissent un cahier des charges. Ce qui nous amène, dans un premier temps, à relever ses performances.

5.1.1 Caractérisation du micro-laser

5.1.1.1 Forme des impulsions

La forme temporelle de l'impulsion délivrée par le micro-Laser Lumanova est reportée sur la figure 5.2. Cette impulsion a été enregistrée, pour un taux de répétition du laser de 4,3 kHz, à l'aide d'une photodiode sensible à 1 μm (DET210, Thorlabs [THO]) dont les temps de montée et de descente sont de 1 ns. On constate que la durée de l'impulsion est de 6,1 ns, ce qui est un peu plus court que la durée de l'impulsion du laser que nous avons utilisé jusqu'à présent (8,9 ns), mais qui reste suffisante pour pomper notre OPO.

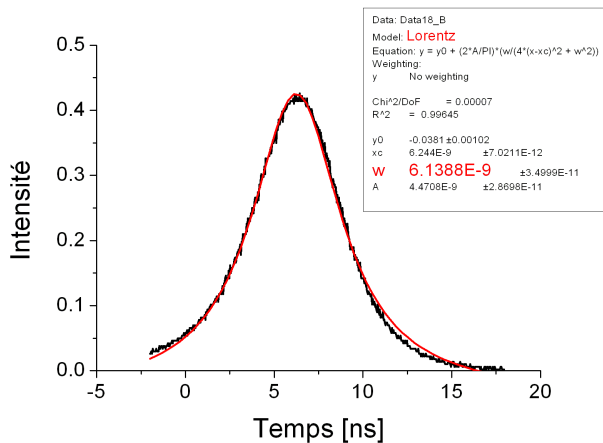


FIGURE 5.2: Forme temporelle de l'impulsion laser pour un taux de répétition de 4,3 kHz

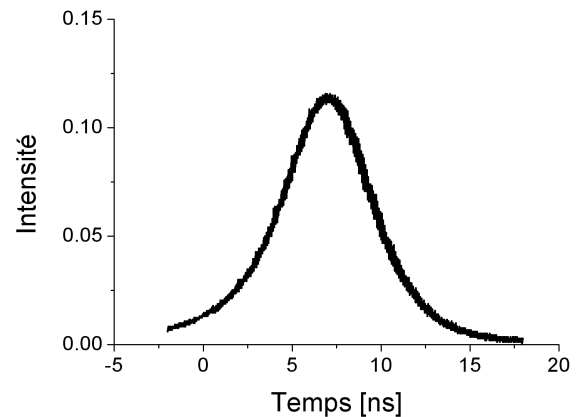


FIGURE 5.3: Superposition de cent impulsions consécutives pour un taux de répétition de 4,3 kHz

La stabilité au cours du temps de l'intensité et de la forme de l'impulsion est illustrée par la figure 5.3 obtenue en superposant à l'oscilloscope cent impulsions consécutives. On constate une bonne stabilité de l'intensité de l'impulsion au cours du temps avec une variation en intensité inférieure à 3 pourcents. Du point de vue temporel ce micro-laser satisfait à nos exigences.

5.1.1.2 Caractérisation spectrale

Le comportement en fréquence du micro-laser est critique si on veut pouvoir l'utiliser comme source de pompe. Il doit répondre principalement à deux critères. Le premier est de délivrer un rayonnement monomode, le second est que la fréquence émise doit être stable au cours du temps. Pour vérifier le premier point on utilise un analyseur de spectre (ANDO, modèle AQ 6317B, résolution $0,1 \text{ cm}^{-1}$). La figure 5.4 illustre la réponse spectrale enregistrée en sortie d'analyseur ; elle nous montre que l'émission est monomode avec un taux de suppression des modes secondaires supérieur à 30 dB. Pour évaluer la largeur de la raie d'émission, on utilise un interféromètre Fabry-Perot confocal (Tecoptics, modèle SA-2, intervalle spectral libre de 2 GHz, finesse 175). On mesure ainsi une largeur de raie de l'ordre de 100 MHz (figure 5.5). Ce qui correspond à la transformée de Fourier de l'impulsion que nous venons de décrire.

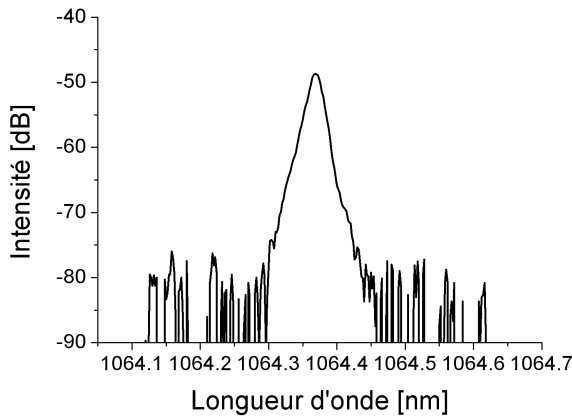


FIGURE 5.4: Spectre du laser pour un taux de répétition de 4,3 kHz

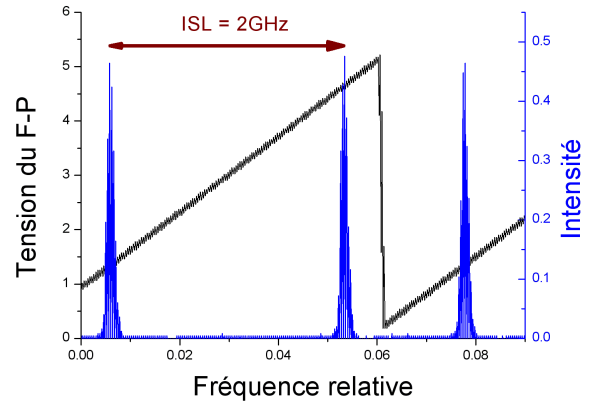


FIGURE 5.5: Intensité en sortie de Fabry-Perot pour un taux de répétition de 4,3kHz

Pour vérifier la stabilité en fréquence, nous utilisons un mesureur de longueur d'onde (WS6-IR High Finesse, Ångstrom), qui nous permet d'enregistrer l'évolution au cours du temps de la longueur d'onde. La figure 5.6 nous montre une lente dérive de la longueur d'onde du laser sur une durée de 25 min (toujours pour un taux de répétition de 4,3 kHz). Cette dérive reste néanmoins compatible avec l'utilisation que l'on veut faire du laser (les variations observées en début de graphe n'apparaissent qu'avec une fibre multimode et sont à attribuer à l'éclairement

des coins de Fizeau du mesureur de longueur d'onde). Analysons à présent le comportement du laser en fonction du taux de répétition. Lorsque celui-ci est fixé à 6,9 kHz l'évolution au cours du temps de la longueur d'onde est nettement différente, comme on peut le constater sur la figure 5.7. Ainsi la longueur d'onde varie de 3 pm en moins de 2 min, alors que la variation n'était que de 0,5 pm en 25 min lors du fonctionnement à 4,3 kHz.

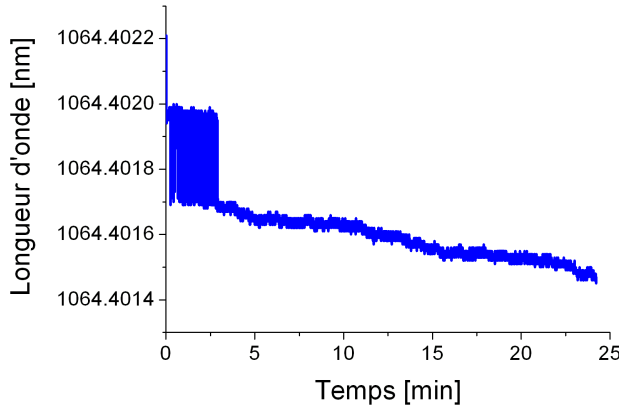


FIGURE 5.6: Évolution de la fréquence pour un taux de répétition de 4,3 kHz

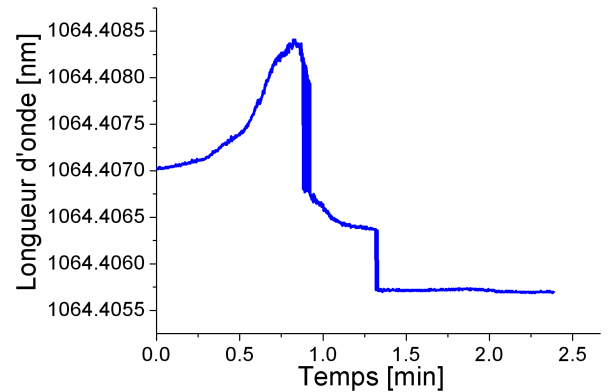


FIGURE 5.7: Évolution de la fréquence pour un taux de répétition de 6,9 kHz

La caractérisation avec le Fabry-Perot montre que l'émission du laser devient multimode, à partir d'un taux de répétition de 5,8 kHz. Ceci explique les variations rapides de la longueur d'onde lorsque le taux de répétition était de 6,9 kHz. Ces variations de fréquences restent importantes pour un taux de répétition de 5,5 kHz (figure 5.8). Le laser sera donc utilisé préférentiellement à un taux de répétition de 4,3 kHz qui assure une meilleure stabilité fréquentielle.

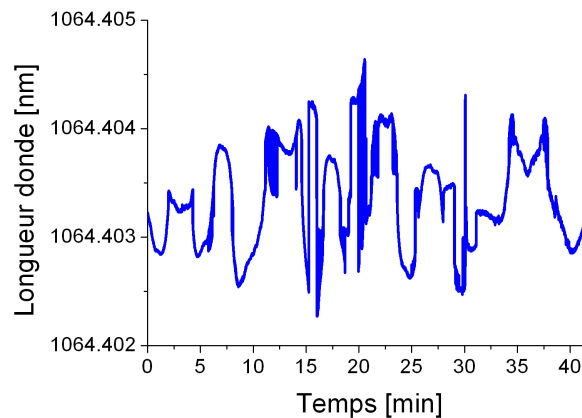


FIGURE 5.8: Évolution de la fréquence pour un taux de répétition de 5,5 kHz

5.1.1.3 Qualité spatiale du faisceau

Comme le montre la figure 5.9, le faisceau en sortie de laser a une forme symétrique compatible à un fonctionnement sur le mode TEM₀₀. Sa qualité spatiale peut être évaluée par la mesure du facteur M^2 . À l'aide d'une caméra CCD et d'une platine de translation, on mesure le rayon du faisceau (que l'on a focalisé avec une lentille) à différentes distances du point de focalisation, puis on procède à un ajustement de l'évolution de ce rayon avec la relation suivante :

$$\omega(z) = \sqrt{\omega_o^2 + \left(\frac{M^2 \lambda}{\pi \omega_o}\right)^2 (z - z_o)^2} \quad (5.1)$$

ω_o étant le rayon du faisceau en son col et z_o la position du col du faisceau. Les résultats portés sur la figure 5.10 font état d'une bonne qualité de faisceau, puisque le facteur M^2 obtenu par cette méthode est proche de 1,10 pour les deux axes.

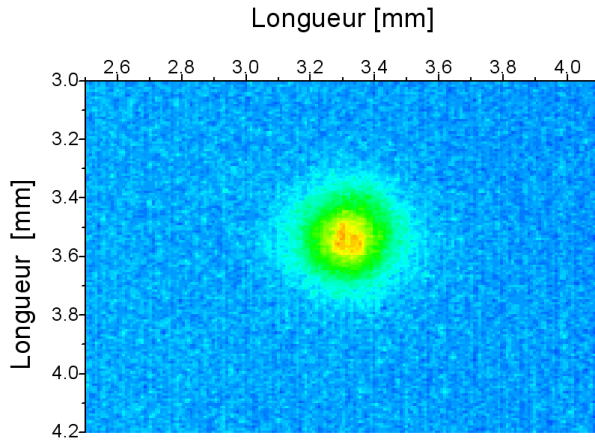


FIGURE 5.9: Faisceau laser enregistré à la caméra pour le calcul de M^2

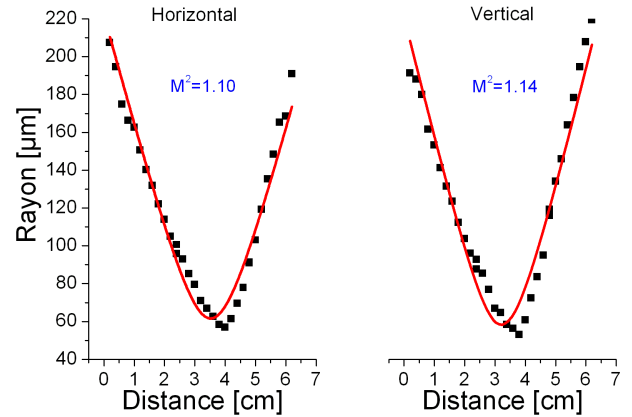


FIGURE 5.10: Calcul du facteur M^2 lorsque le taux de répétition était de 4,3 KHz

5.1.1.4 Puissance de sortie et polarisation

La mesure de la puissance en sortie du laser nous donne 35 mW lorsque le taux de répétition est de 4,3 kHz. Lorsque l'on place un isolateur entre le laser et le calorimètre on perd la moitié de la puissance. Ceci est dû au fait que le laser n'est pas linéairement polarisé. Or, il est indispensable d'avoir un faisceau polarisé linéairement en entrée d'OPO. En conséquence, on ne peut pas utiliser toute la puissance en sortie de laser, ce qui réduit fortement la marge de manœuvre.

On a noté une évolution au cours des semaines du taux de répétition du laser, et par conséquent de la puissance moyenne. Ainsi le taux de répétition est passé à 5 kHz, pour une puissance de sortie de 48,5 mW et une puissance après isolateur de 23,8 mW. Puis on a obtenu 4,7 kHz pour une puissance de 20 mW après isolateur, et enfin 4,1 kHz pour 15 mW. L'énergie par impulsion varie donc entre 3,6 et 4,7 μJ au cours des semaines sans ajustement du potentiomètre réglant le taux de répétition (figure 5.11). Ceci peut être un problème à long terme pour garantir un fonctionnement optimal de l'OPO.

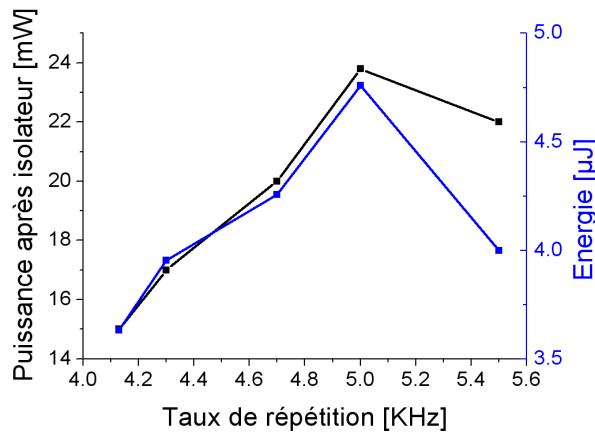


FIGURE 5.11: Évolution du taux de répétition au cours du temps

5.1.2 Résultats du pompage par micro-laser

Le schéma expérimental que nous avons utilisé pour pomper notre OPO avec ce micro-laser est représenté sur la figure 5.12. Pour obtenir le seuil d'oscillation le plus bas, nous utilisons le cristal sur le premier réseau (voir figure 3.8), l'alignement optique est optimisé dans un premier temps avec le laser Innolight (Mephisto Q). Avant de placer le miroir M_d afin de pomper l'OPO avec le micro-laser, nous avons repéré la direction du faisceau laser ainsi que son point de focalisation au moyen d'une caméra. L'étape suivante consiste à placer le miroir de renvoi M_d du micro-laser Lumanova et d'ajuster la direction du faisceau ainsi que la position de la lentille L_2 , pour que le faisceau se superpose avec les repères obtenus avec le laser Innolight. Ainsi, le laser Lumanova focalisera au même endroit dans le cristal que l'autre laser de pompe. Le col de faisceau du micro-laser est dans ces conditions de 60 μm , valeur pour laquelle le calcul du seuil d'oscillation est le plus bas (figure 5.13). On peut remarquer que le seuil expérimental obtenu avec le laser Innolight focalisé à 90 μm est de 3 μJ , alors que le calcul nous donne un seuil à 2 μJ . En modulant à 30 Hz les cales piézo-électriques des miroirs M_1 et M_4 pour assurer la coïncidence entre modes des cavités signal et complémentaire, nous avons pu obtenir

5.1.2.1 Réponse temporelle

La réponse temporelle de l'impulsion signal, enregistrée à l'aide d'une photodiode sensible à $1,5\ \mu\text{m}$ (DET410, Thorlabs [THO]) dont les temps de montée et de descente sont de 5 ns, est présentée sur la figure 5.14. On mesure une durée d'impulsion à mi-hauteur de 6 ns, ce qui correspond à peu près à la même durée d'impulsion que l'impulsion pompe, mais il faut considérer cette valeur comme une borne supérieure compte tenu des temps de montée et de descente de la diode. L'impulsion complémentaire, reportée sur la figure 5.15, a été enregistrée à l'aide d'un détecteur magnéto-optique en HgCdZnTe dont le temps de montée est de 0,5 ns ; sa largeur à mi-hauteur est de 4,9 ns. La différence entre les durées des impulsions signal et complémentaire s'explique par les différences entre les temps de réponse des deux détecteurs d'une part et les coefficients de finesse des cavités signal et complémentaire, d'autre part. En effet, compte tenu que les coefficients de réflexions des miroirs signal sont plus élevés que ceux de l'onde complémentaire, l'onde signal est stockée plus longtemps dans la cavité que l'onde complémentaire. Notons par ailleurs que les axes temporels des deux courbes ne sont pas corrélés.

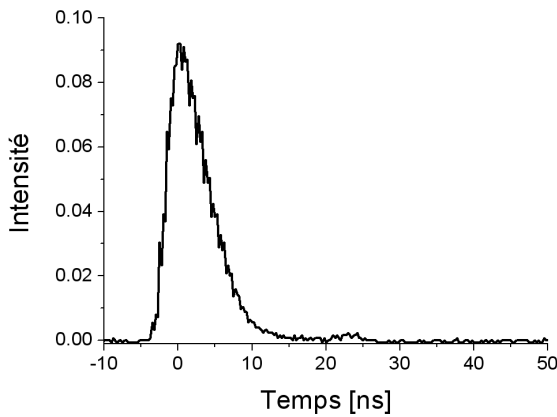


FIGURE 5.14: Impulsion signal pour un taux de répétition de 4,1 kHz

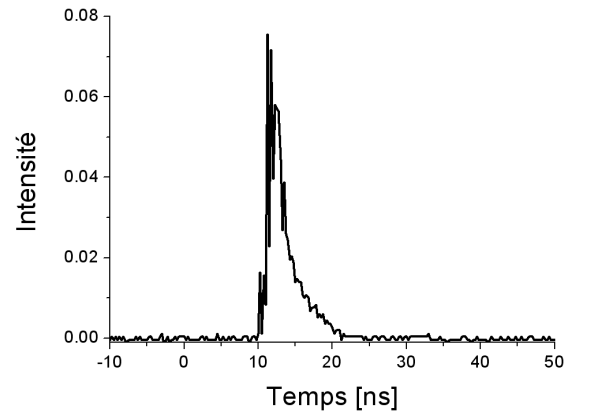


FIGURE 5.15: Impulsion complémentaire pour un taux de répétition de 4,1 kHz

5.1.2.2 Réponse fréquentielle

Pour vérifier que le rayonnement produit par l'OPO est bien monomode, on envoie l'onde signal dans le Fabry-Perot fibré déjà utilisé dans la section 3.1.1.3. La réponse du Fabry-Perot est reproduite sur la figure 5.16, on constate qu'il n'y a qu'un seul mode qui oscille suffisamment pour être détecté grâce au Fabry-Perot. Notons que pour cette figure le taux de répétition est de 6,9 kHz ; valeur pour laquelle le fonctionnement monomode du laser de pompe n'est pas

toujours assuré.

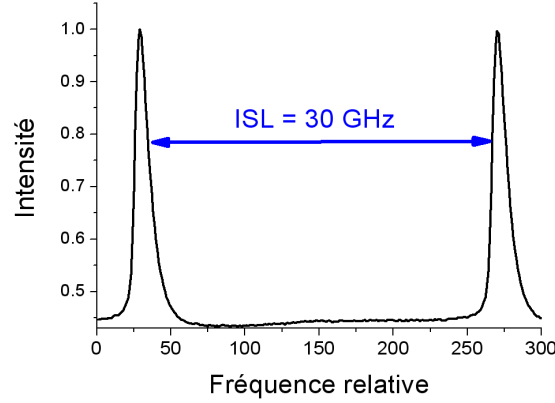


FIGURE 5.16: Intensité signal en sortie de Fabry-Perot pour un taux de répétition de 6,9 kHz

5.1.2.3 Évolution de la fréquence

Afin de s'assurer de la stabilité en longueur d'onde de l'onde signal, on met en œuvre le programme développé sous Labview, décrit dans le paragraphe 3.4.1. Il permet de maintenir un fonctionnement monomode en agissant sur la position des miroirs complémentaire M_4 et de retour de pompe M_5 . Par contre, comme il n'y a aucun ajustement de la position du miroir signal M_1 , la longueur d'onde peut varier au cours du temps.

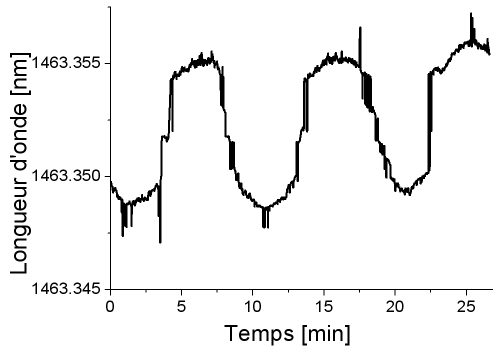


FIGURE 5.17: Stabilisation de la longueur d'onde signal (6,9 kHz)

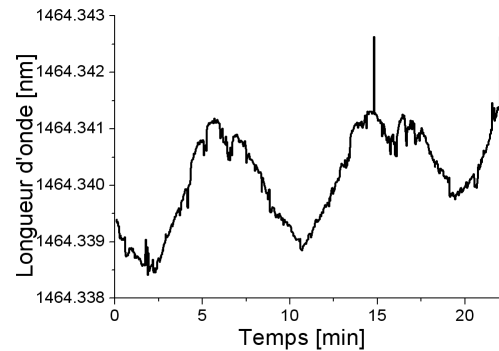


FIGURE 5.18: Stabilisation de la longueur d'onde signal (5,5 kHz)

Les figure 5.17 et figure 5.18 présentent les variations de la longueur d'onde signal enregistrées pour deux taux de répétition du laser : 6,9 et 5,5 kHz respectivement. On peut observer sur la figure 5.17 que, sur une durée de 25 min, la longueur d'onde signal oscille avec une amplitude d'environ 7 pm avec une période voisine de 7 min. Pour un taux de répétition de laser

de 5,5 kHz, les oscillations de la longueur d'onde signal sont plus faibles ($>3\text{pm}$). Ces deux enregistrements illustrent l'influence des fluctuations de fréquence du laser pompe lorsque la longueur d'onde signal n'est pas verrouillée sur une valeur prédéterminée.

5.1.2.4 Balayage en fréquence

Le balayage en fréquence de l'OPO a été testé pour un taux de répétition de 6,9 kHz. Cette cadence de répétition plus élevée augmente l'énergie par impulsion, ainsi on travaille à un niveau de pompage plus au dessus du seuil en vue de réduire l'influence des modulations du seuil de l'OPO qui nous empêchent de balayer de manière continue la fréquence de l'OPO (voir chapitre 3). Pour ces conditions de pompage il est possible de balayer continûment la fréquence de l'OPO sur pratiquement 7 GHz, comme on peut le voir sur la figure 5.19.

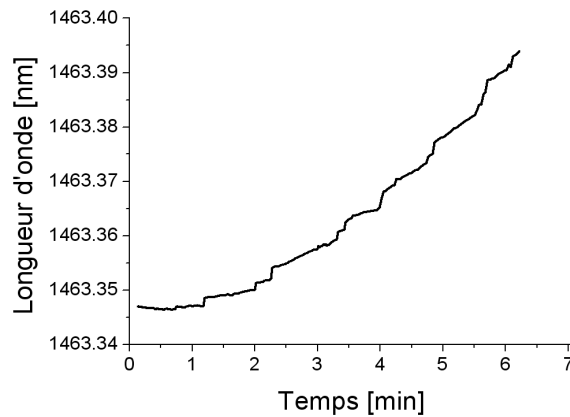


FIGURE 5.19: Balayage continu et monomode de la fréquence signal pour un taux de répétition de 6,9 kHz.

