HAL
open science

Façonnage du contenu spectral d'un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie

Bertrand Hardy-Baranski

To cite this version:

Bertrand Hardy-Baranski. Façonnage du contenu spectral d'un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT : . pastel-00702290

HAL Id: pastel-00702290

https://pastel.hal.science/pastel-00702290v1

Submitted on 29 May 2012

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

Bertrand Hardy-Baranski

Façonnage du contenu spectral d'un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie

Soutenue le 20 décembre 2011 devant le jury composé de :

Nicolas Treps	LKB, Paris	Rapporteur
Weidong Chen	LPCA, Dunkerque	Rapporteur
Daniele Romanini	LSP, Grenoble	Président
Fabien Bretenaker	LAC, Orsay	Directeur de thèse
Philippe Adam	DGA	Examinateur
Myriam Raybaut	Onera, Palaiseau	Examinatrice
Julien Roquette	Blue I&S, Paris	Invité

Sommaire

Sommaire 3
Remerciements 7
Lexique 9
Constantes physiques 9
Introduction 11

Chapitre 1. Contexte de développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant 15

I. Rappels théoriques sur la conversion paramétrique 16
A. Formulation des équations couplées gouvernant la conversion paramétrique .. 16
B. Oscillation paramétrique 18
1. Évolution des intensités des ondes 19
2. Acceptance spectrale du cristal 19
3. L'oscillateur paramétrique optique 20
II. Réalisation d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz . 21
A. Analyse critique des méthodes utilisées pour réaliser un Sropo monomode en régime nanoseconde 21
1. Effet des modes de la cavité sur le contenu spectral des Sropo 22
2. Solutions pour la réalisation d'un Sropo monomode nanoseconde 24
B. L'OPO doublement résonant 27
1. Instabilité des premiers OPO doublement résonants 27
2. Utilisation de cavités séparées dans les Dropo – Dropo de première génération 29
3. Retour de pompe dans un OPO doublement résonant 35
4. Renvoi de pompe contrôlé en phase – Dropo de deuxième génération 41
C. Bilan sur les OPO monomodes en régime nanoseconde et limitations du Dropo de deuxième génération 43

Chapitre 2. Développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant à double passage de pompe 45

I. Développement d'un Dropo à maintien de phase achromatique 46
A. Étude du contrôle de la phase relative dans divers systèmes non linéaires 46
1. Utilisation de la dispersion de l'air dans un miroir non linéaire 46
2. Contrôle de la phase relative en doublage de fréquence par l'utilisation d'un élément dispersif 47
3. Utilisation d'un cristal non linéaire périodiquement retourné prismatique . 48

4. Bilan sur le contrôle de la phase relative dans la littérature 49
B. Contrôle de la phase relative par association d'un cristal non linéaire, périodiquement retourné, prismatique et d'un miroir achromatique 49
1. Utilisation d'un miroir diélectrique multicouche 50
2. Utilisation d'un miroir métallique 51
3. Évolution de la phase relative dans une architecture à retour de pompe et à maintien de phase achromatique 52
C. Proposition d'une nouvelle architecture de Dropo simplifiée et contrôlée en phase : le NesCOPO 54
II. Dimensionnement du NesCOPO 56
A. Quels objectifs pour le NesCOPO ? 56
B. Caractéristiques et dimensionnement des composants optiques de l'OPO 57
1. Caractéristiques des miroirs de cavités 57
2. Caractéristiques du cristal non linéaire 58
3. Considérations sur les contraintes mécaniques d'une oscillation monomode. 61
C. Le pompage par microlaser 63
1. Retour historique 63
2. Le microlaser de pompe Teem Photonics 64
III. Caractérisations du NesCOPO 66
A. Dispositif expérimental et procédure d'alignement 67
1. Dispositif expérimental 67
2. Procédure d'alignement du NesCOPO 68
B. Comportement spatial, temporel et énergétique de l'OPO 70
1. Profils spatiaux temporels des faisceaux signal et complémentaire 70
2. Puissance de sortie et seuil d'oscillation des faisceaux signal et complémentaire 72

Chapitre 3. Maîtrise du contenu spectral du NesCOPO 75

I. Maîtrise de la forme de la bande de gain paramétrique du NesCOPO 76
A. Procédure expérimentale de mesure de la bande de gain 76
B. Mise en forme expérimentale de la bande de gain paramétrique 77
1. Bande de gain typique observée sur un premier réseau (cristal de PPLT) 77
2. Mise en évidence du dédoublement de la bande de gain (PPLN) 80
3. Bilan sur le façonnage de la bande de gain paramétrique à deux lobes 82
II. Le NesCOPO : étude de nouvelles approches pour le contrôle et le balayage fréquentiel de l'émission 83
A. Contrôle de la dissociation des cavités pour une oscillation monomode 83
B. Comportement spectral du NesCOPO en régime monomode. 85
1. Le NesCOPO, un synthétiseur optique : contrôle automatisé de la longueur d'onde 86
2. Bilan sur le pilotage fréquentiel de l'OPO 91
III. Nouveau type d'accord en fréquence du NesCOPO : l'accord fréquentiel par effet Vernier 92
A. Accord fréquentiel discontinu par translation longitudinale des miroirs de cavité 92
1. Détermination de la plage fréquentielle scannée 93

2. Détermination de la résolution fréquentielle du balayage 94
3. Avantages et limites de la méthode de balayage TLM 96
B. Balayages rapides sur de très grandes gammes spectrales 101
1. Balayage par variation de température sur une plage spectrale atteignable de plusieurs térahertz 102
2. Accordabilité fréquentielle par translation du cristal non linéaire 104
C. Bilan sur les balayages par effet Vernier 113
IV. Façonnage de la bande de gain et oscillation bimode 114
A. Le NesCOPO, vers une nouvelle source de rayonnement térahertz ?..... 114
B. Obtention d'une oscillation bimode stable à l'aide du NesCOPO 115
1. Approche théorique de l'oscillation bimode 115
2. Approche expérimentale de l'oscillation bimode 120
C. Démonstration et caractérisation d'une émission bimode stable 123
1. Observation d'une oscillation bimode stable à l'aide d'un analyseur de spectre optique..... 123
2. Caractérisation temporelle de l'émission des modes..... 125
D. Bilan sur l'oscillation bimode..... 127

Chapitre 4. Applications à la spectroscopie infrarouge des gaz 129

I. Retour sur la spectroscopie infrarouge..... 130
A. Généralités sur la spectroscopie infrarouge par absorption..... 130
B. Contraintes expérimentales liées au choix du CO_2 atmosphérique comme gaz de test..... 131
II. Intégration du NesCOPO dans un instrument pour des mesures de concentration de CO_2 à distance 132
A. Développement d'un banc compact « minilidar » dédié à la mesure de concentration de gaz atmosphériques..... 132
1. Équilibrage des voies de mesures 133
2. Choix des détecteurs infrarouges 134
3. Influence de la qualité spatiale du faisceau complémentaire sur la mesure . 135
4. Influence de la pureté spectrale du faisceau complémentaire sur la mesure 136
B. Mise en œuvre du banc minilidar pour des mesures d'absorption différentielle à distance 137
1. Mesure de concentration de CO_2 atmosphérique..... 138
2. Potentiel du banc minilidar pour du suivi de la concentration d'espèces gazeuses 143
III. Développement d'un capteur local pour la caractérisation d'espèces gazeuses à l'état de traces 145
A. Retour rapide sur la détection photoacoustique..... 145
B. Mise en œuvre expérimentale du NesCOPO pour de la détection photoacoustique 146
1. Cellule photoacoustique et laser de pompe..... 147
2. Mesure de concentration de CO_2 atmosphérique par détection photoacoustique, limite de détectivité et pistes d'amélioration 149

Conclusion et perspectives 153
Bibliographie..... 157

Remerciements

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit a été réalisé à l'Onera, je commence donc naturellement par remercier Pierre Touboul de m'avoir accueilli au sein du département de mesures physiques (DMPH). Je remercie aussi chacun des membres du jury d'avoir pris le temps de juger mon travail. Merci donc à Nicolas Treps, Weidong Chen, Daniele Romanini et Philippe Adam.

Les travaux présentés ici, ont pu être réalisés parce qu'un homme a su avant les autres, qu'un jour on développerait des Dropo extrêmement compacts, stables, fiables et dotés d'encore beaucoup d'autres qualités, parfois même cachées ! Pour cela, je voudrais exprimer toute ma reconnaissance envers Michel Lefebvre. Merci aussi pour ta disponibilité, ta passion et ta gentillesse. Bon courage et bonne continuation dans tes nouvelles fonctions !

Je souhaite aussi adresser un remerciement particulier à celle qui m'a encadré au jour le jour, avec un suivi rigoureux et d'une grande qualité, merci à toi, Myriam. Merci de m'avoir initié aux joies de l'alignement des OPO !

J'adresse également de chaleureux remerciements à Fabien Bretenaker qui, bien qu'extérieur à l'Onera, a toujours suivi mon travail avec rigueur, bienveillance et m'aidé à prendre du recul. J'en profite de même pour remercier les autres membres du laboratoire Aimé Cotton que j'ai pu rencontrer. Je souhaite remercier ainsi Cyril et David mais aussi tout particulièrement Oussama, j'espère que nos routes se recroiseront à l'avenir.

Revenons maintenant à l'Onera où je ne saurais oublier Antoine, Jean-Michel et Ajmal. Merci à vous trois pour les nombreuses et fructueuses discussions que nous avons eu tout au long de ces trois années.

Merci également à Jean-Baptiste et Fabien qui m'ont accueilli dans le bureau des thésards et avec qui j'ai passé deux années enrichissantes. Merci à Cédric d'y avoir pris le relais, je te souhaite bon courage pour la deuxième partie de ta thèse. Je souhaite aussi une bonne thèse à Jessica dernière arrivée dans ce bureau.

Merci à Raphaël Vallon, récupérateur de génie, auditeur increvable d'RTL2 ! Merci à Babacar et Jérémie partis tous les deux de l'autre côté de l'Atlantique. Je souhaite également remercier Vincent Faivre, le colleur d'OPO. Merci à Jean-Pierre et Thomas pour leurs mécaniques de haute précision. Merci à Florence et Hélène.

Merci à Lucille, Leo, et Margaux qui à travers leurs stages, ont contribué aux travaux présentés ici. Bon courage Margaux pour ta thèse, et n'hésite surtout pas à reprendre le violon.

Merci à l'équipe des atomes froids et notamment Nassim, Alexandre, Yannick. Merci aussi à Constantin.

Je souhaite remercier toute l'équipe de foot de l'Onera, merci pour le titre que nous avons remporté de haute lutte, malgré une première tentative, disons un peu plus difficile…

Plus personnellement, je remercie mes amis qui se sont attachés à comprendre ce que je pouvais bien faire. Merci à JP, Gaël, PH, Chalou et Benaô. Merci aussi à l'équipe de hockey de Paris XIII, que de progrès en 3 ans : Régio B, Régio A, N4, et tout ça sans rien gagner ! Chapeau, les gars.

Enfin, je souhaite remercier mes proches, et tout d'abord mes grands-parents qui sont à jamais un exemple pour moi. Mon frère et mes sœurs, François-Xavier, Anne-Hélène et Gabrielle, merci pour votre soutien et votre affection.

Je souhaite également remercier tout particulièrement mes parents sans lesquels je n'aurais sans doute pas fait tout ça. C'est grâce à vous si j'aime ce que je fais !

Et comme je garde toujours le meilleur pour la fin, merci à toi Anna qui a profité de cette thèse pour devenir ma femme, merci pour ton amour, merci ton soutien, merci pour tout ce que tu es.

Lexique

OPO : Oscillateur paramétrique optique
Sropo : *Singly resonant OPO*, OPO simplement résonant
Dropo : *Doubly resonant OPO*, OPO doublement résonant
NesCOPO : *Nested-cavity OPO*, OPO à cavité imbriquée
MOPA : *master oscillator power amplifier*, oscillateur maître/amplificateur de puissance
SLM : *Single longitudinal mode*, monomode longitudinal
SMSR : *Side mode suppression ratio*, taux d'extinction des modes secondaires
QAP : Quasi-accord de phase
PPLN : *Periodically poled lithium niobate*, niobate de lithium périodiquement retourné
PPLT : *Periodically poled lithium tantalate*, tantalate de lithium périodiquement retourné
ISL : Intervalle spectral libre
QCL : *Quantum casacde laser*, laser à cascade quantique
DFG : *Difference frequency generation*, génération de fréquence différence
VBG : *Volume Bragg grating*, réseau de Bragg en volume
PZT : piézoélectrique
Balayage TLM : Balayage par effet Vernier par translation longitudinale des miroirs de cavité
Balayage TTC : Balayage par effet Vernier par translation transverse du cristal non linéaire
ppmv : partie par million en volume
MCT : Mercure-cadmium-tellure (HgCdTe)

Constantes physiques

$c = 299\,792\,458\ \mathrm{m \cdot s^{-1}}$ – vitesse de la lumière dans le vide
$\varepsilon_0 = 8{,}854\,187\,82 \times 10^{-12}\ \mathrm{m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2}$ – permittivité du vide
$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}\ \mathrm{m \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}}$ – perméabilité du vide
$h = 2\pi\,\hbar = 6{,}626\,069\,57 \times 10^{-34}\ \mathrm{J \cdot s}$ – constante de Planck
cc : complexe conjugué

Introduction

Pour des applications concernant le domaine de l'environnement ou de la sécurité se pose un réel besoin d'instruments capables de détecter et quantifier localement ou à distance des espèces gazeuses. Le développement de capteurs adaptés à la spectroscopie des gaz peut alors servir aussi bien à des applications amont de caractérisation spectroscopique fine des espèces, qu'à l'industrie des transports – aérien ou terrestre – pour la caractérisation des gaz de combustion en sortie des moteurs. De plus, mesurer la quantité de méthane et de dioxyde de carbone, ou autres CO_x et NO_x, présente aussi un intérêt environnemental pour la surveillance des gaz à effet de serre aussi bien que pour des aspects de sécurité industrielle dans le cas de détection de fuites de gaz.

Dans un tel contexte, les techniques optiques actives sont particulièrement attractives pour développer des systèmes de détection à distance, car elles offrent une haute sensibilité et sont non intrusives.

En effet, les espèces gazeuses à détecter possèdent une signature spectrale propre qui permet de les discriminer. Autrement dit, un gaz donné possède des raies d'absorption caractéristiques qui dépendent, en plus de sa composition moléculaire, de sa température, sa pression, sa densité, etc. En mesurant sa signature spectrale, nous pouvons remonter à toutes ces informations. La figure 1 présente les zones du spectre comprises entre 1 et 10 µm où différentes molécules absorbent.

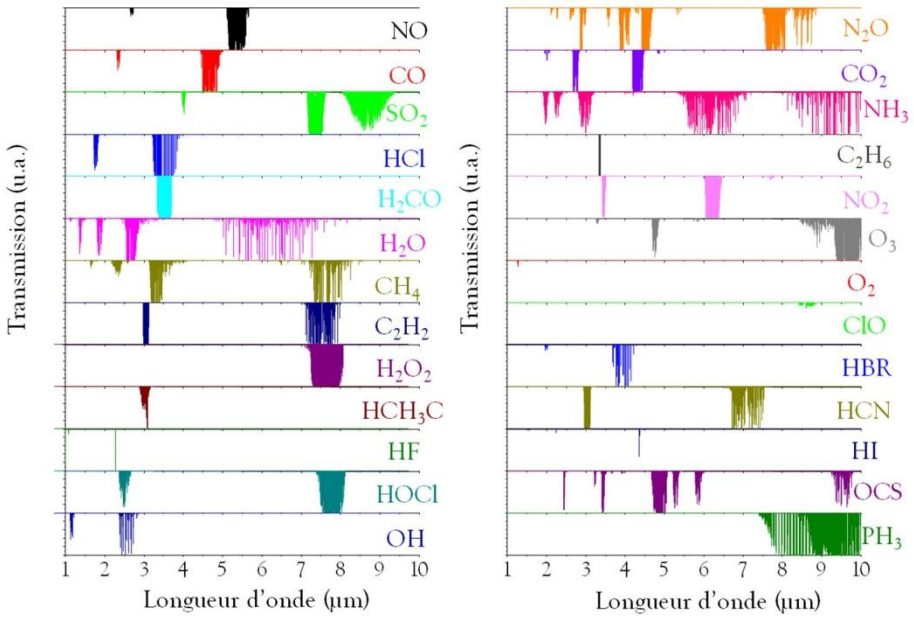


Figure 1 : Représentation qualitative des plages d'absorption de différentes molécules dans le proche et moyen infrarouge.

Nous comprenons alors l'intérêt de disposer d'une source laser dans l'infrarouge pour la détection de gaz. Dans cette gamme (1 – 10 µm) il est aussi intéressant de regarder les fenêtres de transmission de l'atmosphère (voir figure 2) pour pouvoir réaliser des mesures atmosphériques à distance.

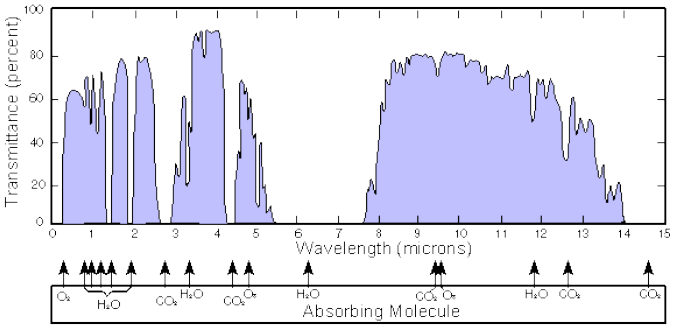
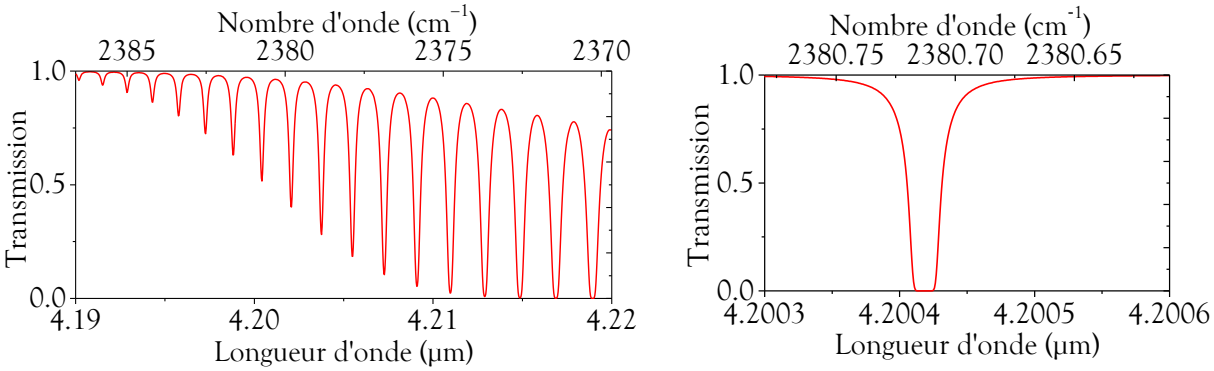


Figure 2 : Transmission de l'atmosphère terrestre.

Nous observons trois fenêtres de transmission : en dessous de 2 µm, entre 3 et 5 µm et entre 8 et 14 µm. La figure 3 a) présente un zoom sur les raies d'absorption du CO_2. La courbe correspond à la transmission après un mètre de CO_2 atmosphérique (400 ppmv à 1 bar).



a) b)

Figures 3 : a) Transmission d'un mètre de CO_2 à T = 20 °C, p = 1 bar et c = 400 ppmv, autour de 4,2 µm. b) Transmission d'un mètre de CO_2 à T = 20 °C, p = 10 mbar et c = 400 ppmv, autour de 4,2 µm.

Nous observons que les largeurs de raies sont inférieures à 1 cm^{-1} (30 GHz ou 1,77 nm à 4,2 µm). Il faut donc des sources optiques bien plus fines spectralement pour les résoudre. Si nous voulons réaliser des mesures à basse pression, les raies sont encore plus fines (voir figure 3 b) pour une pression de 10 mbar).

En outre, l'émission doit aussi être stable en fréquence pour s'assurer d'une bonne précision de mesure. Ces contraintes nous permettent de définir les propriétés spectrales de la source optique. En effet, il faut que ces sources puissent émettre, de façon contrôlée, dans de grandes plages de longueurs d'onde dans l'infrarouge moyen, pour pouvoir décrire les raies d'absorption des différentes molécules et permettre ainsi une détection multiespèces.

De plus, pour des applications de détection à distance ou de spectroscopie non linéaire, il est également préférable de disposer d'une source impulsionnelle délivrant des puissances crêtes élevées.

Enfin, nous cherchons à développer des sources embarquables, voire portables, donc très compactes et consommant un minimum d'énergie pour pouvoir éventuellement fonctionner sur batterie.

Ainsi, nous nous sommes attachés à développer, au cours de cette thèse, une source répondant aux besoins de ces applications et à la mettre en œuvre pour des expériences de

détection d'espèces chimiques. La source optique que nous nous proposons donc de développer, dans le cadre de ce travail, devra respecter les points suivants :

- cohérente et largement accordable dans l'infrarouge moyen ;
- de largeur spectrale suffisamment fine : émission monomode longitudinale (en anglais, *Single Longitudinal Mode*, noté SLM par la suite) ;
- suffisamment stable en fréquence vis-à-vis des raies à sonder ;
- de forte puissance crête, avec une bonne qualité spatiale de faisceau ;
- fortement intégrable.

À l'heure actuelle, le nombre de sources optiques largement accordables et émettant dans l'infrarouge est relativement limité (voir figure 4).

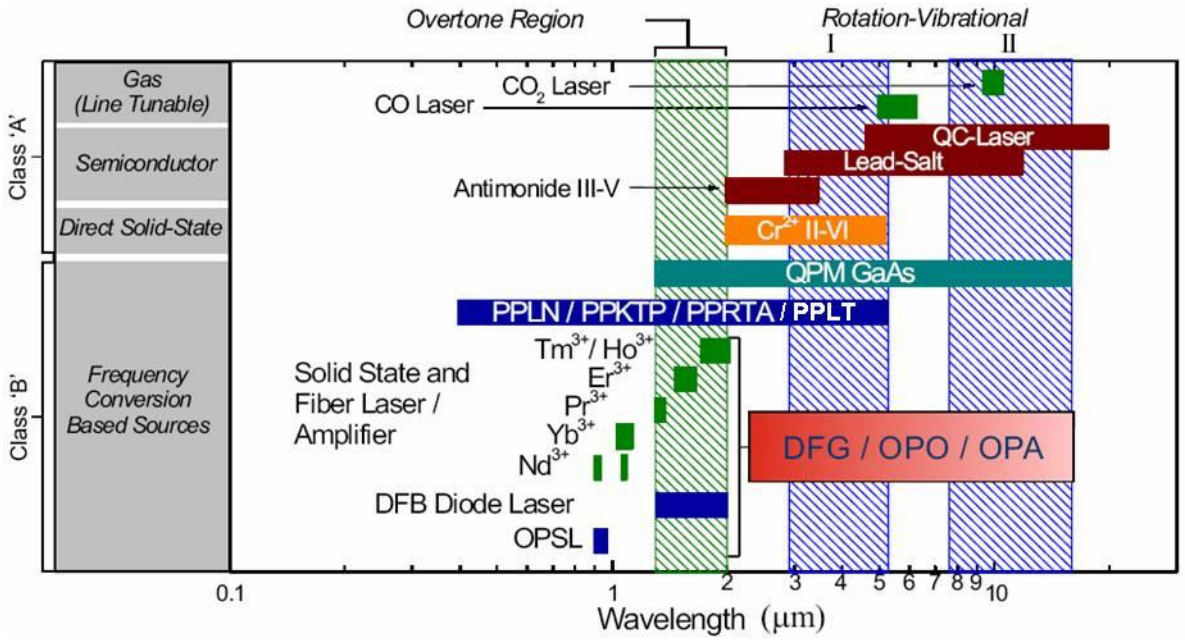


Figure 4 : Sources optiques cohérentes émettant dans l'infrarouge et leur plage spectrale d'émission [Tittel '03].

Sur la figure 4, nous pouvons noter deux types de sources cohérentes largement accordables : les lasers à semi-conducteurs et les sources non linéaires, les lasers solides présentant une accordabilité trop limitée.

Parmi les lasers à semi-conducteurs se trouvent notamment les diodes lasers à sels de plomb. Ces dernières possèdent cependant plusieurs limitations pour nos applications : fonctionnement en continu, faible puissance moyenne et faible efficacité, accordabilité limitée et enfin nécessitent un refroidissement cryogénique.

Les lasers à cascade quantique connaissent depuis leur première démonstration expérimentale en 1994 un fort développement [Faist '94]. Ainsi, malgré leur relative jeunesse, des solutions commerciales sont déjà proposées. Cependant, les longueurs d'onde inférieures à 4 µm restent toujours difficiles à atteindre [Semtsiv '07]. D'un point de vue plus général, il est délicat d'obtenir de bonnes performances, notamment en termes de puissance à température ambiante. De plus en régime impulsionnel, le décalage spectral de l'émission durant l'impulsion (*chirp*) tend à élargir sa largeur spectrale pour des impulsions de plus de 15 ns

[Germer '09, Hugi '09]. En outre, les puissances crêtes monomodes sont de seulement quelques watts ce qui limite fortement la portée des systèmes de mesure à distance.

Les sources non linéaires fonctionnent sur le principe de la conversion de fréquences et permettent d'atteindre de très larges plages spectrales en fonction notamment de la transparence des cristaux utilisés. Ces techniques ont largement profité des avancées des cristaux à polarisation périodiquement inversée depuis le début des années 90 qui leur permettent d'émettre dans le proche et moyen infrarouge avec une grande efficacité [Fejer '92].

Les systèmes fonctionnant par différence de fréquences présentent plusieurs inconvénients dont la nécessité de disposer de deux sources primaires dont au moins l'une d'entre elles accordable. De plus, la faible efficacité de conversion de ce type de configuration conduit généralement à de faibles puissances.

Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) permettent de générer deux nouvelles fréquences à partir d'une fréquence de pompe avec une efficacité de conversion très supérieure aux dispositifs par différence de fréquence. De nombreux types d'OPO ont été proposés depuis le début de l'optique non linéaire dans les années 60 que ce soit en régime continu ou en régime impulsionnel. Leur très grande plage d'accordabilité, limitée seulement par la plage de transparence du cristal non linéaire, en font de bons candidats pour nos besoins. Comme nous le verrons dans ce manuscrit, la principale difficulté pour ces systèmes est d'obtenir une émission très fine spectralement en régime impulsionnel tout en conservant des dimensions compactes.

Dans ce contexte, l'approche retenue pour répondre aux spécifications définies un peu plus haut, a été de développer de nouvelles architectures d'OPO compact permettant de délivrer une émission monofréquence largement accordable en régime nanoseconde. L'organisation de ce mémoire de thèse est la suivante :

Dans le **premier chapitre**, nous revenons tout d'abord sur les aspects théoriques au fondement des OPO. Puis, une étude bibliographique de l'état de l'art nous permet de comprendre les limitations des solutions précédemment proposées pour des applications analogues aux nôtres. En particulier, nous présentons plus spécifiquement les développements réalisés dans le cadre des OPO doublement résonants préalablement à ce travail de thèse. Nous étudions en quoi ce type d'architecture répond à nos besoins et quelles sont les limites à dépasser.

Dans le **deuxième chapitre**, nous détaillons le développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant dite à maintien de phase achromatique. Nous présentons alors le principe de fonctionnement de cette architecture. Puis, nous détaillons le dimensionnement de cette cavité et sa mise en œuvre expérimentale. Enfin, nous caractérisons ses performances spatiales, temporelles et énergétiques.

Dans le **troisième chapitre**, nous présentons les performances spectrales obtenues avec notre nouvelle source. En particulier, nous présentons de toutes nouvelles méthodes d'accord fréquentiel démontrant la grande polyvalence de cette source : en régime nanoseconde, nous détaillons notamment une nouvelle technique permettant d'émettre des fréquences à la demande dans une plage spectrale donnée. Enfin, nous étudions le comportement spectral de la source dans un mode de fonctionnement très particulier : lorsqu'elle émet simultanément deux fréquences.

Enfin, dans le **quatrième chapitre**, nous présentons une campagne de mesures réalisées durant la thèse visant à valider les capacités de la source pour être intégrée dans des instruments de détection et mesure de gaz, locale ou à distance.

Chapitre 1. Contexte de développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant

---

Objectifs

Le premier chapitre a pour but d'apporter au lecteur les outils théoriques nécessaires à la compréhension des phénomènes physiques régissant la conversion paramétrique, concepts auxquels nous ferons référence par la suite. Ainsi, nous détaillons le système d'équations couplées qui gouverne la conversion paramétrique, puis nous formulons l'expression du gain dans un cristal non linéaire, en simple passage. Enfin, nous présentons la définition d'un oscillateur paramétrique optique.

Puis, en s'appuyant sur une étude bibliographique, nous passons en revue les différentes géométries rapportées dans la littérature visant à rendre un OPO monomode en régime nanoseconde, pour en comprendre les avantages et limites.

Cette première étude nous conduit alors à étudier les OPO doublement résonants. Il s'agit dès lors de comprendre les concepts physiques spécifiques mis en jeu dans ce type de cavité. Ainsi, nous étudions, d'une part, le concept des cavités dissociées, dans le but d'obtenir une oscillation monomode en régime nanoseconde. D'autre part, nous revenons sur le rôle crucial de la phase relative dans un OPO doublement résonant à double passage de pompe pour maîtriser le contenu spectral de l'émission.

I. Rappels théoriques sur la conversion paramétrique

Dans cette partie, nous allons procéder à quelques rappels théoriques d'optique non linéaire. Un oscillateur paramétrique optique (OPO) est un dispositif qui met en résonance une (ou plusieurs) onde(s) générée(s) par la conversion paramétrique (voir figure 5). Nous allons donc revenir d'abord sur la conversion paramétrique avant de nous intéresser aux OPO.

Ce processus consiste à convertir une onde pompe de pulsation ω_p, en deux ondes filles dites signal et complémentaire de pulsations respectives ω_s et ω_c ($\omega_s > \omega_c$). Il s'agit d'un processus non linéaire d'ordre 2 qui se produit donc dans des cristaux non centro-symétriques.

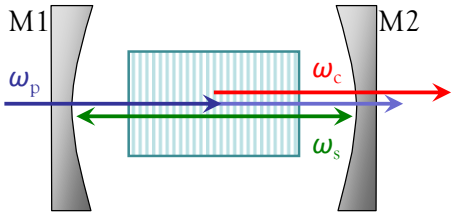


Figure 5 : Schéma de principe d'un OPO simplement résonant : l'onde signal de fréquence ω_s est résonante dans la cavité constituée des miroirs M1 et M2.

Ce processus respecte notamment la loi de conservation de l'énergie qui se traduit par :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c. \qquad \text{Éq. 1}$$

Autrement dit, la somme des pulsations générées est égale à la pulsation de l'onde pompe.

A. Formulation des équations couplées gouvernant la conversion paramétrique

Nous présentons, ici plus en détail, la conversion paramétrique, en vue de préciser comment les ondes interagissent. Pour cela, nous établissons les équations couplées qui régissent ce processus à trois ondes.

Nous supposons, sauf cas explicites, que les champs sont assimilables à des ondes planes monochromatiques. Les champs sont considérés comme la partie réelle du produit d'une enveloppe complexe par une porteuse :

$$\mathbf{E}(z,t) = \frac{1}{2}\left[E_0(z,t)\cdot\exp(-ik\cdot z)\cdot\exp(i\omega\cdot t)\cdot\mathbf{e} + cc\right], \qquad \text{Éq. 2}$$

où $\mathbf{E}(z,t)$ représente le champ électromagnétique de l'onde de pulsation ω (rad/s) à l'instant t, se propageant dans la direction z. $E_0(z,t)$ représente l'enveloppe complexe du champ en (V/m). **e** est le vecteur unitaire représentant la direction de vibration du champ et « k » la norme du vecteur d'onde, en (m^{-1}). Enfin, « *cc* » désigne le complexe conjugué.

Dans un premier temps, nous rappelons l'expression de l'équation d'onde non linéaire qui régit sa propagation. Elle se détermine à partir des équations de Maxwell. Nous supposons que le cristal est un milieu non magnétique et non chargé :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(z,t) + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(\underline{\underline{\varepsilon}}\, \mathbf{E}(z,t)\right) = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(\mathbf{P}^{NL}(z,t)\right), \qquad \text{Éq. 3}$$

où μ_0 est la perméabilité du vide. $\varepsilon_0 = 1/(\mu_0 c^2)$ représente la permittivité du vide. $\underline{\underline{\varepsilon}} = \varepsilon_0\left(1+\underline{\underline{\chi}}^{(1)}\right)$ représente le tenseur diélectrique complexe. De plus, nous avons, au second ordre :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{L} + \mathbf{P}^{NL} = \varepsilon_0\left(\underline{\underline{\chi}}^{(1)}\mathrm{E}\right) + \varepsilon_0\left(\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}\mathbf{EE}\right), \qquad \text{Éq. 4}$$

où **P** représente la polarisation totale. C'est la somme de la polarisation linéaire (^{L}) et non linéaire (^{NL}) (développement en puissances du champ), cette dernière étant limitée ici à l'ordre deux. Il s'agit de l'expression de la réponse du matériau au champ **E**. La partie non linéaire définit la source de rayonnements à de nouvelles fréquences. $\underline{\underline{\chi}}^{(1)}$ et $\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}$ représentent respectivement les tenseurs de susceptibilité linéaire (ordre 1) de rang 2 et non linéaire (ordre 2) de rang 3.

L'équation précédente (Éq. 3) nous permet de prévoir la génération de nouvelles fréquences par le terme source de polarisation non linéaire. Cette équation est valable pour chaque onde pompe, signal ou complémentaire. En passant dans le domaine fréquentiel, par la transformée de Fourier (F) et en utilisant l'équation de Maxwell-Gauss, nous obtenons :

$$\left(+\frac{\partial^2}{\partial z^2} - (-i\omega^2)\mu_0 \underline{\underline{\varepsilon}}(\omega)\right)\mathbf{E}(z,\omega) = +\frac{1}{c^2}F\left\{\frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}\mathbf{EE}\right)\right\}, \qquad \text{Éq. 5}$$

où le double rotationnel est transformé en laplacien : $\Delta = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2 + \partial^2/\partial z^2$ avec $\partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2 = 0$ (ondes planes). De plus, nous supposons que le champ total est constitué de trois ondes monochromatiques de pulsations ω_p, ω_s et ω_c vérifiant la loi de conservation de l'énergie : $\omega_p = \omega_s + \omega_c$, et nous avons : $F(x^*(t)) = X^*(-\omega)$.

Ainsi, nous obtenons pour chacune des ondes (avec $\mathbf{E}(z, \omega_j) = \mathbf{E}_j$) [Armstrong '62] :

$$\begin{cases} \left(\dfrac{\partial^2}{\partial z^2} + \omega_c^2\mu_0\underline{\underline{\varepsilon}}(\omega_c)\right)\mathbf{E}_c = -\dfrac{\omega_c^2}{c^2}\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}(\omega_c,\omega_p,-\omega_s)\mathbf{E}_p\mathbf{E}_s^*, \\ \left(\dfrac{\partial^2}{\partial z^2} + \omega_s^2\mu_0\underline{\underline{\varepsilon}}(\omega_s)\right)\mathbf{E}_s = -\dfrac{\omega_s^2}{c^2}\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}(\omega_s,\omega_p,-\omega_c)\mathbf{E}_p\mathbf{E}_c^*, \\ \left(\dfrac{\partial^2}{\partial z^2} + \omega_p^2\mu_0\underline{\underline{\varepsilon}}(\omega_p)\right)\mathbf{E}_p = -\dfrac{\omega_p^2}{c^2}\underline{\underline{\underline{\chi}}}^{(2)}(\omega_p,\omega_s,\omega_c)\mathbf{E}_s\mathbf{E}_c. \end{cases} \qquad \text{Éq. 6}$$

En utilisant l'équation (Éq. 2) avec le changement de variable : $|A_j| = \sqrt{n_j/\omega_j}\ |E_{0j}|$, et la relation de dispersion $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ avec $n^2 = \mu_r\,\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0$, le terme de gauche de la première ligne du système d'équations couplées (Éq. 6), devient :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega_c^2}{\varepsilon_0 c^2}\underline{\underline{\varepsilon}}\left(\omega_c\right)\right)\mathbf{E}_c = \sqrt{\frac{\omega_c}{n_c}}\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_c\frac{\partial}{\partial z}\right)A_c \cdot \exp\left(i\left(\omega_c t - k_c z\right)\right)\mathbf{e}\,. \qquad \text{Éq. 7}$$

De plus, l'approximation de l'enveloppe lentement variable nous permet d'écrire : $|\partial^2 A_i(z)/\partial z^2| \ll |2ik_i\partial A_i(z)/\partial z|$. Cela signifie que l'amplitude $A_i(z,t)$ varie peu sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde, ce qui est pleinement justifié pour des impulsions nanoseconde dans le proche et moyen infrarouge. Nous obtenons ainsi :

$$\frac{\partial}{\partial z}A_c = i\kappa A_p A_s^* \exp\left(-i\Delta k z\right), \qquad \text{Éq. 8}$$

où nous avons utilisé les relations et définitions suivantes :

$\exp(i(\omega_p - \omega_s - \omega_c)t) = 1$: relation de conservation de l'énergie ;

$\Delta k = k_p - k_s - k_c$: représente le désaccord de phase entre les trois ondes ;

$\omega_j^2/2ik_jc^2 = -i\omega_j/2n_jc$: modification effectuée via la relation de dispersion des ondes ;

$\kappa = \frac{d_{eff}}{c}\sqrt{\frac{\omega_c\omega_s\omega_p}{n_c n_s n_p}}$: coefficient de couplage non linéaire ; avec $2d_{eff} = \chi_{eff}^{(2)}$, le problème devient scalaire en se ramenant à une interaction effective dans une direction de vibration du champ unique et fixée.

Ainsi, suivant nos notations, la variation d'amplitude du champ complémentaire $\partial A_c/\partial z$ est fonction du coefficient de couplage κ, de l'accord de phase Δk entre les trois ondes et enfin des amplitudes des deux autres ondes.

Finalement, le système complet d'équations couplées peut s'écrire de la manière suivante :

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial z}A_c = i\kappa A_p A_s^* \exp\left(-i\Delta k z\right), \\ \frac{\partial}{\partial z}A_s = i\kappa A_p A_c^* \exp\left(-i\Delta k z\right), \\ \frac{\partial}{\partial z}A_p = i\kappa A_s A_c \exp\left(i\Delta k z\right). \end{cases} \qquad \text{Éq. 9}$$

B. Oscillation paramétrique

Nous avons maintenant établi les relations analytiques qui gouvernent l'évolution couplée des trois ondes. À partir de ces équations, nous allons définir plusieurs paramètres comme les intensités des champs dans le cristal qui nous permettront ensuite de déterminer l'expression de la bande de gain.

1. Évolution des intensités des ondes

Il s'agit de résoudre ici le système défini précédemment (Éq. 9). Ainsi, nous pourrons décrire les variations d'intensité des ondes lors de la propagation dans le cristal. Pour cela nous nous plaçons dans le régime de faible dépeuplement de la pompe qui se traduit par : $\partial A_p/\partial z \approx 0$ et donc : $A_p(z) \approx A_{p0}$.

Dans ces conditions, les amplitudes complexes normalisées des champs signal et complémentaire évoluent selon :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial}{\partial z} A_c = & i\gamma A_s^* \exp(-i\Delta k z), \\ \dfrac{\partial}{\partial z} A_s = & i\gamma A_c^* \exp(-i\Delta k z), \end{cases} \quad \text{où } \gamma = \kappa A_{p0}. \qquad \text{Éq. 10}$$

Ce système permet d'obtenir deux équations différentielles indépendantes qui sont résolues en utilisant les conditions initiales suivantes : $A_s(0) = A_{s0}$, $A_c(0) = A_{c0}$. Nous obtenons alors l'évolution des amplitudes complexes associées aux champs signal et complémentaire lors de la propagation dans le cristal :

$$\begin{cases} A_c(z)e^{(i\Delta k z/2)} = A_{c0}\left(\mathrm{ch}(\delta z) + i\dfrac{\Delta k}{2\delta}\mathrm{sh}(\delta z)\right) + i\dfrac{\gamma}{\delta}A_{s0}^*\mathrm{sh}(\delta z), \\ A_s(z)e^{(i\Delta k z/2)} = A_{s0}\left(\mathrm{ch}(\delta z) + i\dfrac{\Delta k}{2\delta}\mathrm{sh}(\delta z)\right) + i\dfrac{\gamma}{\delta}A_{c0}^*\mathrm{sh}(\delta z), \end{cases} \quad \textit{avec } \delta^2 = \gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 \qquad \text{Éq. 11}$$

Dans le cas particulier de l'accord de phase ($\Delta k = 0$) et si $I_{c0} = 0$, sachant que $I_j \propto |A_{0j}|^2$, nous avons :

$$\begin{cases} I_c(z) = I_{s0}\mathrm{sh}^2(\delta z) \\ I_s(z) = I_{s0}\mathrm{ch}^2(\delta z) \end{cases}, \qquad \text{Éq. 12}$$

Rappelons que ces équations concernent le gain paramétrique petit signal, lorsque $A_p >> A_s, A_c$ (faible dépeuplement de la pompe).

2. Acceptance spectrale du cristal

Dans le cas d'un simple passage de pompe, l'acceptance spectrale du cristal se définit comme la plage fréquentielle pour laquelle le processus de conversion présente du gain. Sur l'axe fréquentiel, le gain se manifeste dans deux zones, l'une pour le signal et l'autre pour le complémentaire. Elles sont centrées sur les fréquences ω_s et ω_c qui sont à l'accord de phase c'est-à-dire pour lesquelles $\Delta k = 0$. Le gain (petit signal) nous est donné par le rapport entre l'intensité en sortie du cristal (de longueur L) et l'intensité en entrée à partir de l'équation Éq. 11.

Étant donné que γ^2 est très faible, de l'ordre de 10^{-9} par exemple pour un microlaser de 10 µJ et de durée d'impulsion 10 ns, nous pouvons considérer « δ » comme un imaginaire pur (pour $\Delta k \neq 0$) et nous obtenons :

$$Gain_{\text{petit signal}} = \frac{I_s(L) - I_{s0}}{I_{s0}} \propto \text{sinc}^2(\Delta kL/2). \qquad \text{Éq. 13}$$

L'équation précédente nous donne la forme de l'acceptance spectrale ou de la bande de gain dans le cas d'un aller simple dans le cristal. Comme nous venons de l'énoncer, elle est composée d'un lobe principal centré sur les fréquences correspondant à l'accord de phase ($\Delta kL = 0$, voir figure 6). Cette expression est primordiale, nous y reviendrons plus en détail par la suite.

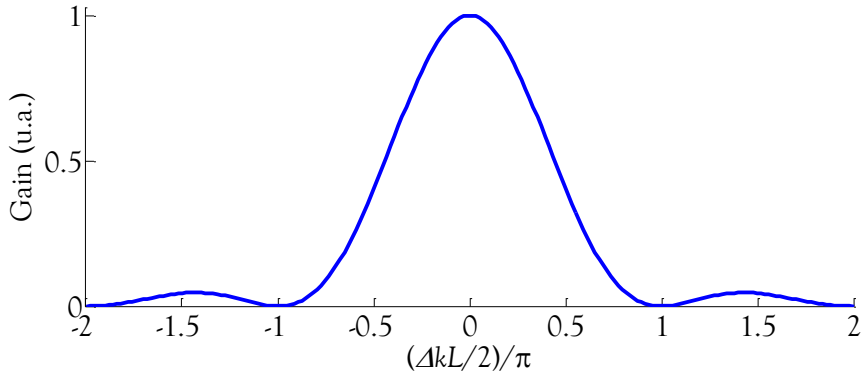
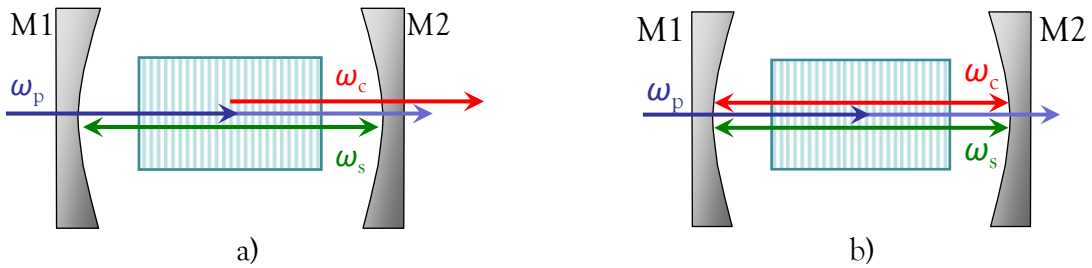


Figure 6 : Variation du gain en fonction de l'accord de phase.

3. L'oscillateur paramétrique optique

Les paragraphes précédents nous ont permis d'introduire l'expression du gain dans le processus de conversion de l'onde pompe vers les ondes signal et complémentaire dans un cristal non linéaire.

L'oscillateur paramétrique optique va bénéficier de ce processus à gain en plaçant le cristal dans une cavité résonante. Compte tenu des différentes ondes impliquées dans la conversion paramétrique, il est possible de faire résonner une, deux, voire trois ondes ce qui correspond à des OPO simplement (Sropo), doublement (Dropo) et triplement (Tropo) résonants. La figure 7 a) schématise un OPO simplement résonant pour l'onde signal. La figure 7 b) illustre le cas d'un OPO doublement résonant où les deux ondes signal et complémentaire résonnent dans une même cavité.



Figures 7 : Schéma de principe d'un OPO simplement résonant a) et doublement résonant b). Les ondes en résonance – a) : ω_s et b) : ω_s et ω_c – favorisent le processus à gain à chaque passage dans le cristal.

II. Réalisation d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz

Nous venons de rappeler les équations décrivant la génération paramétrique et le couplage entre les trois ondes en jeu dans un oscillateur paramétrique. En introduction, nous avons vu que les OPO nanoseconde constituaient les meilleurs candidats pour répondre au cahier des charges.

Nous allons donc maintenant nous intéresser à la réalisation d'OPO monomodes en régime nanoseconde. Dans un premier temps, nous verrons les solutions présentées dans la littérature ; ceci nous permettra de situer l'état de l'art à l'Onera au début de la thèse.

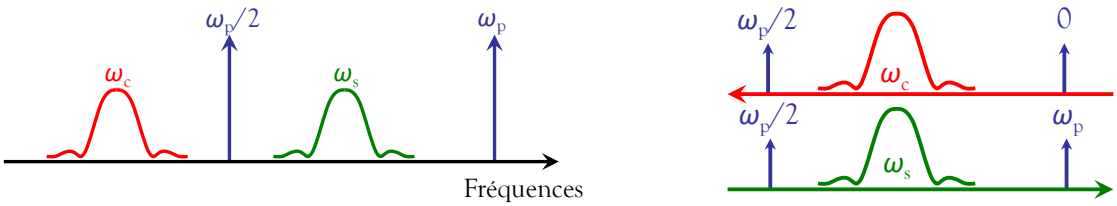
A. Analyse critique des méthodes utilisées pour réaliser un Sropo monomode en régime nanoseconde

Pour bien comprendre les contraintes associées à la réalisation d'OPO nanoseconde pour les applications de spectroscopie, revenons dans un premier temps sur les caractéristiques de la génération paramétrique. Nous avons vu, dans la première partie de ce chapitre, deux conditions sur les fréquences des ondes générées.

Premièrement, elles doivent respecter la loi de conservation de l'énergie ($\omega_p = \omega_s + \omega_c$). Sur l'axe fréquentiel, cette loi contraint les ondes filles à être produites à des fréquences plus faibles que celle de la pompe et symétriquement vis-à-vis de la dégénérescence ($\omega_p/2$).

La deuxième condition concerne la zone fréquentielle où la conversion paramétrique présente du gain. Nous avons vu (Éq. 13) qu'elle peut être modélisée, dans le cas d'un simple passage de pompe (non dépeuplée), par le carré d'un sinus cardinal.

Ces deux conditions schématisées sur les figures 8 a) et b), sont cependant loin de suffire pour obtenir une émission monomode, surtout dans le cas d'un laser de pompe nanoseconde.



a) b)

Figures 8 : Positions des zones fréquentielles à gain comparativement à la fréquence pompe sur un axe fréquentiel croissant a) et sur des axes en sens opposés mettant en évidence la symétrie des plages d'émission signal et complémentaire vis-à-vis de la dégénérescence ($\omega_p/2$) b).

Bien que le spectre émis soit en pratique plus fin que la bande de gain, car il est en effet affiné par divers paramètres dont notamment le nombre d'allers et retours des ondes dans la cavité qui accentue la compétition entre les modes [Haub '95], cela ne suffit pas à rendre l'OPO monomode dans le cas d'un fonctionnement nanoseconde[1]. Il est donc nécessaire de recourir à des stratégies spécifiques pour atteindre le fonctionnement monomode.

Dans cette partie, nous étudions différentes architectures simplement résonantes pour analyser les solutions de la littérature qui visent à obtenir une émission monomode. Puis dans la partie suivante, nous revenons sur les choix de l'Onera qui depuis plusieurs années développe une approche qui se démarque de ces architectures usuelles en se basant sur des cavités doublement résonantes.

1. Effet des modes de la cavité sur le contenu spectral des Sropo

Comme nous l'avons vu, un Sropo fait résonner une des ondes filles (signal ou complémentaire). Nous allons tout d'abord étudier les modifications que cela implique sur la répartition spectrale des ondes pouvant être générées.

Précisons tout d'abord l'effet de cette cavité sur le contenu spectral émis par l'OPO. La figure 9 présente le schéma d'un OPO simplement résonant à la longueur d'onde signal.

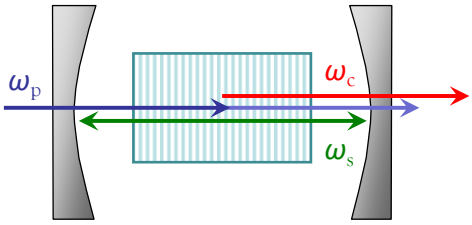
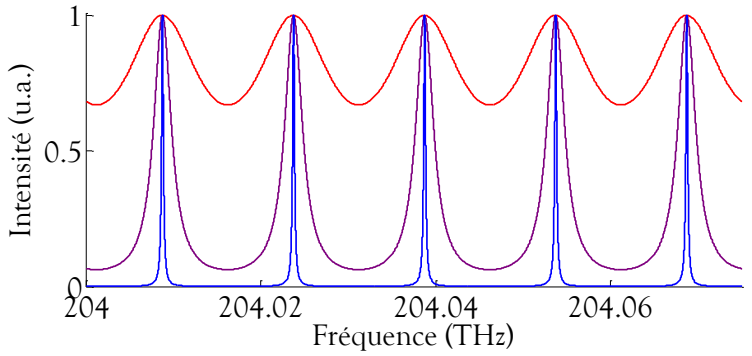


Figure 9 : Schéma de principe d'un Sropo.

Les deux miroirs ici concaves constituent une cavité Fabry-Perot. L'onde signal va se réfléchir successivement sur les deux miroirs établissant ainsi une onde stationnaire dans la cavité. Dans le cas d'une cavité sans pertes autres que la transmission des miroirs et en régime continu, l'intensité du champ résultant est donnée par la relation (Éq. 14, [Siegman '86]) :

[1] En régime continu, cette compétition de modes suffit généralement à atteindre un fonctionnement monomode



$$I \propto \left(1+\frac{4r\cdot\sin\left(2\pi L\nu/c\right)^2}{\left(1-r\right)^2}\right)^{-1}$$

Éq. 14

Figure 10 : Calcul de l'intensité du champ en fonction de la fréquence dans une cavité linéaire de 10 mm, pour différentes réflectivités (rouge : r = 0,1, violet : r = 0,65, bleu : r = 0,9).

Où « r » est le produit des coefficients de réflexion des miroirs, « L » la longueur optique de la cavité et ν la longueur d'onde. Cette relation traduit le fait que les ondes doivent revenir en phase après un aller et retour pour interférer constructivement à chaque tour de cavité. Nous obtenons ainsi l'émission d'un rayonnement constitué d'un peigne de modes représenté par la figure 10.

D'une part, la finesse de la cavité va déterminer les pertes appliquées aux longueurs d'onde non résonantes, d'autre part, la longueur de la cavité va donner l'intervalle spectral libre (ISL), c'est-à-dire la distance entre deux pics. En effet, d'après la relation précédente, dans le cas d'une cavité linéaire, nous avons pour la condition de résonance : $\nu = qc/2L$ ($q \in \mathbb{N}^*$), d'où $ISL = \Delta\nu = c/(2L)$. Ainsi, pour une cavité linéaire constituée d'un cristal de PPLN de 4,5 mm, l'intervalle spectral libre est d'environ 15 GHz.

Finalement, la présence de la cavité rajoute une nouvelle condition sur les fréquences susceptibles d'être émises, à savoir que dans un Sropo, seuls les modes de la cavité bénéficiant du gain peuvent osciller (voir figure 11). Le nombre de modes effectivement émis dépend donc du régime de fonctionnement de l'OPO. Ainsi, dans le cas d'un OPO continu il n'est pas rare d'avoir des longueurs de cavité de l'ordre du mètre (cavités en anneau ou en papillon par exemple). Ceci conduit à un peigne de modes très serrés (*ISL = 300 MHz*). Cependant, le faible gain par passage ainsi que le très grand nombre d'allers et retours, favorise la compétition entre les modes de cavité, et peut conduire à un fonctionnement monomode. En régime nanoseconde, avec une bande de gain paramétrique de 200 à 500 GHz, 15 à 35 modes sont susceptibles d'osciller (pour longueur de cavité de 10 mm). Or la compétition de modes a moins le temps de s'établir, l'émission est toujours multimode.

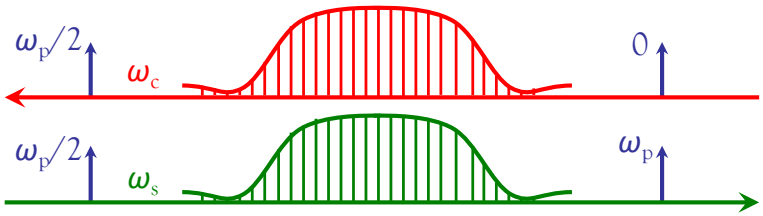


Figure 11 : Peignes de modes complémentaire et signal dans la bande de gain.

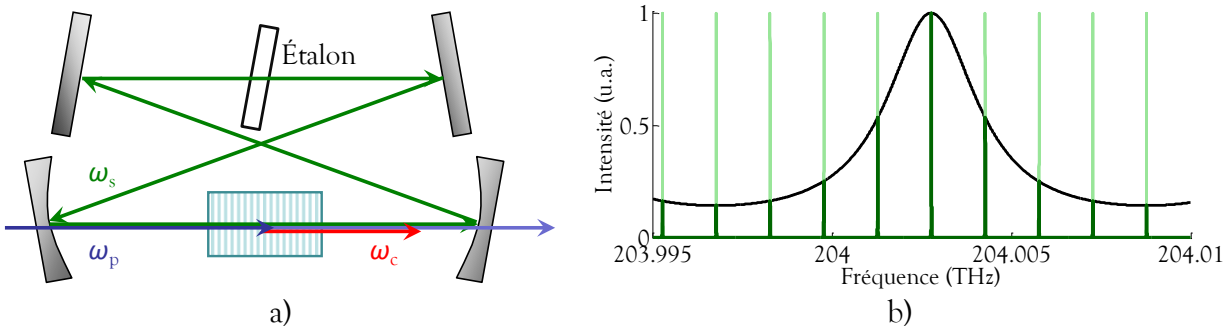
Les fréquences du complémentaire pouvant osciller sont celles de la bande de gain respectant la loi de conservation de l'énergie avec les modes du peigne signal. Pour chaque mode signal, il y a donc émission d'un mode complémentaire associé.

2. Solutions pour la réalisation d'un Sropo monomode nanoseconde

La recherche du fonctionnement monomode en régime nanoseconde a conduit à différentes configurations que nous rappelons ici afin d'en préciser les avantages et les limitations.

a. Insertion d'un étalon Fabry-Perot dans un Sropo

Nous venons de voir qu'un Sropo émettait spontanément plusieurs modes dont le nombre dépend de l'intervalle spectral libre de la cavité et de la bande de gain de l'OPO. Une technique fréquemment rencontrée et ce, depuis le début de l'optique non linéaire [Kreuzer '69], pour sélectionner un unique couple de modes consiste en l'introduction d'un étalon Fabry-Perot au sein de la cavité (voir figures 12 a) et b) et).



Figures 12 : a) Sropo monté en papillon avec un étalon Fabry-Perot ; b) Combinaison d'une cavité hautement réfléchissante et d'un étalon Fabry-Perot (noir : mode de l'étalon (r = 45 %), vert : modes de la cavité signal (r = 99 %)).

L'introduction de l'étalon va, de la même façon que la cavité, créer des pertes aux longueurs d'onde non résonantes. Son intervalle spectral libre et sa finesse sont choisis de telle sorte qu'un seul mode du peigne puisse osciller. Ainsi l'intervalle spectral libre de l'étalon doit être de l'ordre de grandeur de la bande de gain de l'OPO. Sa finesse est choisie afin que les modes de cavité voisins de la résonance commune (à l'étalon et la cavité OPO) ne puissent osciller du fait de pertes trop importantes à chaque tour de cavité. Cette technique permet ainsi d'être monomode en régime nanoseconde, Huisken *et al.* ont ainsi obtenu une largeur spectrale de l'émission de 200 MHz [Huisken '95].