À ce stade de l'étude, il apparaît difficile d'atteindre des plages de balayage continu sur des domaines plus importants compte tenu des limitations du laser de pompe (énergie et instabilités de fréquence à haute cadence) et des limitations de l'OPO dues aux réflexions parasites.

5.1.2.5 Énergie du faisceau complémentaire

La puissance moyenne du rayonnement complémentaire est trop faible pour pouvoir être mesurée directement avec le calorimètre disponible au laboratoire. On peut néanmoins estimer sa valeur par comparaison avec les performances obtenues à plus fort niveau de pompage. Ainsi, dans un premier temps on fait fonctionner le DROPO avec le laser Innolight, on mesure la puissance moyenne du rayonnement complémentaire et on enregistre l'impulsion complémentaire

avec le détecteur HgCdZnTe. Dans une seconde étape, on pompe le DROPO avec le micro-laser et on enregistre de nouveau l'impulsion complémentaire en sortie d'OPO. Connaissant les taux de répétition de chaque laser de pompe, on en déduit l'énergie par impulsion complémentaire obtenue avec le microlaser par comparaison des valeurs des intégrales des impulsions enregistrées.

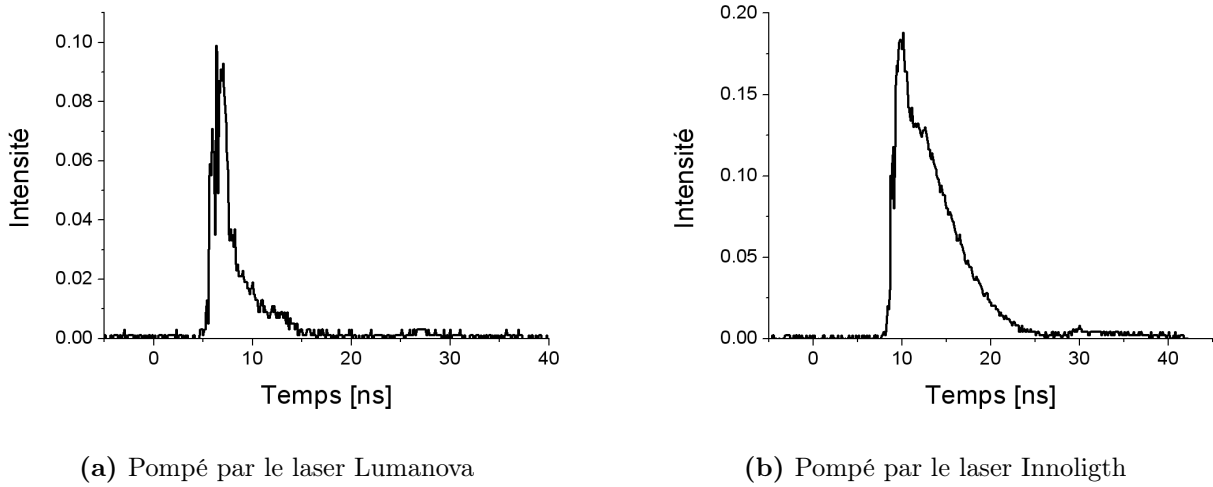


FIGURE 5.20: Impulsions de l'onde complémentaire

La puissance mesurée est de 5,5 mW à 7,4 kHz soit 743 nJ par impulsion complémentaire, avec le laser Innolight. Par ailleurs le calcul des intégrales nous donne $2,7 \times 10^{-10}$ pour l'impulsion "Lumanova" et $1,15 \times 10^{-9}$ pour l'impulsion "Innolight". Finalement on obtient :

$$743 \frac{0,27}{1,15} = 174$$

L'énergie par impulsion complémentaire lorsque l'OPO est pompé par le laser Lumanova est donc de 174 nJ. Lorsque l'on a enregistré l'impulsion "Lumanova" la puissance en entrée de DROPO était de 22 mW à 5,5 kHz, ce qui nous donne 4 μ J par impulsion. Le seuil a été mesuré à 2,5 μ J, ce qui veut dire que l'on pompait à 1,6 fois le seuil. Si on revient aux calculs du seuil de la figure 5.13, on constate que si on pompe à 1,6 fois au dessus du seuil, on obtient une énergie complémentaire d'environ 140 nJ. Les résultats sont en accord avec les simulations numériques.

En conclusion de cette première partie de chapitre, nous avons pu démontrer la faisabilité de pomper un DROPO à cavités imbriquées avec un micro-laser. Contrairement aux travaux précédents [Con99, Zay97], nous avons pu obtenir un fonctionnement monomode longitudinal stable et accorder continûment la fréquence de la source sur plusieurs GHz. La prochaine étape consistera à remplacer le laser actuel par un modèle équivalent délivrant un faisceau

linéairement polarisé et à optimiser le couplage de sortie de l'OPO pour améliorer grandement les performances de la source. Il sera alors possible d'envisager la réalisation de micro-sources paramétriques infrarouge pouvant être intégrées dans des capteurs de gaz de petites dimensions.

5.2 La nouvelle architecture

Le chapitre 3 nous a permis de démontrer que l'ajout d'un miroir réfléchissant la pompe avec une phase contrôlée permettait d'améliorer grandement les performances du DROPO à cavités imbriquées notamment en termes d'accordabilité, de réduction du seuil et de rendement de conversion. La contre partie est une plus grande complexité de la source qui est alors constituée de cinq miroirs dont trois sont nécessairement ajustables pour obtenir l'accord continu en fréquence. De plus, la multiplication du nombre de surfaces réfléchissantes en aval de l'OPO conduit inévitablement à une augmentation du nombre de Fabry-Perot parasites dont on a pu mesurer l'influence néfaste sur les performances de la source. Dans la recherche d'une solution à ces limitations, nous nous sommes intéressés à une nouvelle architecture que nous appelons OPO doublement résonnant à cavités imbriquées avec retour de pompe à maintien de phase achromatique.

5.2.1 Principe du DROPO avec retour de pompe achromatique

La figure 5.21 schématise cette nouvelle architecture qui est composée uniquement de trois miroirs dont deux sont ajustables. Le rayonnement de pompe est introduit au travers du miroir M_1 qui est partiellement réfléchissant à la longueur d'onde complémentaire et transparent aux longueurs d'onde signal et pompe. Le miroir M_2 est, lui, totalement réfléchissant à la longueur d'onde signal et transparent aux longueurs d'onde complémentaire et pompe. Enfin le miroir M_3 est réfléchissant aux trois longueurs d'onde. Par ailleurs la face de sortie du cristal est traitée antireflet aux trois longueurs d'onde. Il s'agit donc d'un résonateur à double cavités imbriquées ayant un miroir commun (M_3). Le rayonnement complémentaire est réfléchi par une lame séparatrice (S) disposée en amont de l'OPO.

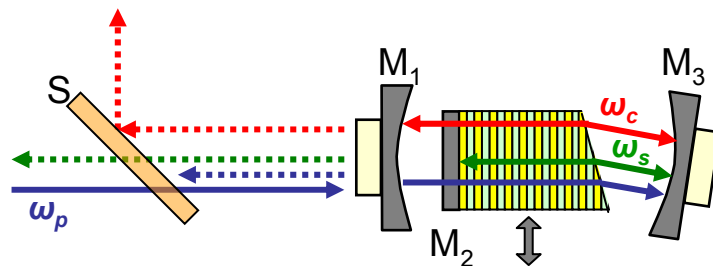


FIGURE 5.21: Schéma du nouveau DROPO, l'angle du prisme a été volontairement exagéré

Avec cette architecture, il est toujours possible de fixer indépendamment les longueurs des cavités signal et complémentaire pour obtenir, par effet Vernier, un fonctionnement monomode longitudinal. De plus, l'accordabilité continue de la fréquence peut être obtenue en déplaçant les miroirs M_1 et M_3 au moyen de deux cales piézoélectriques. Le dernier point à considérer est l'ajustement de la phase entre les ondes au retour dans le cristal. Pour satisfaire à cette contrainte, nous utilisons un cristal en quasi-accord de phase dont la face de sortie est légèrement prismatique. De cette façon, il est possible de modifier la distance parcourue dans le dernier domaine ferroélectrique du cristal entre 0 et L_c (longueur de cohérence) en déplaçant le cristal dans la direction perpendiculaire à l'axe de propagation des faisceaux. Enfin, pour assurer un maintien de la phase quelle que soit la longueur d'onde émise par l'OPO, nous utilisons un miroir M_3 métallique qui assure un saut de phase de π pour les trois longueurs d'onde. Dans ces conditions, une fois la position transversale du cristal ajustée pour obtenir la phase optimale, il n'est plus nécessaire d'ajuster cette valeur au cours du balayage en longueur d'onde d'où la dénomination 'retour de pompe avec maintien de phase achromatique'.

5.2.2 Contrôle de la température du cristal

Pour ce nouvel OPO, nous avons testé une nouvelle sonde de température. Il s'agit d'une thermistance (B57540). Avec cette sonde, on est en mesure de stabiliser la température au centième de degrés Celsius. Notons que pour obtenir une telle stabilité, il faut que l'OPO soit parfaitement isolé des mouvements d'air ambiant.

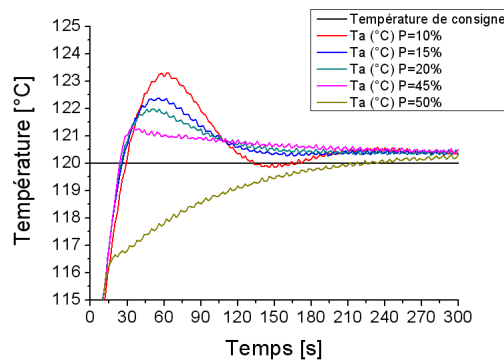


FIGURE 5.22: Évolution de la température du four pour différents paramètres P

On peut voir sur la figure 5.22 l'évolution de la température du cristal lorsque sa température initiale est de 110°C et que l'on change la température de consigne pour la fixer à 120°C. Les paramètres du contrôleur de température que l'on a déterminés pour cette sonde, pour un fonctionnement stable et rapide, sont les suivants : $P=17\%$, $I=1,5\%$ et $D=10\%$. P étant le

coefficient de proportionnalité, I le coefficient intégrale et D le coefficient dérivé de la fonction de transfert du régulateur. On peut noter un léger décalage entre la consigne et la valeur finale, mais cela ne pose pas de problème car il suffit de tenir compte de ce léger décalage au moment de fixer la consigne. Ce qui est ici le plus important est la stabilité en température.

5.2.3 Caractéristiques optiques

Le schéma mécanique de la cavité OPO réalisée est représenté sur la figure 5.23. Sur la vue éclatée on peut voir le four dans lequel est placé le cristal de PPLT. On y retrouve également la platine de translation du cristal ainsi que, de chaque côté, les platines de réglages où l'on encastre les cales piézo-électriques. Les distances entre les miroirs, fixés sur les cales piézo-électriques, et le cristal peuvent être ajustées en ajoutant des cales circulaires entre les platines de réglages et les cales piézo-électriques. Le câblage entre le four et le contrôleur ressort du bloc OPO par le dessous. La platine de translation, ici mécanique, peut être remplacée par une platine motorisée contrôlée par ordinateur. Le tableau 5.1 et le tableau 5.2 donnent les caractéristiques des différents composants optiques ; on a reporté les caractéristiques des deux miroirs M_1 dont nous nous sommes servis, sachant que le premier miroir (réfléchissant 99% de l'intensité complémentaire) n'a été utilisé que lors d'une étape préliminaire.

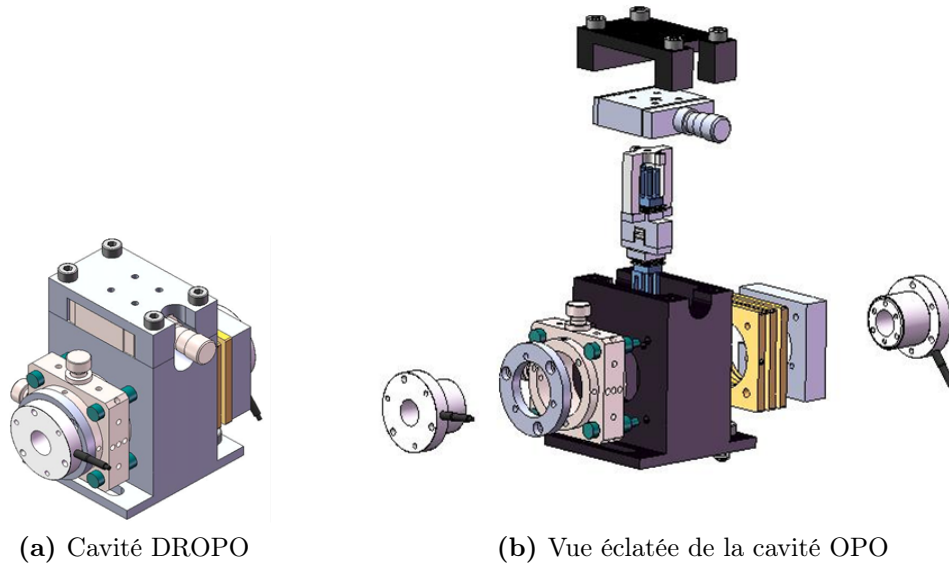


FIGURE 5.23: Schéma de la cavité OPO

On peut voir sur la photo 5.24 l'angle réalisé sur le cristal de PPLT. Sur le bord du cristal (bas de la figure) on constate que le dernier domaine ferroélectrique du réseau de polarisation périodique apparaît progressivement en allant de gauche à droite.

PPLT	
Dimensions	6 x 6 x 1 mm ³
Angle du prisme	0,35°
Pas du réseau	27,1 - 27,55 - 28 - 28,45 - 28,9 μm

TABLEAU 5.1: Caractéristiques du cristal

Miroirs		M_1		M_2	AR	M_3
Rayon de courbure [mm]		50	20	∞	∞	50
Coefficient de réflexion en intensité	Pompe [1,064 μm]	0,01	0,01	0,001	0,001	0,99
	Signal [1,39 à 1,48 μm]	0,01	0,01	0,998	0,001	0,99
	Complémentaire [3,8 à 4,5 μm]	0,99	0,72	0,01	0,008	0,99

TABLEAU 5.2: Caractéristiques des traitements du cristal et des miroirs

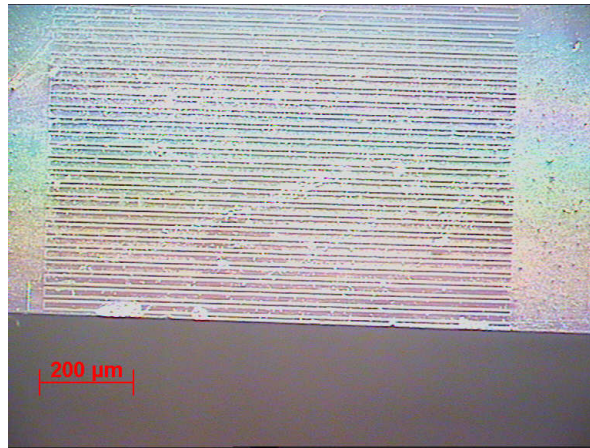


FIGURE 5.24: Photo d'un PPLT avec un angle (la propagation du faisceau pompe étant ici verticale, vers le bas)

Les courbes de réflexion des miroirs

Nous avons à notre disposition deux coupleurs complémentaires différents. Dans un premier temps, pour abaisser le seuil d'oscillation, nous avons utilisé un miroir hautement réfléchissant à la longueur d'onde complémentaire. Les caractéristiques sont répertoriées sur la figure 5.25. Les réflexions parasites sont donc de l'ordre de 1 %, tandis que la réflexion de l'onde complémentaire

est de 99 %. Notons que ce miroir doit également transmettre la pompe. Sur la figure 5.26, on a représenté la transmission de ce miroir à travers la face arrière, cette courbe montre une perte de 10% à la longueur d'onde pompe. Le second miroir M_1 réfléchit 72% de l'intensité de l'onde complémentaire et possède un rayon de courbure de 20 mm.

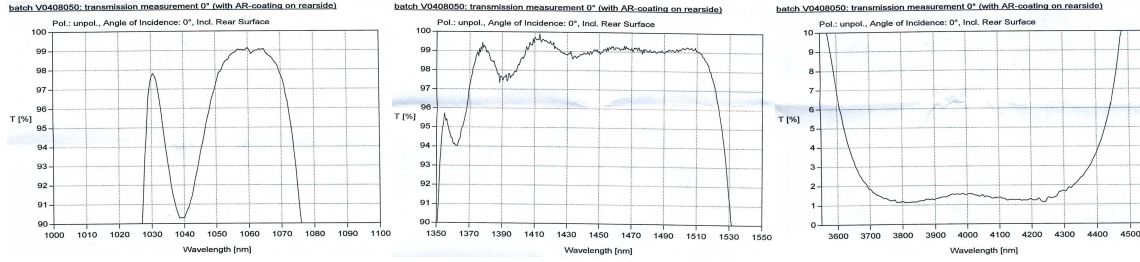


FIGURE 5.25: Caractéristiques du coupleur complémentaire M_1

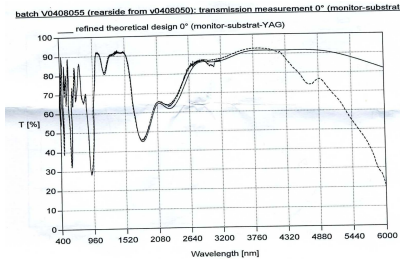


FIGURE 5.26: Caractéristiques de la face arrière du coupleur complémentaire M_1

Les caractéristiques du miroir déposé sur la face d'entrée du cristal sont répertoriées sur la figure 5.27. On constate que la réflexion parasite à la longueur d'onde pompe est de l'ordre de 0,1 %. Pour ce qui est de la réflexion de l'onde complémentaire, elle est inférieure à 1 %. La réflexion de l'onde signal est supérieure à 99,5 %. Les résultats des mesures sur l'antireflet sont reproduites sur la figure 5.28. On retrouve des résultats équivalents, pour les ondes pompe et complémentaire, à ceux de l'autre face du cristal, et une réflexion parasite à la longueur d'onde signal de l'ordre de 0,1 %. Il semble donc que les résultats correspondent à nos attentes.

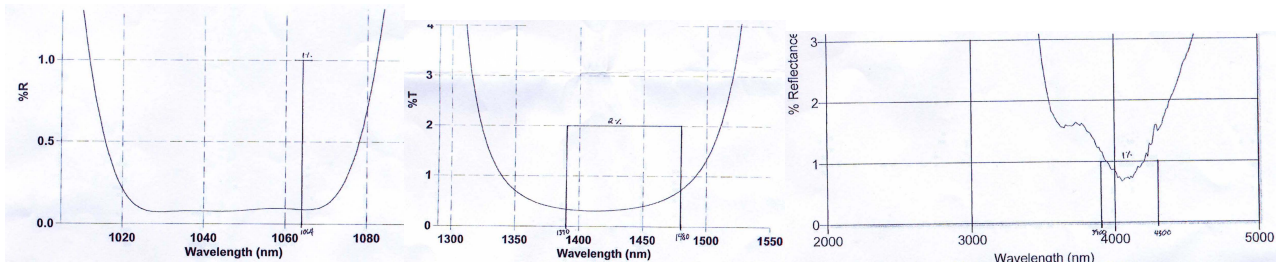


FIGURE 5.27: Caractéristiques du miroir signal M_2 déposé sur la face d'entrée du cristal

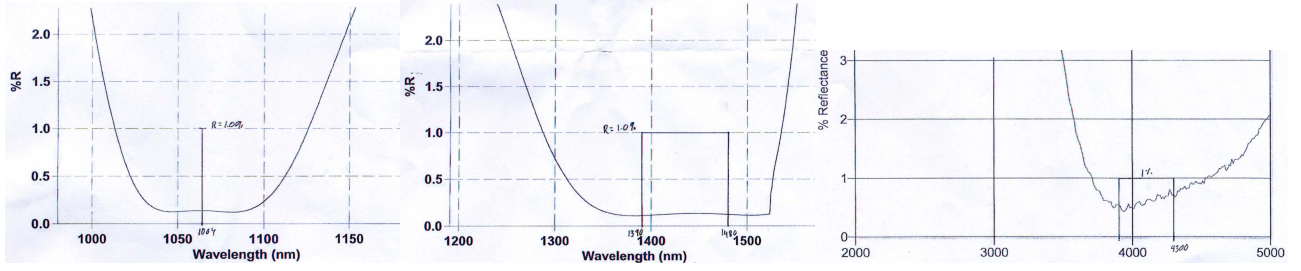


FIGURE 5.28: Caractéristiques de l'anti-reflet sur la face de sortie du cristal

5.2.4 Le montage expérimental

Le montage expérimental est représenté sur la figure 5.29. On retrouve les mêmes éléments que lors des montages précédents, la différence principale est qu'il n'y a pas de signal qui passe à travers le miroir M_3 . Nous devons donc séparer le faisceau signal en deux pour envoyer une partie au Fabry-Perot et l'autre partie au mesureur de longueur d'onde. Pour cela on utilise la réflexion et la transmission d'une simple lame de verre.

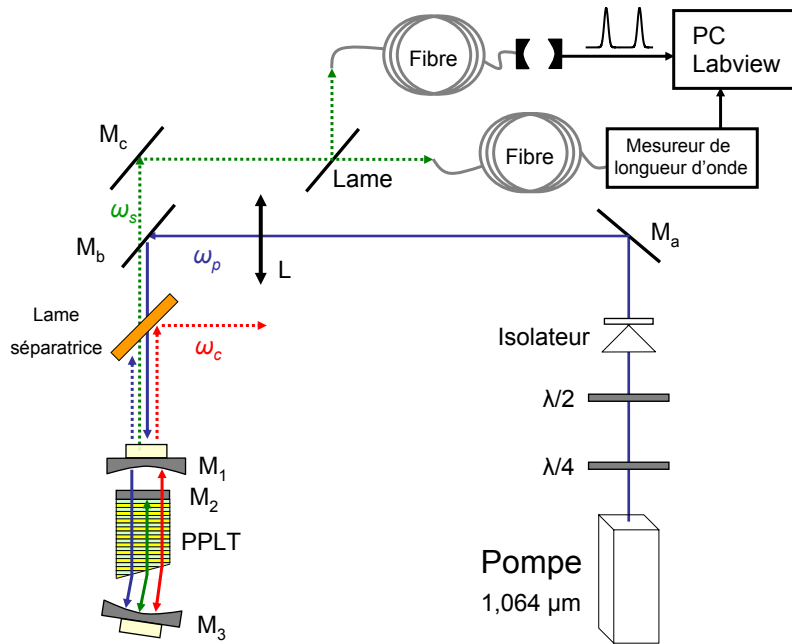


FIGURE 5.29: Schéma du dispositif expérimental

Description du laser de pompe

Pour pouvoir valider cette nouvelle architecture d'OPO, nous avons utilisé une source de pompe de chez Innolight, dont les performances sont comparables avec le modèle Mephisto Q décrit dans la partie 2.1.1 et utilisé dans le chapitre 3. Il s'agit toutefois d'un modèle plus ancien

qui nécessite des réglages très fins des températures du cristal et de la diode pour maintenir son fonctionnement monomode.

Température du cristal	27°C
Température de la diode	34,5°C
Courant de la diode	2,2 A
Durée de l'impulsion	14,5 ns
Taux de répétition	9,5 kHz
Puissance moyenne	230 mW

TABLEAU 5.3: Réglages et performances du laser

Ainsi après avoir traversé les différents éléments répertoriés sur la figure 5.29, on obtient une puissance de 150 mW en entrée d'OPO. Cette puissance moyenne correspond à une énergie par impulsion d'environ 15,5 μ J. Cela nous permet, si on utilise le miroir de 72 %, de pomper cet OPO un peu moins de 4 fois au dessus du seuil théorique.