Par cette technique, un balayage continu de la fréquence peut être obtenu en déplaçant un miroir de la cavité et en tournant simultanément l'étalon ou encore en faisant varier la fréquence pompe avec l'inclinaison de l'étalon [van Herpen '03]. Néanmoins, la modification de l'inclinaison conduit à un désalignement de la cavité. De plus, le balayage continu se limite souvent à quelques dizaines de GHz. Pour de grandes plages spectrales, il est alors plus aisé de réaliser des balayages « discontinus », par sauts de modes [van Herpen '03, Stothard '04]. La résolution dépend alors de l'ISL de la cavité. Plus le pas exigé est faible, plus la cavité doit être grande, mais surtout la limitation est que le pas reste fixe pour une architecture donnée. Les plages peuvent alors être très grandes, plusieurs centaines de cm^{-1}, en changeant l'accord de phase via la température du cristal.

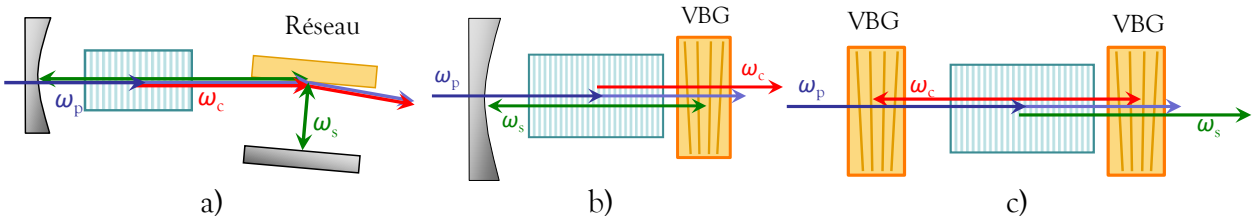
L'inconvénient majeur de cette technique est l'ajout d'un élément dans la cavité. Cela complexifie le système, allonge la cavité et augmente le seuil d'oscillation à cause des pertes dues à l'étalon [Leeb '75]. Par exemple, Schlup observe une chute de l'énergie par impulsion pour le

faisceau signal de 410 µJ à 220 µJ lors de l'ajout d'un étalon dans la cavité [Schlup '03]. Ces arguments s'opposent directement aux objectifs de cette thèse. En effet, rappelons que nous cherchons à développer un OPO compact pouvant être pompé par tout type de laser de pompe suivant les besoins.

b. Utilisation d'éléments dispersifs comme miroir de cavité dans un Sropo

D'autres méthodes permettent d'obtenir une émission monomode avec un Sropo sans ajouter d'élément optique intracavité. Ces techniques remplacent un ou plusieurs miroirs de la cavité résonante par un réseau. Soit le réseau est un réseau de diffraction et par sélection angulaire, seule la longueur d'onde réfléchie oscille dans la cavité [Yu '99, Schlup '00], soit il s'agit d'un réseau de Bragg en volume (*Volume Bragg Grating* – VBG) et seule la longueur d'onde respectant la condition de Bragg est réfléchie [Jacobsson '05, Blau '08, Jacobsson '09].

Les figures 13 a), b) et c) présentent différentes configurations.



Figures 13 : a) cavité utilisant un réseau de diffraction [Yu '99] ; b) cavité linéaire dont le miroir de sortie est un VBG [Jacobsson '09] ; c) cavité linéaire composée de 2 VBG [Blau '08].

L'utilisation de réseaux de diffraction traditionnels, du fait des pertes induites et de leur plus grande complexité de mise en œuvre, n'est pas compatible avec nos objectifs.

Les derniers résultats concernant l'utilisation de VBG comme miroirs de cavité semblent plus prometteurs. Rappelons brièvement que les VBG sont des réseaux réalisés par modulation de l'indice de réfraction dans un matériau photosensible. Ils permettent de réfléchir une gamme spectrale centrée sur la longueur d'onde dite de Bragg qui dépend du pas du réseau photo-inscrit [Kogelnik '69]. D'autres paramètres sont à prendre en compte pour définir la réflectivité ou la largeur spectrale de la réflexion, comme l'amplitude de modulation de l'indice, la longueur du réseau ou encore la variation de sa période (*chirp*).

Comme les figures 13 b) et c) le montrent, les architectures utilisant des VBG peuvent être très compactes et peu complexes.

D'une part, les travaux de Jacobsson *et al.* présentés en 2009 démontrent l'intérêt des VBG pour de grandes plages d'accordabilité. Ainsi, ils ont pu accorder leur Sropo sur environ 3,5 THz, par déplacement transverse de leur VBG. En effet, le pas du réseau étant variable dans cette direction (réseau en éventail ou *fan*), les longueurs d'onde oscillant dans la cavité sont modifiées par ce déplacement. Cependant, la largeur spectrale de l'émission est loin d'être satisfaisante puisqu'elle atteint 140 GHz. L'émission est donc fortement multimode centrée sur la longueur d'onde de Bragg.

D'autre part, Blau *et al.* s'assurent, eux, d'une émission monomode en faisant résonner le complémentaire entre deux VBG légèrement désaccordés. En effet, la largeur spectrale de l'émission mesurée à 2 GHz est inférieure à l'intervalle spectral libre de la cavité. Toutefois, il semble difficile de pouvoir accorder la longueur d'onde avec ce type d'architecture. D'ailleurs, du point de vue de la cavité, ces deux VBG se comportent comme des miroirs plans, ce qui

n'est pas idéal en termes de qualité spatiale (stabilité de recouvrement des modes transverses). Enfin, la stabilisation en température du ou des VBG complexifie le système même si aucun élément intracavité n'est ajouté.

À l'heure actuelle, l'utilisation d'éléments dispersifs ne semble donc pas pouvoir répondre à toutes nos exigences, d'autant plus que les matériaux photoréfractifs composant les VBG commercialement disponibles absorbent au-delà de 2,7 µm [Optigrate '11].

c. Association d'un Sropo et d'une source d'injection spectralement fine

Les rappels sur le couplage des ondes dans le cristal (voir I.B.1), ont montré que l'oscillation paramétrique démarrait sur le bruit quantique [Bjorkholm '69]. La longueur d'onde qui va sortir du bruit et être amplifiée n'est donc pas déterminée *a priori*. Dès lors, si nous injectons un faisceau à une longueur d'onde donnée, comme son intensité sera très supérieure à celle du bruit, il imposera la condition initiale. L'amplification démarrera alors sur le faisceau injecté, et en principe et en régime nanoseconde, l'oscillation se maintiendra à la longueur d'onde d'injection pour peu qu'elle résonne dans la cavité et qu'elle soit dans l'acceptance spectrale de l'OPO.

Cette technique est bien connue pour les lasers et dès 1969 Bjorkholm *et al.* l'appliquaient aux OPO et verrouillaient l'émission d'un OPO impulsionnel par injection [Bjorkholm '69]. Depuis, le développement des diodes lasers a permis de diversifier les sources d'injection. Ceci explique en partie la grande maturité de cette technique, qui déjà a été utilisée avec succès [Baxter '00, He '01], pour développer des sources dédiées à des mesures de concentration de CO_2 à 1,57 µm [Amediek '08], et des mesures aéroportées de concentration atmosphérique de vapeur d'eau [Poberaj '02, Wirth '09].

Ainsi, à partir d'une injection de faible puissance à une longueur d'onde il est possible de générer deux faisceaux de forte puissance, l'un à la longueur d'onde d'injection et l'autre à la longueur d'onde complémentaire. De plus, cette technique permet d'atteindre des seuils relativement bas pour des Sropo du fait qu'elle n'ajoute pas d'élément intracavité (voir figure 14). White *et al.* obtiennent ainsi un seuil limité à 35 µJ pour des impulsions de 27 ns [White '03] en fonctionnement non injecté. D'un autre côté, l'injection elle-même tend à faire diminuer le seuil et à réduire le temps d'établissement de l'oscillation paramétrique. Ainsi, Amediek *et al.* voient leur seuil diminuer de près de 30 % pour passer de 55 à 40 mJ par la technique d'injection [Amediek '08].

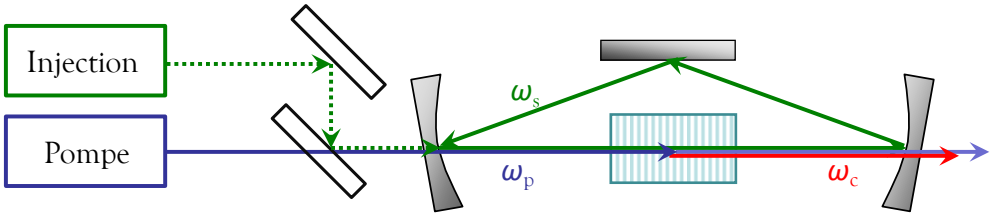


Figure 14 : Schéma d'un Sropo (cavité en anneau) avec une source d'injection dans l'onde résonante.

Grâce à cette technique, de très bonnes performances sont obtenues pour le faisceau signal. Les derniers résultats démontrent l'obtention d'une oscillation monomode (≈ 100 MHz de largeur spectrale) et continûment accordable sur plusieurs THz [White '03].

Cependant, cette technique possède de nombreux inconvénients.

Tout d'abord, la pureté spectrale et la plage d'accordabilité sont intrinsèquement liées à la source d'injection. Ceci limite les gammes d'émission des OPO injectés aux possibilités des diodes laser à cavité externe (External–Cavity Diode Laser – ECDL) ou DFB (distributed feedback) généralement utilisées. La gamme d'utilisation du rayonnement de l'OPO peut être étendue en prenant en compte le complémentaire. Dans ce cas il faut veiller à utiliser un laser de pompe très fin et très stable, car toute variation en fréquence de ce dernier est alors reportée sur la fréquence complémentaire.

De plus, il faut s'assurer, outre de la stabilité de l'injection, de la stabilité de la fréquence signal. En effet, suivant sa distance à la fréquence d'accord de phase, la fréquence signal peut se décaler de plusieurs centaines de mégahertz au cours de l'impulsion [Raymond '94, White '07]. White *et al.* montrent qu'il faut alors minimiser l'énergie de pompe et ajuster la température du cristal pour limiter ce décalage fréquentiel à 30 MHz [White '03].

De plus, le système complet est relativement complexe. La cavité simplement résonante sera de préférence en anneau. Bien qu'une cavité linéaire, plus courte et plus simple, puisse permettre des seuils plus bas et des ISL plus grands, la cavité en anneau a l'avantage non négligeable de ne pas induire de retour vers la source d'injection.

Aussi, contrairement aux Sropo non injectés, deux cavités doivent être stabilisées, celle de la diode et celle de l'OPO, notamment pour que l'onde d'injection corresponde toujours à un mode de la cavité signal.

En conclusion, si cette technique permet d'obtenir une émission monomode, pure, et stable, les contraintes imposées sont encore trop importantes : limitation de la gamme spectrale aux sources d'injection, et surtout grande complexité du système.

B. L'OPO doublement résonant

Nous venons de voir différentes solutions pour rendre un Sropo nanoseconde monomode. À l'Onera, le choix s'est porté sur le développement d'OPO doublement résonants pour les raisons énoncées en introduction, à savoir la réalisation d'une source cohérente et largement accordable dans l'infrarouge moyen, fine spectralement, stable en fréquence, de forte puissance crête, avec une bonne qualité spatiale de faisceau et enfin compacte.

1. Instabilité des premiers OPO doublement résonants

Au milieu des années 90, le choix du Dropo comme réponse à ces exigences était loin d'être évident. En effet, plusieurs caractéristiques des Dropo semblaient en contradiction avec les objectifs.

L'avantage principal des OPO doublement résonant est lié à leur plus faible seuil d'oscillation, de par la présence dans la double cavité des deux ondes filles. Ils étaient pour cela utilisés principalement pour des OPO continus lorsque la puissance des lasers de pompe était encore très limitée.

Giordmaine et Miller ont été les premiers à réaliser un OPO doublement résonant [Giordmaine '65]. La figure 15 montre un schéma de la cavité. Les miroirs sont déposés directement sur les faces d'entrée et sortie du cristal.

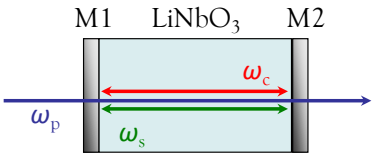


Figure 15 : Schéma d'un OPO doublement résonant à simple cavité [Giordmaine '65].

Contrairement à ce que nous avons vu précédemment (Chapitre 1.II.A.2), les deux ondes signal et complémentaire résonnent, nous avons donc deux peignes de modes. Ainsi, une longueur d'onde signal ne peut osciller que si elle est en résonance dans la cavité et que dans le même temps son complémentaire est aussi en résonance. On parle alors de couple de modes résonants. Au premier ordre, les conditions suivantes doivent donc être respectées simultanément :

$$\begin{cases} \nu_s = q_s \dfrac{c}{2L_s} = q_s \Delta\nu_s \\ \nu_c = q_c \dfrac{c}{2L_c} = q_c \Delta\nu_c \end{cases}, \qquad \text{Éq. 15}$$

où $\nu_p = \nu_s + \nu_c$ et L_j est la longueur optique de la cavité j. Les miroirs étant communs aux deux cavités, les longueurs optiques ne vont différer que du fait de la dispersion dans le cristal. Les intervalles spectraux libres ($\Delta\omega_s$ et $\Delta\omega_c$) vont ainsi être très peu différenciés. La figure 16 schématise, sur un diagramme introduit par Giordmaine et Miller [Giordmaine '66], ces conditions et la conséquence d'une faible différentiation des cavités.

Si nous supposons une coïncidence de modes aux pulsations ω_{s0} et ω_{c0}, et que la différentiation des cavités est faible, les couples de modes voisins se recouvriront suffisamment pour pouvoir osciller. En dehors de cette zone de recouvrement se trouvent de larges plages sans recouvrement pour lesquelles l'OPO ne peut osciller [Lee '98]. Ainsi, l'OPO ne fonctionne que sur certaines plages fréquentielles par groupes de modes ou « *clusters* ».

Sans contrôle sur les intervalles spectraux libres, il n'est donc pas possible de maîtriser le contenu spectral du Dropo.

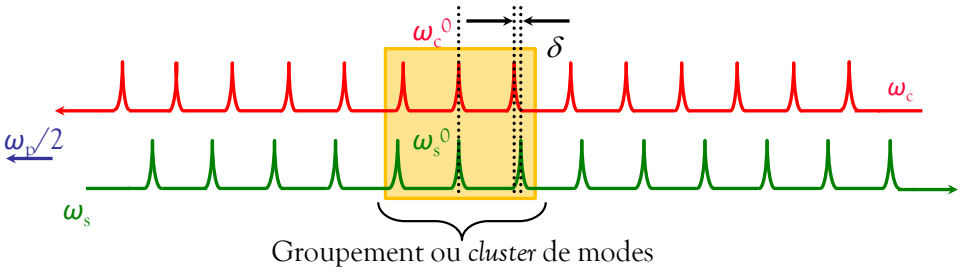


Figure 16 : Clusters de modes dans un OPO doublement résonant. Les axes fréquentiels sont opposés (et se rejoignent à la dégénérescence en $\omega_p/2$), permettant de respecter la conservation de l'énergie tout le long des axes pour les modes en vis-à-vis [Giordmaine '66].

2. Utilisation de cavités séparées dans les Dropo – Dropo de première génération

a. Approche historique

Maîtriser les intervalles spectraux libres des peignes de fréquences revient à contrôler les longueurs optiques des cavités. C'est en partant de ce constat qu'est apparue l'idée d'utiliser des cavités séparées pour chacune des ondes résonantes (voir figure 1.12 a)). Il est alors possible de sélectionner les couples de modes oscillant dans les cavités en ajustant correctement la différentiation des cavités comme nous le montrons dans le paragraphe suivant.

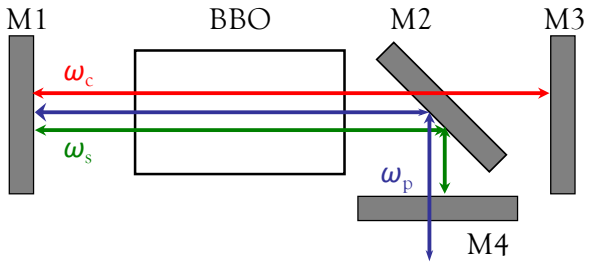


Figure 17 : Schéma de principe d'un OPO doublement résonant à cavités séparées en L [Scherrer '98].

Le premier Dropo à cavités séparées a été réalisé en régime continu par Colville *et al.* [Colville '94]. Ces Dropo avaient surtout pour but de supprimer les zones de la bande de gain paramétrique sans recouvrement de modes.

Durant leurs thèses B. Scherrer puis I. Ribet ont développé des Dropo à cavités séparées en régime nanoseconde qui ont constitué la première génération de Dropo à l'Onera (voir figure 17 et [Scherrer '98, Ribet '01]). Ces OPO ont, eux, permis de prouver l'intérêt de la double résonance pour rendre un OPO monomode en régime nanoseconde [Scherrer '00, Ribet '02], comme cela est expliqué dans le paragraphe suivant.

b. Utilisation de cavités dissociées pour l'obtention d'un Dropo nanoseconde monomode

La présence de cavités séparées dans un Dropo n'est pas une condition suffisante pour obtenir une émission monomode sur toute la bande de gain. Pour bien comprendre les autres paramètres à prendre en compte, nous revenons ici sur le contrôle des coïncidences de modes par la position relative des miroirs de cavités comme cela a été introduit lors de précédents travaux [Scherrer '00, Ribet '01, Desormeaux '05].

Les cavités dissociées permettent de contrôler les intervalles spectraux libres (ISL) et la position des pics de résonance de façon indépendante pour chaque onde signal et complémentaire. Cela doit permettre de trouver un compromis entre d'une part des cavités trop dissociées qui conduisent à la présence de plusieurs coïncidences exactes dans la bande de gain (figure 18) et d'autre part des cavités trop peu dissociées qui conduisent elles à la présence de clusters de modes (figure 16).

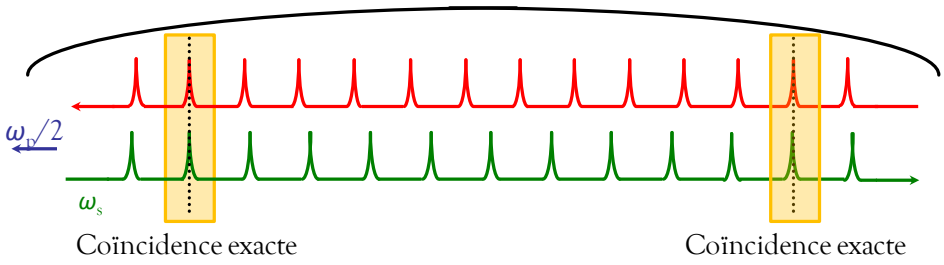


Figure 18 : Peignes de fréquences signal et complémentaire impliquant la présence simultanée de deux coïncidences exactes dans la bande de gain. L'OPO est multimode longitudinal.

i. Expression de la différentiation des longueurs de cavité et définition des types de coïncidences.

La dissociation des cavités peut se définir de plusieurs façons. Nous la définissons telle que $\Delta L/L = (L_c - L_s)/L_s$, où L_s et L_c représentent les longueurs optiques des cavités signal et complémentaire, respectivement.

Pour les coïncidences, nous parlons de « coïncidence exacte » entre deux modes lorsque deux résonances – une de la cavité signal (ω_s^n) et une de la cavité complémentaire (ω_c^m) – sont telles que $\omega_s^n + \omega_c^m = \omega_p$ où $(n,m) \in \mathbb{Z}^2$. Elle s'oppose à la « coïncidence partielle » qui est telle que $\omega_s^n + \omega_c^m = \omega_p \pm \delta^{nm}$ où m est tel que : $\forall\ i \in \mathbb{Z},\ \delta^{ni} \geq \delta^{nm} \geq 0$. La figure 19 résume les différents cas possibles.

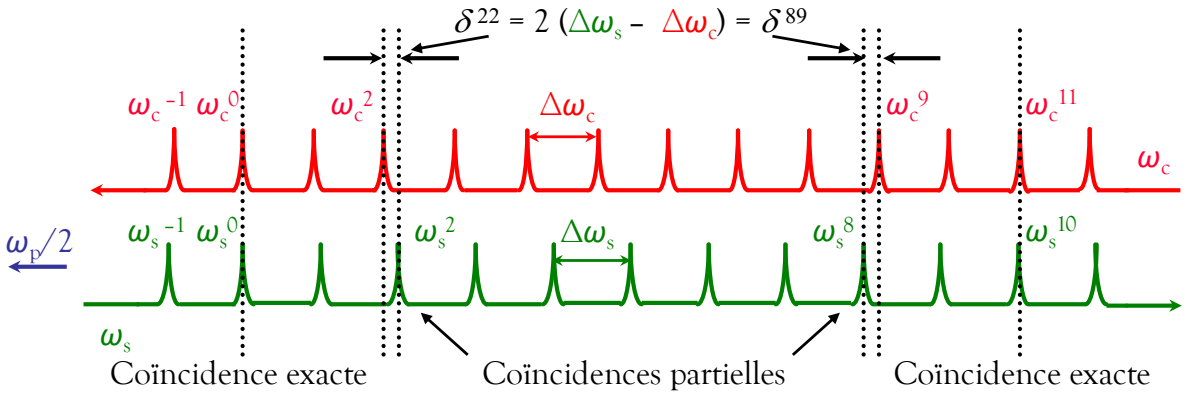


Figure 19 : Coïncidences exactes et partielles entre modes des peignes signal et complémentaire.

ii. Périodicité des coïncidences exactes, rôle de la dissociation des cavités

Nous allons, dans cette partie, rappeler les conditions pour qu'il n'y ait qu'une seule coïncidence exacte dans la bande de gain.

Nous supposons toujours, sauf cas explicites, qu'un couple de modes signal–complémentaire (ω_s^0 , ω_c^0) est en coïncidence exacte. Expérimentalement, il suffit de faire glisser un des peignes, autrement dit déplacer légèrement un miroir M3 ou M4 (voir figure 17), longitudinalement pour obtenir cette condition. Le déplacement du miroir est infime (< 10 nm) et ne remet donc pas en cause la validité des raisonnements.

La position des coïncidences exactes sur l'axe fréquentiel est un phénomène périodique. Leurs positions se déterminent à partir de la coïncidence de référence (ω_s^0 , ω_c^0), et du $\Delta L/L$. Ainsi, un couple (ω_s^n , ω_c^m) est aussi en coïncidence exacte si (au premier ordre) :

$$n\Delta\omega_s - m\Delta\omega_c = 0 \Leftrightarrow \Delta L/L = \frac{m-n}{n} = \frac{g}{n} \qquad \text{Éq. 16}$$

Cela signifie que dès lors que $\Delta L/L$ peut être exprimé comme un rationnel, nous avons périodiquement des coïncidences exactes. C'est ce que nous observons sur la figure 19, avec n = 10, m = 11 et donc $\Delta L/L$ = 10 %.

La figure 20 présente tous les cas possibles pour un $\Delta L/L$ variant de 0 à 20 % en considérant un peigne signal de 25 modes, soit le nombre de modes d'une cavité de 12 mm optiques dans une bande de gain de 300 GHz (10 cm^{-1}). Elle représente le nombre d'intervalles spectraux libres signal « n » en fonction de $\Delta L/L$, c'est-à-dire la distance entre la coïncidence exacte de référence et les suivantes pour une dissociation des cavités donnée. La correspondance en fréquence est donc immédiate, la coïncidence n est située à « n $\Delta\omega_s$ » de la fréquence ω_s^0.

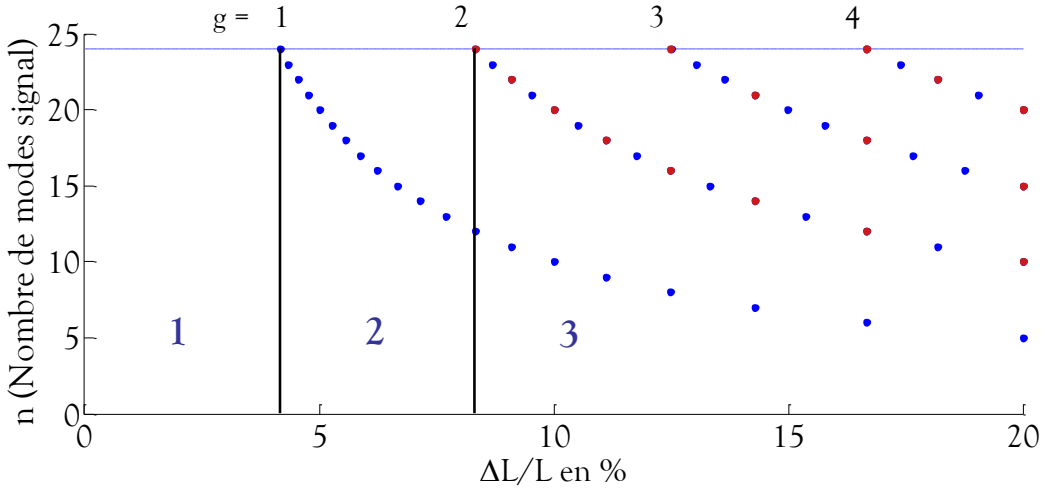


Figure 20 : Mise en évidence de la position des coïncidences exactes vis-à-vis de la coïncidence de référence en fonction de la différenciation des cavités (avec L_s fixe) pour une cavité signal de 12 mm et une bande de gain de 300 GHz [Ribet '01].

Nous observons sur cette figure 20 les branches d'hyperbole en $g/(\Delta L/L)$ (Éq. 16). Les points bleus correspondent aux coïncidences d'ordre 1, c'est-à-dire lorsque n et m sont premiers entre eux. Les points rouges aux ordres suivants. Ainsi dans le cas où $\Delta L/L$ = 20 %, il y a une coïncidence exacte à n = 5 et donc m = 6, mais aussi à n = 10 (m = 12), 15 (m = 18), 20 (m = 24)... Le cas particulier $\Delta L/L$ = 0, n'est pas représenté ici, dans ce cas les ISL des deux cavités sont égaux et tous les modes sont en coïncidence exacte.

Grâce à ce schéma, nous comprenons que pour être monomode il faut que $g/(\Delta L/L) > n^{max}$ – où n^{max} est le nombre maximal de modes dans la bande de gain. En effet, dans le cas contraire, une autre coïncidence exacte se trouverait dans la bande de gain.

Surtout, nous remarquons que les zones ne sont pas toutes identiques. Ainsi dans notre exemple où n^{max} = 25, nous avons une large zone (1 sur la figure 20) où la condition précédente est respectée correspondant à : $0 < \Delta L/L < 4{,}2$ %. Lorsque $4{,}2 < \Delta L/L < 8{,}3$ %, l'OPO est monomode sur une plage spectrale plus restreinte centrée sur l'accord de phase, qui se réduit quand $\Delta L/L$ augmente (zone 2 sur la figure 20). Enfin, dans la zone 3 de petites variations de $\Delta L/L$ risquent de faire passer la dissociation d'un rapport rationnel à un autre. Nous voyons donc qu'au-dessus de 4,2 %, il sera plus difficile d'être toujours monomode. La valeur de 4,2 %

ou exactement 1/24 correspond au cas limite où la distance entre deux coïncidences exactes est égale à la largeur de la bande de gain.

Cette première analyse se limite au cas particulier des coïncidences exactes. Afin de la compléter, la prochaine partie consiste à préciser le rôle joué par les coïncidences partielles.

iii. Influence des coïncidences partielles sur la pureté spectrale du Dropo

La prise en compte des coïncidences partielles provient du fait que les modes possèdent une certaine largeur spectrale. La figure 21 représente une coïncidence partielle en tenant compte de cette largeur.

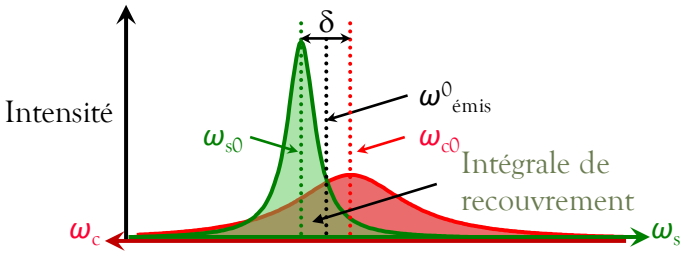


Figure 21 : Détail sur le recouvrement des modes dans le cas d'une coïncidence partielle (axes signal et complémentaire opposés) [Scherrer '00].

Les pics fréquentiels sont modélisés par des fonctions lorentziennes de largeur à mi-hauteur : $a_j = \Delta\omega_j/F_j$ où F_j représente la finesse de la cavité « j ». Ainsi, si ω_{s0} est suffisamment proche de la quantité $(\omega_p - \omega_{c0})$, les modes se recouvrent suffisamment pour osciller. La référence [Eckardt '91] montre que pour une distance spectrale $\delta_{sc} = |(F_s\Delta\omega_c + F_c\Delta\omega_s)/(2F_sF_c)|$, le seuil d'oscillation est multiplié par deux. δ_{sc} constitue donc l'écart spectral maximal entre deux modes qui permet l'oscillation. Il s'agit d'un critère pertinent puisqu'en pratique nous nous abstiendrons de pomper au-delà de deux fois le seuil.

Ces considérations permettent de mettre en lumière le rôle de la finesse des cavités. Plus les finesses sont élevées, plus les résonances sont fines spectralement et plus δ_{sc} sera petit.

Nous pouvons alors mettre à jour la figure 20 en tenant compte du recouvrement (figure 22). Pour le détail du calcul de ce dernier, nous pouvons nous reporter à la thèse d'I. Ribet [Ribet '01].

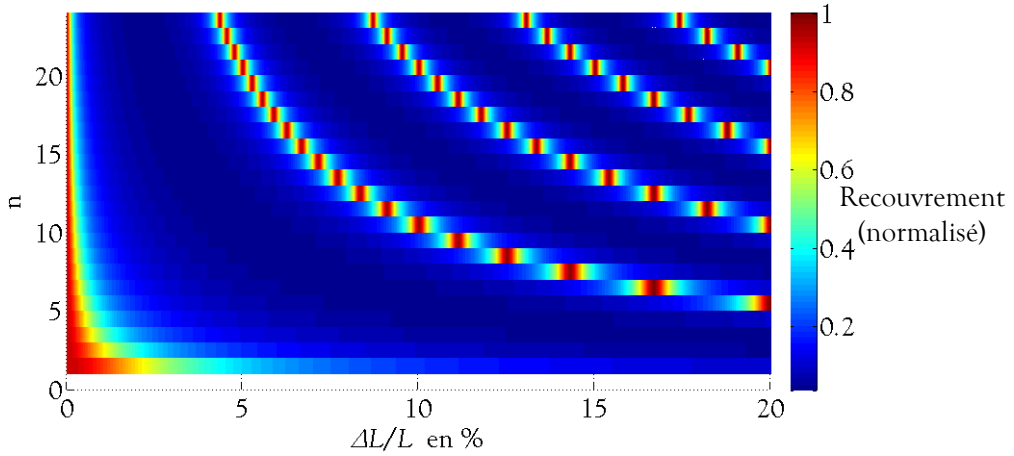


Figure 22 : Intégrales de recouvrement autour des coïncidences exactes déterminées à la figure 20 pour des finesses de F_s = 207 et F_c = 27.

Nous retrouvons les hyperboles de la figure 20 mais avec un certain étalement le long de l'axe de dissociation ($\Delta L/L$). Cet étalement vient de ce que nous venons de voir : même si les modes ne sont pas exactement en coïncidence, leur recouvrement n'est pas nul.

Pour rendre ce graphe plus exploitable, il est intéressant d'en faire la projection sur l'axe $\Delta L/L$. C'est ce qui est fait à la figure ci-dessous.

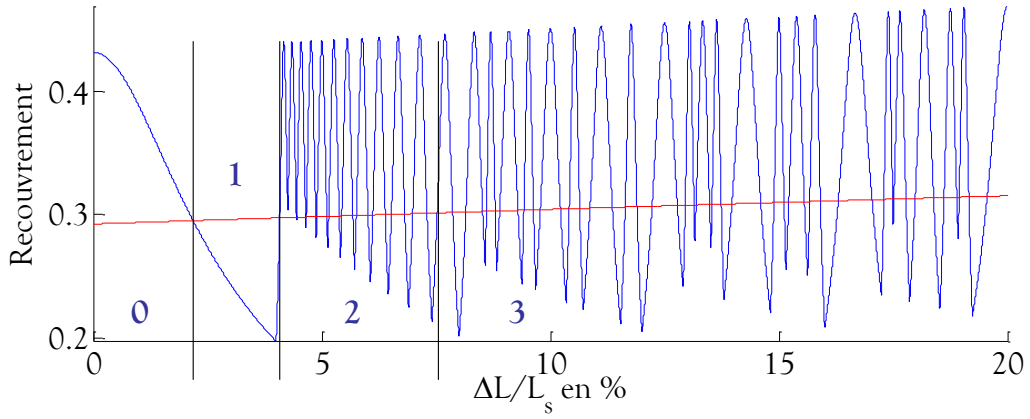


Figure 23 : Intégrale de recouvrement maximale dans la bande de gain (exemple contenant 25 modes signal) en fonction de la dissociation (courbe bleue et avec L_s fixe) et recouvrement minimal entraînant une oscillation (courbe rouge). Zone 0 : fonctionnement en cluster de modes, zone 1 : monomode stable sur toute la bande de gain, zone 2 : monomode au centre de la bande de gain, zone 3 : fonctionnement multimode sur toute la bande de gain, voire éventuellement monomode instable sur quelques zones de la bande de gain.

La projection réalisée à la figure 23 met en évidence le recouvrement maximal entre deux modes au sein de la bande de gain (hors coïncidence de référence). Nous retrouvons les pics de recouvrement aux valeurs rationnelles de $\Delta L/L$. Nous remarquons notamment le pic à 4,2 % qui correspond au cas où la première coïncidence exacte est à une distance spectrale légèrement inférieure à la largeur de la bande de gain, de la coïncidence de référence. D'une façon plus générale, chaque sommet des pics de la courbe bleue représente une coïncidence exacte dans la bande de gain. Les flancs, eux, représentent le taux de recouvrement des modes en coïncidence partielle.

La figure 23 présente aussi une courbe rouge qui correspond au recouvrement minimal susceptible d'entraîner une oscillation, ce qui correspond à un espacement des modes de δ_{sc}. Lors du montage des miroirs, il faut donc trouver une position qui corresponde à un recouvrement sous cette courbe rouge, pour cet exemple numérique. Comme nous l'avons déjà remarqué en ne considérant que les coïncidences exactes, au-delà de 4,1 % il sera difficile d'être monomode de façon stable dans toute la bande de gain. Pour des valeurs de l'ordre de 4 à 8 % (zone 2) il est possible d'être monomode, mais sur une partie seulement de la bande de gain paramétrique.

Sur cette figure, nous remarquons aussi que la courbe bleue remonte lorsque $\Delta L/L$ tend vers 0 (zone 0). En effet, lorsque la dissociation diminue, les coïncidences exactes sont rejetées hors de la bande de gain, mais les modes voisins de la coïncidence de référence se retrouvent très proches. Dans la figure 23 nous voyons que lorsque $\Delta L/L < 2$ %, les modes voisins de la coïncidence de référence ont un écart spectral inférieur à δ_{sc}. Le Dropo est multimode du fait du recouvrement des modes voisins.

Cette étude conduit au constat suivant : il faut avoir les intervalles spectraux libres les plus grands possible et dans le même temps une largeur de bande de gain paramétrique la plus étroite possible. Or, l'intervalle spectral libre varie avec l'inverse de la longueur de la cavité, et la largeur de la bande de gain est inversement proportionnelle à la longueur du cristal (Éq. 13). Nous obtenons donc deux conditions contradictoires à respecter : il faut le cristal le plus long dans la cavité la plus courte. C'est pour satisfaire à ces deux conditions que l'Onera s'est ensuite tourné vers le développement d'OPO doublement résonants à cavités imbriquées (voir figure 24) plutôt que les cavités en « L ». Ce type de configuration permet en effet de maximiser la taille du cristal dans la double cavité.

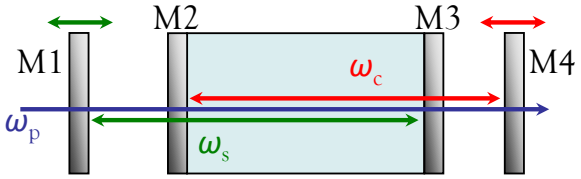


Figure 24 : Schéma d'un OPO doublement résonant à cavités imbriquées. Les ondes signal et complémentaire oscillent dans des cavités linéaires ajustables indépendamment l'une de l'autre.

iv. Bilan sur la recherche d'une oscillation monomode dans un Dropo

Cette partie a permis de mettre en évidence le rôle essentiel de la dissociation des cavités. Il en ressort qu'il faut trouver un compromis entre une dissociation trop faible qui fera fonctionner l'OPO en cluster de modes et une dissociation trop forte qui impliquera la présence de plusieurs coïncidences exactes dans la bande de gain.

Enfin, ces considérations permettent de savoir à présent quels paramètres sont à prendre en compte pour réaliser un Dropo monomode :

- la réflectivité des miroirs qui gouverne en partie le seuil d'oscillation et la largeur spectrale des résonances ;
- la largeur de la bande de gain qui déterminera le nombre de modes qu'elle contient pour les ISL des cavités donnés ou inversement, les longueurs des cavités qui détermineront les ISL et donc le nombre de modes contenus dans une bande de gain donnée.

En conclusion, l'utilisation de cavités imbriquées a constitué une avancée majeure dans le développement des Dropo, prouvant qu'il était possible d'être monomode de façon stable en régime nanoseconde [Drag '02]. Néanmoins, le système se complexifie avec l'utilisation de nombreux miroirs. Surtout, avec ces configurations, le Dropo présente de grandes fluctuations d'intensité suivant le couple de modes émis, au sein de la bande de gain. Durant sa thèse, Isabelle Ribet a mis au jour l'origine de ce problème avant de proposer une première solution [Ribet '01].

3. Retour de pompe dans un OPO doublement résonant

Avant de détailler la solution mise en œuvre pour s'affranchir des fluctuations d'intensité présentes dans un OPO à cavités imbriquées (voir figure 24), nous allons revenir sur l'origine du problème en proposant une première étude schématique dans le cas particulier de l'accord de phase ($\Delta k = 0$).

a. Le rôle de la phase relative dans le sens de transfert de l'énergie pour les ondes à l'accord de phase

L'origine de ces fluctuations d'intensité en fonction du mode émis provient du sens de transfert de l'énergie entre les trois ondes couplées. Ce sens de transfert est paramétré par la valeur de leur phase relative.

Pour bien comprendre le rôle de cette dernière, revenons au système d'équations couplées (Éq. 9) en utilisant la notation suivante : $A_j = u_j \exp(i\varphi_j)$. Pour simplifier les calculs, nous supposons que les champs sont à l'accord de phase ($\Delta k = 0$). Nous obtenons ainsi, en séparant parties réelle et imaginaire, les deux systèmes couplés suivants pour les amplitudes u_j et les phases φ_j [Armstrong '62, Rosencher '02] :

$$\underset{(1)}{\begin{cases} \frac{\partial}{\partial z} u_c = & -\kappa u_p u_s \sin(\Delta\varphi) \\ \frac{\partial}{\partial z} u_s = & -\kappa u_p u_c \sin(\Delta\varphi) \\ \frac{\partial}{\partial z} u_p = & \kappa u_s u_c \sin(\Delta\varphi) \end{cases}} \quad \underset{(2)}{\begin{cases} \frac{\partial}{\partial z} \varphi_c = & \kappa(u_p u_s / u_c)\cos(\Delta\varphi), \\ \frac{\partial}{\partial z} \varphi_s = & \kappa(u_p u_c / u_s)\cos(\Delta\varphi), \\ \frac{\partial}{\partial z} \varphi_p = & \kappa(u_s u_c / u_p)\cos(\Delta\varphi), \end{cases}} \qquad \text{Éq. 17}$$

où $\Delta\varphi = \varphi_p - \varphi_s - \varphi_c$ représente la phase relative entre les trois ondes.

Le système des modules (Éq. 17 – (1)), met en évidence la dépendance de la variation de l'amplitude des champs vis-à-vis de la phase relative tout au long de la propagation dans le cristal. Dès lors, si $-\pi < \Delta\varphi < 0$ [2π], les champs signal et complémentaire croissent au détriment du champ pompe, avec un maximum d'efficacité pour $\Delta\varphi = -\pi/2$ [2π]. Inversement, si la phase relative passe à $\pi/2$ [2π], le transfert d'énergie se fait des ondes signal et complémentaire vers la pompe.

Au trajet aller, seule la pompe a une phase déterminée. Le signal et le complémentaire sont seulement présents par le bruit paramétrique, leur phase initiale φ_{0j} est donc aléatoire. Toutes les ondes avec toutes les phases possibles sont susceptibles d'émerger du bruit. Mais au

final, ce sont les ondes qui ont une phase adaptée ($-\pi/2$ [2π]) qui vont être favorisées lors de l'amplification aller. Il va donc y avoir une sélection des phases par le gain. Les ondes se trouvant dans une cavité résonante, la phase est conservée à chaque tour de cavité.

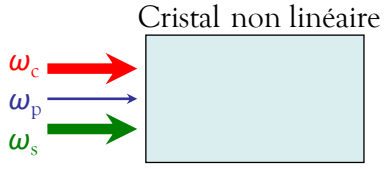
À l'inverse, au retour, les ondes filles sont déjà présentes avec une phase relative déterminée par les valeurs des phases initiales et par la propagation des ondes dans les différents milieux. Plusieurs cas se présentent alors selon l'intensité relative des ondes et la valeur de la phase relative.

Pour illustrer leur importance, nous résolvons le système d'équations (Éq. 17) numériquement[1] avec le logiciel Mathematica pour différentes valeurs de la phase relative et pour les cas suivants. Tout d'abord, l'amplitude du champ pompe est supposée faible devant celles des champs signal et complémentaire soit $u_p^0 \ll u_s^0, u_c^0$. Puis nous verrons le cas où elle est grande devant les champs générés $u_p^0 \gg u_s^0, u_c^0$.

i. 1ère hypothèse : le champ pompe est faible devant les champs signal et complémentaire

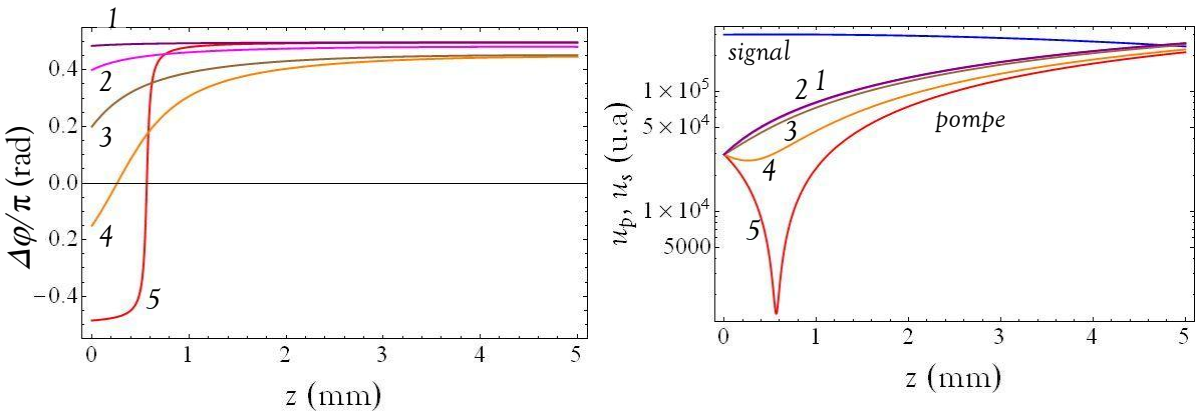
L'hypothèse d'un champ pompe faible devant les deux autres champs (voir schéma de la figure 25 a)) peut correspondre, par exemple, au cas d'un retour dans le cristal des ondes signal et complémentaire déjà amplifiées accompagné d'un retour inexistant ou faible de la pompe dû par exemple à une réflexion parasite (miroir M3 ou M4 figure 24).

Les figures 25 b) et c) présentent la résolution du système d'équations (Éq. 17) pour différentes valeurs de la phase relative initiale $\Delta\varphi^0 = \varphi_p^0 - \varphi_s^0 - \varphi_c^0$, lorsque les amplitudes des champs signal et complémentaire sont grandes devant celles de la pompe. Pour le calcul, les amplitudes des champs signal et complémentaire sont prises 10 fois plus grandes que celle de la pompe.



a)

[1] La résolution se fait dans un cristal de $LiNbO_3$ présentant un coefficient de couplage, d_{eff}, de 16 pm/V, pour des longueurs d'onde pompe et signal de 1,0644 µm et 1,46 µm, respectivement.



b) c)

Figures 25 : Schéma de principe a). Évolution de la phase relative b) et de l'amplitude du champ signal et du champ pompe c) avec : $u_s^0 = u_c^0 = 10\ u_p^0$, pour différentes valeurs initiales $\Delta\varphi^0$: 1 : 0,97×π/2 | 2 : 0,8×π/2 | 3 : 0,4×π/2 | 4 : –0,3×π/2 | 5 : –0,97×π/2.

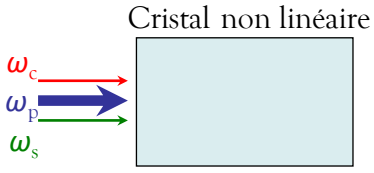
Comme le montre la figure 25 b), la phase relative tend vers π/2 quelle que soit sa valeur initiale ce qui implique une reconstruction de la pompe à partir des ondes signal et complémentaire.

La figure 25 c) montre que dès que la phase relative n'est plus dans l'intervalle [0, –π/2], l'énergie est transférée vers la pompe.

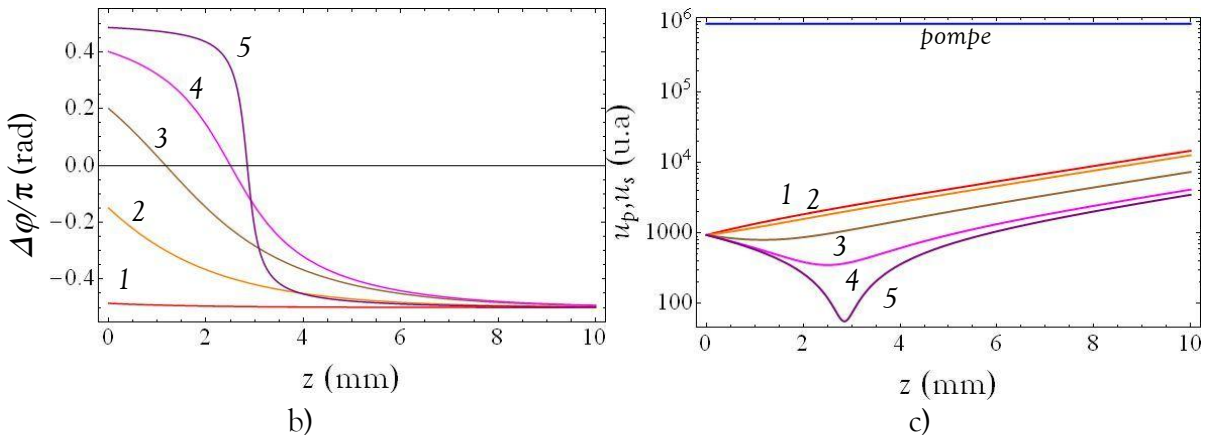
Dans un OPO doublement résonant, à cavité linéaire, sans retour de pompe, dès que les champs signal et complémentaire deviennent trop importants, le transfert d'énergie s'inverse pour reconstruire de la pompe. Dans le cas de Fabry-Perot parasites, un tel effet pourra aussi se produire. Cela pénalise bien évidemment l'efficacité du dispositif.

ii. 2e hypothèse : le champ pompe est très grand devant les champs signal et complémentaire

Les figures 26 b) et c) présentent la résolution du système d'équations (Éq. 17) pour différentes valeurs de la phase relative initiale, lorsque les amplitudes des champs signal et complémentaire sont négligeables devant celle de la pompe au début de l'interaction (voir schéma de la figure 26 a)). Pour le calcul, les amplitudes des champs signal et complémentaire sont prises 1 000 fois plus faibles que celle de la pompe.



a)



Figures 26 : Schéma de principe a). Évolution de la phase relative b) et de l'amplitude du champ signal et du champ pompe c) avec : $u_s^0 = u_c^0 = 10^{-4}\, u_p^0$, pour différentes valeurs initiales $\Delta\varphi^0$: 1 : –0,97×π/2 | 2 : –0,3×π/2 | 3 : 0,4×π/2 | 4 : 0,8×π/2 | 5 : 0,97×π/2.

À l'inverse de la figure 25 b), sur la figue 26 b) nous remarquons que quelle que soit sa valeur initiale, la phase relative va tendre vers –π/2 permettant la déplétion de la pompe vers le signal et le complémentaire. Le système tend donc de lui-même vers la génération des ondes filles lorsque leur amplitude est faible devant celle de la pompe.

Cependant, la figure 26 c) montre que tant que la phase relative n'est pas dans l'intervalle [0, –π/2], l'énergie est tout de même transférée vers la pompe, bien que celle-ci soit déjà prépondérante. Ainsi, dans ce cas, la phase relative joue un rôle déterminant sur le sens de transfert de l'énergie sur les premiers millimètres de l'interaction. Ce n'est donc pas négligeable, et cela peut pénaliser au retour l'interaction lorsque l'on pompe près du seuil d'oscillation, avec des cristaux de quelques millimètres.

iii. Bilan sur le rôle de la phase relative

Il ressort de l'étude de cas précédente que deux paramètres sont déterminants pour le sens de transfert de l'énergie. Le premier est la valeur relative de l'amplitude des champs couplés. Le deuxième paramètre est donc la phase relative.

Ainsi, même dans le cas où les amplitudes des champs signal et complémentaire sont supérieures à celle de la pompe, si la phase relative est proche –π/2, le transfert d'énergie va se poursuivre vers les ondes filles. Si la phase est exactement –π/2, il faudra même un dépeuplement complet de la pompe pour inverser le processus.

Inversement, si la phase relative est proche de π/2, l'interaction reconstruit alors la pompe, même si l'amplitude du champ pompe est déjà très supérieure à celles des deux autres champs. Dès lors, la phase relative influence directement l'efficacité de conversion.

Par conséquent, dans un OPO doublement résonant en cavité linéaire, il est essentiel de contrôler la phase relative au retour dans le cristal. Cela doit conduire à diminuer le seuil d'oscillation et supprimer les fluctuations de ce seuil en fonction de la longueur d'onde émise. Le contrôle de la phase relative a fait l'objet d'une deuxième génération de Dropo que nous présentons dans le paragraphe suivant.

b. Effet de la phase relative sur la bande de gain paramétrique d'un Dropo à double passage de pompe

Dans cette partie nous ne supposons plus le cas particulier où l'accord de phase est respecté ($\Delta k = 0$), mais au contraire nous regardons comment se comporte le gain en fonction de $\Delta\varphi$ et Δk.

Dès 1970, Bjorkholm *et al.* établissent les bases théoriques pour prendre en compte la phase relative dans l'expression du gain pour un OPO doublement résonant à double passage de pompe [Bjorkholm '70]. Ainsi, le gain – défini ici comme l'inverse du seuil d'oscillation (en continu) – peut s'exprimer selon l'équation suivante :

$$Gain = K^{-1}\left[1 + R + 2\sqrt{R}\cos(\Delta\varphi + \Delta kL)\right]\mathrm{sinc}^2(\Delta kL/2), \qquad \text{Éq. 18}$$

où R est défini comme la réflectivité (en intensité) du miroir de renvoi de la pompe et $K = 128\pi^3 d_{eff}^2 L^2 \omega_s \omega_c/(n_p n_s n_c c^3)$, avec notamment « L » la longueur du cristal, et $\Delta\varphi$ est le déphasage relatif des ondes accumulé jusqu'au retour dans le cristal.

Nous retrouvons dans cette expression le sinus cardinal au carré correspondant au cas d'un simple passage. Le terme entre crochets de l'équation précédente (Éq. 18) permet de prendre en compte le retour de pompe. Nous remarquons que l'influence de ce terme sur la forme de la bande de gain dépend directement de la valeur de R, autrement dit de la quantité de pompe renvoyée. Le cas $R = 0$ correspond au simple passage. Nous remarquons aussi la présence d'un cosinus, fonction notamment du déphasage relatif accumulé ($\Delta\varphi$). Ce cosinus va impliquer la présence périodique de « zéros » dont la position sur l'axe fréquentiel dépendra de la valeur de la phase relative. Tout ceci est illustré par les figures suivantes (figures 27 et 28).

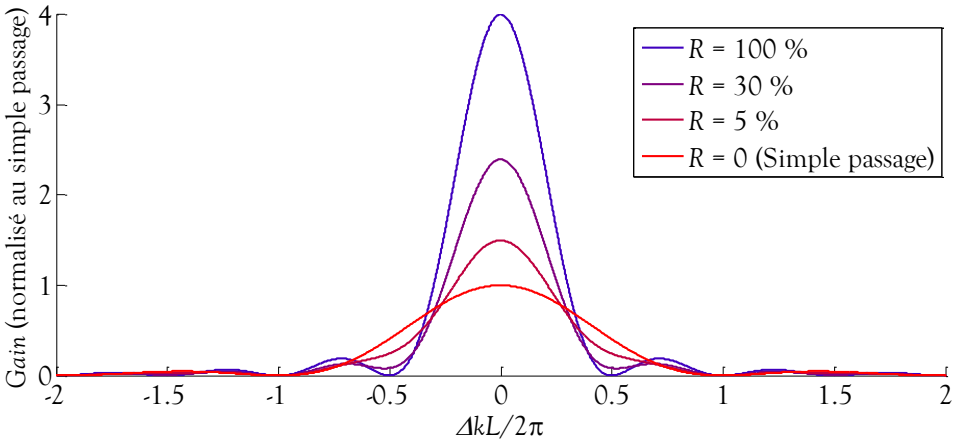


Figure 27 : Effet de la variation de la quantité de pompe au retour dans l'OPO. La phase de la pompe est telle que le déphasage relatif est optimal ($\Delta\varphi = 0$) pour les ondes à l'accord de phase ($\Delta k = 0$).

Sur la figure 27, nous remarquons l'influence du retour de pompe. Un renvoi total de pompe permet de diviser par quatre le seuil d'oscillation. En effet, cela revient à doubler la longueur d'interaction entre les trois ondes. Et comme le montre le facteur K défini à l'équation Éq. 18, le gain est proportionnel au carré de la longueur du cristal (L). Cela affine aussi la bande de gain. Nous avons un facteur deux entre le simple passage et le double passage.

Ce facteur est particulièrement intéressant pour pouvoir rendre l'OPO monomode par effet Vernier comme nous l'avons vu (Chapitre 1.II.B.2.b).

Nous remarquons aussi que même une faible réflectivité de la pompe (R = 5 %) influence de façon non négligeable la bande de gain.

Comme nous l'avons dit précédemment, la variation de la phase relative entraîne le déplacement du zéro du cosinus (voir Éq. 18 et figure 28) et module ainsi la bande de gain. Dès lors, lorsque $\Delta\varphi = \pi$ les ondes à l'accord de phase ($\Delta k = 0$) sont en opposition de phase au retour dans le cristal et le transfert d'énergie se fait des ondes filles vers la pompe. Le seuil tend vers l'infini et le gain est nul pour ces positions fréquentielles. L'OPO va donc naturellement fonctionner autour de $\Delta k \approx \pm 0{,}37\pi$ afin de maximiser le gain.

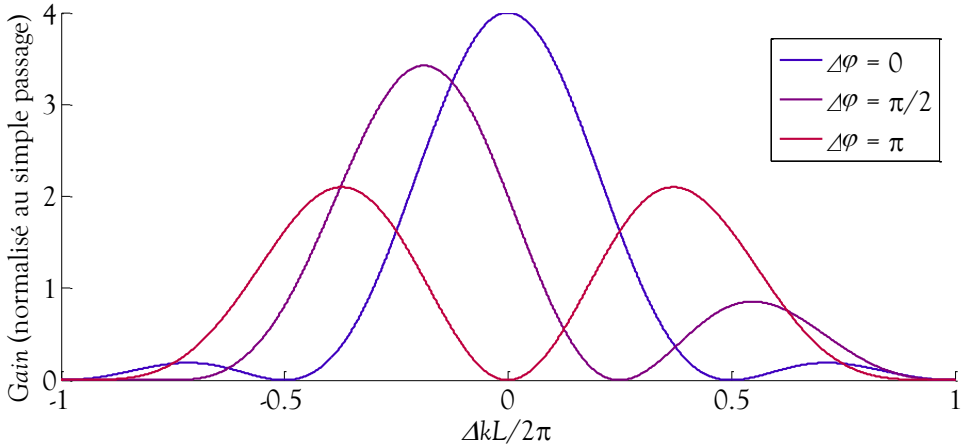


Figure 28 : Effet de la variation de la phase relative au retour de l'OPO pour une réflexion totale de pompe (R = 1).

Nous observons alors que la bande de gain est séparée en deux lobes distincts. Chacun de ces lobes présente un seuil deux fois plus élevé que lorsque le déphasage relatif est optimisé pour l'accord de phase. La largeur de la bande de gain est aussi plus large. La figure 29 représente une carte du gain pour différentes valeurs de $\Delta\varphi$ et $\Delta kL/2$.