La stabilité en fréquence de cette pompe est représentée sur la figure 5.30. On remarque que sur une période de 30 min la fréquence n'a changé que de 70 MHz. De plus, ces variations à court terme sont suffisamment réduites pour permettre d'atteindre une bonne stabilité de l'OPO.

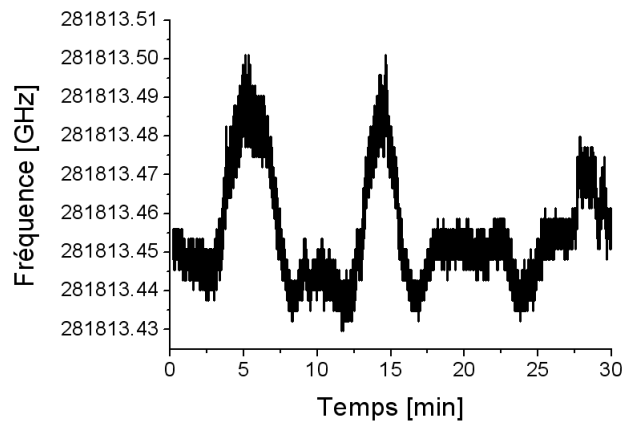


FIGURE 5.30: Stabilité en fréquence de la pompe au cours du temps

5.2.5 Recherche de l'oscillation paramétrique

Les prérequis de cette procédure d'alignement consistent dans un premier temps à optimiser la puissance de la pompe après l'isolateur (à la bonne polarisation pour le cristal). Puis, dans

un second temps, à régler le col du faisceau de la pompe au bon diamètre et à la bonne distance. Les étapes de l'alignement sont les suivantes :

- Réglage du faisceau de pompe au milieu du bloc OPO grâce aux miroirs M_a et M_b et en s'aidant de deux diaphragmes mis temporairement à la place des cales piézo-électriques. Un laser He-Ne passant à travers le miroir M_c est aligné sur la pompe.
- On place le cristal dans le four et, en observant la déviation du faisceau, on vérifie le sens de l'angle du prisme. Puis, on règle l'autocollimation en superposant le faisceau He-Ne incident avec la réflexion de la face avant du cristal. Pour identifier la bonne tache à superposer, on se sert du sens de l'angle du prisme (remarque : la lame séparatrice dédouble les taches).
- On place le miroir d'entrée de l'OPO ; son réglage est délicat. En réflexion on observe un faible halo dû à la réflexion sur la face concave, il s'agit de le centrer sur le faisceau incident.
- On place le miroir de fond. En réflexion on observe une très petite tache (la seule qui se déplace quand on bouge les réglages) que l'on superpose avec le faisceau incident.

Une fois que ces réglages grossiers sont réalisés, on module la tension des cales piézo-électriques (amplitude ~ 1 V ; fréquence ~ 5 Hz) de manière à être certain que des couples de modes se superposent pendant le réglage fin.

Essais préliminaires

Malgré la procédure d'alignement définie ci-dessus, on rencontre des difficultés à obtenir l'oscillation paramétrique. Ceci pour plusieurs raisons :

- À cause de problèmes électriques, la platine de translation motorisée a été endommagée. Or la platine de translation manuelle ne permet pas de réaliser un ajustement précis de la position transversale du cristal et ainsi de régler le seuil d'oscillation au plus bas.
- Le miroir métallique dont le rayon de courbure est de 50 mm ne possède pas de couche de protection, ainsi il ne résiste pas au rayonnement pompe. Nous le remplaçons par un miroir à notre disposition dans le laboratoire dont le rayon de courbure est de 80 mm et dont le dépôt doré n'est pas parfaitement uniforme.

Pour réduire le seuil d'oscillation, on décide de remplacer le miroir de couplage complémentaire de 72% par le miroir de couplage de 99% dont le rayon de courbure est de 50 mm. On utilise une lentille de focale 150 mm, ce qui nous donne un col de faisceau, situé au centre du cristal, de 40 μm . Dans ces conditions, le seuil d'oscillation est de 9,5 μJ . Si on réduit la distance entre le miroir de sortie et le cristal d'environ 0,6 mm, on parvient à réduire le seuil à 4 μJ .

Compte tenu des modifications apportées au montage, les rayons de courbure des miroirs ne sont pas parfaitement adaptés à notre cavité et à la focalisation. Il est donc indispensable de contrôler la stabilité spatiale des modes transverses à l'aide d'une caméra. On constate ainsi

que pour obtenir un mode TEM00 il est nécessaire d'être parfaitement aligné, car lorsque l'on change un peu les réglages, le faisceau change de mode transverse.

5.2.6 Les résultats expérimentaux

Pour améliorer la stabilité des cavités, on remplace le miroir de couplage complémentaire M_1 , par celui dont le rayon de courbure est de 20 mm. Son coefficient de réflexion est de 72% ce qui augmente le seuil d'oscillation. Si on ne modifie pas la focalisation de la pompe, c'est à dire 40 μm , on obtient un seuil d'oscillation de 6,5 μJ . Maintenant, si on change la lentille de 150 mm par une lentille de 170 mm, on obtient une focalisation du faisceau de pompe de 55 μm . Cela améliore la stabilité des modes de cavité et diminue le seuil d'oscillation qui devient de 5 μJ . L'OPO oscille sur les trois réseaux accessibles grâce à la translation manuelle. La puissance du faisceau complémentaire à 4 μm est d'environ 0,1 μJ pour une puissance de pompe de 15,5 μJ .

5.2.6.1 Comportement spatial du faisceau complémentaire

En regardant le faisceau complémentaire à la caméra, on constate une meilleure stabilité du mode TEM00 lorsque l'on modifie les réglages des miroirs. On peut constater sur la figure 5.31 que les coupes suivant deux axes perpendiculaires du faisceau complémentaire suivent bien un profil gaussien.

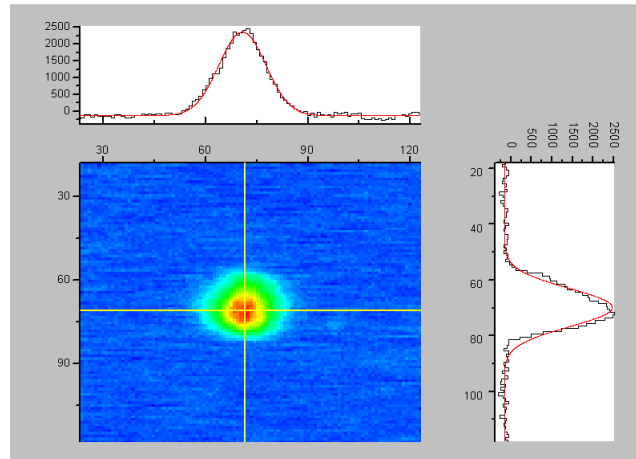


FIGURE 5.31: Profil spatial du faisceau complémentaire

5.2.6.2 Comportement spectral du faisceau signal

Le taux d'extinction des modes secondaires est supérieur à 35 dB comme on peut le constater sur la figure 5.32, obtenu avec l'analyseur de spectre défini dans le paragraphe 5.1.1.2. On peut

donc analyser maintenant la stabilité monomode au cours du temps.

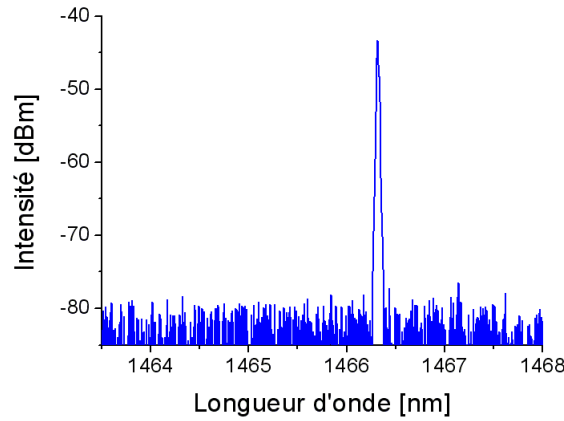


FIGURE 5.32: Spectre de l'onde signal

La stabilité monomode de cet OPO est excellente comme on peut le constater sur la figure 5.33, enregistrée grâce au mesureur de l'ongueur d'onde WS6-IR décrit précédemment. Ainsi, l'OPO en boucle ouverte, c'est à dire sans modification de la position des miroirs, reste sur le même mode longitudinal pendant plusieurs heures. On remarque une périodicité dans l'évolution de la longueur d'onde à laquelle il faut rajouter une lente décroissance. La période est d'environ 12 min, ce qui est attribuée aux variations de la régulation de la température. De plus, pendant cette durée de plus de 6 heures, la fréquence a varié de moins de 400 MHz.

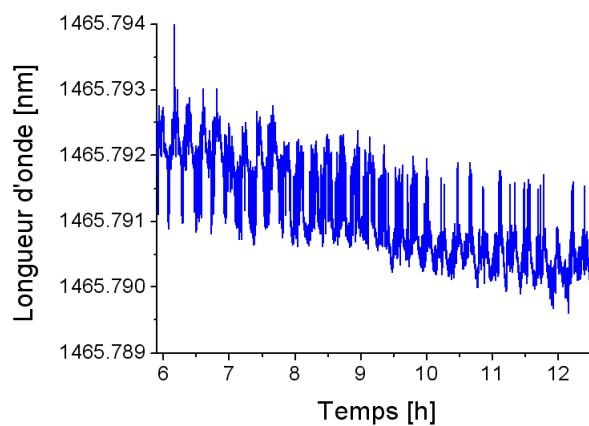


FIGURE 5.33: Évolution de la longueur d'onde signal lorsque l'OPO est en boucle ouverte

On utilise ensuite le programme, développé pour l'ancien OPO, pour maintenir un fonctionnement monomode, sans pour autant chercher à stabiliser la fréquence signal à une valeur

particulière. C'est à dire que l'on ajuste la position des miroirs M_1 et M_3 pour que l'intensité du mode au Fabry-Perot soit maximale. Sur la figure 5.34 on peut observer que l'on a gardé un fonctionnement monomode pendant plusieurs heures. On observe des oscillations proches de celles obtenues avec la cavité libre. On constate que ces oscillations sont légèrement amplifiées par le programme, par contre elles sont un peu plus régulières puisque l'on supprime les variations des longueurs des cavités. Pour maintenir une longueur d'onde plus stable il faudrait se servir du mesureur de longueur d'onde pour la contre-réaction comme on a pu le voir dans le chapitre 3.

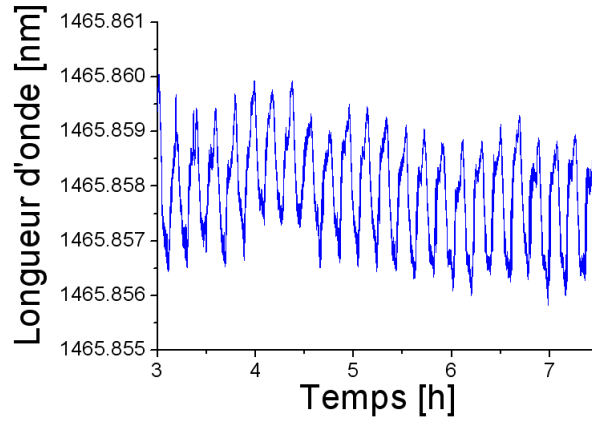


FIGURE 5.34: Stabilisation monomode de la longueur d'onde signal avec l'ordinateur

5.2.6.3 Le balayage en fréquence

Principe du balayage

Le principe du balayage en fréquence de cet OPO est analogue à celui de l'ancien système. Les deux différences majeures étant qu'il y a un miroir de moins à déplacer et que le miroir de fond de cavité modifie la longueur des deux cavités signal et complémentaire. Nous avons donc toujours la même relation (équation 3.19) liant les déplacements des cavités signal et complémentaire, que nous rappelons :

$$\delta L_s = -\frac{\omega_c}{\omega_s} \frac{L_s^{opt}}{L_c^{opt}} \delta L_c \quad (5.2)$$

Pour cette architecture les longueurs des cavités sont reliées par les relations suivantes :

$$L_s = L_{cristal} + L_2 \quad (5.3)$$

$$L_c = L_1 + L_{cristal} + L_2 \quad (5.4)$$

où L_1 est la distance entre les miroirs M_1 et M_2 , et L_2 est la distance entre le cristal et le miroir M_3 . Ce qui nous conduit à la relation suivante :

$$\delta L_2 = -\frac{\omega_c}{\omega_s} \frac{L_s^{opt}}{L_c^{opt}} (\delta L_1 + \delta L_2) \quad (5.5)$$

D'où finalement on obtient la relation liant les déplacements entre les deux miroirs montés sur des cales piézo-électriques :

$$\delta L_1 = -\left(1 + \frac{\omega_s}{\omega_c} \frac{L_c^{opt}}{L_s^{opt}}\right) \delta L_2 \quad (5.6)$$

Sachant que δL_1 est le déplacement associé au miroir M_1 et δL_2 celui associé au miroir M_3 .

Balayage en fréquence manuelle

Malgré quelques zones difficiles, on parvient à balayer la longueur d'onde sur plus de 30 GHz. Sur la figure 5.35 on peut voir un balayage sur près de 20 GHz. On constate que, malgré le fait que l'on impose un signal triangulaire parfaitement régulier à l'une des cales piézo-électrique, la fréquence n'évolue pas de façon régulière. La proportionnalité, lors de ces balayages manuels, entre la tension des cales supportant les miroirs M_1 et M_3 est de 1,3. Or d'après l'équation 5.6 la proportionnalité devrait être de 3,8. Cette différence est due au fait que les deux cales piézo-électriques ne sont pas les mêmes, l'une a une course de 6 μm tandis que celle de l'autre est de 12 μm . Une simple expérience nous a permis de constater que pour déplacer les miroirs d'une même distance il fallait appliquer des tensions avec une proportionnalité de 2,7. Ainsi on retrouve pratiquement la proportionnalité théorique, lorsque l'on balaye sur une grande plage.

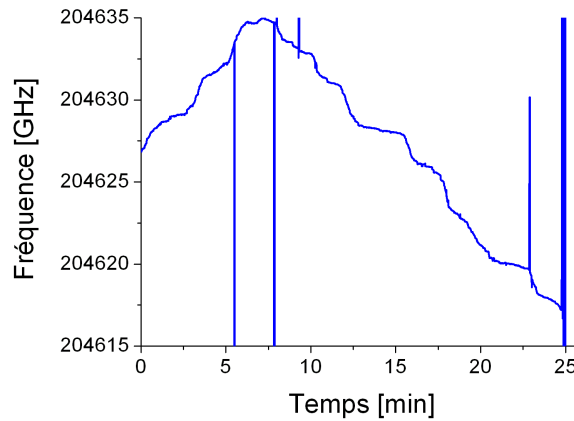


FIGURE 5.35: Balayage manuel de la fréquence de l'OPO

Balayage en fréquence automatique

Maintenant que l'on est en mesure de balayer manuellement sur de grandes plages de fréquences, on peut tenter de balayer de manière automatique en adaptant le programme développé pour l'ancienne architecture. La première modification consiste à changer la proportionnalité entre les déplacements des deux miroirs. Enfin, la partie la plus délicate se situe dans l'optimisation de la position des miroirs pour maintenir un fonctionnement monomode pendant le balayage en fréquence. Dans la précédente version du programme, il s'agissait de repositionner les miroirs complémentaire et pompe pour maximiser l'intensité du pic au Fabry-Perot. Or, dans cette nouvelle configuration cela n'est plus possible. Il s'agit donc de déterminer lequel des deux miroirs M_1 et M_3 doit être repositionné pour maximiser l'intensité du pic au Fabry-Perot. Puisqu'il n'est pas efficace de déplacer les deux miroirs en fonction de l'intensité du Fabry-Perot car on risque de ne plus balayer la fréquence et de revenir en permanence à la fréquence où l'OPO fonctionne le mieux. Après avoir fait plusieurs tentatives, on s'aperçoit qu'il est préférable de repositionner le miroir complémentaire, ce qui peut venir du fait qu'il ne déplace qu'un seul peigne de mode. Sur la figure 5.36 on peut voir un balayage automatique sur près de 15 GHz. On constate, comme pour le balayage manuel, des modulations autour de la fonction triangulaire appliquée au miroir de fond de cavité. Le fait que l'on ne parvienne pas à balayer sur une plus grande plage fréquentielle vient du fait que l'intensité du mode au Fabry-Perot devient trop faible dans certaine zone. Toutefois, comme on peut le constater sur la figure 5.37, il est possible de repositionner la fréquence de l'OPO juste après cette zone et de reprendre le balayage. De plus, on peut constater en comparant ces deux figures que la vitesse du balayage n'est pas le facteur limitant car sur la figure 5.37, le balayage des 10 GHz s'est effectué en 2 min alors que pour la figure 5.36 cela a pris au moins 6 min. Dans les deux cas, le balayage est resté de l'ordre $0,5 \text{ cm}^{-1}$.

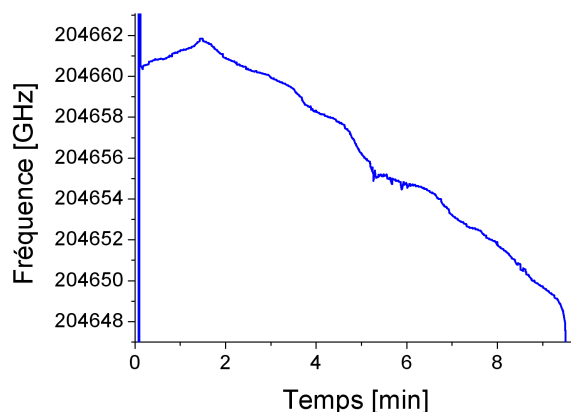


FIGURE 5.36: Balayage automatique de la fréquence de l'OPO

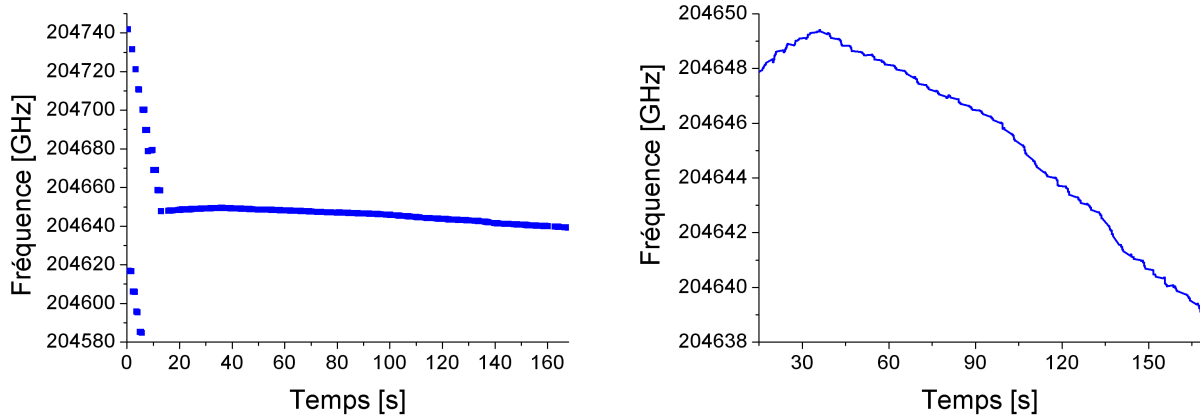


FIGURE 5.37: Positionnement de l'OPO à une fréquence prédéterminée et balayage automatique

Pour réaliser des balayages continus automatiques, sur la course totale des cales piézo-électriques, il faudrait remplacer le miroir de fond de cavité par un miroir plus adapté. C'est à dire avec un rayon de courbure de l'ordre de 20 mm et dont la qualité du revêtement soit irréprochable. De plus, en remplaçant le cristal de PPLT par un cristal de PPLN, il devrait être possible de réduire le seuil et ainsi de pouvoir pomper cette cavité avec un micro-laser comme on a pu le réaliser avec le montage précédent.

5.3 Dispositifs simples de contrôle de la longueur d'onde

5.3.1 Application du VBG à l'évaluation de la longueur d'onde

À plusieurs reprises dans ce document, on a pu remarquer l'utilisation d'un mesureur de longueur d'onde. Il a ainsi été utilisé, dans un premier temps, uniquement pour connaître la longueur d'onde signal et en déduire la longueur d'onde complémentaire, puis dans un second temps comme signal de contre-réaction pour maintenir une longueur d'onde fixe. Or, ce mesureur de longueur d'onde, bien que relativement peu encombrant¹, augmente le volume du montage expérimental et surtout son coût. Il apparaît donc nécessaire de se munir d'autres systèmes permettant d'évaluer la longueur d'onde avec une précision de l'ordre du nanomètre ou moins. Sachant que le Fabry-Perot fibré peut nous donner une précision plus grande sur la longueur d'onde de manière relative.

C'est pour cette raison que l'on a testé la possibilité d'utiliser un composant compact tel qu'un VBG² pour évaluer la longueur d'onde. Comme on pourra le voir dans le paragraphe

1. Environ $10 \times 10 \times 30 \text{ cm}^3$

2. Volume Bragg Grating

suivant, la longueur d'onde réfléchi par un VBG varie suivant l'angle d'inclinaison. Ainsi en plaçant le VBG sur une platine de rotation étalonnée on peut déterminer l'angle de réflexion et donc la valeur de la longueur d'onde incidente. On peut trouver l'angle pour lequel le signal réfléchi est le plus intense et ainsi remonter à la longueur d'onde.

5.3.1.1 Rappels théoriques

Le VBG est un composant optique transparent comportant une variation périodique en volume de l'indice de réfraction. Cette variation bien que très faible permet de réfléchir la majeure partie d'une longueur d'onde centrale sans que les autres longueurs d'onde ne soient affectées. Pour cela, il faut que le réseau soit suffisamment long. Un des matériaux les plus intéressants pour obtenir ces réseaux d'indice est le verre Photo-Thermo-Refractif (PTR), qui est de la silice dopée avec de l'argent, du cérium et du fluor. La principale caractéristique de ce matériau est sa stabilité (thermique, optique et mécanique) qui permet de l'utiliser avec des faisceaux laser intenses.

L'article de référence qui permet de simuler les caractéristiques d'un tel composant est "*Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings*" rédigé par Kogelnik en 1969. Nous rappelons ici uniquement les équations dont nous nous servirons pour modéliser le VBG que nous avons approvisionné. Sur la figure 5.38, on peut voir le tracé d'un rayon incident sur un réseau, ainsi que les différents paramètres à considérer.

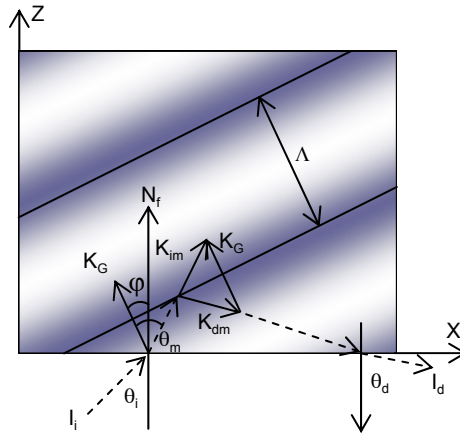


FIGURE 5.38: Schéma du VBG [Cia05]

I_i est le faisceau incident, I_d est le faisceau réfracté, θ_i est l'angle d'incidence, θ_m est l'angle d'incidence de Bragg, θ_d est l'angle de réfraction, φ est l'angle d'inclinaison du réseau, N_f est la normale à la surface d'incidente, K_G est le vecteur du réseau, K_{im} est le vecteur d'onde du faisceau incident dans le VBG, K_{dm} est le vecteur d'onde du faisceau diffracté dans le VBG et Λ est la période du réseau.

La relation donnant la longueur d'onde réfléchiée par le VBG en fonction de l'angle d'incidence s'écrit :

$$\lambda(\theta_m) = 2 n_{VBG} \Lambda \cos(\theta_m) \quad (5.7)$$

n_{VBG} étant l'indice du matériau dans lequel est gravé le réseau. La relation entre l'angle d'incidence sur le VBG (θ_i) et l'angle d'incidence sur le réseau (θ_m) étant :

$$\theta_m = \arcsin\left(\frac{\sin(\theta_i)}{n_{VBG}}\right) - \varphi \quad (5.8)$$

Les différentes relations conduisant au calcul de l'efficacité sont les suivantes :

$$\Delta\theta_m(\theta_i, \Delta\theta_i) = \arcsin\left(\frac{\sin(\theta_i + \Delta\theta_i)}{n_{VBG}}\right) - \arcsin\left(\frac{\sin(\theta_i)}{n_{VBG}}\right) \quad (5.9)$$

$$cr(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \cos(\theta_m + \varphi + \Delta\theta_m) \quad (5.10)$$

$$cs(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \cos(\theta_m + \varphi + \Delta\theta_m) - \frac{\lambda(\theta_m) + \Delta\lambda}{\Lambda n_{VBG}} \cos(\varphi) \quad (5.11)$$

$$\nu(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \imath \frac{n_1 d \pi}{(\lambda(\theta_m) + \Delta\lambda) \sqrt{cr(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) cs(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda)}} \quad (5.12)$$

$$\vartheta(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \frac{2\pi}{\Lambda} \cos(\theta_m + \Delta\theta_m) - (\lambda(\theta_m) + \Delta\lambda) \frac{\pi}{\Lambda^2 n_{VBG}} \quad (5.13)$$

$$\xi(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \frac{\vartheta(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) d}{2 cs(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda)} \quad (5.14)$$

Avec d l'épaisseur du réseau et n_1 la variation d'indice. L'efficacité du VBG est donnée par la relation suivante :

$$\eta(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) = \left[1 + \frac{1 - (\xi(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda) / \nu(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda))^2}{\left(\sinh\left(\sqrt{\nu(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda)^2 - \xi(\theta_i, \Delta\theta_i, \Delta\lambda)^2} \right) \right)^2} \right]^{-1} \quad (5.15)$$

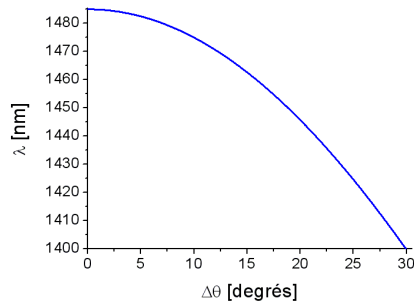
5.3.1.2 Résultats expérimentaux

Les caractéristiques du VBG délivrées par le fournisseur sont répertoriées dans le tableau 5.4.

Longueur d'onde centrale à incidence normale	$1485 \pm 0,5$ nm à 22°C
Efficacité de diffraction	$> 60\%$
Épaisseur du réseau	6 (-0/+2) mm
Sélectivité spectrale, FWHM	$< 0,2$ nm
Ouverture du réseau	$4,4 \times 8,0$ mm ²
Angle du réseau	$0 \pm 1^\circ$
Indice de réfraction	$n_{VBG} = 1,496$
Modulation de l'indice	$n_1 = 1,1 \cdot 10^{-4}$

TABLEAU 5.4: Description du VBG

Nous sommes tout particulièrement intéressés par la dépendance entre la longueur d'onde réfléchie et l'angle d'incidence du faisceau sur le VBG. L'équation 5.7 nous permet d'obtenir cette dépendance, le résultat du calcul est représenté sur la figure 5.39. On remarque que la longueur d'onde réfléchie varie de 1485 à 1400 nm lorsque l'angle d'incidence varie de 0 à 30° . Sur la figure 5.40(a) on a représenté l'efficacité du VBG en fonction d'une variation de la longueur d'onde autour de la valeur optimale donnée par la figure 5.39. On constate ainsi que l'acceptance spectrale du VBG est à peu près la même quelque soit l'angle d'incidence, environ 0,9 nm. De plus, on remarque que l'efficacité est de l'ordre de 80%, et même légèrement plus élevée lorsque l'on augmente l'angle d'incidence. Par contre, sur la figure 5.40(b) où l'on a reporté l'efficacité en fonction d'une légère variation de l'angle d'incidence, on constate une très forte diminution de l'acceptance angulaire lorsque l'on augmente l'angle d'incidence, cette acceptation varie de $\pm 0,9^\circ$ à $\pm 0,025^\circ$. Ainsi, un VBG permet de connaître la valeur de la longueur d'onde incidente à condition de travailler avec des faisceaux bien collimatés pour ne pas perdre en efficacité.

**FIGURE 5.39:** Longueur d'onde réfléchie en fonction de l'angle d'incidence sur le VBG

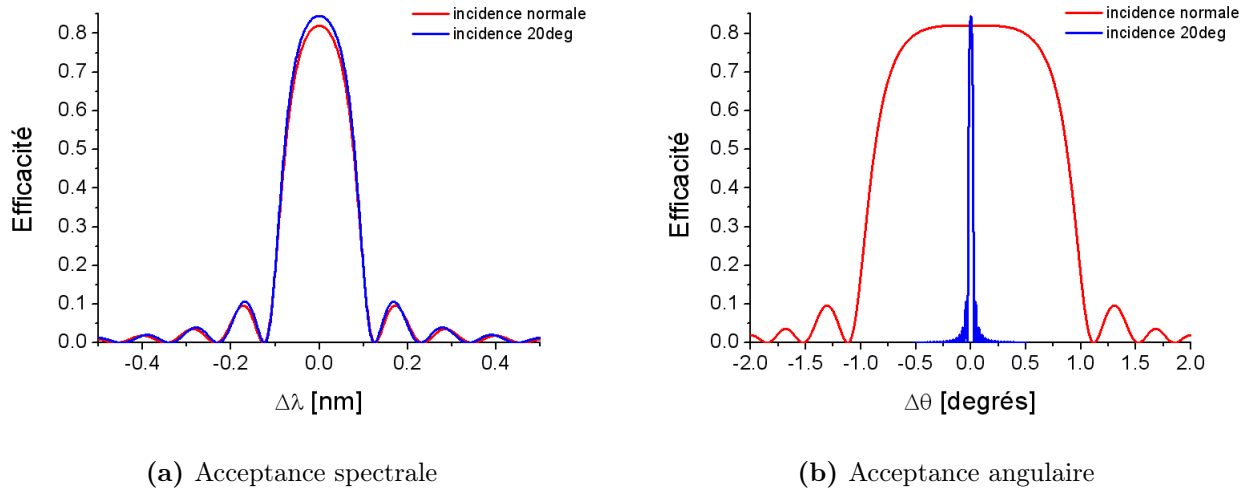


FIGURE 5.40: Efficacité du VBG pour deux angles d'incidence

Pour tester les capacités de mesure en longueur d'onde de notre VBG en fonction de l'angle d'incidence, nous avons réalisé le montage de la figure 5.41. On fait varier l'angle d'incidence sur le VBG par pas de $0,1^\circ$ puis, en faisant des sauts de modes avec l'OPO, on relève la longueur d'onde réfléchie. En fait plusieurs modes longitudinaux consécutifs sont suffisamment réfléchis par le VBG pour être détectés à la caméra. On a ainsi pu observer, pour un angle d'incidence donné, plusieurs spots sur la caméra, correspondant à différents modes longitudinaux. Sur la figure 5.42 nous avons porté la longueur d'onde émise par l'OPO en fonction de l'angle de la platine de rotation sur laquelle repose le VBG. Sachant que l'angle d'autocollimation est de $22,7^\circ$. On a également indiqué quel était le réseau du cristal de PPLN de l'OPO utilisé ainsi que sa température. Notons que l'on n'a pas fait varier la température du cristal sur toute la plage disponible, ce qui explique les longueurs d'onde manquantes dans la courbe.

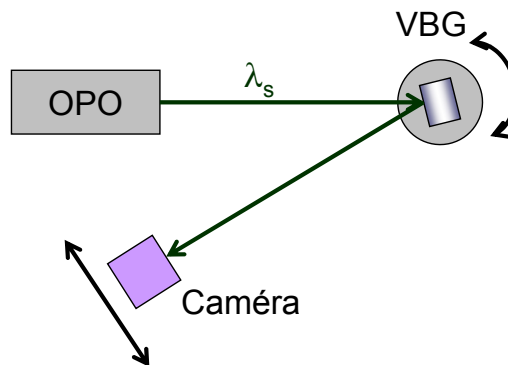


FIGURE 5.41: Montage expérimental

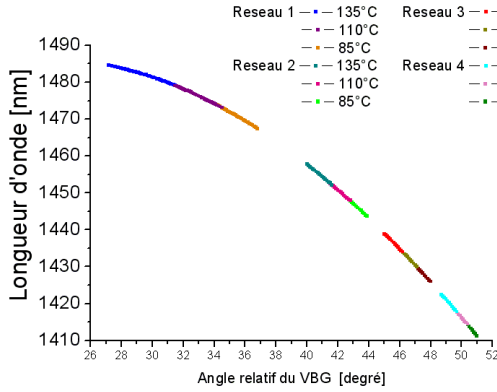


FIGURE 5.42: Longueur d'onde réfléchie en fonction de l'angle d'incidence

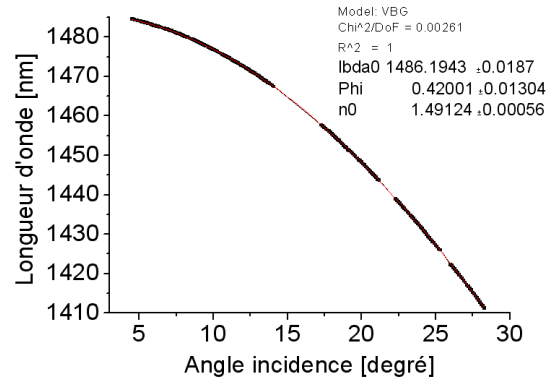


FIGURE 5.43: Ajustement de la courbe expérimentale

Si on réalise un ajustement de la courbe expérimentale (figure 5.42) par l'équation 5.7 en laissant n_{VBG} , φ et $\lambda(\theta = 0)$ variables. On obtient les valeurs suivantes $n_{VBG} = 1,491$, $\varphi = 0,42^\circ$ et $\lambda(\theta = 0) = 1486,19$ nm (voir figure 5.43). Les deux premières valeurs sont en accord avec les données fournies par le constructeur, par contre la longueur d'onde centrale à incidence normale est légèrement supérieure à la valeur donnée par le constructeur ($1485 \pm 0,5$ nm).

Sur la figure 5.44, contrairement à la courbe précédente où pour chaque mesure l'angle du VBG est fixe, chaque point représente l'angle du VBG obtenu pour un mode fixé. On s'aperçoit que les modes successifs sont séparés d'environ 13,6 GHz, ce qui correspond à un angle du VBG de $0,025^\circ$, pour ce domaine spectral. Sachant que la précision sur la mesure de l'angle est de $0,005^\circ$ avec cette platine de rotation. Ainsi lorsque l'on a enregistré la courbe de la figure 5.42 dans le domaine spectral couvert par la figure 5.44, il y avait quatre modes longitudinaux successifs d'écart entre deux positions du VBG, puisque le pas était de $0,1^\circ$.

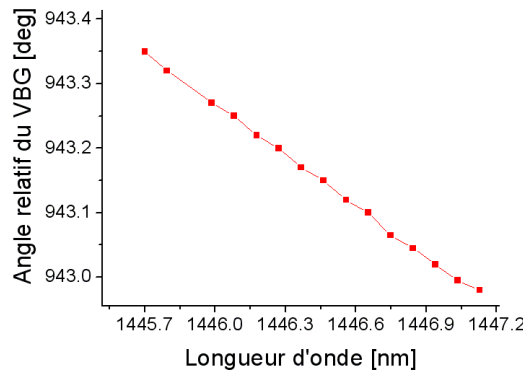


FIGURE 5.44: Angle du VBG en fonction de la longueur d'onde

Il apparaît clairement que le VBG permet de connaître la longueur d'onde, sur une grande plage, avec une précision meilleure que 0,1 nm. La résolution spectrale est suffisante pour séparer les modes longitudinaux successifs de l'OPO. Dans ces conditions le VBG pourrait être utilisé non seulement pour déterminer la valeur absolue de la longueur d'onde émise par l'OPO mais aussi pour vérifier le fonctionnement monomode. Suites à ces essais préliminaires, il semble que l'utilisation du VBG pourrait être envisagée comme un moyen de contrôle à une longueur d'onde prédéterminée plutôt que comme un dispositif de mesure de longueur d'onde qui nécessiterait la mise en œuvre d'une platine de rotation de bonne qualité et d'une barrette de photodiode.

5.3.2 Évaluation de la longueur d'onde complémentaire à l'aide d'un Fabry-Perot en germanium

Les outils dont nous nous sommes servis jusqu'à présent pour contrôler la fréquence de l'OPO nous renseignaient sur le rayonnement signal. Or, les spectres d'absorption sont obtenus à partir du rayonnement complémentaire. On a ainsi pu constater que l'allure des spectres peut être affectée par des variations de la fréquence pompe. Il est donc important de pouvoir évaluer la fréquence complémentaire pendant le balayage.

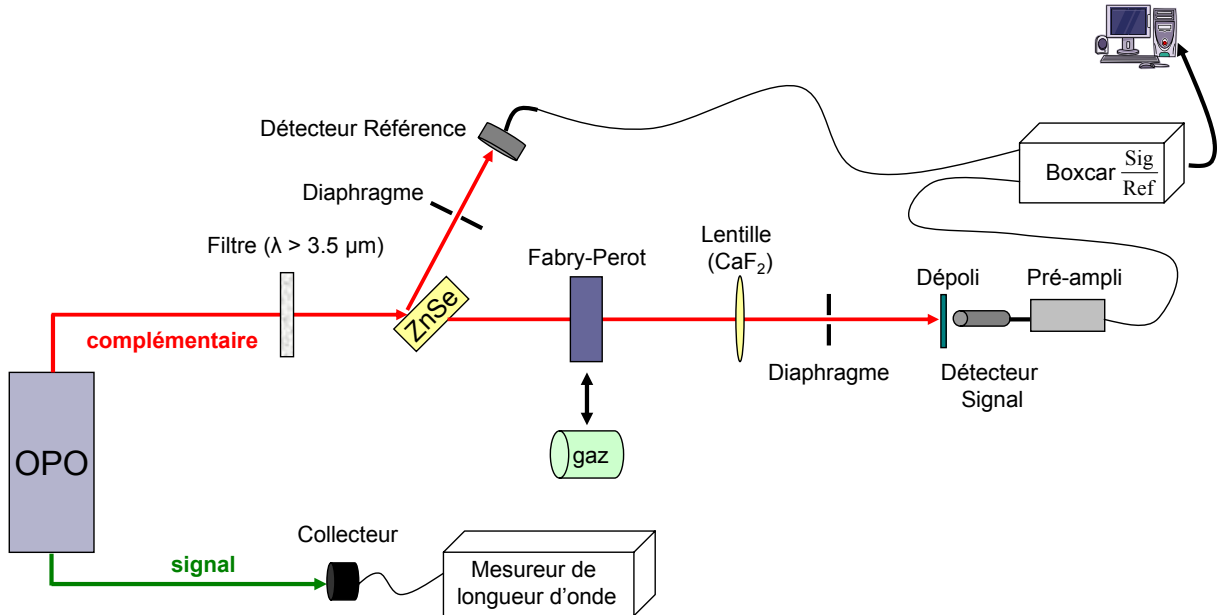


FIGURE 5.45: Schéma du dispositif expérimental pour évaluer les performances du Fabry-Perot en germanium

Un des moyens les plus souvent utilisés pour contrôler la fréquence pendant un balayage est un Fabry-Perot. Nous avons donc utilisé un Fabry-Perot en germanium d'épaisseur $L_{FP} = 25,012$ mm, sachant qu'à 4 μm son indice de réfraction est de : $n_{Ge} = 4,025$ [Ice76]. Pour

évaluer ses performances, nous avons réalisé le dispositif expérimental que l'on retrouve sur la figure 5.45. On enregistre également pendant le balayage la fréquence signal à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde.

Les résultats des mesures obtenues avec ce dispositif expérimental sont présentés sur la figure 5.46. Sur cette figure, on a représenté en bleu et en rouge le rapport $\frac{\text{signal}}{\text{référence}}$ en fonction de la fréquence complémentaire, déduite de la fréquence signal enregistrée avec le mesureur de longueur d'onde (WS6-IR) en supposant la fréquence pompe constante. Les courbes bleu et rouge correspondent à un balayage croissant de la fréquence, respectivement décroissant. On observe une modulation rapide du rapport avec une fréquence de $0,049 \text{ cm}^{-1}$. Cette modulation est provoquée par le Fabry-Perot en germanium, dont le calcul de l'intervalle spectral libre donne en effet :

$$\Delta\tilde{\nu}_{FP} = \frac{1}{n_{Ge} 2L_{FP}} = 0,0497 \text{ cm}^{-1} \quad (5.16)$$

On remarque également une modulation plus lente dont la fréquence est de $0,26 \text{ cm}^{-1}$. Cette modulation est provoquée par la lame en ZnSe. L'épaisseur de lame est de $L_{ZnSe} = 0,8 \text{ mm}$, et l'indice à $4 \mu\text{m}$ est de $n_{ZnSe} = 2,43$. Le calcul de l'intervalle spectral libre de la lame en ZnSe donne en effet :

$$\Delta\tilde{\nu}_{ZnSe} = \frac{1}{n_{ZnSe} 2L_{ZnSe}} = 0,26 \text{ cm}^{-1} \quad (5.17)$$

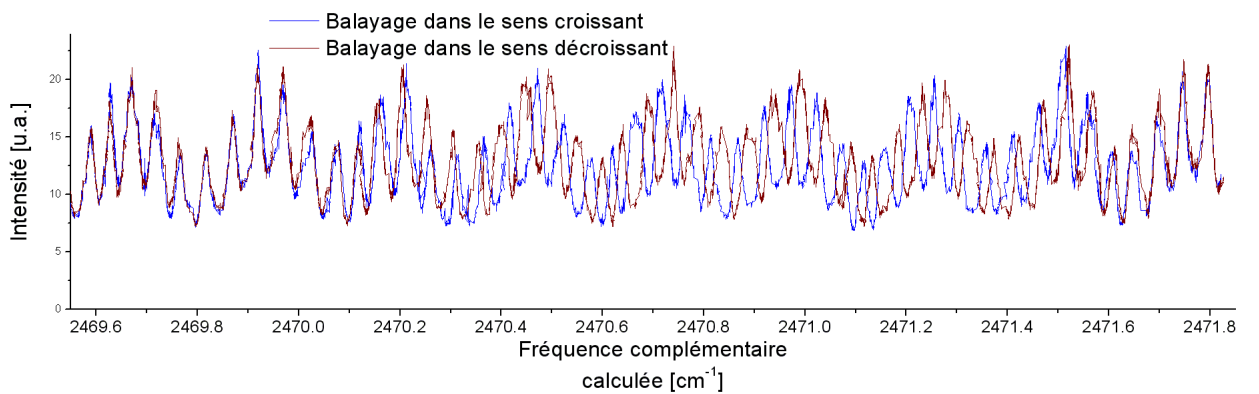


FIGURE 5.46: Enregistrement du rapport $\frac{\text{signal}}{\text{référence}}$ en fonction de la fréquence complémentaire calculée à partir de la fréquence signal enregistrée avec le mesureur de longueur d'onde fibré

On constate sur la figure 5.46 qu'un décalage intervient entre les deux courbes au cours du

balayage. Ceci est provoqué par une variation de la fréquence pompe au cours du balayage. Il est donc possible d'utiliser ce Fabry-Perot pour prendre en compte les variations de la fréquence pompe lorsque l'on balaie sur de grandes plages de fréquence.

Synthèse

Nu cours de ce dernier chapitre nous sommes parvenus à pomper notre OPO avec un micro-laser et à balayer la fréquence sur près de 7 GHz. Cette expérience de démonstration ouvre la voie vers une miniaturisation de la source OPO.

De même, nous avons introduit une nouvelle architecture de cavité qui, par son encombrement réduit, répond également à notre objectif de réduction du volume. Nous avons pu valider l'oscillation paramétrique avec cette nouvelle cavité. Nous avons réalisé des balayages manuels continus de plus de 30 GHz et de près de 15 GHz de façon automatique. De plus, le programme permet de sélectionner une zone fréquentielle par sauts de mode, puis de balayer continûment la fréquence de l'OPO. Bien que des développements soient encore à mener, des progrès sensibles ont pu être obtenus. D'une part le nombre de miroirs a été réduit, passant de cinq à trois, le nombre de cales piézo-électriques a également diminué de 3 à 2. L'encombrement du corps de l'OPO a donc été fortement réduit, avec pour conséquence une bien meilleure stabilité mécanique et donc fréquentielle. L'utilisation d'une translation motorisée devrait permettre de balayer automatiquement sur toute la bande.

Enfin, nous nous sommes intéressés au contrôle de la longueur d'onde de l'OPO au moyen de composants simples et robustes.

Conclusion et perspectives

Celui qui excelle ne discute pas, - Il maîtrise sa science et se tait.

LAO-TSEU [Tao tö King, LXXXI]

es travaux menés au cours de cette étude ont eu pour objectif principal la réalisation d'une source optique de grande finesse spectrale, accordable dans l'infrarouge pour la détection multigaz. Afin d'atteindre cet objectif, nous avons été amenés à considérer le mélange à trois ondes et à développer plus particulièrement des oscillateurs paramétriques optiques doublement résonnants. Après avoir rappelé au chapitre 1 les principes fondamentaux de la conversion paramétrique, nous avons donné au chapitre 2 un bilan des performances du DROPO à cavités imbriquées développé à l'Onera/DMPH. Ceci nous a permis de mettre en évidence les difficultés, rencontrées lors des études précédentes, qui limitaient les performances de cette source. À partir de simulations du comportement de l'OPO en régime continu, nous avons pu préciser les causes des limitations rencontrées que nous avons analysées au cours du chapitre 3. La suite de ce chapitre a été consacrée au développement de la source, tout d'abord par l'automatisation du balayage en fréquence. Pour cela, un programme a été entièrement développé non seulement pour réaliser le balayage en fréquence, mais également pour établir la zone fréquentielle à balayer dans la bande de gain paramétrique. Nous avons pu obtenir un balayage continu en fréquence sur 100 GHz en quelques dizaines de secondes, limité uniquement par la course maximale des cales piézo-électriques, pour des longueurs d'onde comprises entre 3,8 et 4,3 μm limités par les réseaux du PPLN. Par ailleurs, pour répondre à certaines applications qui requièrent une fréquence stable au cours du temps, par exemple de type lidar, nous avons prolongé le domaine d'utilisation de ce programme pour stabiliser la fréquence à n'importe quelle valeur choisie dans la bande de gain paramétrique. Une stabilisation de la fréquence signal de $\pm 2,8$ MHz a ainsi pu être obtenue de façon automatique.

Les performances du DROPO ont été validées pour l'analyse de gaz. Nous avons ainsi réalisé un banc optique pour des mesures de transmission à travers une cellule remplie d'un gaz connu à une pression déterminée (chapitre 4). Les spectres que nous avons obtenus, pour

différentes espèces gazeuses (CO_2 , N_2O , CH_4 et SO_2), à différentes pressions et à des longueurs d'onde comprises entre 3,8 et 4,2 μm , sont en bon accord avec les spectres théoriques obtenus à partir de la base de données Hitran. De même, les spectres enregistrés grâce à la détection photoacoustique nous ont permis de mettre en avant les capacités de mise en œuvre du DROPO pour cette technique très sensible, et son potentiel pour le développement de capteurs de gaz multi-espèce ultra-sensible.

Un point important du développement de cette source a été de valider son pompage par un micro-laser, démontrant ainsi le potentiel de miniaturisation de la source. Finalement, nous avons validé une nouvelle architecture plus compacte, en vue de s'affranchir des problèmes de réflexions parasites qui complexifiaient l'asservissement de la précédente architecture. Le chapitre 5 nous a permis d'expliquer le fonctionnement de ce nouveau système, de décrire le montage expérimental qui lui est associé, et de faire le point sur les performances obtenues. Nous avons pu obtenir l'oscillation paramétrique, et effectuer des premières démonstrations expérimentales : démontrer le fonctionnement monomode et balayer continûment la fréquence sur 15 GHz. Sans pouvoir, pour des raisons techniques, mener à bien l'optimisation complète du système.