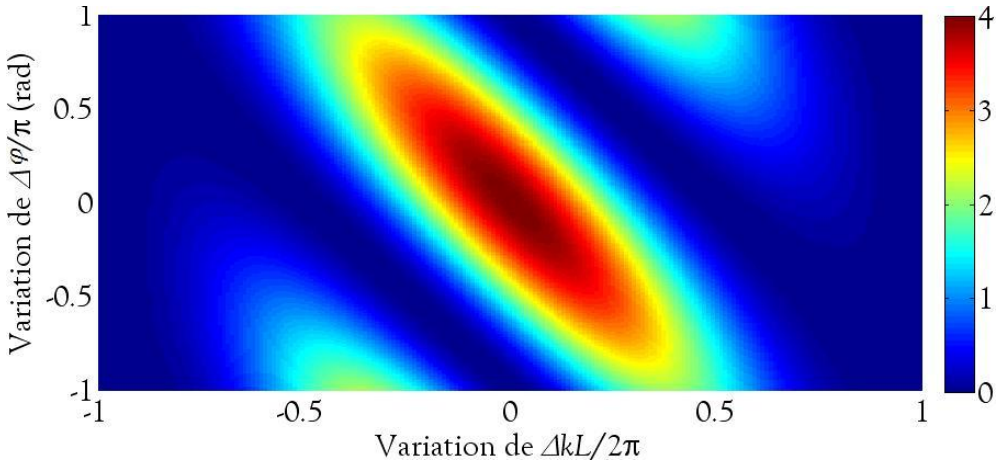


Figure 29 : Valeur du gain en fonction de $\Delta\varphi$ et $\Delta kL/2$ (normalisé par rapport au simple passage).

Nous retrouvons sur cette carte toutes les valeurs du gain possibles. Nous pouvons ainsi observer simultanément la position et la valeur du maximum et du minimum de gain en fonction de l'accord de phase et du déphasage relatif. Nous observons le déplacement oblique du zéro du cosinus de l'équation Éq. 18 qui annule périodiquement le gain à l'accord de phase.

Remarque :

Ces courbes (figures 27 à 29) concernent le cas plus simple des cristaux accordés en phase. Le cas particulier des cristaux en quasi-accord de phase sera abordé ultérieurement dans le manuscrit (Chapitre 2.I.B).

4. Renvoi de pompe contrôlé en phase – Dropo de deuxième génération

Nous venons de voir l'influence de la phase relative sur le sens de transfert de l'énergie et donc sur la forme de la bande de gain paramétrique. Dans cette partie, nous allons détailler la solution originale précédemment mise en œuvre par l'Onera pour s'assurer d'une phase relative optimisant le transfert d'énergie vers les ondes filles [Berrou '10].

Cette technique consiste à adapter la phase de l'une des ondes, la pompe, au retour dans le cristal. La figure 30 présente le schéma cette nouvelle architecture.

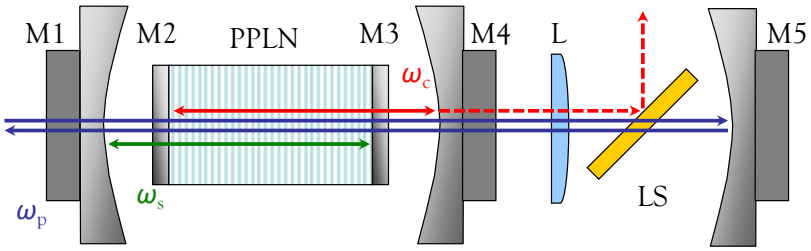


Figure 30 : Schéma du Dropo de deuxième génération développé durant les thèses d'A. Desormeaux et d'A. Berrou pour réaliser des mesures spectroscopiques dans l'infrarouge [Berrou '10]. L : lentille de collimation pour le renvoi de pompe, LS : lame séparatrice permettant d'extraire le faisceau complémentaire.

Nous pouvons voir sur la figure 30, que dans cette configuration l'onde signal résonne entre les miroirs M1 et M3, l'onde complémentaire entre les miroirs M2 et M4. M2 et M3 sont déposés directement sur les faces d'entrée et sortie du cristal. Les cavités peuvent être ajustées séparément grâce à M1 et M4 montés sur des transducteurs piézoélectriques (PZT).

Un nouveau miroir est donc mis en place : M5 qui permet de renvoyer la pompe (refocalisée par la lentille L) dans le cristal. La phase de la pompe et donc la phase relative des ondes, est simplement ajustée en contrôlant la distance parcourue par le faisceau pompe avant son retour dans le cristal par la position de M5. A. Berrou et A. Desormeaux ont, de plus, montré l'importance de la quantité de pompe renvoyée dans le cristal [Desormeaux '05, Berrou '10]. Ainsi, sans retour de pompe, le seuil peut fortement fluctuer. Plus la pompe est réfléchie, plus les fluctuations d'intensité dues aux réflexions parasites sur les miroirs M3 et M4 sont atténuées (voir figure 31).

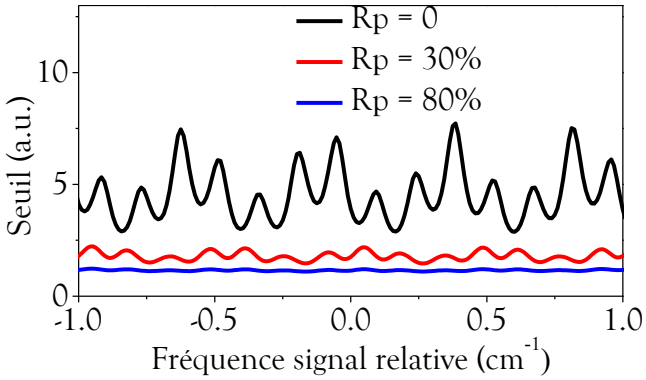


Figure 31 : Simulation de l'influence de la réflectivité de M5 sur les fluctuations du seuil d'oscillation dans un Dropo en fonction de la fréquence signal [Berrou '10].

Le miroir M5 est donc hautement réfléchissant à la fréquence pompe. Du fait des pertes, 80 % de l'énergie de la pompe est effectivement renvoyée dans le cristal.

En plus de permettre de contrôler la phase relative, renvoyer la pompe dans le cristal diminue le seuil d'un facteur $1/(1+\sqrt{R})^2$, où R désigne le coefficient de réflexion (en intensité) du miroir [Bjorkholm '70]. Cette diminution du seuil a ouvert la voie à un pompage par microlaser de ces OPO. Le tableau 1 présente quelques performances de ce Dropo et de son laser de pompe.

	Pompe (Innolight – Méphisto Q)	OPO (complémentaire)
Longueur d'onde	1 064 µm	3,8 – 4,5 µm
Durée d'impulsion	8,8 ns	7 ns
Puissance moyenne	400 mW	3,2 mW
Énergie par impulsion	40 µJ	0,4 µJ (à 2,5 fois le seuil)
Taux de répétition	6 à 11,4 kHz	6 à 11,4 kHz
Facteur de qualité (M^2)	1,2	< 2
Qualité du faisceau	TEM_{00}	TEM_{00}
Largeur spectrale	–	< 100 MHz
SMSR[1]		> 30 dB
Accordabilité (monomode)		3,8 – 4,5 µm
Balayage continu (sans saut de modes)		Par tranches de 100 GHz sur toute la plage 3,8 – 4,3 µm (limité par les transducteurs piézoélectriques)
Stabilité court terme (≈ 90 s)		< 3 MHz
Seuil d'oscillation		3 µJ
Encombrement		200 cm²

Tableau 1 : Caractéristiques du Dropo [Berrou '08, Berrou '10].

Ce Dropo de deuxième génération a été automatisé et utilisé avec succès pour des mesures spectroscopiques de différents gaz [Berrou '10]. Des mesures ont ainsi été réalisées sur

[1] SMSR est l'acronyme anglais de *Side Mode Suppression Ratio* soit le taux d'extinction du mode secondaire.

du CO_2, CH_4, SO_2 et N_2O prouvant ainsi son intérêt pour la conception de détecteurs multigaz.

C. Bilan sur les OPO monomodes en régime nanoseconde et limitations du Dropo de deuxième génération

Nous proposons, dans un premier temps, un petit bilan comparatif des méthodes utilisées pour réaliser un OPO en régime nanoseconde monomode (tableau 2).

	Étalons	Éléments dispersifs	OPO injectés	Dropo (2e génération)
Largeur spectrale de l'émission	Monomode	Monomode	Monomode	Monomode
Accordabilité	Limitée par la transparence des cristaux non linéaires et les pertes étalons	Dépend de l'élément dispersif	Limitée à la source d'injection	Limitée par la transparence des cristaux non linéaires
Seuil	Élevé (Sropo + pertes étalon)	Élevé (Sropo)	Moyen (Sropo + injection)	Très faible (Dropo)
Intégrabilité	Faible (cavités non linéaires + éléments intracavités)	Bonne (cavité linéaire sans élément intracavité)	Très faible (pompe + OPO + source d'injection)	Bonne (cavité linéaire, mais 5 miroirs)
Complexité	Moyenne : élément intracavité à contrôler	Moyenne : cavité simple, mais contrôle plus complexe des VBG (position + température)	Haute : contrôle synchronisé de l'OPO et de la source d'injection	Moyenne : 3 miroirs à ajuster en temps réel

Tableau 2 : Bilan sur les OPO monomodes nanosecondes

Le Dropo de deuxième génération semble donc un choix très judicieux vis-à-vis de nos objectifs. Cependant, il reste un dispositif relativement complexe constitué de deux blocs séparés (figure 32). La robustesse, la compacité ainsi que la facilité d'accord en longueur d'onde du système se trouvent limitées par cet arrangement.

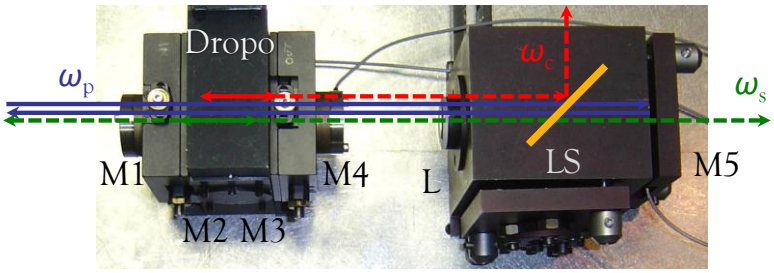


Figure 32 : Photographie du montage du Dropo de deuxième génération. L représente la lentille de focalisation de la pompe et L_s la lame séparant le faisceau complémentaire.

De plus, la multiplicité des miroirs implique la présence de nombreux Fabry-Perot formés par les réflexions parasites des ondes. Ces Fabry-Perot perturbent le fonctionnement de l'OPO suivant la longueur d'onde émise.

Dans cette architecture, trois miroirs sont à contrôler en temps réel. En effet, d'une part, les peignes de modes signal et complémentaire sont contrôlés par les miroirs M1 et M4, respectivement (figure 30). Et d'autre part, le miroir M5 permet d'ajuster la phase relative en modifiant la longueur du chemin optique parcouru par la pompe. Cet ajustement se fait en temps réel, au cours de l'accord en fréquence, en maximisant l'énergie émise par l'OPO. La phase relative n'est donc pas déterminée et dépend de la longueur d'onde émise.

Dès lors pour simplifier cette architecture il convient de mettre en place une nouvelle méthode de contrôle de la phase relative. C'est ce qui a fait l'objet du cœur de ce travail de cette thèse : le développement d'une nouvelle configuration pour la conception d'un Dropo simplifié, contrôlé en phase et hautement intégrable.

Synthèse

Dans ce premier chapitre, nous avons rappelé les fondements théoriques de la génération paramétrique optique et introduit les oscillateurs paramétriques optiques.

Une première étude bibliographique sur les OPO simplement résonants a montré leurs limites quant au respect de notre cahier des charges. Une seconde étude a permis de présenter les OPO doublement résonants et de mettre en évidence leur grand potentiel pour la réalisation d'une source optique cohérente pour la spectroscopie.

Avec ce type d'oscillateurs deux paramètres clés à prendre en compte pour le développement d'une nouvelle cavité devant permettre de s'affranchir des limitations de la dernière génération de Dropo ont été mis en évidence. Premièrement, l'architecture doublement résonante doit pouvoir permettre un contrôle précis de la dissociation des cavités pour s'assurer d'une émission monomode. Deuxièmement, elle doit permettre d'ajuster la phase relative des trois ondes au retour dans le cristal pour garantir une bonne efficacité du processus de conversion quelle que soit la longueur d'onde émise.

Chapitre 2. Développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant à double passage de pompe

---

Objectifs

Le chapitre 1 a posé les bases théoriques et les contraintes pour la conception d'un OPO doublement résonant adapté à des mesures spectroscopiques. Nous avons aussi mis en évidence les limitations des architectures développées au cours des thèses précédentes.

Le deuxième chapitre est consacré au développement et à la caractérisation d'une nouvelle architecture de Dropo simplifiée permettant de s'affranchir de ces limites.

Dans une première partie, nous effectuons une étude bibliographique sur divers systèmes non linéaires, afin d'appréhender différentes techniques de maîtrise de la phase relative. Puis, nous présentons la méthode développée spécifiquement pour répondre à nos besoins. Ce nouveau contrôle de la phase relative nous permet alors de mettre en place une architecture de Dropo simplifiée.

Dans une deuxième partie, nous détaillons le dimensionnement et la réalisation expérimentale de cette nouvelle architecture.

Enfin, dans une troisième partie, nous caractérisons la nouvelle source ainsi obtenue pour démontrer son aptitude à répondre au cahier des charges, des points de vue énergétique, spatial et temporel.

I. Développement d'un Dropo à maintien de phase achromatique

Nous avons présenté dans le chapitre précédent, la dernière évolution du Dropo de deuxième génération développée au cours de la thèse d'A. Berrou précédant notre travail. Nous avons vu que le contrôle en temps réel de la phase relative limite la simplicité du montage.

L'Onera a proposé dès 2007 une nouvelle architecture de cavité simplifiée [Lefebvre '07].

Dans un premier temps, nous réalisons une étude bibliographique, afin de comprendre les différentes méthodes de contrôle de la phase relative dans des processus de doublage de fréquence.

Dans un second temps, nous présentons la solution développée.

A. Étude du contrôle de la phase relative dans divers systèmes non linéaires

Le contrôle de la phase relative a été essentiellement abordé expérimentalement dans le cas des processus de doublage de fréquence multipassages. Nous rappelons ici comment d'autres systèmes comprenant une interaction non linéaire et un double passage des ondes en jeu contrôlent leur phase relative. Nous verrons alors en quoi ces systèmes ne répondent pas à notre besoin.

1. Utilisation de la dispersion de l'air dans un miroir non linéaire

Pour illustrer le cas de l'utilisation de la dispersion dans l'air, nous pouvons regarder l'exemple du miroir non linéaire. Le principe de ce miroir est de voir sa réflectivité varier avec l'intensité de l'onde incidente. C'est Stankov qui soumit pour la première fois en 1988, l'idée d'utiliser un cristal doubleur et un miroir dichroïque pour réaliser un tel système [Stankov '88]. Le principe est schématisé sur la figure suivante.

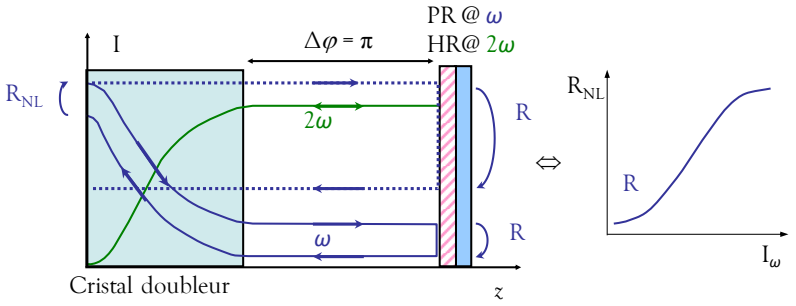


Figure 33 : Schéma de principe d'un miroir non linéaire d'ordre deux composé d'un cristal doubleur et d'un miroir dichroïque. Le processus de conversion étant favorisé par l'intensité du fondamental, c'est cette dernière qui détermine la réflectivité du système.

À l'aller (z croissants) le fondamental, de pulsation ω, transfère son énergie vers l'onde à la pulsation 2ω. Le miroir dichroïque est partiellement réfléchissant à ω et totalement à 2ω, donc plus la proportion de 2ω est importante, plus la quantité d'énergie réfléchie par le miroir

dichroïque est importante. Au retour, c'est la reconversion (2ω vers ω) qui doit être privilégiée pour augmenter la réflectivité non linéaire R_{NL}.

Ainsi, comme le rendement de conversion à l'aller et au retour croît avec l'intensité du fondamental, la réflectivité du système va suivre (voir schéma figure 33).

Mais pour cela, il faut qu'au retour la phase relative entre le fondamental et son harmonique, soit optimisée pour la reconversion. Dès lors, comme nous l'avons déjà vu à l'aller la phase va s'établir à $\pi/2$ (Chapitre 1.II.B.3.a) et pour favoriser le processus inverse, au retour, la phase relative doit être de $-\pi/2$.

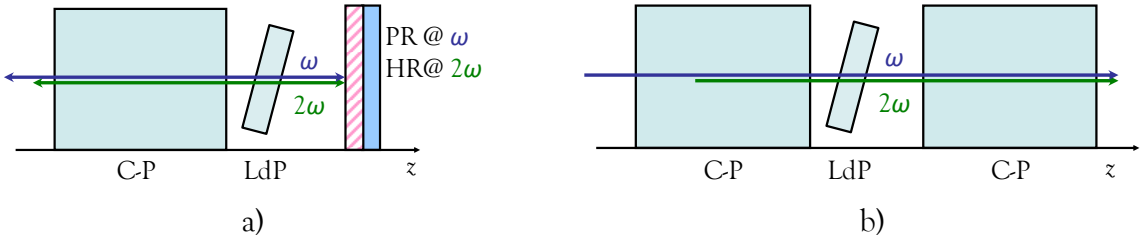
Le déplacement du miroir dichroïque fait varier la distance parcourue par les deux ondes dans l'air et donc du fait de la dispersion, la phase relative va changer. C'est donc en contrôlant la distance cristal-miroir que la phase relative est contrôlée.

Cette technique relativement simple ne peut cependant pas être une solution à notre problème. En effet, aux longueurs d'onde qui nous concernent (1 µm, 1,5 µm et 3,6 µm pour respectivement, pompe, signal et complémentaire) la dispersion dans l'air est particulièrement faible. Il nous faudrait ainsi augmenter la distance cristal-miroir de plus de 60 cm pour faire varier la phase de 0 à 2π contre moins de 7 cm dans le cas du miroir non linéaire avec un fondamental à 1,064 µm.

Il peut donc être intéressant d'insérer sur le chemin optique un milieu plus dispersif, qui l'emportera avantageusement sur l'air.

2. Contrôle de la phase relative en doublage de fréquence par l'utilisation d'un élément dispersif

L'insertion d'un élément plus dispersif permet de contrôler le déphasage sans modifier les positions du cristal et du miroir. Cette technique a été utilisée pour des miroirs non linéaires dans le proche infrarouge ([Stankov '88], schématisé à la figure 34 a)) mais aussi dans le moyen infrarouge [Dherbecourt '11], ainsi que pour de la génération de seconde harmonique intracavité [Pearl '99].



Figures 34 : Insertion d'une lame de phase : a) entre le cristal doubleur et le miroir dichroïque [Stankov '88, Dherbecourt '11] et b) entre deux cristaux non linéaires pour du doublage en cascade [Chakmakjian '96].

Cette technique peut aussi être utilisée pour du doublage de fréquence en cascade. La phase relative doit alors être optimisée entre les deux cristaux non linéaires (figure 34 b), [Chakmakjian '96].

Le gain, en termes d'encombrement, est très important. La variation de distance nécessaire est beaucoup plus faible que pour l'air. Typiquement, pour une lame de YAG un

déphasage de 2π nécessite une variation d'épaisseur de 55 µm pour un fondamental à 1,064 µm.

Cependant, cette solution possède l'inconvénient de devoir ajouter un élément entre le cristal non linéaire et le miroir de renvoi. Or nous avons vu au premier chapitre que cette solution était à éviter pour notre application Dropo. Elle rallonge la cavité et entraîne des pertes. De plus, la dispersion dans le cristal varie en fonction de la longueur d'onde émise, ce qui implique de devoir ajuster la lame de phase au cours du balayage fréquentiel.

Dans le paragraphe suivant, nous allons voir une solution qui permet de garder l'efficacité de dispersion d'une lame de phase tout en n'ajoutant pas d'élément entre le cristal et le miroir.

3. Utilisation d'un cristal non linéaire périodiquement retourné prismatique

Pour s'affranchir de la lame de phase, l'idée est d'utiliser la dispersion directement dans le cristal non linéaire. Cette idée a été proposée dès 2007 à l'Onera et une étude bibliographique a montré qu'elle a été utilisée avec succès pour de la génération de seconde harmonique, [Imeshev '98, Juwiler '99] mais aussi très récemment pour de la SHG/DFG en cascade [Nouroozi '10].

Le cristal non linéaire utilisé est alors est un cristal périodiquement retourné – periodically poled (PP) en anglais – c'est-à-dire dont la polarité est inversée régulièrement [Fejer '92]. Ainsi, les conditions du sens de transfert de l'énergie s'inversent à chaque demi-période, une période correspondant à deux fois la longueur de cohérence du cristal. Cela maintient les ondes autour de l'accord de phase au cours de la propagation dans le cristal. On parle alors de quasi-accord de phase. Le schéma d'un cristal périodiquement retourné et taillé en prisme est décrit sur la figure 35.

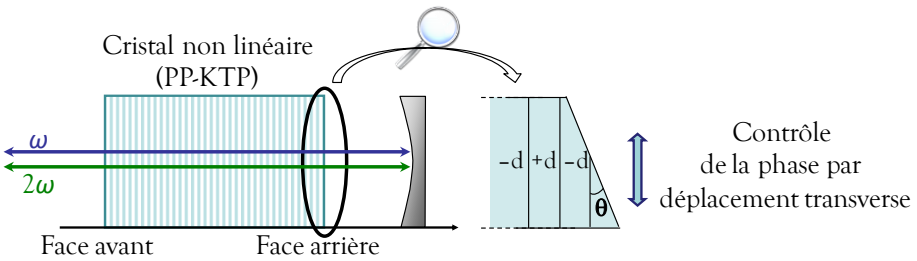


Figure 35 : Schéma d'un cristal périodiquement retourné et zoom sur le côté prismatique, [Juwiler '99]. L'angle doit être suffisant pour couvrir une demi-période du réseau sur la largeur de celui-ci.

Ainsi en déplaçant le cristal transversalement, c'est-à-dire perpendiculairement aux faisceaux, la distance parcourue dans le dernier domaine varie ce qui modifie la phase relative des ondes.

Cette solution semble donc particulièrement intéressante, puisqu'elle n'ajoute pas d'élément intracavité. Elle ne compromet donc ni la compacité ni la robustesse du système.

Cependant, les systèmes cités précédemment ne couvrent que de très faibles plages spectrales. Ainsi, dans le cas de la génération de seconde harmonique [Imeshev '98, Juwiler '99], les deux ondes ne varient pas au cours de l'expérience. De même pour Nouroozi *et al.* les ondes signal et complémentaire générées par différence de fréquences ont des plages de variations très restreintes, de l'ordre de 15 GHz (0,5 cm^{-1}) [Nouroozi '10]. Dès lors, le déphasage à la réflexion

sur le miroir de renvoi varie de façon négligeable au cours de l'expérience. Dans notre cas, la difficulté est tout autre, il s'agit de rendre la phase relative constante sur de très grandes plages spectrales (> 10 THz).

4. Bilan sur le contrôle de la phase relative dans la littérature

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que la phase relative peut être contrôlée en ajustant la distance parcourue par les ondes dans un milieu dispersif.

Nous ne pouvons utiliser l'air comme milieu dispersif pour deux raisons. Premièrement, la dispersion est négligeable à nos longueurs d'onde. Deuxièmement, elle nécessite une distance cristal-miroir de renvoi variable selon les longueurs d'onde en jeu ce qui compromet la simplification du montage. Il est essentiel de pouvoir régler la phase relative indépendamment de la position de la face d'entrée du cristal et des miroirs de cavité.

L'introduction d'une lame dispersive dans le moyen infrarouge ajoute, elle, un élément intracavité. Le système perd alors en compacité et simplicité.

La solution de tailler le cristal non linéaire en biseau apparaît comme une bonne approche. La phase relative est contrôlée en ajustant la distance parcourue dans la dernière période du réseau. Cela permet d'ajuster la phase sans désaligner ni le cristal ni les miroirs.

Cependant, le cristal prismatique seul n'est pas une solution suffisante. En effet, la phase relative doit être contrôlée quelles que soient les longueurs d'onde adressées sur des plages de plus de dix térahertz (> 300 cm $^{-1}$). Nous sommes donc amenés à rechercher une solution achromatique.

B. Contrôle de la phase relative par association d'un cristal non linéaire, périodiquement retourné, prismatique et d'un miroir achromatique

L'étude bibliographique précédente a montré l'intérêt d'utiliser un cristal non linéaire périodiquement retourné et taillé en prisme pour contrôler la phase relative. Cependant, il faut encore s'assurer du maintien de cette phase relative quelle que soit la longueur d'onde émise par l'OPO.

La phase relative doit être constante sur le parcours des ondes après la sortie du cristal non linéaire jusqu'à leur retour dans le cristal, soit sur le trajet AR – MR – AR (AR : antireflet et MR miroir de renvoi, voir figure 36).

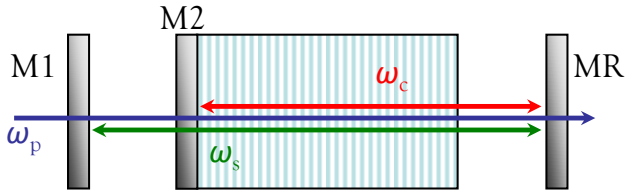


Figure 36 : Contrainte sur le contrôle de la phase relative, elle doit être indépendante de la fréquence émise par l'OPO sur le trajet AR – MR – AR (AR : antireflet et MR miroir de renvoi).

Ainsi, une simple translation du prisme permet le contrôle de la phase relative. Cela rend inutile l'ajout d'un miroir dédié au contrôle de la phase relative comme cela est le cas dans la précédente architecture (figure 30). Les miroirs servent alors uniquement au contrôle spectral de la source que ce soit pour la rendre monomode ou pour l'accorder en fréquence.

Le déplacement des miroirs pendant une mesure est limité à une dizaine de microns. La variation de chemin optique aura donc un effet négligeable sur le déphasage, la dispersion de l'air étant particulièrement faible dans l'infrarouge. Le parcours dans l'air entre le miroir MR et le cristal peut donc être considéré comme achromatique. Il s'agit donc de s'assurer que la réflexion sur le miroir de renvoie MR, sur lequel les trois ondes sont réfléchies (voir figure 36), entraîne un déphasage constant quelles que soient les longueurs d'onde mises en jeu.

Finalement, pour respecter ces contraintes il faut utiliser un miroir de renvoi (MR, figure 36) achromatique. Dans la suite de cette partie, nous étudions deux possibilités différentes en présentant leurs avantages et limites.

1. Utilisation d'un miroir diélectrique multicouche

L'utilisation d'un miroir diélectrique classique ne garantit pas le maintien de la phase relative après réflexion sur de grandes plages spectrales. Les couches diélectriques étant dispersives, la phase relative sera modifiée au cours du balayage en longueur d'onde.

Cependant, des solutions particulières ont été développées dans le domaine des lasers femtosecondes. Ces impulsions étant particulièrement courtes dans le domaine temporel, elles sont très larges spectralement. Ainsi, une impulsion de 3 fs sera au minimum large de 100 THz en la supposant limitée par transformée de Fourier. Pour que ces impulsions ultrabrèves ne s'élargissent pas au cours de la propagation, la dispersion de retard de groupe (*group delay dispersion* ou GDD) doit être quasi nulle sur l'ensemble de son spectre dans la cavité laser.

Les approches historiques basées sur des doublets de prismes ou de réseaux pour compenser la dispersion positive présente dans les matériaux constituant la cavité laser ne permettent pas de gérer des plages spectrales supérieures à une cinquantaine de térahertz (< 10 fs) [Steinmeyer '06]. Surtout, elles sont relativement encombrantes et limitent ainsi la réduction de la taille de la cavité laser. Leur encombrement les rend clairement inappropriées pour notre utilisation.

Au contraire, les solutions développées à base de miroirs multicouches pour des plages spectrales supérieures à 50 THz sont particulièrement intéressantes. Dès 1994, Szipöcs *et al.* proposaient un miroir diélectrique multicouche à pas variable (« chirpé ») présentant une dispersion de retard de groupe négative constante sur plus de 80 THz [Szipöcs '94]. Ces solutions présentent un encombrement fortement réduit et sont transposables à notre système.

Il s'agit de contrôler précisément l'épaisseur des couches diélectriques qui composent le miroir pour compenser la dispersion de retard de groupe à la réflexion suivant la longueur d'onde incidente. Les miroirs présentent une dispersion du retard de groupe qui annule celle due à la propagation dans la cavité laser sur l'ensemble du spectre de l'impulsion.

Dans notre cas, pour les applications de spectroscopie, nous avons deux fréquences qui varient au cours de la mesure (signal et complémentaire) et une fréquence fixe (pompe). Au cours du balayage, les fréquences signal et complémentaire varient en sens opposés pour

respecter la loi de conservation de l'énergie (Éq. 1). Le miroir M3 à définir doit donc déphaser les deux ondes symétriquement de sorte à conserver la phase relative au cours du balayage.

La figure 37 présente un schéma de réalisation possible. La longueur d'onde de la pompe étant supposée constante, le miroir $M3^p$ (bleu sur la figure 37) n'a donc pas besoin d'avoir une dispersion contrôlée.

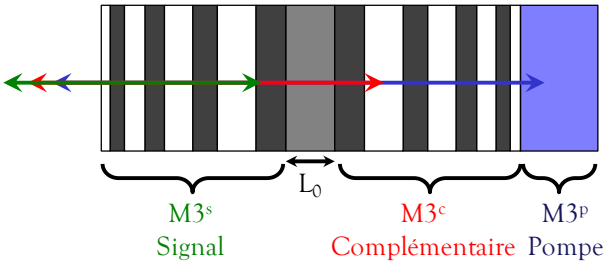


Figure 37 : Schéma d'un miroir diélectrique multicouche à maintien de phase achromatique [Lefebvre '07]. Les zones blanches et gris foncé correspondent aux zones de faible et fort indice de réfraction, respectivement. La couche grise d'épaisseur L_0 permet de contrôler la distance entre $M3^s$ et $M3^c$.

Le brevet en référence [Lefebvre '07] précise les conditions à respecter. En particulier, le miroir M3 est achromatique vis-à-vis de la phase relative, si les dispersions du retard de groupe des ondes signal et complémentaire sont strictement opposées.

En conclusion, en combinant deux miroirs « chirpés » suivant la technologie développée pour les lasers femtosecondes, il est possible de réaliser un miroir à maintien de phase achromatique compatible avec les exigences du Dropo. De plus, ce type de miroir présente l'avantage de pouvoir ajuster à la fois la phase relative (via L_0), mais aussi la réflectivité à chacune des fréquences de façon indépendante. Cependant, il reste délicat à réaliser.

2. Utilisation d'un miroir métallique

Une deuxième approche pouvant être utilisée pour le développement d'un Dropo à maintien de phase achromatique consiste à utiliser un simple miroir métallique. En effet, ce type de miroir a l'avantage de présenter un déphasage à la réflexion quasi constant sur un très large spectre comme le montre la figure 38.

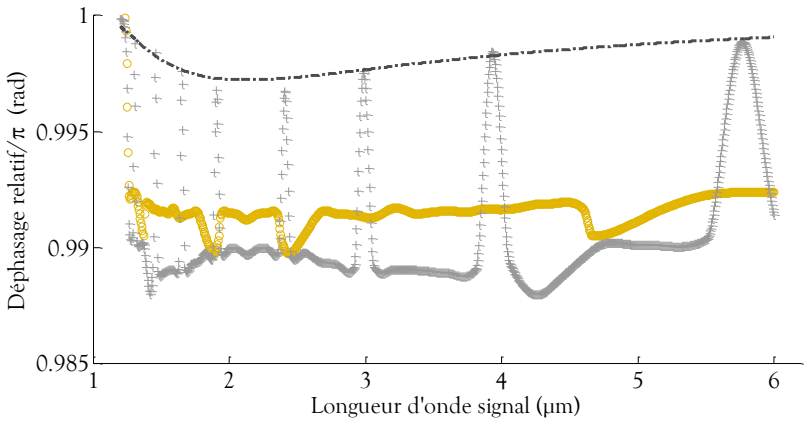


Figure 38 : Variation de la phase relative après réflexion des trois ondes en fonction de la longueur d'onde signal (pompe à 1,064 µm) sur une interface air-métal pour trois dépôts : aluminium : pointillés gris foncé (indices : [Raki '95]), or : cercles jaunes (indices : [Palik '98]), argent : croix grises (indices : [Palik '98]).

La figure ci-dessus montre que le déphasage reste constant sur une très grande plage spectrale. Les faibles variations observées ont une influence négligeable sur le fonctionnement de l'OPO. En effet, le gain maximal ne baisse que de 0,06 ‰ pour un déphasage relatif variant de 1 %. De plus, le miroir métallique garantit une grande réflectivité dans l'infrarouge.

Ainsi, le miroir métallique étant plus simple à concevoir, la solution retenue, dans un premier temps, est donc l'association d'un cristal non linéaire prismatique et d'un miroir doré. Nous pouvons noter que les dépôts dorés sont cependant très fragiles. Les seuils de dommage de ces miroirs pourraient être problématiques pour des systèmes de fort flux. Dans notre cas, le pompage est réalisé par un microlaser, les flux sont compatibles avec les seuils de dommage de ces miroirs.

3. Évolution de la phase relative dans une architecture à retour de pompe et à maintien de phase achromatique

Nous allons ici revenir plus en détail sur l'évolution de la phase relative depuis la fin du cristal non linéaire jusqu'à son retour. Nous allons notamment montrer que la solution de contrôle de phase achromatique retenue ici permet de façonner la courbe de gain paramétrique.

La figure 39 présente de façon schématisée comment évolue la phase relative des ondes à la fin du cristal. En quasi-accord de phase, les ondes se déphasent de π sur une demi-période du réseau ($\Lambda/2$).

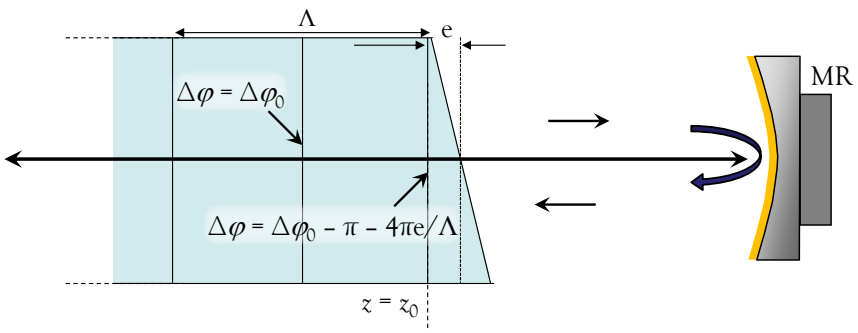


Figure 39 : Variation de la phase relative au sein d'un cristal périodiquement retourné. Au retour, la phase relative dépend de l'épaisseur parcourue dans le dernier domaine ferroélectrique. La phase relative subit une variation de phase de $-\pi$ après réflexion sur le miroir M3.

La figure 39 présente un cas général, la phase relative est égale à $\Delta\varphi_0$ au début du dernier domaine non tronqué ($z = z_0 - \Lambda/2$). Cette valeur est « naturellement » optimisée pour le transfert de l'énergie vers les ondes filles au début de la conversion (voir Chapitre 1.II.B.3.a). Les faisceaux traversent une épaisseur du dernier domaine ferroélectrique égale à « e ». Nous négligeons ici l'extension transverse des faisceaux. À la sortie du cristal, la phase relative est donc égale à $\Delta\varphi_0 - 2\pi e/\Lambda$.

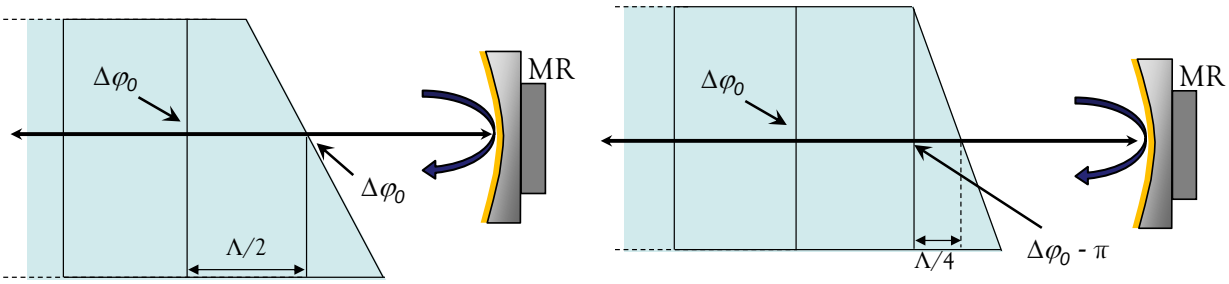
La dispersion de l'air étant négligeable, la phase relative juste avant la réflexion sur le miroir M3 est toujours de $\Delta\varphi_0 - 2\pi e/\Lambda$. Comme nous l'avons vu, nous pouvons estimer que le miroir métallique M3 induit un déphasage relatif de π (ou $-\pi$) pour chacune des ondes. Après réflexion sur M3, le déphasage relatif va donc passer à $\Delta\varphi_0 - \pi - 2\pi e/\Lambda$. Cette valeur sera conservée jusqu'au retour dans le cristal.

Comme le montre le schéma de la figure 39, les ondes retraversent alors une épaisseur « e ». La phase relative passent donc à $\Delta\varphi_0 - \pi - 4\pi e/\Lambda$ à l'entrée du dernier domaine non tronqué ($z = z_0$).

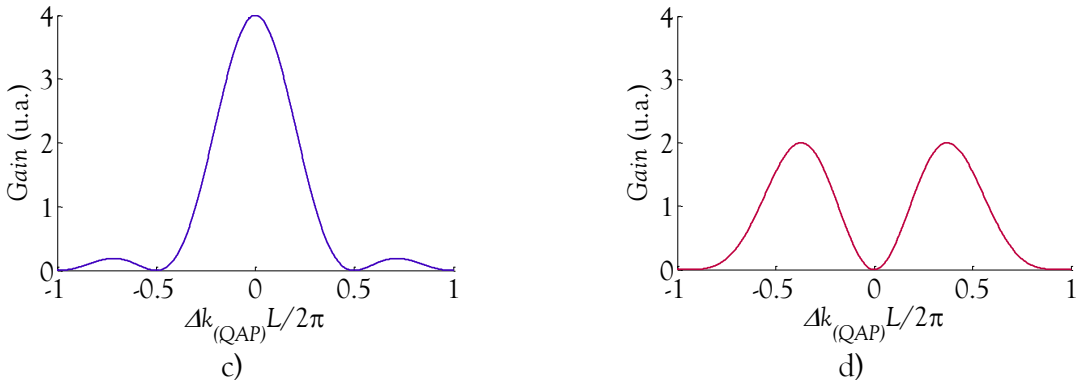
Ainsi, si nous avons e = 0, la phase relative en z_0 (entrée du dernier domaine non tronqué) est inchangée et donc optimisée au retour pour convertir la pompe vers les ondes filles (à l'accord de phase).

Au contraire, si nous avons par exemple $e = \Lambda/4$, la phase relative change de π et le transfert d'énergie se fait des ondes filles vers la pompe, pour les fréquences à l'accord de phase.

Les figures 40 a) et b) présentent ces deux cas particuliers.



a) b)



Figures 40 : Contrôle de la phase relative par ajustement de l'épaisseur du dernier domaine traversé a) et b) permettant de façonner la bande de gain c) et d) dans le cas d'un cristal de $LiNbO_3$ en quasi-accord de phase[1] (gain normalisé par rapport au simple passage).

Ainsi, lorsque l'interface cristal-air coïncide avec un changement de domaine, la phase relative est optimisée pour les ondes à l'accord de phase. La bande de gain paramétrique ne présente qu'un lobe central (figure 40 c)). Au contraire, quand la distance parcourue par les ondes dans le dernier domaine ferroélectrique est égale à un quart de période, au retour dans le cristal, les ondes à l'accord de phase vont avoir tendance à reconstruire la pompe. La bande de gain paramétrique présente deux lobes symétriques par rapport à l'accord de phase (figure 40 d)).

Finalement, lorsque nous allons dimensionner le cristal non linéaire (Chapitre 2.II.B.2.c), l'angle de la face prismatique sera choisi de sorte que l'épaisseur du dernier domaine varie de $\Lambda/4$ sur la largeur d'un réseau. Ainsi, nous devons être à même d'ajuster la phase relative au retour, dans le premier domaine non tronqué, entre 0 et π en translatant le cristal.

C. Proposition d'une nouvelle architecture de Dropo simplifiée et contrôlée en phase : le NesCOPO

Les parties précédentes ont permis de définir une méthode de contrôle achromatique de la phase par l'association d'un cristal non linéaire périodiquement retourné prismatique et d'un miroir de renvoi métallique.

Nous pouvons dès lors proposer une nouvelle architecture de cavité contenant seulement trois miroirs baptisée NesCOPO (pour *nested-cavity OPO*) comme le montre la figure 41.

[1] En quasi-accord de phase (QAP) nous avons : $\Delta k_{(QAP)}L = (k_p - k_s - k_c - k_r)L$, avec $k_r = 2\pi/\Lambda$, où Λ est la période du réseau de retournement.

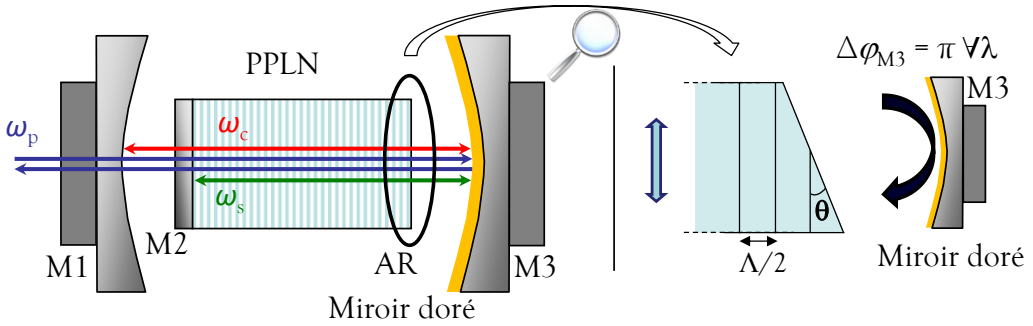


Figure 41 : Schéma de la solution retenue. L'OPO est doublement résonant à double passage de pompe, les cavités sont dissociées et la phase relative est contrôlée par l'association d'un cristal non linéaire prismatique et d'un miroir métallique.

Dans cette nouvelle configuration, le miroir M3 est le miroir de renvoi métallique. Il réfléchit donc les trois ondes. Les ondes signal et complémentaire oscillent entre les miroirs M2 – M3 et M1 – M3, respectivement. Le miroir M3 est donc commun aux deux cavités.

Une telle architecture est de toute évidence plus compacte. Les conséquences de ce choix sont multiples et nous allons les détailler.

➢ *Conséquences sur les réflexions parasites*

Comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 1.II.B.4), renvoyer la pompe à 80 % permet de considérablement limiter l'effet des réflexions parasites sur le seuil le long de la bande de gain de l'OPO. Dans la configuration à trois miroirs, non seulement M3 et M4 sont supprimés, éliminant ainsi toute réflexion parasite, mais les pertes subies par le renvoi de pompe sont aussi réduites au minimum.

Il faut aussi noter les autres réflexions parasites qui peuvent venir perturber le fonctionnement de l'OPO. Chaque cavité à l'intérieur de l'OPO (M1-M2 par exemple), constitue une cavité Fabry-Perot susceptible de moduler l'intensité d'une des ondes suivant l'amplitude de la réflexion parasite. La configuration à trois miroirs que nous proposons dans le cadre du travail de thèse, permet d'améliorer le fonctionnement intrinsèque de l'OPO en ne présentant qu'un seul miroir interne (M2 sur la figure 41) et une surface traitée antireflet.

➢ *Conséquences du passage à trois miroirs sur le pilotage fréquentiel de la source*

Malgré la présence de seulement trois miroirs, les cavités signal et complémentaire sont ajustables séparément. Comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 1.II.B.2.b), le contrôle séparé des longueurs de cavités est essentiel pour trouver des régimes de fonctionnement monomodes pour l'OPO.

Ainsi, dans notre nouvelle configuration, la cavité signal est ajustée en modifiant la position du miroir M3 (figure 41) relativement au cristal, et donc à M2. La cavité complémentaire est ajustée en modifiant les positions de M1 et M3.

Comme le miroir M3 est commun aux deux cavités, pour ajuster individuellement la cavité signal, il suffit de compenser tout déplacement de M3 par un déplacement opposé de M1. Nous verrons cela plus précisément lorsque nous détaillerons l'accord en fréquence de la source (voir Chapitre 3.II.B.1.b).

Néanmoins, nous pouvons voir ici que le pilotage fréquentiel de la source est simplifié puisqu'il nécessite d'agir sur seulement deux miroirs montés sur des cales piézoélectriques contre trois précédemment.

- *Bilan sur le NesCOPO*

Plusieurs remarques sont à noter quant au passage de cinq à trois miroirs. En premier lieu, l'architecture du Dropo passe de deux blocs dissociés à un unique bloc. La robustesse s'en trouve naturellement améliorée ainsi que la compacité.

Par ce nouvel agencement nous pouvons nous attendre aussi à une meilleure stabilité mécanique de l'OPO et donc fréquentielle de la source. Pour ce qui est du contrôle fréquentiel automatisé, nous avons brièvement vu qu'il sera plus simple, avec seulement deux miroirs à contrôler en position.

Vis-à-vis du contrôle de la phase relative la nouvelle configuration permet d'ajuster la phase relative dès l'alignement de l'OPO sans qu'elle soit modifiée au cours de l'accord en fréquence. Il doit être possible de façonner la bande de gain paramétrique par ajustement de la phase relative ce qui est particulièrement intéressant pour des applications monomodes (bande de gain affinée) voire bimodes (bande de gain à deux lobes séparés).

II. Dimensionnement du NesCOPO

Dans la partie précédente, nous avons présenté de façon théorique comment développer un Dropo très compact qui permette à la fois d'être monomode, en utilisant des cavités dissociées, et de contrôler de façon achromatique la phase relative en utilisant le couple cristal prismatique et miroir métallique.

Dans cette partie, nous allons revenir sur le développement expérimental du NesCOPO. Pour cela, nous allons, dans un premier temps, définir les objectifs à atteindre avec ce dernier. Puis, nous reviendrons sur les conséquences de ces objectifs sur le choix des composants.

A. Quels objectifs pour le NesCOPO ?

Le premier objectif de ce NesCOPO est de valider les concepts établis dans la première partie de ce chapitre. Nous devons démontrer qu'avec seulement trois miroirs, nous pouvons mettre en place un OPO doublement résonant, à double passage de pompe, monomode et à maintien de phase achromatique.

Nous voulons aussi que cette nouvelle source soit largement accordable, pour répondre aux besoins des applications de spectroscopie dont nous avons parlé en introduction. Pour cela, nous choisissons la gamme 3,8 – 4,3 µm pour la longueur d'onde complémentaire. Cela nous permet notamment d'atteindre les fortes raies d'absorption du CO_2 autour de 4,2 µm, qui sont intéressantes pour des expériences de démonstration.

Enfin, nous continuons dans la voie des Dropo compacts à très faible seuil pour avoir l'opportunité d'utiliser un microlaser comme laser de pompe.

B. Caractéristiques et dimensionnement des composants optiques de l'OPO

L'architecture à trois miroirs que nous avons détaillée dans la première partie de ce chapitre nécessite de déterminer :

- Pour les miroirs :
  - la réflectivité et les traitements associés ;
  - les rayons de courbure ;
  - le matériau.
- Pour le cristal :
  - les dimensions ;
  - le type de cristal ;
  - le type d'accord de phase ;
  - le pas du réseau ;
  - l'angle du prisme.

1. Caractéristiques des miroirs de cavités

La nouvelle architecture ne présente donc que trois miroirs et deux interfaces traitées antireflets, une sur la face arrière du cristal et une sur la face avant de M1, comme le rappelle la figure 42. Le miroir M1 (cavité complémentaire) est choisi partiellement réfléchissant (de 70 à 98 %) afin de coupler un maximum d'énergie puisque nous utilisons le complémentaire pour la spectroscopie. La cavité signal est, elle, de haute finesse (> 300). Ainsi, la cavité complémentaire moins sélective en fréquence peut absorber les fluctuations en fréquence de la pompe. Cela permet donc d'utiliser un laser de pompe dont la fréquence n'est pas verrouillée à une référence, mais dont les fluctuations restent compatibles avec les mesures spectroscopiques envisagées. Précisons que les caractérisations de l'émission du Dropo sont réalisées sur le faisceau signal ce qui permet d'utiliser les instruments développés pour le secteur des télécommunications, qui n'ont pas leurs équivalents à 4 µm.

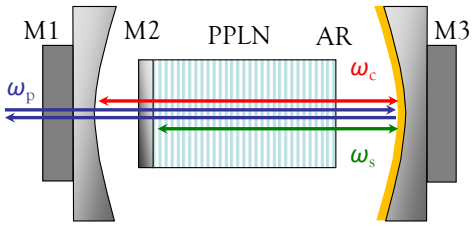


Figure 42 : Schéma du Dropo à trois miroirs à maintien de phase achromatique. La face plane de M1 est traitée antireflet aux trois ondes.

Plusieurs miroirs de couplage (M1) et dorés (M3) ont été testés durant la thèse. Le tableau 3 synthétise les caractéristiques des miroirs utilisés.

	3 miroirs M1 (face AR/face coupleur)			M2	AR	M3
	M1-a	M1-b	M1-c			
Réflectivité (%) 1,064 µm	–/1	< 0,5/2	< 2/2	< 0,1	< 0,1	99
Réflectivité (%)	–/1	< 0,7/3	< 2/2	99,5	< 0,1	99

1,39 – 1,48 µm								
Réflectivité (%) 3,8 – 4,5 µm	–/72	1/78–87	2/98–99	< 1	< 0,8	99		
Rayon de courbure (mm)	∞/20	∞/20–30	∞/50	∞	∞	20	30	50
Dimensions (ϕ×*ép.* mm²)	4×5			–	–	4×5		

Tableau 3 : Réflectivités et rayons de courbure des miroirs de cavités.

Au cours de ce travail, nous avons testé différentes réflectivités pour le miroir de couplage M1. Les rayons de courbure sont choisis de sorte à optimiser le recouvrement des faisceaux. Des rayons de courbure de 20 mm pour M1 et M3 permettent d'obtenir ce recouvrement, la pompe est refocalisée au même endroit dans le cristal avec une même taille de waist qu'à l'aller comme le montre la figure 43. Cette figure présente les caustiques des faisceaux en considérant des faisceaux gaussiens.

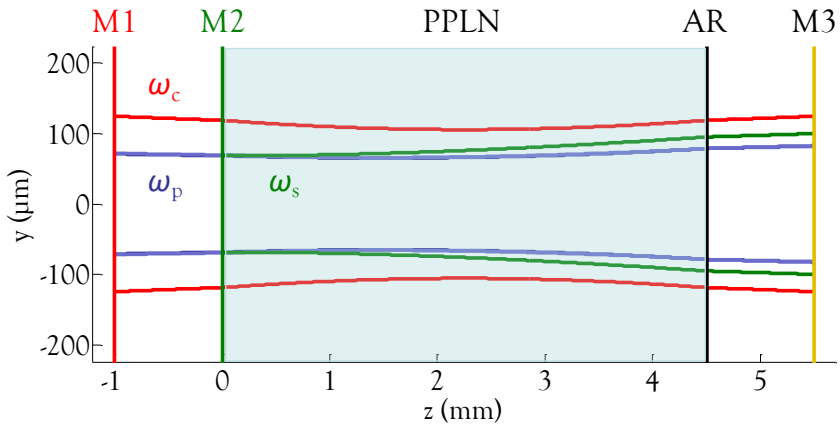


Figure 43 : Recouvrement des faisceaux dans les cavités avec des rayons de courbure de 20 mm pour les miroirs M1 et M3. Rouge : complémentaire, vert : signal, bleu (fortement masqué) et bleu pâle : pompe aller et retour.

Le faisceau signal, oscillant dans une cavité plan-concave, a un waist imposé sur la face d'entrée du cristal. Nous remarquons aussi que le faisceau complémentaire est théoriquement plus large. Cependant, un miroir d'entrée de rayon de courbure plus faible, 10 ou 15 mm par exemple, d'une part rendrait la cavité proche de l'instabilité, d'autre part, éloignerait le waist de celui de la pompe et du signal. De plus, cela diminuerait encore la zone de Rayleigh du complémentaire. Au contraire des configurations 20-20, 30-30 voire même 50-30 (en mm) pour les miroirs M1 et M3, respectivement, permettent d'obtenir un bon recouvrement des faisceaux et des divergences comparables (zones de Rayleigh de 10 à 15 mm).

De plus, la largeur des faisceaux calculée ici ne dépend que des paramètres de cavité. En réalité, ils seront quelque peu confinés par le processus de conversion [Harris '69, Brosnan '79].

2. Caractéristiques du cristal non linéaire

Le choix du cristal non linéaire est évidemment crucial. Nous allons donc tout d'abord revenir ici sur le choix du cristal, ses dimensions, mais aussi le pas du réseau de retournement et le type d'accord de phase. Enfin, nous reviendrons sur l'angle de la face prismatique qui permet le contrôle de la phase relative.

a. Le choix du cristal non linéaire périodiquement retourné

Nous avons vu précédemment que le gain était notamment fonction du carré du coefficient non linéaire effectif d_{eff} et du carré de la longueur du cristal (Éq. 18). Dans l'optique de développer des Dropo à faible seuil, nous avons choisi d'utiliser des cristaux périodiquement retournés tels que le niobate de lithium ou le tantalate de lithium, dits PPLN et PPLT, respectivement (acronymes de l'anglais *periodically poled lithium niobate* et *periodically poled lithium tantalate*).

En effet, ils possèdent un fort coefficient non linéaire de 25,2 pm/V et 13,8 pm/V, pour le niobate de lithium ($LiNbO_3$) et le tantalate de lithium ($LiTaO_3$), respectivement [Nikogosyan '05, SNLO '10], dont il est possible de tirer profit en accord de phase de type 0. Pour cela, les trois ondes pompe, signal et complémentaire sont polarisées selon l'axe extraordinaire. L'accord de phase est maintenu par la technique de quasi-accord de phase d'ordre 1 [Fejer '92]. Le coefficient non linéaire effectif est alors diminué d'un facteur ($2/\pi$) pour atteindre 16 pm/V et 8,8 pm/V. Leur transmission est donnée par la figure 44 [SNLO '10] [Myers '96].

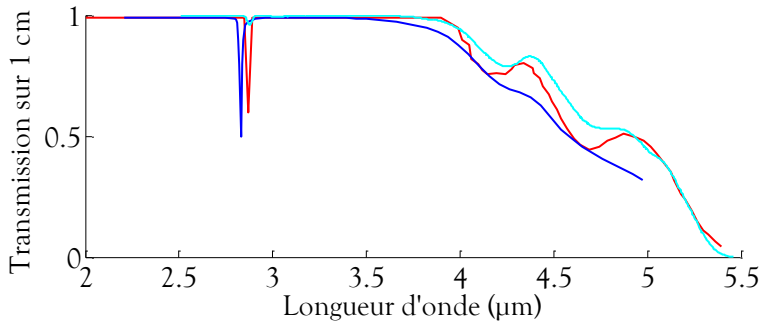


Figure 44 : Transmission du $LiNbO_3$ (bleu : ordinaire, cyan : extraordinaire) et du $LiTaO_3$ (rouge) pour un centimètre de cristal traversé, [Myers '96] et [SNLO '10].

b. Polissage en biseau du cristal non linéaire

Afin d'obtenir des cavités très courtes, mais sans trop diminuer le gain, les cristaux de PPLN mesurent 4,5 mm de long et les cristaux de PPLT mesurent 6 mm. La période du réseau pour le quasi-accord de phase est calculée par le fournisseur en fonction de l'indice de réfraction du cristal pour obtenir l'accord de phase aux longueurs d'onde désirées. En effet, pour maintenir les ondes autour de l'accord de phase, c'est à chaque longueur de cohérence que la polarité du cristal doit être inversée. Ce qui nous donne comme période de réseau $\Lambda = 2\pi c/(n_p\omega_p - n_s\omega_s - n_c\omega_c)$ [Fejer '92]. Les photographies de la figure 45 présentent deux agrandissements réalisés au microscope (×1000 et ×100) du réseau, révélé par gravure chimique en surface par le fournisseur lors du processus de contrôle.