Perspectives

Les perspectives de cette étude sont multiples, une part importante consiste à développer des capteurs de gaz multi-espèces de haute sensibilité. Ceci peut être réalisé dans un premier temps en utilisant une cellule photoacoustique résonnante pour le taux de répétition de la pompe. D'autres techniques d'analyse, telles que le mélange dégénéré à quatre ondes, peuvent éventuellement être mises en œuvre avec cette source. Une autre perspective de cette source est son utilisation pour réaliser des mesures Lidar à courte portée, en tirant avantage du fonctionnement impulsionnel de cette source et de sa capacité à être verrouillée très précisément en fréquence.

Les capacités de la nouvelle cavité OPO n'ont été que partiellement évaluées, notamment l'optimisation de la phase retour entre les ondes n'a pu être étudiée. De nouveaux modes de fonctionnement de la source peuvent être d'ores et déjà envisagés, par exemple une émission bi-fréquence.

Annexe A

Modélisation du DROPO en régime continu

Dans cette annexe, nous allons développer les détails de calcul conduisant à l'expression du seuil d'un DROPO en régime continu. Nous allons faire deux types de calcul. Dans le premier cas, nous faisons l'hypothèse que la pompe n'est pas dépeuplée, et nous évaluons le seuil de l'OPO en fonction de la fréquence. Dans le second cas, nous reprenons les hypothèses développées par Siegman [Sie62] en vue de calculer le seuil et l'efficacité de conversion du DROPO ; la répartition longitudinale des champs résonnants est alors supposée constante dans la cavité. On retrouve une partie de ces résultats dans des articles de Bjorkholm [Bjo69, Bjo70].

La démarche suivie lors des deux modélisations est schématisée par la figure A.1. Dans un premier temps, on détermine des miroirs équivalents r^{in} et r^{out} pour l'ensemble des miroirs M_1 à M_5 du DROPO à cavités imbriquées. Dans un deuxième temps, on calcule l'évolution de l'intensité des ondes signal et complémentaire en supposant une pompe non dépeuplée (1^{er} cas), ou bien on calcule l'évolution de l'intensité de l'onde pompe en supposant une répartition longitudinale des intensités signal et pompe constante (2nd cas).

A.1 Simulation du seuil avec l'hypothèse de la pompe non dépeuplée

Pour cette simulation, nous considérons les paramètres de la figure A.1, pour le premier cas.

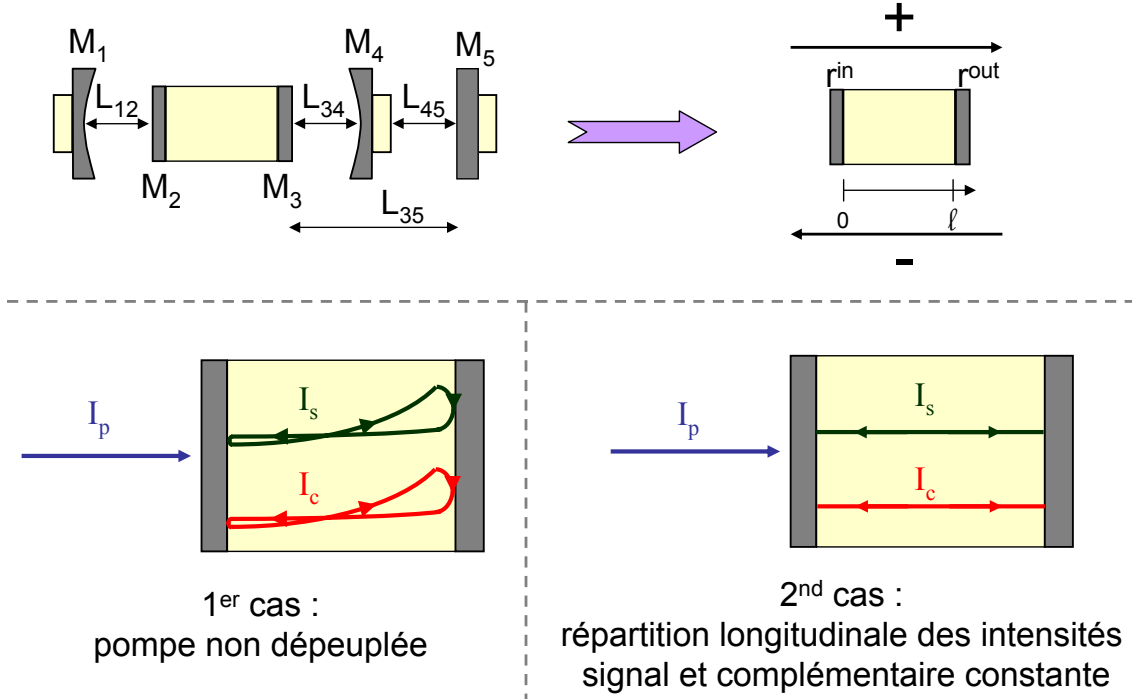


FIGURE A.1: Schéma du DROPO

En utilisant le changement de variable (équation C.3) introduit en annexe C et à partir du système 1.7, on trouve l'évolution de l'amplitude des champs signal, complémentaire et pompe dans le sens négatif ; donnée par les équations suivantes :

$$a_s^+(0) = r_s^{in} \left[a_s^-(l) - i g a_p^-(l) a_c^{-*}(l) \exp \left(-i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_s l}{\lambda_s} \right) \quad (\text{A.1})$$

$$a_c^+(0) = r_c^{in} \left[a_c^-(l) - i g a_p^-(l) a_s^{-*}(l) \exp \left(-i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_c l}{\lambda_c} \right) \quad (\text{A.2})$$

$$a_p^+(0) = r_p^{in} \left[a_p^-(l) + i g a_s^-(l) a_c^-(l) \exp \left(i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_p l}{\lambda_p} \right) + a_p^{source} \quad (\text{A.3})$$

De même l'évolution de l'amplitude des champs dans le sens positif est donnée par :

$$a_s^-(l) = r_s^{out} \left[a_s^+(0) - i g a_p^+(0) a_c^{+*}(0) \exp \left(-i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_s l}{\lambda_s} \right) \quad (\text{A.4})$$

$$a_c^-(l) = r_c^{out} \left[a_c^+(0) - i g a_p^+(0) a_s^{+*}(0) \exp \left(-i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_c l}{\lambda_c} \right) \quad (\text{A.5})$$

$$a_p^-(l) = r_p^{out} \left[a_p^+(0) + i g a_s^+(0) a_c^+(0) \exp \left(i \frac{\Delta k l}{2} \right) \right] \exp \left(-2i\pi \frac{n_p l}{\lambda_p} \right) \quad (\text{A.6})$$

où le coefficient g est donné par la relation :

$$g = \kappa l \operatorname{sinc} \left(\frac{\Delta k l}{2} \right) \quad (\text{A.7})$$

$$\kappa = \frac{d}{c} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_c \omega_p}{n_s n_c n_p}} \quad (\text{A.8})$$

$$d = \frac{\chi_{eff}}{2} \quad (\text{A.9})$$

Par la suite, pour simplifier les notations, on remplace les termes $a_j^+(0)$ par a_j , et l'on développe l'équation A.1, on obtient :

$$\begin{aligned} & \left(1 - r_s^{in} r_s^{out} \exp \left(-4i\pi \frac{n_s l}{\lambda_s} \right) \right) a_s = \\ & - i g \exp \left(-i \frac{\Delta k l}{2} \right) r_s^{in} \exp \left(-4i\pi \frac{n_s l}{\lambda_s} \right) \left[r_s^{out} + r_p^{out} r_c^{out*} \exp \left(-2i\pi l \left(\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_c}{\lambda_c} \right) \right) \right] a_p a_c^* \\ & + g^2 r_s^{in} r_p^{out} r_c^{out*} \exp \left(-4i\pi \frac{n_s l}{\lambda_s} \right) \left[\exp \left(-2i\pi l \left(\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_c}{\lambda_c} \right) \right) |a_p|^2 + |a_c|^2 \right] a_s \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Maintenant si on considère que la pompe est non dépeuplée, c'est à dire que l'on est proche du seuil, on peut faire l'approximation suivante :

$$\exp \left(-2i\pi l \left(\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_c}{\lambda_c} \right) \right) |a_p|^2 \gg |a_c|^2$$

De plus les termes en g^2 sont faibles devant les autre termes. Avec les définitions suivantes :

$$r_j = r_j^{in} r_j^{out} \exp \left(-4i\pi \frac{n_j l}{\lambda_j} \right) = |r_j| \exp(-i\varphi_j) \quad j \in \{s, c, p\} \quad (\text{A.11})$$

$$r_j^{out} = |r_j^{out}| \exp(-i\varphi_j^{out}) \quad (\text{A.12})$$

$$\Delta\varphi^{out} = \varphi_p^{out} - \varphi_s^{out} - \varphi_c^{out} \quad (\text{A.13})$$

$$\Delta k = 2\pi \left(\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_c}{\lambda_c} \right) \quad (\text{A.14})$$

$$\theta = \Delta k l + \Delta\varphi^{out} \quad (\text{A.15})$$

L'équation A.10 devient :

$$\begin{aligned} & [\exp(i\varphi_s) - |r_s| + g^2 |a_p|^2 |r_s^{in}| |r_p^{out}| |r_c^{out}| \exp(-i\theta)] a_s = \\ & - ig \exp\left(-i\frac{\Delta k l}{2}\right) |r_s^{in}| [|r_s^{out}| + |r_p^{out}| |r_c^{out}| \exp(-i\theta)] a_p a_c^* \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

On obtient une équation équivalente en partant de l'équation A.2. À partir de l'équation ainsi obtenue et de l'équation A.16, on peut éliminer les champs A_s et A_c , ce qui nous donne au deuxième ordre en g :

$$\begin{aligned} & (\exp(i\varphi_s) - |r_s|) (\exp(-i\varphi_c) - |r_c|) = \\ & g^2 |a_p|^2 |r_s| |r_c| \left[1 + |r_p^{out}|^2 + |r_p^{out}| \left(\frac{\exp(-i(\varphi_c + \theta))}{|r_s^{out}| |r_c^{in}|} + \frac{\exp(i(\varphi_s + \theta))}{|r_s^{in}| |r_c^{out}|} \right) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Après avoir séparé partie réelle et partie imaginaire de l'équation A.17, on obtient, à partir de la partie réelle, la relation donnant le seuil du DROPO :

$$I_{seuil} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c \omega_p |a_p|^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c \omega_p \frac{(|r_s| |r_c| + \cos(\varphi_s - \varphi_c) - |r_c| \cos(\varphi_s) - |r_s| \cos(\varphi_c))}{g^2 |r_s| |r_c| \left(1 + |r_p^{out}|^2 + |r_p^{out}| \left(\frac{\cos(\varphi_c + \theta)}{|r_s^{out}| |r_c^{in}|} + \frac{\cos(\varphi_s + \theta)}{|r_s^{in}| |r_c^{out}|} \right) \right)} \quad (\text{A.18})$$

Notons que la phase φ_j correspond à la phase accumulée par l'onde j pendant un aller-retour dans la cavité. Donc, lorsque l'onde est résonnante, $\varphi_j = m \times 2\pi$, m entier. Dans ces conditions, si on remplace g par son expression A.7, le seuil s'écrit :

$$I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)} \frac{(1 - |r_s|)(1 - |r_c|)}{|r_s| |r_c| \left(1 + |r_p^{out}|^2 + |r_p^{out}| \cos(\theta) \left(\frac{1}{|r_s^{out}| |r_c^{in}|} + \frac{1}{|r_s^{in}| |r_c^{out}|} \right) \right)} \quad (\text{A.19})$$

A.2 Simulation de l'efficacité avec l'hypothèse de la variation spatiale des ondes résonnantes pratiquement constante

Pour cette simulation, nous modélisons notre OPO avec les paramètres de la figure A.1, pour le second cas. Sachant que, dans un premier temps, on ne considère pas de réflexion de la pompe. De plus, les réflexions en entrée et en sortie, pour les ondes signal et complémentaire, sont considérées identiques.

Sans réflexion de la pompe sur le miroir de sortie

L'évolution de l'amplitude de la pompe est régie par les équations suivantes (voir 1.7 et C.3) :

$$\frac{da_p^+(z)}{dz} = i \kappa a_s a_c \exp(-i(\Delta k z + \Delta \varphi^+)) \quad (\text{A.20})$$

$$\frac{da_p^-(z)}{dz} = -i \kappa a_s a_c \exp(i(\Delta k z - \Delta \varphi^-)) \quad (\text{A.21})$$

De plus $\Delta \varphi^+$, respectivement $\Delta \varphi^-$, est le déphasage entre les trois ondes en entrée de cristal en $z = 0$, respectivement en sortie de cristal en $z = l$.

En absence de retour de pompe sur le miroir de sortie, on a :

$$a_p^+(0) = a_p \quad \text{et} \quad a_p^-(l) = 0 \quad (\text{A.22})$$

On obtient les relations :

$$a_p^+(z) = a_p + i \kappa a_s a_c z \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta k}{2} z\right) \exp\left(-i\left(\frac{\Delta k}{2} z + \Delta \varphi^+\right)\right) \quad (\text{A.23})$$

$$a_p^-(z) = -i \kappa a_s a_c (z - l) \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta k}{2} (z - l)\right) \exp\left(i\left(\frac{\Delta k}{2} (z + l) - \Delta \varphi^-\right)\right) \quad (\text{A.24})$$

Sur un aller-retour des ondes signal et complémentaire dans la cavité, les différentes phases sont reliées par la relation suivante :

$$\varphi_j^- = 2 k_j l + \varphi_j^+ + \varphi_j^{\text{out}} \quad j \in \{s, c\} \quad (\text{A.25})$$

où φ_j^{out} est le déphasage à la réflexion sur le miroir de sortie équivalent pour l'onde j . Le déphasage entre les trois ondes est optimal pour la conversion paramétrique dans le cristal dans

les deux sens. On arrive aux équations donnant les déphasages. Pour le trajet positif, l'onde pompe se convertit en onde signal et complémentaire avec la relation de phase donnée par :

$$\frac{\Delta k l}{2} + \Delta\varphi^+ = -\frac{\pi}{2} \quad (\text{A.26})$$

Pour le trajet négatif les ondes signal et complémentaire se reconvertissent en onde pompe avec la relation de phase donnée par :

$$\frac{\Delta k l}{2} - \Delta\varphi^- = \frac{\pi}{2} \quad (\text{A.27})$$

Compte tenu de la conservation de l'énergie, on obtient :

$$n_p \left[|a_p|^2 - |a_p^+(l)|^2 - |a_p^-(0)|^2 \right] = 2\alpha_s n_s |a_s|^2 + 2\alpha_c n_c |a_c|^2 \quad (\text{A.28})$$

Où α_s est la perte de puissance sur un passage. Ainsi, si on ne considère que les pertes à la réflexion sur les miroirs cela nous donne, avec les notations de la section précédente : $\alpha_s = 1 - |r_s^{\text{out}}|^2 = 1 - |r_s^{\text{in}}|^2 = 1 - |r_s|$. Par ailleurs les relations de Manley-Rowe nous donnent :

$$\frac{|a_s|^2}{|a_c|^2} = \frac{\omega_s \alpha_c n_c}{\omega_c \alpha_s n_s} \quad (\text{A.29})$$

On peut donc simplifier le deuxième membre de l'équation A.28 :

$$2\alpha_s n_s |a_s|^2 + 2\alpha_c n_c |a_c|^2 = 2\alpha_j n_j \frac{\omega_p}{\omega_j} |a_j|^2 \quad j \in \{s, c\} \quad (\text{A.30})$$

Si on développe le premier membre de l'équation A.28, on obtient :

$$n_p \left[|a_p|^2 - |a_p^+(l)|^2 - |a_p^-(0)|^2 \right] = n_p \left[a_p^2 - (a_p - g a_s a_c)^2 - (g a_s a_c)^2 \right] \quad (\text{A.31})$$

Si on utilise la relation A.29 pour substituer a_c , et que l'on réécrit l'égalité A.28 en utilisant les relations A.30 et A.31 ; et enfin que l'on divise par $\frac{|a_s|^2}{2n_p}$, on obtient :

$$\frac{\alpha_s n_s \omega_p}{n_p \omega_s} = g \sqrt{\frac{\omega_c \alpha_s n_s}{\omega_s \alpha_c n_c}} a_p - \left(g \sqrt{\frac{\omega_c \alpha_s n_s}{\omega_s \alpha_c n_c}} \right)^2 |a_s|^2 \quad (\text{A.32})$$

Rappelons les relations suivantes :

$$|a_j|^2 = \frac{2 I_j}{2 \alpha_j \omega_j \varepsilon_0 c} \quad j \in \{s, c\} \quad (\text{A.33})$$

$$|a_p|^2 = \frac{2 I_p}{\omega_p \varepsilon_0 c} \quad (\text{A.34})$$

Ce qui nous conduit, à partir de l'équation A.32, à la relation liant les différentes intensités :

$$\frac{\omega_p I_j}{\omega_j I_p} = 2 \frac{I_{seuil}}{I_p} \left(\sqrt{\frac{I_p}{I_{seuil}}} - 1 \right) \quad j \in \{s, c\} \quad (\text{A.35})$$

$$\text{avec} \quad I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \alpha_s \alpha_c \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k l}{2} \right)}$$

Finalement l'efficacité de conversion pour un DROPO est donnée par :

$$\eta = \frac{I_s + I_c}{I_p} = \frac{2}{N} \left(\sqrt{N} - 1 \right) \quad (\text{A.36})$$

où N est le nombre de fois au dessus du seuil. On remarque que l'efficacité atteint un maximum de 50% à 4 fois au dessus du seuil.

Il est possible de supprimer la reconversion de la pompe, par exemple dans une cavité en anneau. Les relations A.28 et A.36 deviennent alors :

$$n_p \left[|a_p|^2 - |a_p^+(l)|^2 \right] = 2 \alpha_s n_s |a_s|^2 + 2 \alpha_c n_c |a_c|^2 \quad (\text{A.37})$$

$$\eta = \frac{I_s + I_c}{I_p} = \frac{4}{N} \left(\sqrt{N} - 1 \right) \quad (\text{A.38})$$

Dans ces conditions l'efficacité de conversion peut atteindre 100%, pour $N = 4$.

Avec réflexion de la pompe sur le miroir de sortie

Dans le paragraphe précédent, on a considéré que le champ pompe n'était pas réfléchi en sortie de DROPO (ie $a_p^-(l) = 0$). Maintenant, on introduit un coefficient de réflexion en

amplitude r_p^{out} , d'où la nouvelle condition aux limites :

$$a_p^-(l) = r_p^{out} a_p^+(l) \quad (\text{A.39})$$

Ce qui nous donne pour l'évolution de l'amplitude du champ pompe dans le sens négatif :

$$a_p^-(z) = r_p^{out} a_p^+(l) - i \kappa a_s a_c (z-l) \operatorname{sinc} \left(\frac{\Delta k}{2} (z-l) \right) \exp \left(i \left(\frac{\Delta k}{2} (z+l) - \Delta \varphi^- \right) \right) \quad (\text{A.40})$$

La relation A.27 se trouve également modifiée, car le déphasage entre les ondes au retour dans le cristal n'est plus libre. Puisque les trois ondes sont réfléchies. On obtient ainsi les relations suivantes :

$$\frac{\Delta k l}{2} + \Delta \varphi^+ = -\frac{\pi}{2} \quad (\text{A.41})$$

$$\frac{\Delta k l}{2} - \Delta \varphi^- = - \left(\frac{\Delta k l}{2} + \Delta \varphi^+ \right) - (\Delta k l + \Delta \varphi^{out}) = \frac{\pi}{2} - \theta \quad (\text{A.42})$$

La relation de conservation de l'énergie devient :

$$n_p \left[|a_p|^2 - \left(1 - |r_p^{out}|^2 \right) |a_p^+(l)|^2 - |a_p^-(0)|^2 \right] = 2 \alpha_s n_s |a_s|^2 + 2 \alpha_c n_c |a_c|^2 \quad (\text{A.43})$$

On a les relations suivantes :

$$|a_p^+(l)|^2 = (a_p - g a_s a_c)^2 \quad (\text{A.44})$$

$$|a_p^-(0)|^2 = |r_p^{out}|^2 |a_p^+(l)|^2 + (g a_s a_c)^2 - 2g a_s a_c |r_p^{out}| \cos(\theta) |a_p^+(l)| \quad (\text{A.45})$$

On obtient ainsi la relation liant les énergies :

$$\frac{\omega_p I_j}{\omega_j I_p} = 2 \left(1 + |r_p^{out}| \cos(\theta) \right) \frac{I_{seuil}}{I_p} \left(\sqrt{\frac{I_p}{I_{seuil}}} - 1 \right) \quad j \in \{s, c\} \quad (\text{A.46})$$

$$\text{avec} \quad I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \alpha_s \alpha_c \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k l}{2} \right) \left(1 + |r_p^{out}| \cos(\theta) \right)^2}$$

De même l'efficacité de conversion est donnée par :

$$\eta = \frac{I_s + I_c}{I_p} = (1 + |r_p^{out}| \cos(\theta)) \frac{2}{N} (\sqrt{N} - 1) \quad (\text{A.47})$$

Pour $N = 4$, c'est à dire en pompant 4 fois au dessus du seuil, on obtiendra une efficacité de 100% si on a $|r_p^{out}| \cos(\theta) = 1$.

Validité des deux relations donnant le seuil

Si on veut mettre les équations A.19 et A.46 sous la même forme, il faut remplacer $(1 - |r_j|) = \alpha_j \quad j \in \{s, c\}$. Ce qui nous donne les relations :

$$I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)} \frac{(1 - |r_s|)(1 - |r_c|)}{|r_s| |r_c| \left(1 + |r_p^{out}|^2 + |r_p^{out}| \cos(\theta) \left(\frac{1}{|r_s^{out}| |r_c^{in}|} + \frac{1}{|r_s^{in}| |r_c^{out}|}\right)\right)} \quad (\text{A.48})$$

$$I_{seuil} = \frac{n_s n_c n_p \varepsilon_0 c^3}{2 \omega_s \omega_c d^2 l^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)} \frac{(1 - |r_s|)(1 - |r_c|)}{(1 + |r_p^{out}| \cos(\theta))^2} \quad (\text{A.49})$$

On constate donc que, malgré des hypothèses de départ assez différentes, les expressions des deux seuils obtenus sont assez proches. La première méthode est valide lorsque la pompe n'est pas dépeuplée, par conséquent les coefficients de réflexions du miroir de pompe ne peuvent pas être pris trop grands. La deuxième méthode, quand à elle, suppose que les amplitudes du signal et du complémentaire ne varient que très peu à la traversée du cristal, par conséquent le gain est faible et les coefficients de réflexions des miroirs signal et complémentaire doivent être élevés. L'avantage de la deuxième méthode est que, non seulement elle nous permet d'évaluer le seuil, mais qu'elle nous donne également l'efficacité de conversion du DROPO.

Il est donc clair que les domaines de validité de ces deux modèles ne se recouvrent pas totalement. Concernant les cas que nous avons rencontrés durant cette étude, on peut remarquer que les coefficients de réflexions des miroirs signal et complémentaire sont élevés (bien que le miroir de couplage complémentaire ait une amplitude de seulement $|r_c^4| = 0.84$), ainsi on reste dans le domaine de validité des deux modèles. À la nuance près que les coefficients de réflexions des miroirs d'entrée et de sortie sont différents pour la longueur d'onde signal, ce qui ne rentre pas tout à fait dans les hypothèses du deuxième modèle.

Par contre lorsque l'on renvoie 80% de la pompe, il est possible que la pompe soit partiellement dépeuplée, ce qui sort du domaine de validité de la première méthode. Par conséquent

on utilise la deuxième méthode pour simuler le comportement de notre DROPO lorsque l'on renvoie la pompe pour un double passage dans la cavité.

Annexe B

Description du programme de contrôle des PZTs

Le programme qui contrôle le déplacement des miroirs a été développé sous Labview. Il permet d'une part de contrôler le déplacement des miroirs pour réaliser un balayage continu et monomode de la longueur d'onde. Et d'autre part d'enregistrer le signal lors des mesures d'absorption et de détection photoacoustique.

Nous présentons ici les interfaces graphiques ainsi que les graficets qui y sont associés.