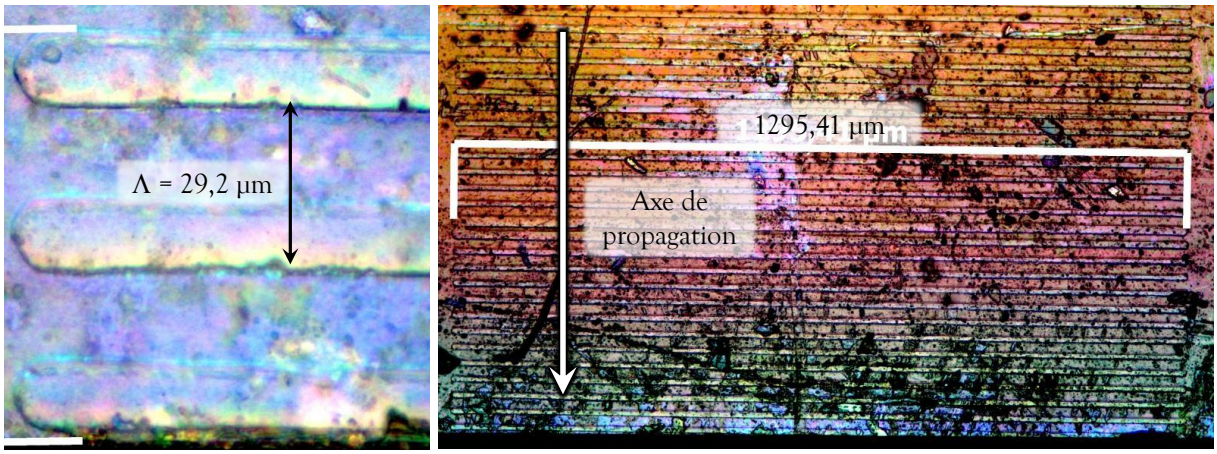


Figure 45 : Photographies au microscope d'un réseau du cristal de PPLN (grandissement : ×1000 à gauche et ×100 à droite).

La période du réseau photographié est de 29,2 µm et sa largeur est égale à 1,3 mm. La particularité de ce cristal réside surtout dans sa face arrière taillée en biseau. Comme nous l'avons vu (Chapitre 2.I.B.3), le but de cet angle est de pouvoir déphaser les ondes de 0 à π sur une largeur de réseau. Comme la période du réseau correspond à un déphasage de 2π, il faut donc une variation d'épaisseur de $\Lambda/2$ sur un aller et retour. Cela impose donc une variation de $\Lambda/4$ entre deux extrémités du réseau. Pour un réseau de 1,3 mm de large, cela correspond à un angle de 0,32°. L'angle est donc très faible et techniquement délicat à réaliser. La figure 46 montre les deux extrémités d'un réseau. Nous remarquons une variation de 0,21 Λ contre 0,25 Λ attendu soit une variation de la phase accessible de $0{,}84\pi$ au lieu de π. Nous verrons les conséquences de cette valeur par la suite (Chapitre 3.I.B).

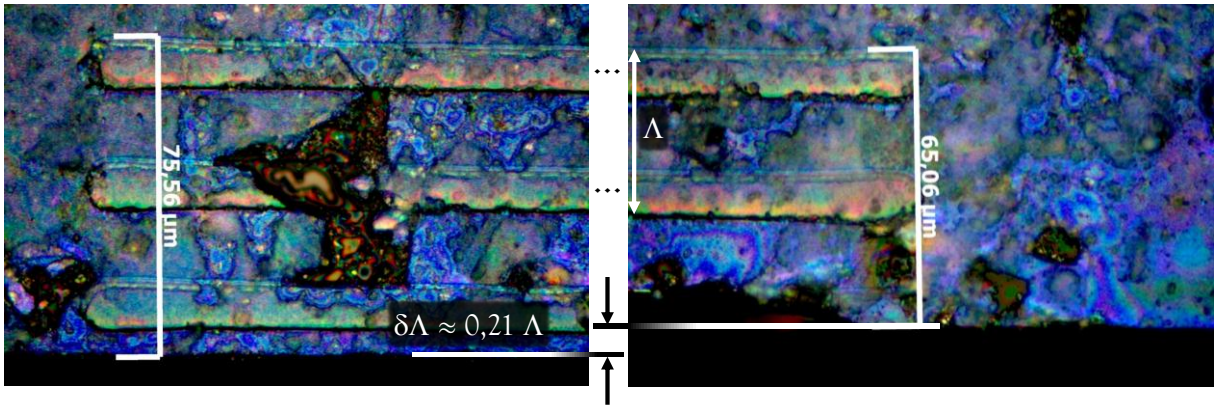


Figure 46 : Mise en évidence d'une variation d'épaisseur de 0,21 Λ entre deux extrémités du réseau (grandissement : ×1000).

c. Effets secondaires dus à la face biseautée du cristal non linéaire

Le cristal étant légèrement prismatique, il est important d'évaluer dès à présent l'effet de ce prisme sur le fonctionnement de l'OPO.

i. Effet de l'extension transverse des faisceaux sur le gain

Comme nous le verrons dans la partie suivante, le diamètre de la pompe (à deux fois le col du faisceau ou *waist*) est de 130 µm ce qui représente un dixième de la largeur d'un réseau. Dès lors sur une section de faisceau, la variation du déphasage est inférieure à $\pi/10$. Ainsi, si nous considérons un couple de modes à l'accord de phase et que le centre du faisceau a un déphasage relatif parfaitement adapté, alors le gain, sur un aller et retour, baisse en théorie de seulement 5 % sur les bords (à 65 µm du centre du faisceau, voir Éq. 18). Le prisme n'a donc pas *a priori* d'influence notable sur l'efficacité de la conversion paramétrique.

ii. Effet de la dispersion angulaire sur le prisme

Le prisme dévie chacun des faisceaux d'un angle donné en fonction de l'indice de réfraction à la longueur d'onde considérée. Pour que les deux faisceaux signal et complémentaire oscillent de façon stable dans leur cavité, l'accord de phase ne peut donc pas être strictement colinéaire.

Cependant, les angles et décalages en jeu sont très faibles. Nous avons vu que le prisme avait un angle de 16,2 minutes d'arc et l'indice de réfraction du $LiNbO_3$ ne varie que de 2,16 à 2,05 entre 1,064 µm et 4,25 µm. Ainsi, si nous prenons comme faisceau de référence le faisceau signal qui oscille entre les miroirs M2 et M3 (figure 42), sur un aller et retour, le faisceau pompe est décalé de seulement 141 nm sur M2. L'angle formé entre les faisceaux pompe et signal au retour dans le cristal est de 13,5 secondes d'arc. Le complémentaire peut lui être ajusté par le miroir M1 qui lui est spécifique.

Cette architecture particulière ne perturbe donc pas sensiblement l'oscillation. Ces hypothèses seront confirmées par la très bonne qualité spatiale des faisceaux et les faibles seuils d'oscillation observés que nous présentons dans la troisième partie de ce chapitre.

3. Considérations sur les contraintes mécaniques d'une oscillation monomode.

Nous examinons ici les conséquences sur la mise en place expérimentale du Dropo des contraintes liées à la recherche d'une oscillation monomode avec le montage optique que nous venons de présenter.

L'exemple numérique présenté au premier chapitre (Chapitre 1.II.B.2.b), permettait de calculer les conditions d'oscillation monomode dans une bande de gain de 300 GHz avec un *ISL* de la cavité signal de 12,5 GHz (L_S = 12 mm). Il s'agit d'un cas typique des conditions expérimentales rencontrées, avec la cavité présentée ici. Le cristal de PPLN mesurant 4,5 mm soit 9,65 mm optiques à 1,45 µm, une cavité de 12 mm de longueur optique correspond donc au cas où M3 est distant d'environ 2,5 mm de la face de sortie du cristal (figure 47).

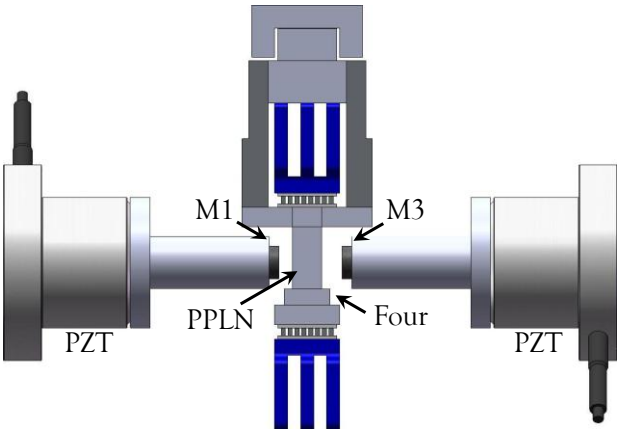


Figure 47 : Schéma en coupe du Dropo (réalisé sous Solidworks®).

En pratique, le miroir doré M3 doit être placé le plus près possible de la sortie du cristal. Cela diminue le seuil d'oscillation, et augmente les intervalles spectraux libres. La dissociation des cavités se contrôle donc presque exclusivement avec la position du coupleur M1 relativement à la face d'entrée du cristal. La figure 48 présente les valeurs de $\Delta L/L$ (dissociation des cavités) en fonction des distances des miroirs M1 et M3 relativement au cristal. L'espace en entrée correspond à la distance entre M1 et M2 (miroir déposé sur la face d'entrée du cristal figure 42).

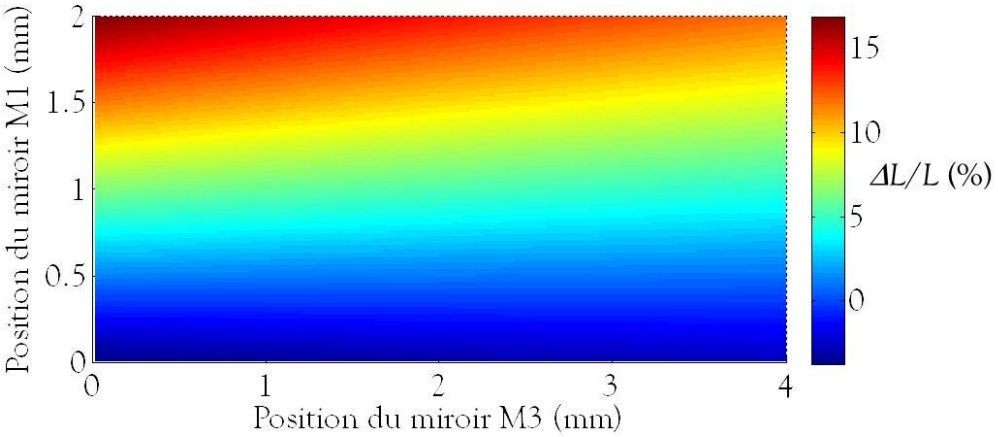


Figure 48 : Variation de la dissociation des cavités ($\Delta L/L$ en %) en fonction de la position des miroirs M1 et M3 vis-à-vis du cristal.

La figure précédente montre la faible influence de la position du miroir M3 sur la valeur de la dissociation ($\Delta L/L$). En effet, ce dernier agit sur les deux longueurs de cavité. La dispersion de l'air étant négligeable, l'éloignement de M3 ne fait que minimiser les effets de la dispersion dans le cristal et de l'espace en entrée. Quand le miroir M3 s'éloigne du cristal, $\Delta L/L$ tend lentement vers 0.

Par contre, l'espace en entrée, relié à la position de M1, est lui très influent. Une variation d'un millimètre peut faire varier la valeur de la dissociation de 10 %.

Ainsi, la condition $2 < \Delta L/L < 4{,}1$ % calculée au chapitre 1, qui permet d'être monomode dans toute la bande de gain, implique que le miroir d'entrée doit se trouver à une distance de la face d'entrée du cristal comprise entre 580 et 800 µm. La marge est donc relativement courte. Pour positionner les miroirs, nous disposons de petites cales cylindriques calibrées à placer entre les transducteurs piézoélectriques et leur support. Elles mesurent entre

100 µm et 1 mm. L'ajustement des longueurs est, de plus, compliqué par le fait que le miroir d'entrée est concave. Pour un rayon de 20 mm et un diamètre de 5 mm, ce sont déjà 160 µm qui sont mécaniquement occupés du fait de la courbure du miroir.

En pratique, il faut idéalement que le four soit très légèrement plus court que le cristal de sorte que ce dernier puisse dépasser d'une centaine de micromètres de part et d'autre. Dans notre cas, le four a été dimensionné de manière préliminaire, il est légèrement plus grand. Nous devons donc placer le cristal en avant du four pour pouvoir minimiser la distance M1–M2 au détriment de la minimisation de l'espace en sortie.

C. Le pompage par microlaser

Avant de valider expérimentalement la nouvelle architecture, nous allons revenir sur une partie essentielle de la source : le laser de pompe. En effet, pour que l'ensemble de la source garde des dimensions réduites il est essentiel d'utiliser un laser faiblement encombrant.

Ainsi, dans un premier temps, nous allons présenter les utilisations antérieures de lasers de type microchip pour le pompage d'OPO. Nous verrons qu'aucune des sources optiques ainsi réalisées ne permet de répondre à notre cahier des charges.

Enfin, dans une deuxième partie nous détaillerons les caractéristiques du microlaser utilisé pour les expériences présentées dans ce manuscrit.

1. Retour historique

Dès la fin des années 1990, plusieurs équipes ont expérimenté le pompage d'OPO avec un laser de type microchip. L'objectif était de concevoir des sources optiques largement accordables de dimensions très réduites et à faible coût. En effet, à l'heure actuelle encore, l'oscillateur paramétrique optique reste surtout un instrument de laboratoire relativement coûteux.

En 1997, Zayhowski *et al.* pompent un OPO doublement résonant à base de KTP avec un laser microchip [Zayhowski '97]. Si, à la dégénérescence, l'OPO reste plusieurs dizaines de minutes sur un même mode longitudinal, le contenu spectral n'est plus maîtrisé lorsque signal et complémentaire sont séparés de quelque 500 GHz. Les sauts observés sur une demi-dizaine de modes adjacents ne permettent pas d'obtenir une accordabilité fréquentielle fine de la source.

Dans la même décennie, Conroy *et al.* publient des travaux sur des Sropo intracavités à base de KTP [Conroy '98] puis de PPLN [Conroy '99] pompés par microlaser. L'utilisation du PPLN intracavité leur a permis d'atteindre des seuils très bas, de seulement 550 mW pour la diode pompant le cristal de Nd:YAG. Cependant, bien que l'OPO soit monomode tir à tir, des sauts de modes apparaissent sur des durées de l'ordre de la minute. Dès lors, un balayage continu monomode n'est pas réalisable.

De plus, le très faible encombrement de ces OPO se ressent sur le contrôle du contenu spectral et sur leur accordabilité. En effet, ces derniers possèdent peu de parties ajustables susceptibles de réaliser un accord fréquentiel précis. Ils sont donc « limités » à des balayages larges, mais grossiers en faisant varier la température ou l'angle du cristal non linéaire voire en changeant le pas du réseau de retournement.

L'architecture à cinq miroirs développée durant la thèse d'A. Berrou que nous avons déjà présentée (Chapitre 1.II.B.4), a été pompée par un microlaser de la marque Lumanova. Cependant, la faible puissance optique de ce dernier n'a pas permis de se passer définitivement du précédent laser de pompe (Méphisto-Q, [Innolight '11]). En effet, compte tenu du fait que le microlaser ne délivrait que 4 µJ par impulsion, cela ne lui permettait de pomper l'OPO qu'au mieux à 1,6 fois le seuil d'oscillation [Berrou '08], sur les réseaux les plus favorables.

Un nouveau microlaser, fourni par Teem Photonics, a donc été approvisionné pour pomper la nouvelle architecture. Nous présentons dans le paragraphe suivant ce microlaser qui, associé à notre nouvelle architecture, a permis le développement d'une source à la fois très compacte et extrêmement polyvalente en terme de balayage fréquentiel.

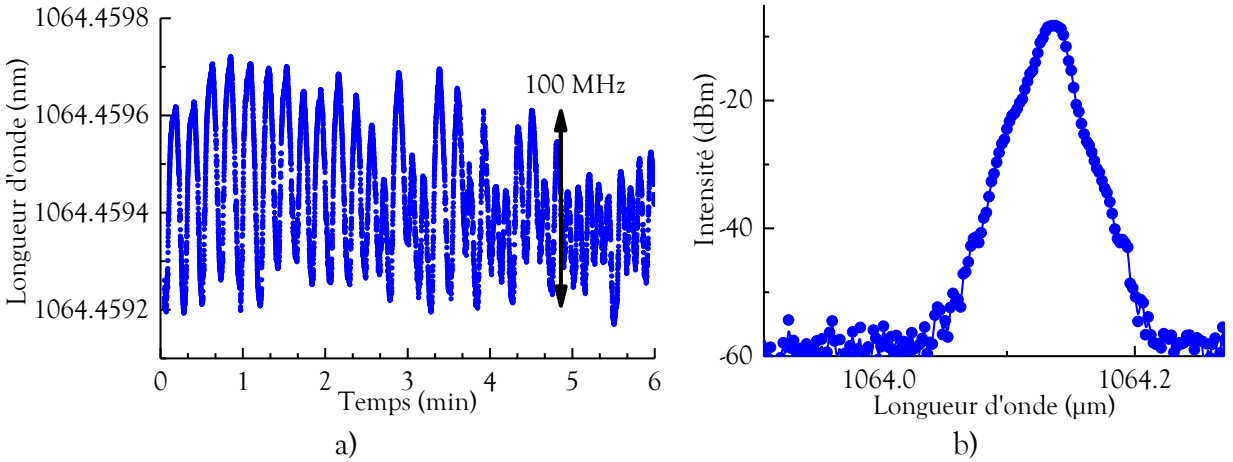
2. Le microlaser de pompe Teem Photonics

Ce laser très compact (voir figure 51) est basé sur un cristal de Nd:YAG pompé par diode. Le déclenchement se fait passivement par un absorbant saturable. Ses caractéristiques sont résumées dans le tableau 4.

Durée d'impulsion	9,5 ns
Énergie par impulsion	21,3 µJ
Puissance moyenne	96 mW
Taux de répétition	4,5 kHz
Qualité spatiale / M^2	TEM_{00} / 1,3
Stabilité fréquentielle	± 50 MHz
Longueur d'onde	1064,46 nm
Puissance crête	2,2 kW
SMSR	> 40 dB

Tableau 4 : Caractéristiques du laser Teem Photonics GR 0801193.

Malgré son faible encombrement, ce laser délivre plus de 20 µJ par impulsion à un taux de répétition de 4,5 kHz. Ce qui le situe à plus de quatre fois le seuil obtenu avec le Dropo d'ancienne génération [Berrou '08]. Le faisceau possède une très bonne qualité spatiale, il est monomode transverse et a un M^2 de 1,3. Les figures 49 a) et b) présentent sa stabilité en longueur d'onde et son spectre, respectivement.



Figures 49 : Fluctuations de la longueur d'onde du laser dues à la thermalisation du cristal a) et spectre du laser (spectromètre Ando AQ 6317b de résolution < 0,01 nm) b).

Sur la figure 49 a) nous observons des fluctuations d'environ 100 MHz d'amplitude. Elles correspondent à l'asservissement en température du cristal de Nd:YAG. Comme l'avons déjà signalé, ces fluctuations seront transmises à la cavité ayant la plus faible finesse, à savoir la cavité complémentaire.

Au cours du temps, nous avons pu observer une diminution de la puissance moyenne émise par le laser (figure 50). Cette diminution est en grande partie due à une chute du taux de répétition.

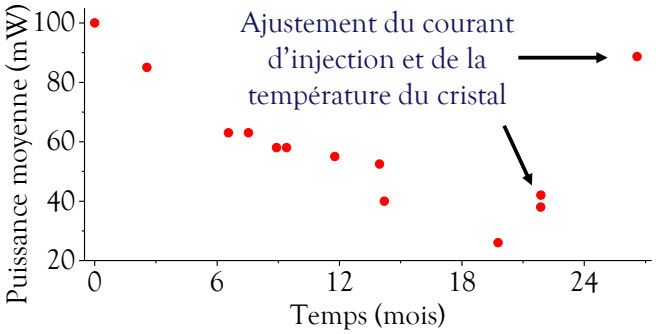


Figure 50 : Variation au cours du temps de la puissance moyenne émise par le laser. L'origine du temps correspond au 10 mars 2009, date de livraison du laser.

Il faut savoir que ce laser est un laser commercial dont le point de fonctionnement a été choisi pour répondre à nos besoins. Habituellement, Teem Photonics vend un laser multimode longitudinal qui n'est pas compatible avec nos contraintes. Ils ont pu le rendre monomode en baissant le courant d'injection de la diode de pompage et en jouant sur la température du cristal de Nd:YAG pour garantir un fonctionnement monomode. Ainsi, le laser n'est monomode que proche de son seuil d'oscillation.

Néanmoins, un retour de la pompe, dû à une isolation insuffisante, a dégradé les performances de la diode de pompage. En effet, nous avons pu remarquer des fluctuations d'intensité dans le fonctionnement du laser (voir figure 50). Il perdait régulièrement en puissance moyenne et est même devenu multimode. Nous avons dû ajuster le courant d'injection et la température de son cristal, pour revenir à des performances exploitables.

Le laser reste cependant très sensible au retour du faisceau pompe dans sa cavité. Or, le Dropo fonctionne en double passage avec un miroir doré (figure 42) pour renvoyer la pompe. Quand la cavité est alignée, toute l'énergie de pompe non convertie est renvoyée vers le laser. Nous avons pu observer les effets de ce renvoi notamment par l'augmentation sensible de la gigue (*jitter*) temporelle. Ainsi, lorsque le renvoi est coupé, le laser présente un jitter faible de l'ordre de la microseconde. Quand le miroir doré est aligné en autocollimation, le jitter peut atteindre les 20 µs malgré la présence d'un isolateur de Faraday. Cela représente une fluctuation de son taux de répétition de près de 10 %. De plus, lorsque le retour est trop important la stabilité énergétique d'une impulsion à l'autre n'est plus garantie. Nous avons donc dû mettre un deuxième isolateur sur le chemin optique de la pompe pour contenir le jitter à moins de 5 µs et maintenir une bonne stabilité énergétique. Cela se fait aux dépens de l'énergie disponible en entrée du Dropo. Avec les deux isolateurs alignés pour minimiser le jitter et augmenter la puissance transmise, nous perdons 40 à 50 % de l'énergie de pompe.

Malgré cela, nous gardons près de 10 µJ de disponibles en entrée d'OPO, ce qui est suffisant lorsque ce dernier est correctement aligné. Nous allons voir dans la prochaine partie la mise en place expérimentale de notre nouvel OPO avec ce microlaser. Puis nous présenterons les différentes performances obtenues avec notre architecture.

III. Caractérisations du NesCOPO

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons évalué la faisabilité d'un Dropo à double passage de pompe avec une architecture à trois miroirs. Dans une deuxième partie, nous avons dimensionné les principaux composants de la source.

Nous allons présenter ici les différentes expériences de caractérisation. Nous revenons dans un premier temps sur l'alignement de la source sur une table de faibles dimensions. Puis, nous détaillons l'aspect spectral de l'OPO, notamment sa pureté et son accordabilité. Enfin, nous revenons sur les aspects spatio-temporel et énergétique de la nouvelle source.

A. Dispositif expérimental et procédure d'alignement

1. Dispositif expérimental

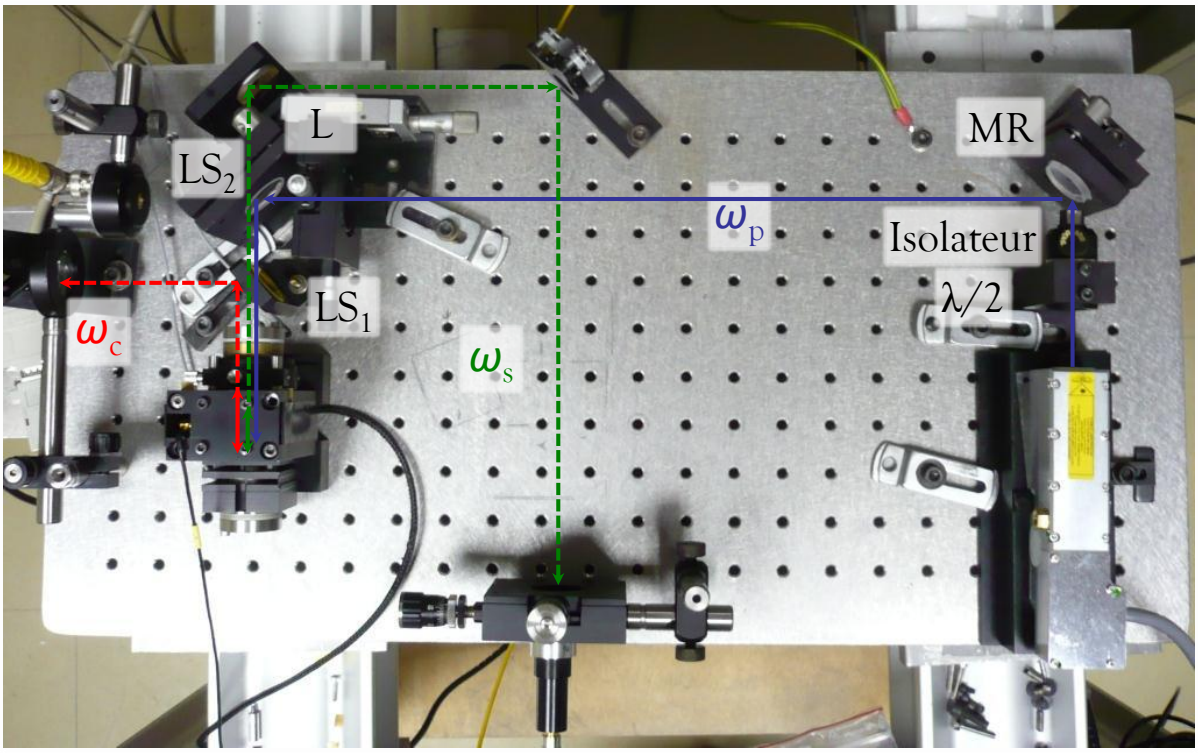


Figure 51 : Photographie du montage. Le Dropo est pompé par un microlaser de marque Teem Photonics.

Comme nous pouvons le voir sur la figure 51 le système est composé, outre du laser de pompe et de l'OPO, de deux miroirs (MR et LS_2) pour ajuster la direction de la pompe, d'une lentille de focalisation de la pompe (L), de deux lames séparatrices (LS_1 et LS_2) permettant de filtrer les différentes longueurs d'onde et enfin d'une lame λ/2 et d'un (ou deux) isolateur(s). Comme le miroir de fond de cavité (M3, figure 42) est un miroir métallique, les trois ondes sortent par l'entrée du Dropo. LS_1 sépare le complémentaire des deux autres faisceaux et LS_2 sépare le signal de la pompe (en plus de servir de miroir de renvoi).

Ce montage permet de focaliser la pompe légèrement en avant du cristal non linéaire pour optimiser le recouvrement des faisceaux et avec une bonne taille de waist (typiquement 50 à 75 µm) et une polarisation verticale.

À la sortie de la tête laser, le faisceau à un diamètre (à deux fois le col) de 247 µm. Nous avons choisi une lentille L de focale f = 100 mm qui, placée à 480 mm de la sortie de la tête laser, nous permet de focaliser à 126 mm de la lentille pour un waist de 65 µm. La lentille L est montée sur une platine de translation permettant d'ajuster finement sa position en z, ainsi que dans une monture de translations (XY) pour s'assurer que le faisceau passe bien au centre de la lentille. Les miroirs MR et LS_2 sont eux dans des montures de rotation (θφ) pour pouvoir ajuster précisément la direction et la hauteur du faisceau pompe.

La lame λ/2 permet d'orienter la polarisation (rectiligne) du laser afin qu'elle soit verticale. L'isolateur permet de prévenir les retours comme nous venons tout juste de le voir.