Initialisation

Avant de lancer le programme l'opérateur doit régler, si besoin, les paramètres de la carte d'acquisition et du contrôleur des PZTs ainsi que les longueurs d'onde qu'il souhaite atteindre ou les zones qu'il souhaite balayer. S'il veut balayer un intervalle spectral le coefficient b sera mis à -1 de sorte que le programme n'effectue jamais la macro M3 (Fig B.2).

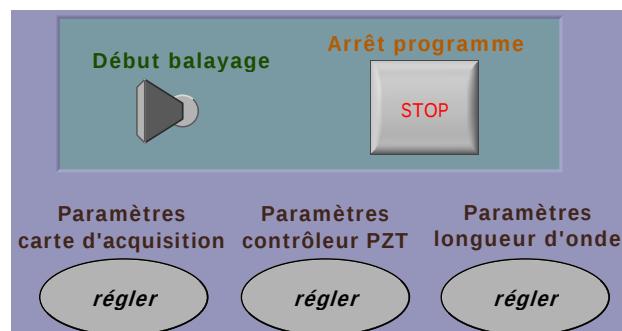


FIGURE B.1: Interface d'initialisation

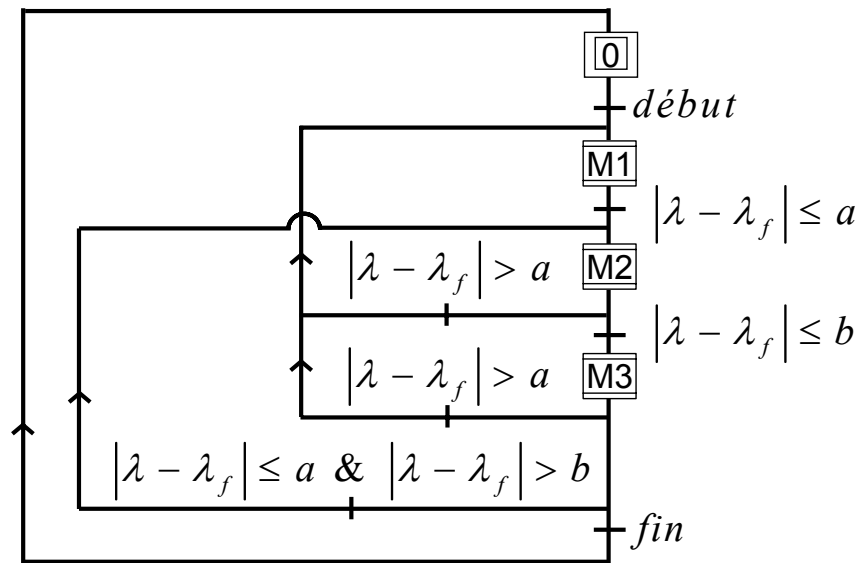


FIGURE B.2: Boucle principale

Sauts de modes

Pour se rapprocher de la longueur d'onde finale, on réalise des sauts de modes en déplaçant un seul miroir. Lorsque l'on a balayé tous les modes possibles en déplaçant un miroir, on déplace légèrement l'autre miroir pour atteindre d'autres longueurs d'onde.

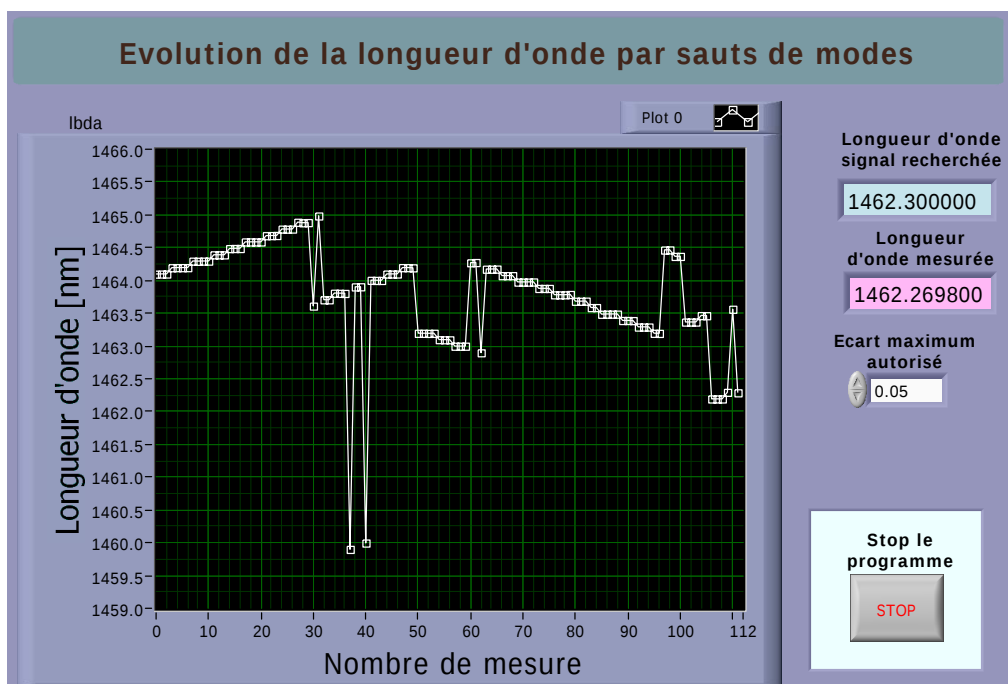


FIGURE B.3: Interface de l'évolution par sauts de modes

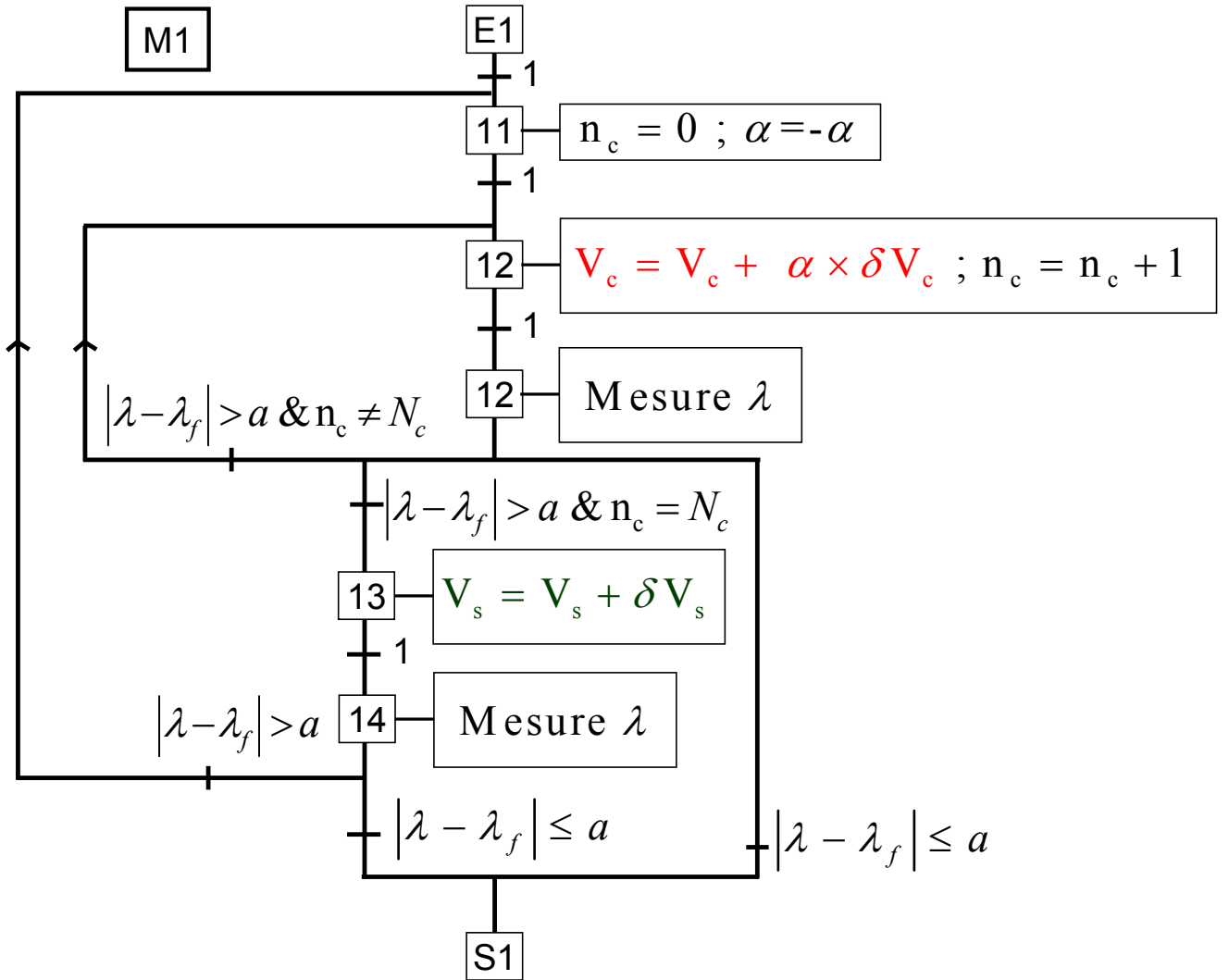


FIGURE B.4: Macro 1: évolution par sauts de modes

Balayage de la longueur d'onde

Pendant que l'on balaye la longueur d'onde, on enregistre le signal d'absorption que l'on affiche en fonction de la longueur d'onde signal, sachant que l'absorption est réalisée à la longueur d'onde complémentaire. Donc, si la longueur d'onde pompe change au cours du balayage, on n'a pas une correspondance linéaire entre la longueur d'onde signal et complémentaire. Par conséquent, la courbe d'absorption affichée peut être déformée.

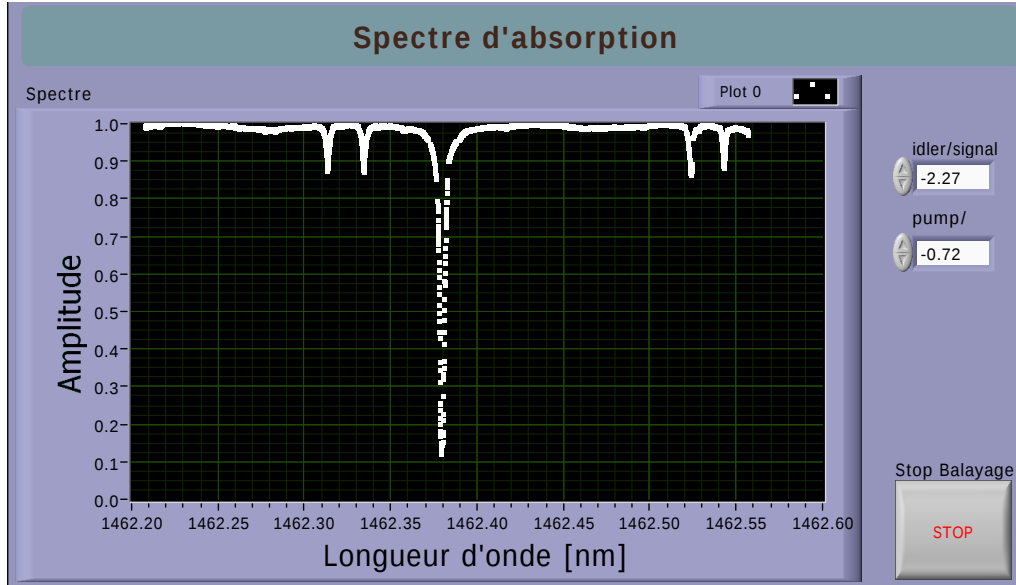


FIGURE B.5: Interface du balayage continu de la fréquence

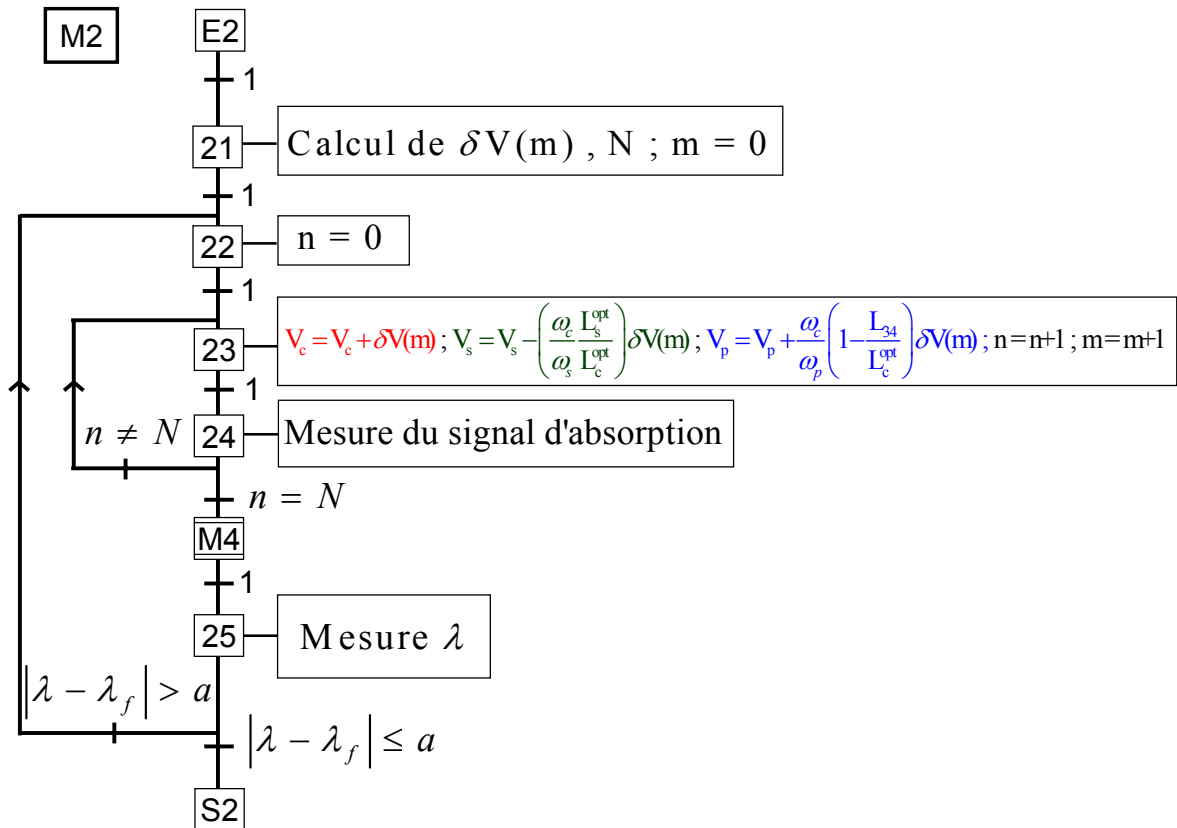


FIGURE B.6: Macro 2 : balayage continu de la fréquence

Stabilisation de la longueur d'onde

Lorsque l'on est suffisamment proche de la longueur d'onde recherchée, il suffit uniquement de modifier la position du miroir signal en fonction de la différence entre la longueur d'onde recherchée et mesurée, puis de repositionner les deux autres miroirs au bout de quelques secondes pour compenser les fluctuations importantes de la longueur d'onde pompe et des instabilités mécaniques.

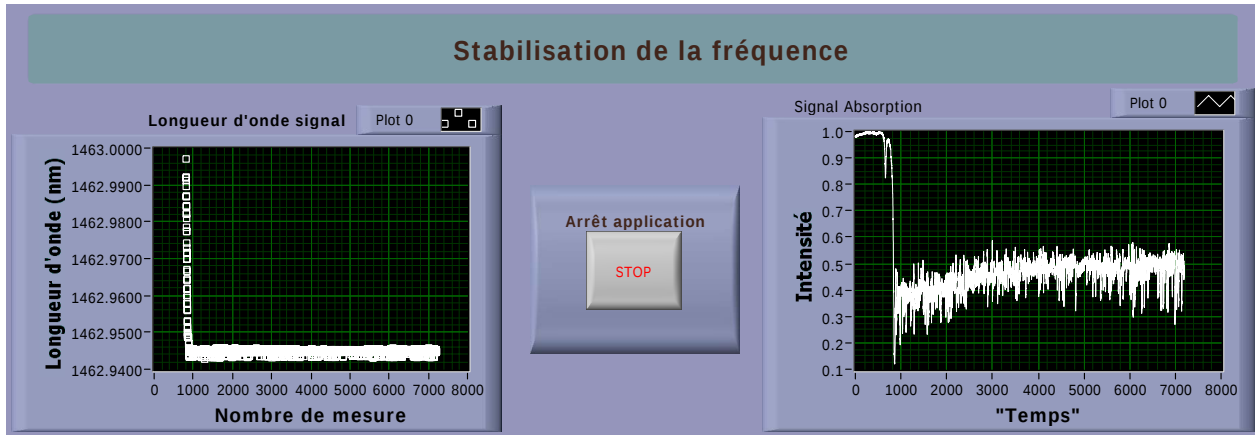


FIGURE B.7: Interface de la stabilisation de la fréquence

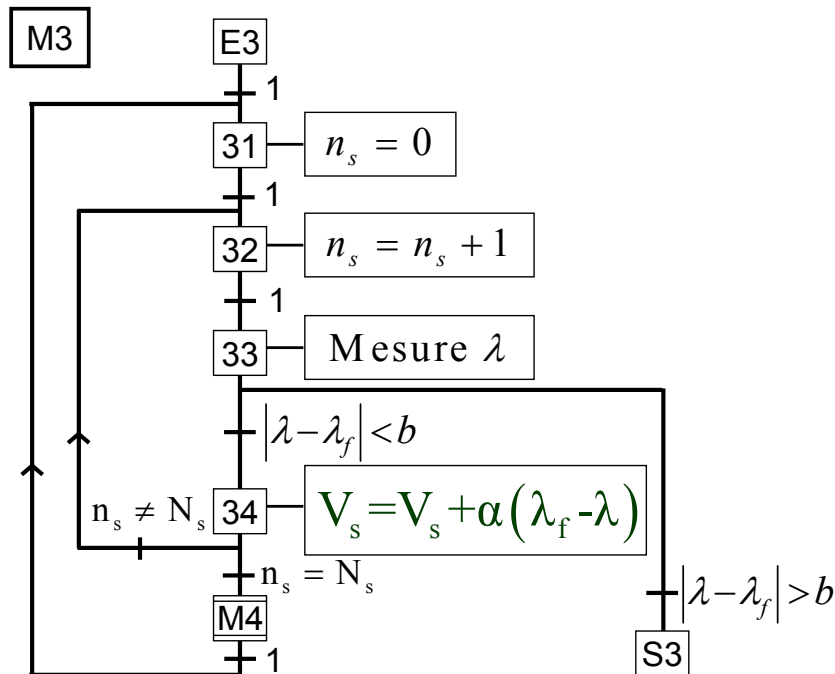


FIGURE B.8: Macro 3 : stabilisation de la fréquence

Optimisation de l'intensité du mode

Cette optimisation s'effectue en lisant le spectre signal au Fabry-Perot, puis en détectant l'intensité du pic à la fréquence désirée.

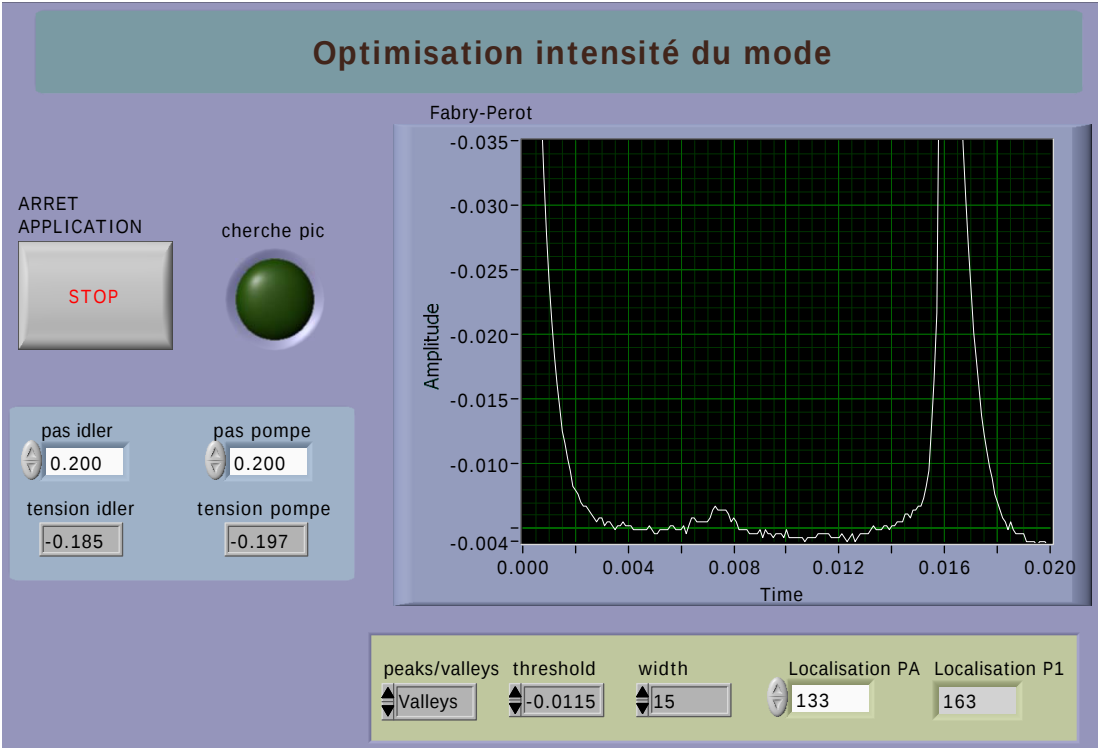


FIGURE B.9: Interface de l'optimisation de l'intensité

Maximisation intensité

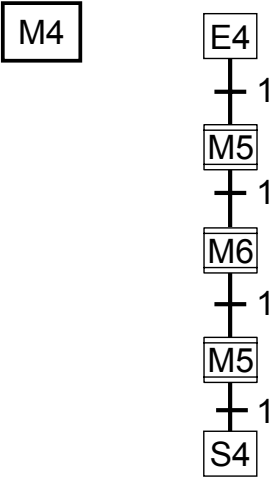


FIGURE B.10: Macro 4 : optimisation de l'intensité

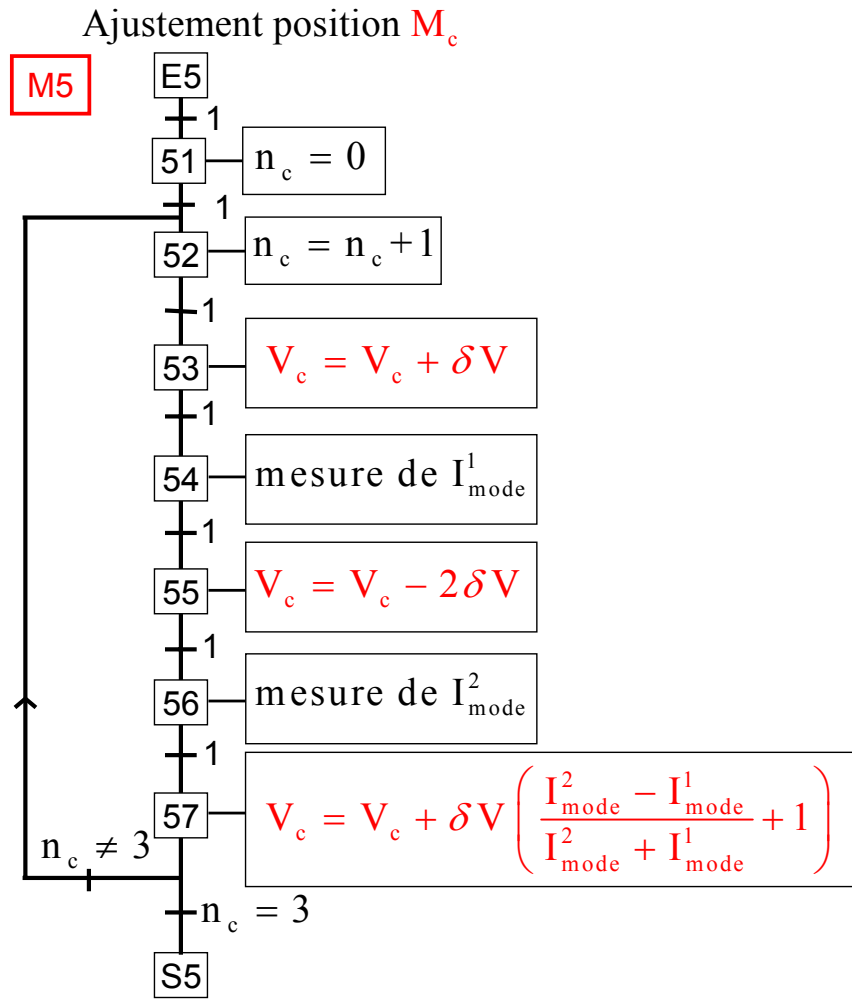


FIGURE B.11: Macro 5 : ajustement du miroir complémentaire M_4

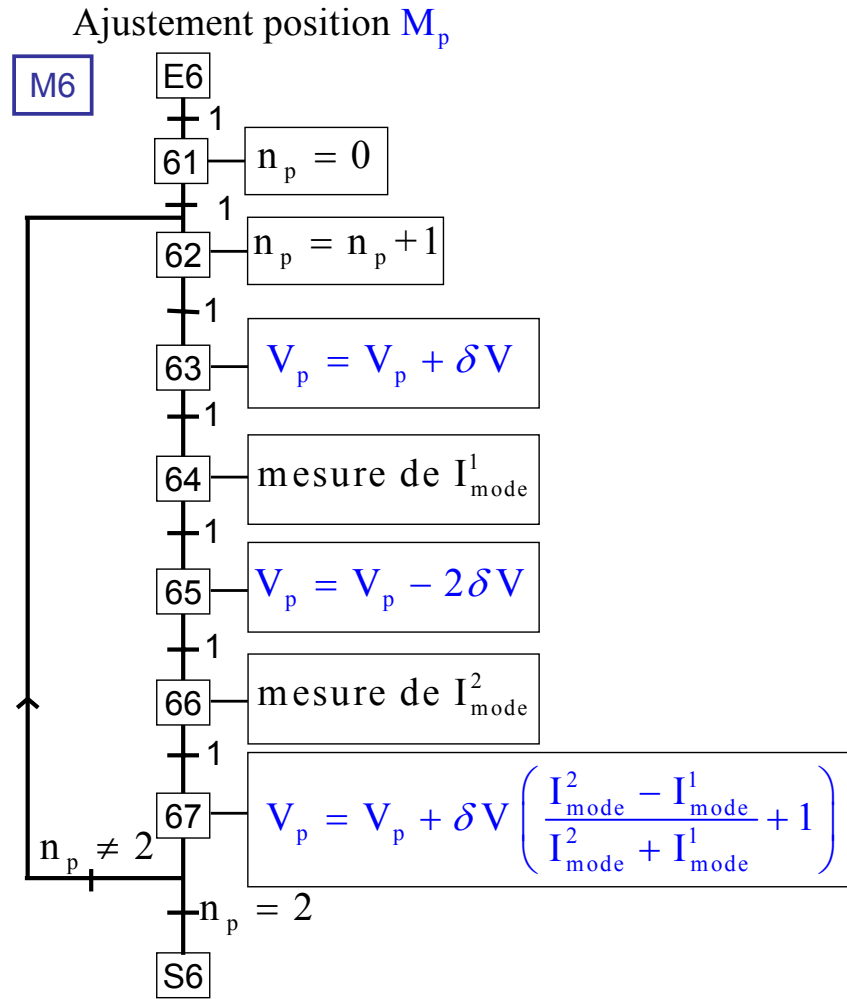


FIGURE B.12: Macro 5 : ajustement du miroir pompe M_5

Annexe C

Modélisation du DROPO en régime impulsif

Il est indispensable de posséder un outil de simulation qui permet de dimensionner les différents éléments constituant un OPO. Par exemple, évaluer la focalisation de la pompe nécessaire pour atteindre le seuil d'oscillation. Le comportement d'un OPO est assez différent en régime continu et en régime nanoseconde. C'est pourquoi, il nous est indispensable de posséder un programme de simulation adapté au régime nanoseconde. Il existe un programme d'accès libre, développé par l'organisme de recherche américain Sandia [SNL], qui permet de simuler les OPO en régime nanoseconde. Cependant, il ne permet pas de faire varier tous les paramètres dont nous pouvons avoir besoin. Un autre programme a été développé par Dubois [Dub97] et Victori [Vic01], mais le temps de calcul est beaucoup trop long. C'est pour ces raisons qu'un programme a été développé à l'Onera.

C.1 Monomode

Dans un premier temps ce programme simulait le comportement d'un SROPO [Jea00][Dra01]. Il a ensuite été développé pour simuler le comportement d'un DROPO, enfin comme nous pourrions le voir dans la section C.2, il a été modifié pour simuler le fonctionnement multimode longitudinal. L'originalité de ce programme réside dans l'hypothèse que les faisceaux étudiés ont une symétrie de révolution. Ainsi, la transformée de Fourier a pu être avantageusement remplacée par une transformée de Hankel, réduisant considérablement le temps de calcul.

Le programme résout le système d'équations 1.7. Cependant il suppose, dans un premier temps, que les termes faisant intervenir la vitesse de groupe et la dispersion de vitesse de groupe sont négligeables. De plus, il rajoute un terme simulant l'absorption dans le cristal $\frac{\alpha_j}{2} A_j$, et un terme qui représente la diffraction $\frac{1}{2ik_j} \Delta_{\perp} A_j$. Le symbole $\Delta_{\perp}$ étant l'opérateur différentiel

Laplacien transverse, défini ici par :

$$\Delta_{\perp} = \frac{\partial}{\partial x^2} + \frac{\partial}{\partial y^2}$$

Le système d'équation devient donc :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_p}{\partial z} &= \frac{i \omega_p}{c n_p} d_{eff} A_s A_c e^{-i \Delta k z} - \frac{\alpha_p}{2} A_p - \frac{1}{2 i k_p} \Delta_{\perp} A_p \\ \frac{\partial A_c}{\partial z} &= \frac{i \omega_c}{c n_c} d_{eff} A_p A_s^* e^{i \Delta k z} - \frac{\alpha_c}{2} A_c - \frac{1}{2 i k_c} \Delta_{\perp} A_c \\ \frac{\partial A_s}{\partial z} &= \frac{i \omega_s}{c n_s} d_{eff} A_p A_c^* e^{i \Delta k z} - \frac{\alpha_s}{2} A_s - \frac{1}{2 i k_s} \Delta_{\perp} A_s \end{aligned} \quad (C.1)$$

Pour effectuer le calcul, le programme réalise deux discrétisations, une temporelle et une spatiale. La discrétisation temporelle correspond au temps d'aller retour des ondes signal et complémentaire dans la cavité. La discrétisation spatiale est réalisée dans le programme en découpant le rayon sur lequel est effectué le calcul, sachant que ce rayon est étendu sur une dizaine de fois le col de faisceau pompe. Pour les impulsions de la pompe, on peut choisir la fonction que l'on souhaite. Par défaut, on choisit une fonction supergaussienne (eq C.2), sachant que la plupart du temps on fixera les coefficients G et S à 1, on a donc la fonction suivante :

$$A_p(x, y, t) = K e^{-2a(\frac{t}{T})^{2G}} e^{-2(\frac{r}{\omega_0})^{2S}} \quad (C.2)$$

On calcule le coefficient a en écrivant :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} |A_p(0)|^2 &= \left| A_p(\pm \frac{T}{2}) \right|^2 \\ \text{soit} \quad \frac{1}{2} &= e^{-2a(\frac{1}{2})^{2G}} \\ \text{d'où} \quad a &= 2^{2G-1} \ln(2) \end{aligned}$$

Le calcul du coefficient de normalisation k est le suivant :

$$\begin{aligned}
E &= \frac{n_p}{2 Z_0} \iiint |A_p(x, y, t)|^2 dx dy dt \\
&= \frac{n_p}{2 Z_0} K^2 \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2a\left(\frac{t}{T}\right)^{2G}} dt \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2\left(\frac{r}{\omega_0}\right)^{2S}} 2\pi r dr
\end{aligned}$$

Le calcul des deux intégrales nous donne :

$$\begin{aligned}
\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2a\left(\frac{t}{T}\right)^{2G}} dt &= \frac{2T}{(2a)^{\frac{1}{2G}}} \Gamma\left(1 + \frac{1}{2G}\right) \\
\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2\left(\frac{r}{\omega_0}\right)^{2S}} 2\pi r dr &= \frac{\pi \omega_0^2}{2^{\frac{1}{S}}} \Gamma\left(1 + \frac{1}{S}\right)
\end{aligned}$$

Sachant que $\Gamma(x)$ est la fonction gamma d'Euler. Finalement, on obtient le coefficient de normalisation :

$$K = \sqrt{\frac{E Z_0 2^{\frac{1}{S}+1} \ln(2)^{\frac{1}{2G}}}{\pi \omega_0^2 n_p T \Gamma\left(1 + \frac{1}{2G}\right) \Gamma\left(1 + \frac{1}{S}\right)}}$$

On considère que l'accord de phase est réalisé par quasi-accord de phase, c'est à dire $\Delta k = 0$. Avant de résoudre le système C.1, on remarque que le terme de diffraction couple les évolutions des amplitudes en différents points du découpage spatial, alors que ce n'est pas le cas pour les autres termes. On utilise donc la méthode du split-step, c'est à dire que l'on résout les équations du système C.1 en deux étapes [Smi99]. Le principe du split-step est donc de résoudre le système C.4 sur une longueur dz, puis de résoudre le système C.5 sur cette même longueur. Pour la résolution on peut normaliser les équations, posons :

$$\begin{aligned}
a_j &= \sqrt{\frac{n_j}{\omega_j}} A_j \quad j \in \{s, c, p\} \\
\kappa &= \frac{d_{eff}}{c} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_c \omega_p}{n_s n_c n_p}}
\end{aligned} \tag{C.3}$$

Le premier système est donc le suivant :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial a_p}{\partial z} &= i \kappa a_s a_c - \frac{\alpha_p}{2} a_p \\
 \frac{\partial a_c}{\partial z} &= i \kappa a_p a_s^* - \frac{\alpha_c}{2} a_c \\
 \frac{\partial a_s}{\partial z} &= i \kappa a_p a_c^* - \frac{\alpha_s}{2} a_s
 \end{aligned} \tag{C.4}$$

En utilisant les mêmes notations le deuxième système devient :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial a_p}{\partial z} &= -\frac{1}{2 i k_p} \Delta_{\perp} a_p \\
 \frac{\partial a_c}{\partial z} &= -\frac{1}{2 i k_c} \Delta_{\perp} a_c \\
 \frac{\partial a_s}{\partial z} &= -\frac{1}{2 i k_s} \Delta_{\perp} a_s
 \end{aligned} \tag{C.5}$$

La résolution du système C.4 s'effectue par l'intermédiaire d'un algorithme de Runge-Kutta (Bogacki–Shampine (3,2) Pair) [Bog89]. Cette méthode utilise un pas auto-adaptatif, ce qui permet de gagner du temps de calcul lors de la résolution des équations couplées dans le cristal. La résolution du système C.5 est réalisée grâce à la transformée de Hankel comme on peut le voir sur le schéma C.1. Le détail de cette transformation, dans notre cas particulier, peut être trouvé dans l'article [Dra01]. On peut toutefois noter que les matrices de transformée de Hankel et de transformée Hankel inverse sont indépendantes des paramètres de propagation. Ainsi elles sont calculées une seule fois en début de programme, réduisant considérablement le temps de calcul.

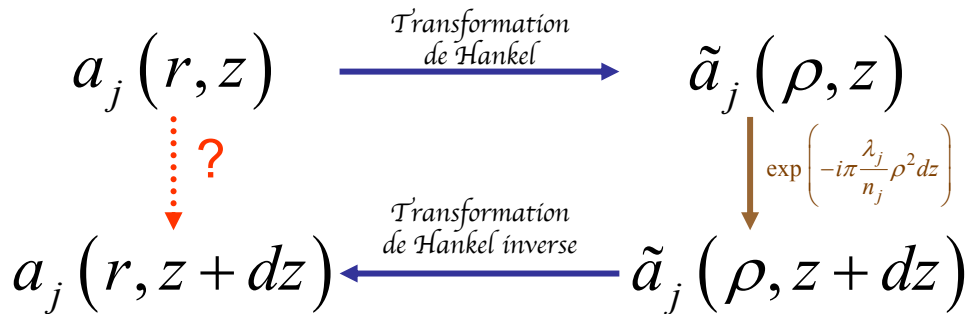


FIGURE C.1: Principe de résolution de la diffraction

Pour prendre en compte les réflexions des ondes signal, complémentaire et pompe en sortie et en entrée de cavités, on calcule en début de programme les matrices de réflexions équivalentes pour les trois ondes. De même, le programme calcule les modes de cavité pour les ondes signal

et complémentaire en fonction des rayons de courbure des miroirs, de la longueur du cristal et des distances entre les différents miroirs. La méthode s’inspire du calcul développé par Fox et Li sur les modes de cavités [Fox61]. Ce calcul permet de contrôler si les cavités sont stables et s’il n’y a pas trop d’effet de bord. De plus, ce calcul permet de connaître le déphasage à ajouter aux amplitudes lors du tour dans la cavité. En effet, les longueurs que l’on rentre dans le programme sont approximatives et donc si on n’ajuste pas la phase lors du tour dans la cavité, les ondes ne sont pas résonnantes. Une dernière chose doit être introduite lors des premiers tours dans la cavité, c’est le bruit qui permet de démarrer l’oscillation [Ari99]. On place un “demi-photon par mode”, la densité volumique associée à chaque mode s’écrit donc :

$$U_j = \frac{\hbar\omega_j}{2V_j} \quad \text{avec} \quad V_j = \frac{\pi w_j^2 L_j}{2}$$

$$\text{or on a } U_j = \frac{1}{2}\varepsilon_0 |A_j^{vide}|^2$$

On obtient donc la relation suivante :

$$|a_j^{vide}| = \sqrt{\frac{2 Z_0 c \hbar n_j}{\pi w_j^2 L_j}} \quad \text{sachant que} \quad Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \quad ; \quad c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}} \quad ; \quad a_j = \sqrt{\frac{n_j}{\omega_j}} A_j$$

Les tests ont montré qu’une modification du bruit d’un facteur 10 ne provoque pas de changement majeur dans le résultat final, par contre si on change d’un facteur 1000 on obtient des résultats à 10% près. En ce qui concerne la phase du bruit, elle ne joue pas un rôle trop important, car lorsque l’on change aléatoirement les phases du bruit de chacune des ondes, à chaque tour de cavité, le résultat final varie d’une simulation à l’autre de moins de 5%. Par contre, pour le programme multimode cette phase peut changer la répartition de l’énergie entre les différents modes de manière un peu plus importante, et surtout pour les modes les moins intenses.

Ce programme a été validé pour plusieurs cavités différentes [Rib01, Des05]. Il nous a d’ailleurs permis de réaliser des calculs de dimensionnement du DROPO pour le pompage par un micro-laser (Chapitre 5). De même, bien que ce programme soit optimisé pour des impulsions ns, nous l’avons utilisé pour calculer le seuil avec des impulsions μ s.

C.2 Passage au cas multimode

Le programme de simulation du DROPO en régime impulsionnel que nous venons de présenter, fait l’hypothèse que les trois ondes sont monochromatiques. Or, nous savons que même lorsque les cavités du DROPO sont bien réglées, il y a toujours plusieurs couples de modes qui

sont partiellement superposés. C'est pourquoi il est important de disposer d'un programme qui prend en compte ce risque et ainsi permet d'évaluer la compétition entre les différents couples de modes. Ces simulations sont utiles pour calculer plus précisément les seuils d'oscillation et nous permettent également d'évaluer les réglages de cavités pour émettre de façon monomode. Dans un premier temps le programme a été développé pour un SROPO multimode [Ter05], puis on est passé au DROPO multimode.

Nous allons décrire les changements à effectuer pour passer de la simulation du DROPO monomode au multimode. Pour le passage au multimode, on doit revenir sur une approximation selon laquelle le terme faisant intervenir la vitesse de groupe est négligeable [Ari99, Ari01]. Rappelons les équations de conservation de l'énergie et de l'impulsion :

$$\begin{aligned}\omega_p &= \omega_s + \omega_c \\ n_p \omega_p &= n_s \omega_s + n_c \omega_c\end{aligned}$$

L'équation de conservation de l'énergie est obligatoirement réalisée, ce qui n'est pas le cas de la conservation de l'impulsion. Or, lorsque l'on effectue une simulation monomode on part du principe que le quasi-accord de phase est réalisé pour les trois ondes en œuvre, d'où $\Delta k = 0$. Mais lorsque l'on passe au multimode, cette égalité n'est pas parfaitement vérifiée pour tous les couples de modes, on doit donc calculer les différents déphasages. On considère donc que le quasi-accord de phase est obtenu pour le couple de mode central. D'ailleurs pour la simulation d'un DROPO multimode, on doit au préalable calculer tous les couples de modes signal et complémentaire susceptibles d'osciller a priori. On doit donc, en fonction des longueurs des cavités, des finesses des cavités et des fréquences signal et complémentaire, calculer le recouvrement de chaque couple. Ainsi, suivant le recouvrement entre les modes, on doit ajouter un déphasage au tour dans la cavité pour chacune des ondes du couple. Car si le recouvrement n'est pas idéal cela veut dire que les ondes ne sont pas parfaitement résonnantes dans la cavité, comme on peut le voir sur la figure 1.18. On a donc les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\omega_c^{\text{émis}} &= n \frac{\pi c}{L_c} - \delta_\omega \frac{\delta_s F_c}{\delta_s F_c + \delta_c F_s} \\ \omega_s^{\text{émis}} &= m \frac{\pi c}{L_s} + \delta_\omega \frac{\delta_c F_s}{\delta_s F_c + \delta_c F_s}\end{aligned}$$

Sachant que les fineses des cavités sont définies par les relations :

$$F_s = \frac{\pi \left(|r_s^1|^2 |r_s^3|^2 \right)^{\frac{1}{4}}}{1 - \sqrt{|r_s^1|^2 |r_s^3|^2}}$$

$$F_c = \frac{\pi \left(|r_c^2|^2 |r_c^4|^2 \right)^{\frac{1}{4}}}{1 - \sqrt{|r_c^2|^2 |r_c^4|^2}}$$

Le système d'équations est donc composé de $2N+1$ équations, une pour la pompe et N couples d'équations pour les ondes signal et complémentaire :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_p}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,p}} \frac{\partial A_p}{\partial t} &= -\frac{\alpha_p}{2} A_p - \frac{1}{2ik_p} \Delta_{\perp} A_p + i \frac{\omega_p}{c n_p} d_{eff} \sum_{m=1}^N A_{s,m} A_{c,m} e^{-i\Delta k_m z} \\ \frac{\partial A_{c,m}}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,c}} \frac{\partial A_{c,m}}{\partial t} &= -\frac{\alpha_c}{2} A_{c,m} - \frac{1}{2ik_{c,m}} \Delta_{\perp} A_{c,m} + i \frac{\omega_{c,m}}{c n_{c,m}} d_{eff} A_p A_{s,m}^* e^{i\Delta k_m z} \\ \frac{\partial A_{s,m}}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,s}} \frac{\partial A_{s,m}}{\partial t} &= -\frac{\alpha_s}{2} A_{s,m} - \frac{1}{2ik_{s,m}} \Delta_{\perp} A_{s,m} + i \frac{\omega_{s,m}}{c n_{s,m}} d_{eff} A_p A_{c,m}^* e^{i\Delta k_m z} \end{aligned} \quad (C.6)$$

Il faut également souligner que l'on a supposé que les différents couples de modes signal et complémentaire ne se recombinaient pas pour redonner des fréquences autres que la fréquence pompe. De même, on néglige toutes autres recombinaisons de fréquences qui pourraient intervenir. Effectuons le changement de variable suivant : $t' = t - \frac{z}{v_{g,p}}$. On retrouve ainsi des différences de vitesse de groupe dans le système d'équations. On réalise de plus un changement de variables équivalent à celui du système monomode, c'est à dire :

$$\begin{aligned} a_p &= \sqrt{\frac{n_p}{\omega_p}} A_p \\ a_{j,m} &= \sqrt{\frac{n_{j,m}}{\omega_{j,m}}} A_{j,m} \quad j \in \{s, c\} \quad m \in \{1, \dots, N\} \\ \kappa_m &= \frac{d_{eff}}{c} \sqrt{\frac{\omega_{s,m} \omega_{c,m} \omega_p}{n_{s,m} n_{c,m} n_p}} \quad m \in \{1, \dots, N\} \end{aligned}$$

On obtient donc le système de $2N+1$ équations suivant :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial a_p}{\partial z} &= -\frac{\alpha_p}{2} a_p - \frac{1}{2 i k_p} \Delta_{\perp} a_p + i \sum_{m=1}^N \kappa_m a_{s,m} a_{c,m} e^{-i \Delta k_m z} \\
 \frac{\partial a_{c,m}}{\partial z} + \left(\frac{1}{v_{g,c}} - \frac{1}{v_{g,p}} \right) \frac{\partial a_{c,m}}{\partial t} &= -\frac{\alpha_c}{2} a_{c,m} - \frac{1}{2 i k_{c,m}} \Delta_{\perp} a_{c,m} + i \kappa_m a_p a_{s,m}^* e^{i \Delta k_m z} \\
 \frac{\partial a_{s,m}}{\partial z} + \left(\frac{1}{v_{g,s}} - \frac{1}{v_{g,p}} \right) \frac{\partial a_{s,m}}{\partial t} &= -\frac{\alpha_s}{2} a_{s,m} - \frac{1}{2 i k_{s,m}} \Delta_{\perp} a_{s,m} + i \kappa_m a_p a_{c,m}^* e^{i \Delta k_m z} \quad (C.7)
 \end{aligned}$$

Comme pour la simulation monomode on procède en plusieurs étapes, sauf que pour le multimode on rajoute une étape supplémentaire pour prendre en compte la différence de vitesse de groupe. De manière similaire à la deuxième étape le calcul s'effectue dans le domaine fréquentiel. Ainsi on a les relations suivantes :

$$\frac{\partial a_{j,m}(z, t)}{\partial z} = - \left(\frac{1}{v_{g,j}} - \frac{1}{v_{g,p}} \right) \frac{\partial a_{j,m}(z, t)}{\partial t}$$

par transformée de Fourier
$$\frac{\partial \tilde{a}_{j,m}(z, \Delta\omega)}{\partial z} = i \Delta\omega \left(\frac{1}{v_{g,p}} - \frac{1}{v_{g,j}} \right) \tilde{a}_{j,m}(z, \Delta\omega)$$

après intégration
$$\tilde{a}_{j,m}(z + dz, \Delta\omega) = \tilde{a}_{j,m}(z, \Delta\omega) e^{i \Delta\omega dz \left(\frac{1}{v_{g,p}} - \frac{1}{v_{g,j}} \right)} \quad j \in \{s, c\} \quad m \in \{1, \dots, N\}$$

Il suffit donc de faire une multiplication par une exponentielle pour réaliser la troisième étape.

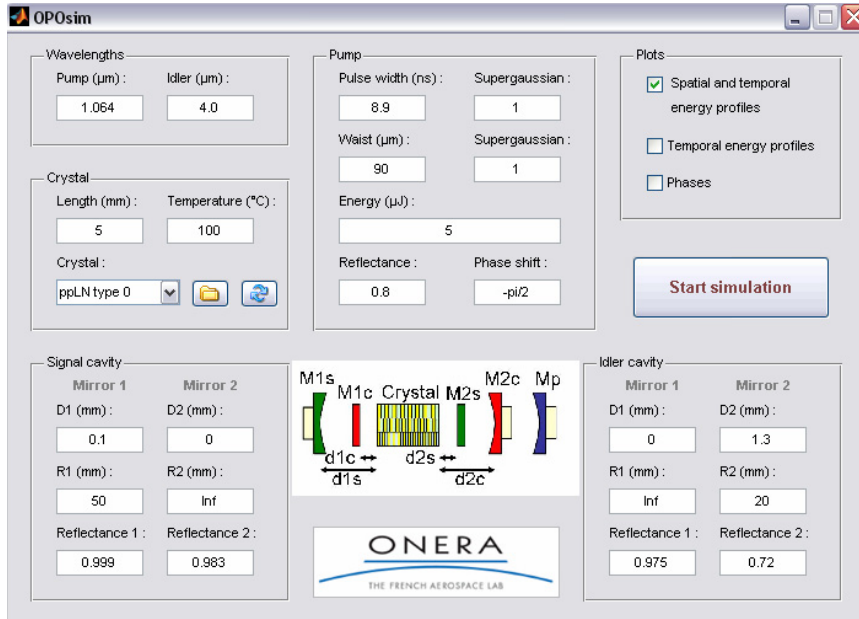
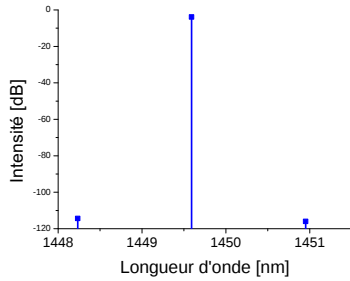
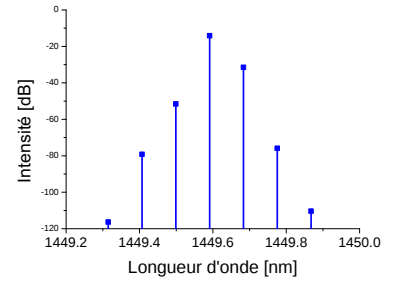
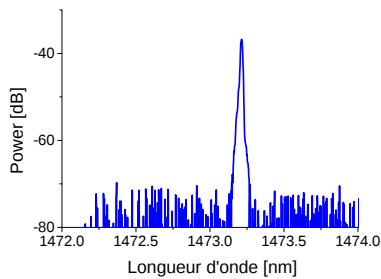
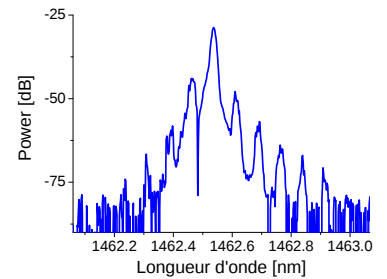


FIGURE C.2: Conditions de la simulation du DROPO multimode

Nous avons testé ce programme pour simuler le comportement du DROPO lorsque l'on change la différence relative de longueur entre les cavités signal et complémentaire. Le but étant de pouvoir anticiper les réglages des longueurs de cavités optimales. On simule donc dans les conditions de la figure C.3. La simulation du DROPO multimode nous donne les courbes C.3. On a uniquement représenté l'intensité des différents modes signal qui se recouvrent au moins partiellement avec un mode complémentaire. Expérimentalement nous obtenons les courbes C.4. Ces courbes expérimentales ont été réalisées avec un analyseur de spectre Ando. La simulation rend bien compte du comportement monomode du DROPO lorsque la différence relative entre les deux cavités est de 7%. De même, lorsque cette différence est de 2%, la simulation nous représente bien l'émission multimode que l'on obtient expérimentalement. Par contre, l'espacement entre les différents modes n'est pas identique entre la simulation et l'expérience, ce qui peut s'expliquer par le fait que l'on ne connaît pas parfaitement la longueur des cavités. De même, la simulation ne rend pas parfaitement compte de l'intensité relative entre les différents modes. Quoiqu'il en soit le programme nous permet de prédire si le DROPO fonctionnera de manière monomode. De plus il nous donnera une bonne idée des intensités du ou des modes émis par l'OPO.

(a) $\frac{\Delta L}{L} = 7\%$ (b) $\frac{\Delta L}{L} = 2\%$ **FIGURE C.3:** Simulation du DROPO multimode(a) $\frac{\Delta L}{L} = 7\%$ (b) $\frac{\Delta L}{L} = 2\%$ **FIGURE C.4:** Mesure du spectre du DROPO

Bibliographie

- [Ari99] G. Arisholm, “Quantum noise initiation and macroscopic fluctuations in optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(1), 117–127 (1999).
- [Ari01] G. Arisholm, G. Rustad et K. Stenersen, “Importance of pump-beam group velocity for backconversion in optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **18**(12), 1882–1890 (2001).
- [Arm62] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P. S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric”, *Phys. Rev.* **127**(6), 1918–1939 (1962).
- [Bel81] A. G. Bell et C. S. Tainter, “Production of sound by radiant energy”, *The manufacturer and builder.* **13**(1), 156–158 (1881).
- [Ber06a] A. Berrou, A. Desormeaux, A. Godard, M. Lefebvre et E. Rosencher, “Mid-infrared entangled-cavity doubly resonant optical parametric oscillator with back conversion minimisation”, in *2nd EPS-QEOD Europhoton Conference, Pisa, Italy* (European Physical Society, Mulhouse, France, 2006).
- [Ber06b] A. Berrou, F. Terrailot, A. Godard et M. Lefebvre, “Mode competition effects in mid-infrared entangled-cavity doubly resonant optical parametric oscillator - modeling and experiment”, in *EOS Topical Meeting on Nonlinear Optics: From Sources to Guided Waves, Paris, France*, European Physical Society (European Physical Society, Paris, France, 2006).
- [Ber07a] A. Berrou, A. Godard et M. Lefebvre, “Mid-IR Entangled-Cavity Doubly Resonant OPO with Back-Conversion Minimization and Automated Tuning”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies, Baltimore, USA*, OSA Technical Digest Series (CD), p. paper JWA28 (Optical Society of America, Baltimore, Maryland, 2007).
- [Ber07b] A. Berrou, A. Godard, M. Raybaut et M. Lefebvre, “L’oscillateur paramétrique optique doublement résonnant à cavités imbriquées - un synthétiseur optique pour la spectroscopie”, in *Journées Nationales des Cristaux pour l’Optique* (Société Française d’Optique, Grenoble, 2007).

- [Ber07c] A. Berrou, A. Godard, E. Rosencher et M. Lefebvre, “Fine frequency tuning and microlaser pumping”, in *CLEO/Europe-IQEC, Munich, Germany*, p. CD3–3 (Optical Society of America, Munich, 2007).
- [Ber07d] A. Berrou, A. Godard, E. Rosencher, M. Lefebvre et S. Spiekermann, “Mid-IR Entangled-Cavity Doubly Resonant OPO Pumped by a Micro-Laser”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies, Baltimore, USA*, OSA Technical Digest Series (CD), p. paper CThL6 (Optical Society of America, Baltimore, Maryland, 2007).
- [Ber07e] A. Berrou, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, A. Godard, E. Rosencher et M. Lefebvre, “Specific architectures for optical parametric oscillators”, *C. R. Phys.* **8**(10), 1162–1173 (2007).
- [Ber08a] A. Berrou, F. Marnas, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Mid-IR Photoacoustic Spectroscopy by use of an Entangled-Cavity Doubly Resonant OPO”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies, San Jose, USA*, OSA Technical Digest Series (CD), p. paper CTuII6 (Optical Society of America, San Jose, California, 2008).
- [Ber08b] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Fine Frequency Tuning and ± 3 MHz Frequency Stabilisation of a Nanosecond Mid-Infrared Doubly Resonant Optical Parametric Oscillator”, in *Advanced Solid-State Photonics, Nara, Japan*, OSA Technical Digest Series (CD), p. paper MC21 (Optical Society of America, 2008).
- [Ber08c] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Fine Frequency Tuning and ± 3 MHz Frequency Stabilisation of a Nanosecond Mid-Infrared Doubly Resonant Optical Parametric Oscillator”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies, San Jose, USA*, OSA Technical Digest Series (CD), p. paper CTuII5 (Optical Society of America, San Jose, California, 2008).
- [Ber08d] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Mid-IR Absorption Spectroscopy by use of an Entangled-Cavity Doubly Resonant OPO”, in *3rd EPS-QEOD Europhoton Conference, Paris, France* (European Physical Society, Mulhouse, France, 2008).
- [Bjo69] J. Bjorkholm, “Analysis of the doubly resonant optical parametric oscillator without power-dependent reflections”, *IEEE J. Quantum. Electron.* **5**(6), 293–295 (1969).
- [Bjo70] J. Bjorkholm, A. Ashkin et R. Smith, “Improvement of Optical Parametric Oscillators by Nonresonant Pump Reflection”, *IEEE J. Quantum. Electron.* **6**(12), 797–799 (1970).

-
- [Blo62] N. Bloembergen et P. S. Pershan, “Light Waves at the Boundary of Nonlinear Media”, *Phys. Rev.* **128**(2), 606–622 (1962).
- [Blo80] N. Bloembergen, “Conservation laws in nonlinear optics”, *J. Opt. Soc. Am.* **70**(12), 1429–1436 (1980).
- [Bog89] P. Bogacki et L. F. Shampine, “A 3(2) pair of Runge-Kutta formulas”, *Appl. Math. Letters* **2**, 1–9 (1989).
- [Bro79] S. Brosnan et R. Byer, “Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies”, *IEEE J. Quantum. Electron.* **15**(6), 415–431 (1979).
- [Bru03] A. Bruner, D. Eger, M. B. Oron, P. Blau, M. Katz et S. Ruschin, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the refractive index of stoichiometric lithium tantalate”, *Opt. Lett.* **28**(3), 194–196 (2003).
- [Cia05] I. V. Ciapurin, L. B. Glebov et V. I. Smirnov, “Practical Holography XIX: Materials and Applications”, in *Proceedings of SPIE*, v. 5742, édité par T. Jeong et H. Bjelkhagen, p. 183–194 (2005).
- [Con99] R. S. Conroy, C. F. Rae, M. H. Dunn, B. D. Sinclair et J. M. Ley, “Compact, actively Q-switched optical parametric oscillator”, *Opt. Lett.* **24**(22), 1614–1616 (1999).
- [Den06] L. Deng, X. Gao, Z. Cao, W. Chen, Y. Yuan, W. Zhang et Z. Gong, “Improvement to Sellmeier equation for periodically poled LiNbO₃ crystal using mid-infrared difference-frequency generation”, *Opt. Commun.* **268**, 110–114 (2006).
- [Des05] A. Desormeaux, *Développement d’un oscillateur paramétrique optique monofréquence et réalisation d’un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (2005).
- [Dra01] C. Drag, I. Ribet, M. Jeandron, M. Lefebvre et E. Rosencher, “Temporal behavior of a high repetition rate infrared optical parametric oscillator based on periodically poled materials”, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **73**(3), 195–200 (2001).
- [Dub97] Dubois, *Étude expérimentale et simulations numériques d’oscillateurs paramétriques optiques en régime nanoseconde*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (1997).
- [Fej92] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt et R. L. Byer, “Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances”, *IEEE J. Quantum Electron.* **28**(11), 2631–2654 (1992).
- [Fox61] A. G. Fox et T. Li, “Resonant modes in a maser interferometer”, *Bell Syst. Tech. J.* **40**, 453–488 (1961).
- [Fra61] P. Franken, A. E. Hill, C. Peters et G. Weinreich, “Generation of Optical Harmonics”, *Phys. Rev. Lett.* **7**(4), 118–119 (1961).

- [Fre97] I. Freitag, A. Tünnermann et H. Welling, “Passively Q-switched Nd:YAG ring lasers with high average output power in single-frequency operation”, *Opt. Lett.* **22**(10), 706–708 (1997).
- [Fri98] A. Fried, B. Henry, B. Wert, S. Sewell et J. Drummond, “Laboratory, ground-based, and airborne tunable diode laser systems: performance characteristics and applications in atmospheric studies”, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **67**(3), 317–330 (1998).
- [Gio62] J. A. Giordmaine, “Mixing of Light Beams in Crystals”, *Phys. Rev. Lett.* **8**(1), 19–20 (1962).
- [Gio65] J. A. Giordmaine et R. C. Miller, “Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO_3 at Optical Frequencies”, *Phys. Rev. Lett.* **14**(24), 973–976 (1965).
- [God98] A. Godard, “Étude et réalisation d’un oscillateur paramétrique optique à cavités en tandem”, *Rap. tech.*, Onera (1998).
- [Gui09] S. Guilbaud, A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Double-Pass Single Mode ECOPO with Achromatic Phase-Adaptation”, in *Advanced Solid-State Photonics, Denver, USA*, OSA Technical Digest Series (CD) (Optical Society of America, 2009).
- [Hat00] T. Hatanaka, K. Nakamura, T. Taniuchi, H. Ito, Y. Furukawa et K. Kitamura, “Quasi-phase-matched optical parametric oscillation with periodically poled stoichiometric LiTaO_3 ”, *Opt. Lett.* **25**(9), 651–653 (2000).
- [Hau95] J. G. Haub, M. J. Johnson, A. J. Powell et B. J. Orr, “Bandwidth characteristics of a pulsed optical parametric oscillator: application to degenerate four-wave mixing spectroscopy”, *Opt. Lett.* **20**(15), 1637–1639 (1995).
- [HFG] HighFinesse GmbH, Auf der Morgenstelle 14D, 72076 Tübingen, Deutschland, <http://www.highfinesse.de/>.
- [HIT] HITRAN Database, Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics, Cambridge MA, USA, <http://www.cfa.harvard.edu/HITRAN/>.
- [Ice76] H. W. Icenogle, B. C. Platt et W. L. Wolfe, “Refractive indexes and temperature coefficients of germanium and silicon”, *Appl. Opt.* **15**(10), 2348–2351 (1976).
- [INO] INNOLIGHT GmbH, Garbsener Landstr. 10, D-30419 Hannover, Germany, <http://www.innolight.de/>.
- [Jea00] M. Jeandron, “Modélisation du fonctionnement d’un oscillateur paramétrique optique doublement résonnant”, Rapport de stage d’option scientifique de l’école polytechnique, ONERA (2000).
- [Jun97] D. H. Jundt, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, ne, in congruent lithium niobate”, *Opt. Lett.* **22**(20), 1553–1555 (1997).

-
- [Kan85] T. J. Kane et R. L. Byer, “Monolithic, unidirectional single-mode Nd:YAG ring laser”, *Opt. Lett.* **10**(2), 65–67 (1985).
- [Kle62] D. A. Kleinman, “Nonlinear Dielectric Polarization in Optical Media”, *Phys. Rev.* **126**(6), 1977–1979 (1962).
- [Kol06] V. Z. Kolev, M. W. Duering et B. Luther-Davies, “Corrections to refractive index data of stoichiometric lithium tantalate in the 5-6 μm range”, *Opt. Lett.* **31**(13), 2033–2035 (2006).
- [Kre77] L. B. Kreuzer, “The physics of signal generation and detection”, in *optoacoustic spectroscopy and detection*, édité par Y.-H. Pao (Academic Press, New York, 1977).
- [LUM] Lumanova, LUMANOVA GmbH Garbsener Landstr. 10 30419 Hannover Germany, <http://www.lumanova.com/>.
- [Mai60] T. Maiman, “Stimulated optical radiation in ruby”, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [Mak62] P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff et C. M. Savage, “Effects of Dispersion and Focusing on the Production of Optical Harmonics”, *Phys. Rev. Lett.* **8**(1), 21–22 (1962).
- [Man56] J. M. Manley et H. E. Rowe, “Some general properties of nonlinear elements, part i. general energy relations.”, in *IRE*, v. 44, p. 904–913 (1956).
- [Mel07a] J.-M. Melkonian, *Mise en forme spectrale et temporelle de sources optiques infrarouges par mélange non-linéaire à trois ondes*, Thèse de doctorat, École Polytechnique, Palaiseau, France (2007).
- [Mel07b] J.-M. Melkonian, T.-H. My, F. Bretenaker et C. Drag, “High spectral purity and tunable operation of a continuous singly resonant optical parametric oscillator emitting in the red”, *Opt. Lett.* **32**(5), 518–520 (2007).
- [MIC] Micron Optics, Micron Optics, Inc. 1852 Century Place NE Atlanta, GA 30345 USA, <http://www.micronoptics.com/>.
- [Mil98] G. D. Miller, *Periodically poled lithium niobate: modeling, fabrication, and nonlinear-optical performance*, Thèse de doctorat, Stanford (1998).
- [Mye96] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer et W. Bosenberg, “Multigrating quasi-phase-matched optical parametric oscillator in periodically poled LiNbO_3 ”, *Opt. Lett.* **21**(8), 591–593 (1996).
- [Nik05] D. N. Nikogosyan, *Nonlinear optical crystals* (Springer, 2005).
- [PI] Physik Instrumente (PI) GmbH & Co, GmbH & Co. KG Auf der Romerstr. 1 D-76228 Karlsruhe/Palmbach, <http://www.physikinstrumente.com/en/index.php>.

- [Ray06] M. Raybaut, *Sources paramétriques optiques innovantes à base de semiconducteurs isotropes*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (2006).
- [Ray09] M. Raybaut, A. Berrou, A. Godard, A. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, D. Edouard, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser et P. Kaspersen, “High brightness 2 μm source based on a type II doubly resonant ECOPO”, in *Advanced Solid-State Photonics, Denver, USA*, OSA Technical Digest Series (CD) (Optical Society of America, 2009).
- [Rib01] I. Ribet, *Oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées pour l’étude des réseaux dynamiques créés par mélange à quatre ondes résolu en temps*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (2001).
- [Ros80] A. Rosencwaig, “Photoacoustics and photoacoustic spectroscopy”, (Wiley and sons, New York, 1980).
- [Rot05] L. Rothman, D. Jacquemart, A. Barbe, D. C. Benner, M. Birk, L. Brown, M. Carleer, C. C. Jr., K. Chance, L. Coudert, V. Dana, V. Devi, J.-M. Flaud, R. Gamache, A. Goldman, J.-M. Hartmann, K. Jucks, A. Maki, J.-Y. Mandin, S. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C. Rinsland, M. Smith, J. Tennyson, R. Tolchenov, R. R.A. Toth, J. V. Auwera, P. Varanasi et G. Wagner, “The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database”, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **96**, 139–204 (2005).
- [Sam07] G. K. Samanta, G. R. Fayaz et M. Ebrahim-Zadeh, “1.59W, single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillator based on MgO:sPPLT”, *Opt. Lett* **32**(12), 2623–2625 (2007).
- [Sat99] M. Sato, T. Hatanaka, S. Izumi, T. Taniuchi et H. Ito, “Generation of 6.6- μm Optical Parametric Oscillation with Periodically Poled LiNbO₃”, *Appl. Opt.* **38**(12), 2560–2563 (1999).
- [Sch58] A. L. Schawlow et C. H. Townes, “Infrared and Optical Masers”, *Phys. Rev.* **112**(6), 1940–1949 (1958).
- [Sch98] B. Scherrer, *Développement d’un oscillateur paramétrique optique monomode pour des mesures de température et de vitesse par DRASC temporellement résolue*, Thèse de doctorat, Université Paris XIII Villetaneuse (1998).
- [Sch00] B. Scherrer, I. Ribet, A. Godard, E. Rosencher et M. Lefebvre, “Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators: demonstration of pulsed single-mode operation”, *J. Opt. Soc. Am. B* **17**(10), 1716–1729 (2000).
- [She84] Y. R. Shen, *Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1984).
- [Sho97] I. Shoji, T. Kondo, A. K. and Masayuki Shirane et R. Ito, “Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients”, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**(9), 2268–2294 (1997).

-
- [Sie62] A. E. Siegman, “Nonlinear optical effects: An optical power limiter”, *Appl. Opt.* **1**(6), 739–744 (1962).
- [Smi99] A. V. Smith, R. J. Gehr et M. S. Bowers, “Numerical models of broad-bandwidth nanosecond optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(4), 609–619 (1999).
- [SNL] Sandia National Laboratories, Sandia National Laboratories, New Mexico PO Box 5800 Albuquerque, NM 87185, <http://www.sandia.gov/>.
- [Ter05] F. Terrailot, “Comportement multimode des oscillateurs paramétrique optiques - Modélisation et expérimentation en PPLN et PPLT”, Rapport de stage d’option scientifique de l’école polytechnique, ONERA (2005).
- [THO] Thorlabs, Thorlabs SAS 109, rue des Cotes 78600 Maisons Laflitte, <http://www.thorlabs.com/>.
- [Tit03] F. K. Tittel, D. Richter et A. Fried, *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, v. 89, chap. Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy, p. 458–529 (Topics in Appl. Phys., 2003).
- [Vic01] S. Victori, *Étude de l’affinement spectral d’un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) en régime nanoseconde par insertion d’un cristal photoréfractif. Modélisation des OPO monomodes.*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (2001).
- [VIG] VIGO System S.A., 3 Swietlikow Str., 01-389 Warszawa, Polska, <http://www.vigo.com.pl>.
- [Zay97] J. J. Zayhowski, “Microchip Optical Parametric Oscillators”, *IEEE Photonic. Tech. L.* **9**(7), 925–927 (1997).
- [Zel97] D. E. Zelmon, D. L. Small et D. Jundt, “Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol. % magnesium oxide-doped lithium niobate”, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**(12), 3319–3322 (1997).

Antoine Berrou

**Développement d'un oscillateur paramétrique optique
pour la spectroscopie des gaz et ses applications**

Résumé : Lorsqu'il s'agit de réaliser des mesures spectroscopiques, on se trouve rapidement limité par la plage d'accord en fréquence des lasers qui est imposée par la répartition d'énergie entre les niveaux des transitions atomiques ou moléculaires couplés par l'émission stimulée. Afin de s'affranchir de cette limitation, nous avons recours à la conversion paramétrique optique. L'étude que nous avons menée, consiste à développer un oscillateur paramétrique optique (OPO) doublement résonnant à cavités imbriquées permettant de convertir un rayonnement primaire (à 1 μm) en un rayonnement accordable entre 3,8 et 4,5 μm de grande finesse spectrale (monomode longitudinal) en vue du dosage sélectif de différentes espèces gazeuses. Nous procédons à l'automatisation du montage au moyen d'un programme développé sous Labview qui permet d'atteindre des balayages en fréquence monomodes continus sur une centaine de GHz, et une stabilisation en fréquence de $\pm 2,8$ MHz. Nous utilisons ensuite notre source pour réaliser des mesures d'absorption directe ainsi que des enregistrements de spectres photoacoustiques. Nous obtenons ainsi des spectres de plusieurs espèces gazeuses à différentes pressions; ces spectres étant en accord avec les spectres théoriques calculés à partir de la base de données Hitran. Finalement nous validons de nouvelles voies permettant de faire évoluer le montage vers un dispositif plus compact et robuste. Ainsi, nous démontrons qu'il est possible d'obtenir l'oscillation paramétrique à partir d'un micro-laser. D'autre part, nous validons une nouvelle architecture que nous appelons 'OPO doublement résonnant avec retour de pompe à maintien de phase achromatique'.

Mots-clés : oscillateur paramétrique optique; infrarouge; nanoseconde; micro-laser; balayage; stabilisation; spectroscopie; photoacoustique; LiNbO_3 ; PPLN; PPLT; CO_2 ; N_2O ; CH_4 ; SO_2

**Development of an optical parametric oscillator
for gas spectroscopy and its applications**

Abstract: Dealing with spectroscopy, we are rapidly limited by laser frequency tuning ranges that are set by the distribution of energy levels between atomic or molecular transitions coupled by stimulated emission. To overcome this limitation, we use optical parametric conversion. This work consists in the development of a doubly resonant entangled cavity optical parametric oscillator for the conversion of a 1 μm primary radiation towards a narrow linewidth (single longitudinal mode SLM) radiation, which is tunable between 3.8 and 4.5 μm for the selective detection of various gas species. We perform set-up automation under Labview software leading to SLM continuous tuning over one hundred GHz, and a frequency stabilisation of ± 2.8 MHz. Then we implement our source to direct absorption measurements and we record photoacoustic spectra. We obtain spectra of several gas species; those spectra are matching the theoretical ones calculated from Hitran Database. Finally we validate new ways leading to a more compact and robust device. Thus we demonstrate that it is possible to obtain parametric oscillation from a micro-laser. Moreover, we validate a new architecture that we call 'doubly resonant OPO with achromatic phase maintaining pump reflexion'.

Keywords: optical parametric oscillator; infrared; nanoseconde; micro-laser; tuning; stabilisation; spectroscopy; photoacoustic; LiNbO_3 ; PPLN; PPLT; CO_2 ; N_2O ; CH_4 ; SO_2

Office National d'Études et de Recherches Aéronautiques

BP 72 - 29 avenue de la Division Leclerc

92322 CHATILLON CEDEX

Tel. : + 33 (0) 1 46 73 40 40 - Fax : + 33 (0) 1 46 73 41 41

<http://www.onera.fr>