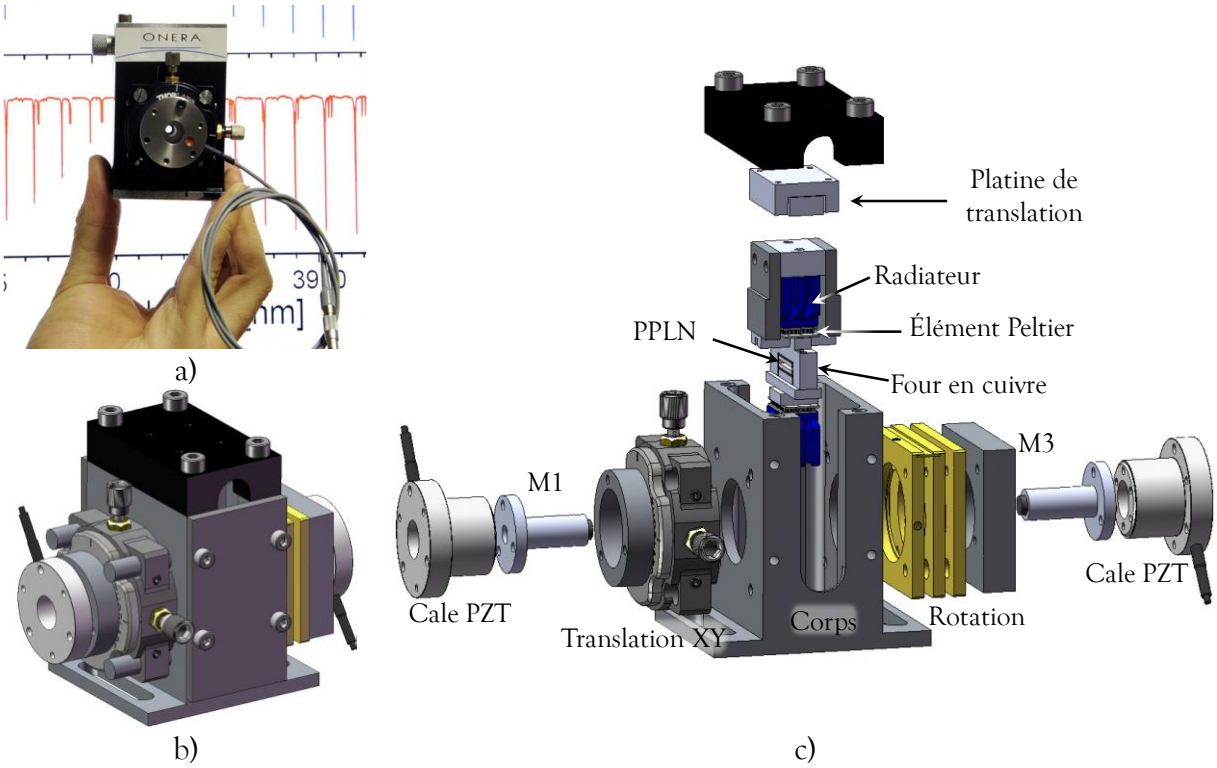
Le traitement diélectrique déposé sur LS_1 est hautement réfléchissant à la longueur d'onde complémentaire et antireflet pour la pompe et le signal pour une inclinaison de 45°. Elle est donc alignée en maximisant la transmission de la pompe.

Une fois la lame demi-onde orientée, l'isolateur, MR, LS_1, LS_2 et L mis en place, il reste à aligner le Dropo. Pour cela une procédure d'alignement spécifique a dû être définie au cours de la thèse.

2. Procédure d'alignement du NesCOPO

Cette procédure d'alignement s'est affinée avec les différentes expériences menées au cours de la thèse. Elle permet un ajustement optimal, menant à un seuil d'oscillation faible et reproductible. Nous allons la décrire ici.

Pour aligner le Dropo c'est-à-dire l'ensemble représenté aux figures 52 a) b) et c), il est nécessaire d'ajuster précisément la position de la mécanique constituant le corps de l'OPO puis les optiques en autocollimation sur le faisceau de pompe à l'aide d'une visionneuse infrarouge.



Figures 52 : Photographie du Dropo a) ; schéma réalisé avec le logiciel Solidworks® b) et vue éclatée de la mécanique c).

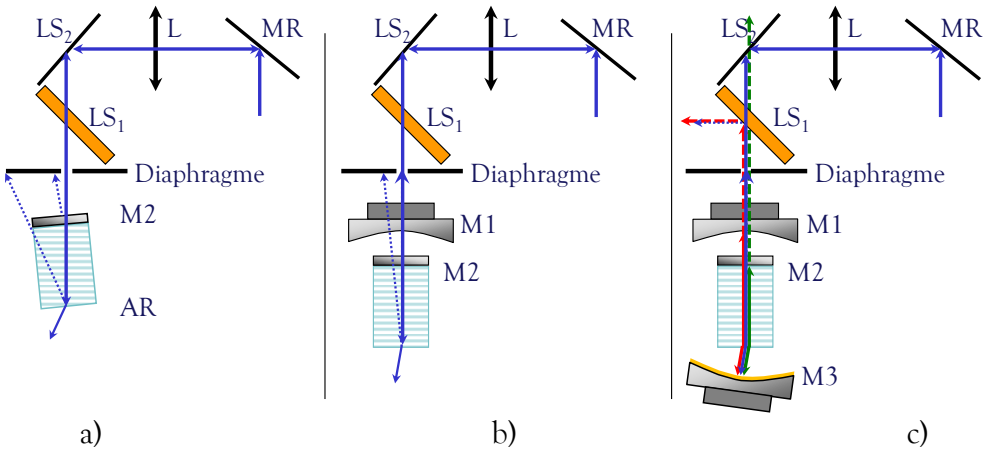
La procédure est ainsi constituée des étapes suivantes :

La première étape consiste à aligner la mécanique constituant le corps du Dropo. L'axe de ce corps doit être confondu avec la direction du faisceau pompe. Il faut aussi disposer le corps de telle sorte que le waist soit placé de manière optimale en gardant à l'esprit que le waist doit être légèrement en avant dans le cristal. De plus, la présence du miroir convexe (M1) va reculer le waist d'environ deux millimètres. Ce réglage de la position du corps est réalisé à l'aide d'une caméra.

Une fois que la mécanique du corps est alignée, le cristal dans son four est inséré dans le corps (voir figure 52 c)).

Un premier alignement du cristal est effectué. Pour cela nous plaçons un diaphragme sur le chemin de la pompe. Sur le diaphragme nous observons deux réflexions résiduelles provenant du cristal. La première provient du miroir M2. À côté, nous observons la réflexion résiduelle sur l'antireflet (comme nous pouvons le voir sur la figure 53 a)) où les angles ont été volontairement exagérés. Il est possible d'observer d'autres taches provenant de réflexions successives sur M2 et l'antireflet.

Il y a deux façons de discriminer ces réflexions l'une de l'autre. Nous pouvons déterminer l'orientation du prisme, en regardant la déflexion de la pompe après le cristal par exemple. Mais aussi, sur la tache due à l'antireflet, nous observons du vert dû au doublage parasite de la pompe dans le cristal, ce qui n'est pas le cas pour la réflexion sur M2.



Figures 53 : Étapes d'alignement du Dropo : a) préalignement du cristal (M2) ; b) alignement de M1 et M2 ; c) alignement de M3. Les angles sont volontairement exagérés.

Une fois que le cristal est préaligné, le miroir M1 est mis en place (figure 53 b)). Ce dernier étant plan-convexe, il va présenter une réflexion divergente due à la face convexe et une relativement concentrée due à la face plane. La réflexion sur la face plane n'est pas perturbée par le déplacement transverse du miroir. Au contraire, la réflexion divergente se décale avec la position transverse et sert à placer la face réfléchissante en autocollimation. Avant cela, remarquons que présentant une face plane qui ne sera, sauf hasard, pas parfaitement orthogonale au faisceau de pompe, ce miroir va dévier ce dernier. Nous devons donc réaligner le cristal.

Une fois le cristal réaligné, nous ajustons le miroir doré (M3, figure 53 c)). Il réfléchit toute la pompe, sa réflexion est très intense. Comme les autres miroirs, il suffit de le placer en autocollimation.

Une fois ces étapes réalisées, nous appliquons une tension de modulation sur les transducteurs piézoélectriques des miroirs M1 et M3, typiquement avec dix volts d'amplitude (déplacement de 600 nm) à une fréquence comprise entre 20 et 100 Hz. Cela permet de balayer rapidement toutes les coïncidences de modes. Nous devons alors observer un faisceau rouge. Ce faisceau rouge provient de la somme de fréquence entre la pompe et le signal, sa présence est la signature de l'oscillation du Dropo.

Dans le cas où du rouge n'apparaît pas, il faut balayer le cristal transversalement pour s'assurer d'avoir une phase relative optimale et de choisir un réseau où les pertes par absorption

du complémentaire sont les plus faibles. En effet, dès 4 µm, le seuil augmente sensiblement du fait de l'absorption du $LiNbO_3$ au-delà de cette longueur d'onde.

Une fois l'oscillation obtenue il reste à jouer sur les miroirs M1 et M3 pour ajuster précisément la cavité. Il est aussi important de régler finement la position longitudinale du col du faisceau de pompe en jouant sur la platine de translation de la lentille L. Les miroirs de renvoi LS_2 et MR permettent d'affiner la position et la direction.

Une fois que l'OPO oscille, nous devons nous assurer que les longueurs de cavités permettent bien une oscillation monomode. Nous étudierons cela en détail dans le chapitre 3 qui traite spécifiquement des aspects spectraux du NesCOPO.

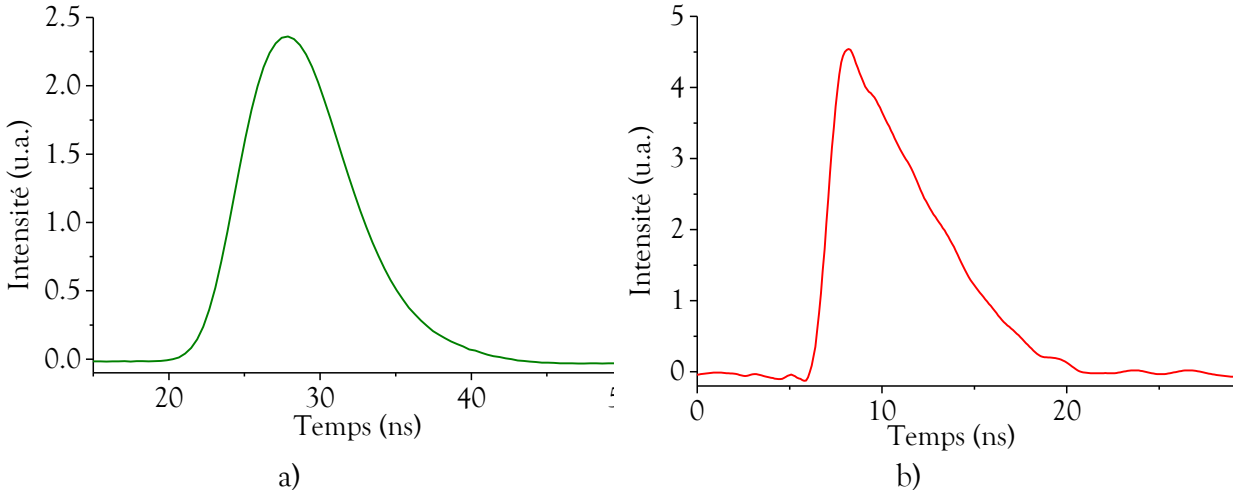
B. Comportement spatial, temporel et énergétique de l'OPO

Après avoir détaillé le montage expérimental et l'alignement du NesCOPO, nous présentons ici ses performances en termes de profil temporel d'impulsion, de profil spatial et d'énergie émise.

1. Profils spatiaux temporels des faisceaux signal et complémentaire

a. Profils temporels des impulsions

Les figures 54 a) et b) présentent les profils temporels des impulsions signal et complémentaire, respectivement, pour un taux de pompage de 2 à 2,5 fois le seuil d'oscillation. L'acquisition de l'impulsion signal se fait à l'aide d'une photodiode en InGaAs sensible entre 950 et 1650 nm. Son temps de montée de 5 ns, relativement lent par rapport à la durée de l'impulsion, ne nous permet pas une mesure précise de celle-ci.



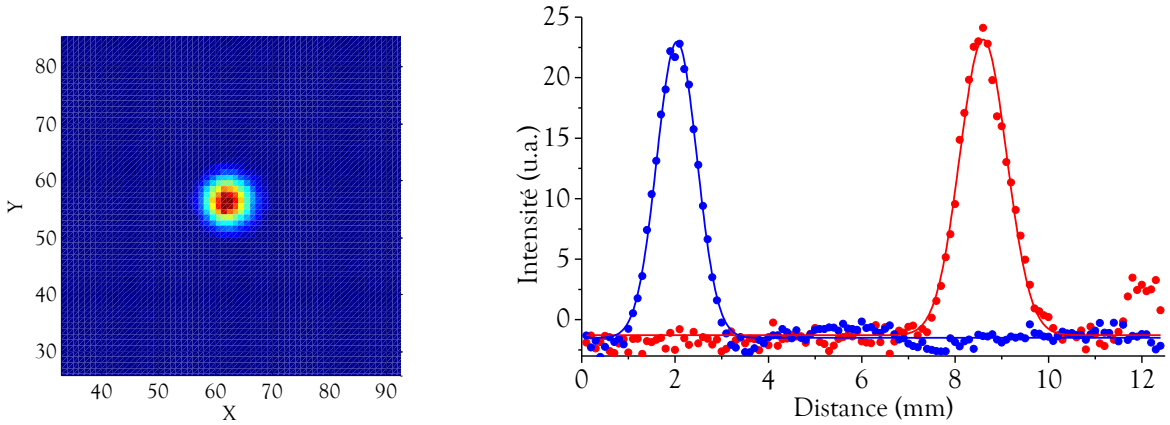
Figures 54 : Profils temporels de l'impulsion signal a) et l'impulsion complémentaire b).

Pour le complémentaire nous utilisons un détecteur infrarouge en (HgCdZn)Te, fonctionnant à température ambiante et sensible de 1 à 11 µm. Il possède un temps de montée plus court, de 1 ns, ce qui permet une meilleure résolution temporelle de l'impulsion. Nous

mesurons ainsi une largeur à mi-hauteur de 5,6 ns. La pompe ayant une largeur temporelle de 9,5 ns nous notons donc un temps de construction de près de 4 ns.

b. Profils spatiaux des faisceaux signal et complémentaire

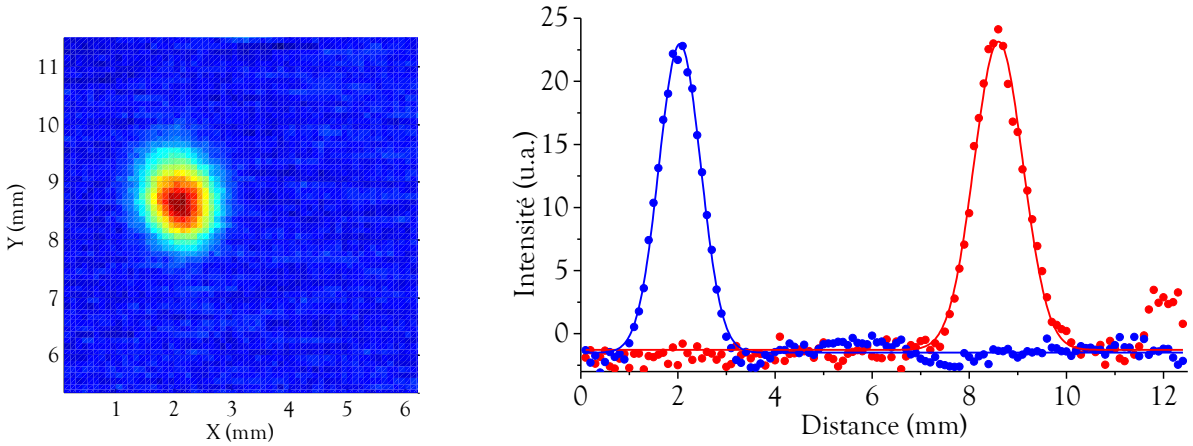
Les figures 55 a) et b) illustrent le profil spatial du faisceau signal.



a) b)

Figures 55 : Profil spatial du faisceau signal visualisé à l'aide d'une caméra adaptée au rayonnement à 1,5 µm a) et ajustement par des courbes gaussiennes des coupes horizontale (rouge) et verticale (bleue) b).

Le faisceau signal est bien TEM_{00}. En effet, nous notons un très bon ajustement des coupes horizontale et verticale par des fonctions gaussiennes (figure 55 b)).



a) b)

Figures 56 : Profil spatial du faisceau complémentaire visualisé à l'aide d'une caméra infrarouge de marque Spiricon (Pyrocam III) a) et ajustement par des courbes gaussiennes des coupes horizontale (rouge) et verticale (bleue) b).

Comme pour le signal, le complémentaire est TEM_{00} (figure 56 b)), l'ajustement par des fonctions gaussiennes est très bon (figure 56 b)).

Il est fondamental pour l'OPO d'avoir deux faisceaux monomodes transverses. Le faisceau complémentaire est particulièrement sensible à l'alignement de la cavité. Nous avons pu remarquer expérimentalement que l'alignement, du cristal notamment, est très critique.

Dans la procédure d'alignement décrite précédemment (Chapitre 2.III.A.2), il faut donc toujours bien réaligner le cristal après la mise en place du miroir d'entrée M1.

La présence de modes transverses d'ordres supérieurs a notamment deux conséquences préjudiciables. D'une part, nous avons observé expérimentalement une dégradation de la pureté spectrale. D'autre part la répartition spatiale de l'énergie du faisceau varie alors beaucoup en fonction du mode émis. Or, les mesures de spectroscopie requièrent une très bonne stabilité spatiale, comme nous le verrons au chapitre 4.

2. Puissance de sortie et seuil d'oscillation des faisceaux signal et complémentaire

Comme nous l'avons vu précédemment l'OPO ne doit pas être pompé trop de fois au-dessus du seuil (Chapitre 1.II.B.2.b.iii) pour conserver une bonne pureté spectrale. En développant des OPO à très faible seuil, nous en limitons alors forcément la puissance de sortie.

Pour les quatre premiers réseaux du cristal, nous avons mesuré l'énergie émise par le complémentaire en fonction de l'énergie de pompe (figure 57). Cette courbe a été obtenue sans effectuer l'étape de réalignement du cristal après la mise en place du miroir M1 dans la procédure définie précédemment (Chapitre 2.III.A.2).

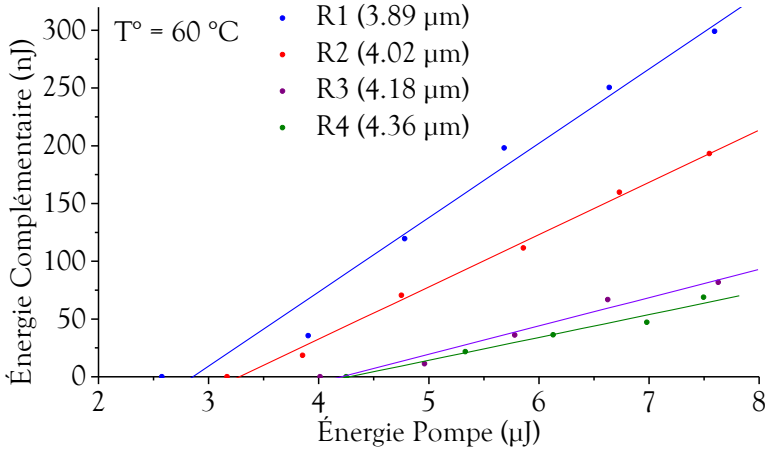


Figure 57 : Énergie des impulsions complémentaire en fonction de l'énergie de pompe pour des longueurs d'onde allant de 3,89 à 4,36 µm (R_j représente le réseau n°j).

Plus la longueur d'onde complémentaire augmente plus l'efficacité diminue du fait de l'absorption croissante dans le $LiNbO_3$ [Myers '96, SNLO '10]. Ainsi, pour des mesures à 4,2 µm pour sonder les raies de CO_2 par exemple, nous disposons de 50 à 100 nJ par impulsion ce qui correspond à une puissance moyenne de 200 à 400 µW pour un taux de répétition de 4 kHz. Cela est suffisant pour faire des mesures locales probantes (Chapitre 4.II.B).

La figure 58, présente pour les deux premiers réseaux les courbes d'énergie en fonction de l'énergie de pompe obtenues avec la procédure d'alignement finale (Chapitre 2.III.A.2). Le seuil d'oscillation a été pratiquement divisé par deux, ce qui montre bien la sensibilité des performances de l'OPO vis-à-vis de l'alignement des composants et notamment du cristal.

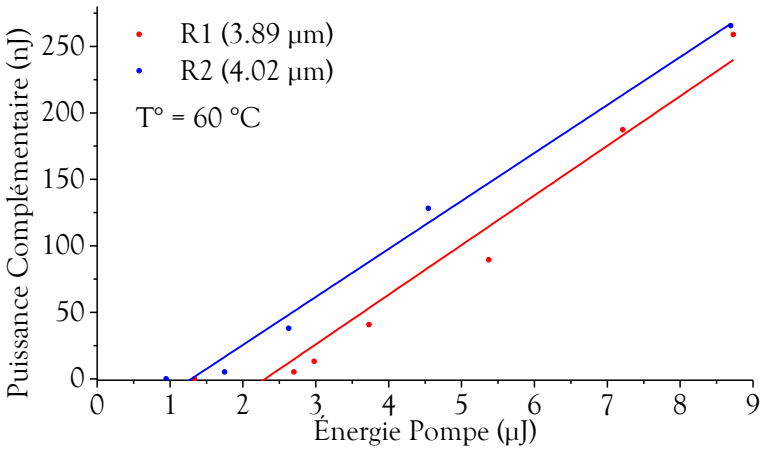


Figure 58 : Évolution de la puissance complémentaire en fonction de la puissance de la pompe pour des seuils d'oscillation faibles obtenus avec la procédure d'alignement finale pour deux réseaux, R1 et R2.

Pour le premier réseau (3,89 µm) le seuil est inférieur au microjoule. Le seuil est obtenu en mesurant la puissance de pompe minimale qui permet une oscillation « détectable ». La mesure est donc assez arbitraire. En effet, comme l'amplitude des ondes croît de façon exponentielle à partir du bruit, il n'y a pas de palier objectif pour définir un seuil d'oscillation. Dans notre cas, la mesure a été réalisée en focalisant 4 % du complémentaire sur un détecteur infrarouge (HgCdZn)Te refroidi par effet Peltier et dont la détectivité est optimisée pour la bande 3 à 5 µm [Vigo '11].

Au contraire, avec le puissance-mètre utilisé pour les figures 57 et 58, le seuil double du fait d'une détectivité moindre. En effet, le puissance-mètre permet difficilement de mesurer des puissances moyennes inférieures à 10 µW pour le complémentaire. Pour obtenir une valeur de seuil plus objective, nous pouvons le définir comme l'abscisse de l'intersection entre l'ajustement (*fit*) linéaire des courbes et l'axe des abscisses. Cela donne un seuil de 1,3 µJ à 3,89 µm et de 2,2 µJ à 4,02 µm.

Synthèse

Ce deuxième chapitre a été l'occasion de dépasser les limites du Dropo à cinq miroirs qui a été développé antérieurement à cette thèse. L'intégrabilité et le contrôle de la phase relative dépendant de la fréquence émise sont les deux principaux points limitants de cette architecture.

Pour s'affranchir de ces limitations, nous avons alors développé une nouvelle architecture doublement résonante, dite NesCOPO, utilisant seulement trois miroirs. Cette configuration très compacte est, à présent, aussi simple qu'un Sropo au niveau de sa géométrie bien qu'elle possède tout de même deux cavités dissociées qui doivent assurer une émission monomode, même en régime nanoseconde.

De plus, une nouvelle méthode de contrôle de la phase relative a été présentée. Ce contrôle achromatique de la phase relative est assuré par l'association d'un miroir métallique et d'un cristal non linéaire prismatique. Ainsi, la phase relative devient indépendante de la longueur d'onde émise. Elle n'a donc plus, a priori, *à être ajustée en temps réel lors de la mesure.*

Le dimensionnement de cette nouvelle architecture a montré la possibilité de réaliser un OPO à très bas seuil d'oscillation. Ainsi, nous avons été en mesure d'utiliser un microlaser pour la pompe.

Enfin, les différentes caractérisations spatiale, temporelle et énergétique que nous avons réalisées ont permis de montrer la capacité de cette source à répondre au cahier des charges défini en introduction.

À présent, nous allons nous intéresser à la gestion du contenu spectral de l'émission du NesCOPO.

Chapitre 3. Maîtrise du contenu spectral du NesCOPO

Objectifs

Le chapitre 2 nous a permis de détailler le développement d'une nouvelle architecture d'OPO doublement résonant. La mise en place expérimentale en configuration monomode a permis de vérifier qu'il possédait de très bonnes performances à la fois spatiales et énergétiques.

Mais surtout nous avons vu une nouvelle façon de contrôler la phase relative au retour. Cette maîtrise de la phase relative doit permettre de nouveaux modes de fonctionnement, en contrôlant la forme de la bande de gain paramétrique.

Dans ce chapitre, dans un premier temps, nous démontrons expérimentalement la capacité de notre nouvelle architecture à façonner la forme de la bande de gain paramétrique.

Dans un second temps, nous détaillons la mise en place d'une oscillation monomode dans une configuration de bande de gain affinée (monolobe). Ainsi nous pourrons détailler les performances spectrales du NesCOPO. Enfin, nous développons les nouvelles méthodes d'accord en fréquence. Ces méthodes spécifiques à l'architecture à maintien de phase achromatique permettent d'étendre considérablement les plages balayées.

Dans la dernière partie du chapitre, nous revenons sur un mode de fonctionnement encore très spécifique à notre architecture : nous étudions si une émission bimode stable est possible.

I. Maîtrise de la forme de la bande de gain paramétrique du NesCOPO

Au premier chapitre, nous avons abordé théoriquement le rôle de la phase relative dans le transfert de l'énergie entre la pompe et les ondes filles. Nous avons aussi vu les conséquences de cette phase relative sur la forme de la bande de gain paramétrique. Nous avons ensuite montré au chapitre 2 qu'il était théoriquement possible avec le NesCOPO de façonner cette bande de gain.

Dans cette partie, nous allons nous attacher à démontrer expérimentalement que notre architecture permet de façonner la bande de gain paramétrique. Dans un premier temps, nous détaillons la mise en place expérimentale avant d'analyser les résultats qui en émanent, notamment au niveau du contenu spectral émis par l'OPO.

A. Procédure expérimentale de mesure de la bande de gain

La figure 59 présente un schéma du montage expérimental réalisé pour étudier la mise en forme de la bande de gain paramétrique.

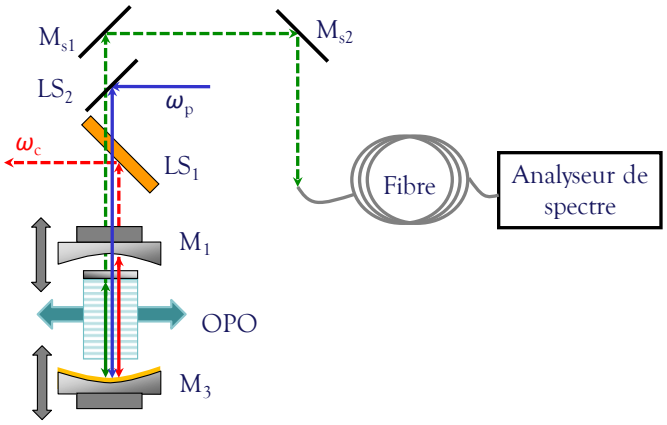


Figure 59 : Schéma du montage expérimental. Le faisceau signal est injecté dans une fibre monomode et envoyé vers un analyseur de spectre optique. Les flèches mettent en évidence les parties mobiles de l'OPO : les cales piézoélectriques (grises, déplacement longitudinal) et le cristal (bleue, déplacement transverse).

Comme nous l'avons vu sur la photographie de la figure 51, à la sortie de l'OPO, les faisceaux signal et complémentaire sont séparés successivement par les lames LS_1 et LS_2. Le faisceau signal est ensuite injecté dans une fibre monomode couplée à un analyseur de spectre optique (modèle : ANDO AQ 6317b). La plage d'utilisation de cet instrument s'étend de 600 nm à 1750 nm, avec une résolution de 0,15 nm, soit 2,1 GHz ou 0,07 cm $^{-1}$ à 1450 nm. Le balayage spectral de l'appareil est choisi suffisamment lent pour que l'OPO émette à toutes les fréquences possibles durant l'acquisition.

Pour effectuer la mesure de la bande de gain, nous balayons rapidement les cales piézoélectriques sur lesquelles sont montés les miroirs M1 et M3 pour moduler la position des peignes de fréquences signal et complémentaire. Ainsi, les différents modes bénéficiant du gain vont être émis successivement et enregistrés par l'analyseur de spectre.

Pour s'assurer de parcourir toutes les longueurs d'onde de la bande de gain avec une résolution meilleure que celle de l'analyseur de spectre, les cales piézoélectriques sont balayées

de façon asynchrone à une fréquence supérieure à 300 Hz. La fréquence doit rester inférieure au kilohertz, pour ne s'approcher ni de la fréquence de résonance des transducteurs piézoélectriques située vers 4 kHz ni du taux de répétition du laser.

Dans le même temps, nous imposons un temps d'intégration de 30 à 50 ms à l'analyseur de spectre. Ainsi, à chaque fréquence mesurée, tous les modes ont été décrits une dizaine de fois.

Cela nous permet d'étudier la forme de la bande de gain paramétrique pour une valeur donnée de la phase relative. Pour la modifier, il suffit de déplacer transversalement le cristal. Ainsi, nous modifions la distance parcourue dans le dernier domaine ferroélectrique et donc le déphasage relatif des ondes (Chapitre 2.I.A.3 et Chapitre 2.II.B.2.b).

Cette mesure de la bande de gain est possible uniquement grâce au contrôle achromatique de la phase relative qui permet de la conserver durant le balayage fréquentiel.

B. Mise en forme expérimentale de la bande de gain paramétrique

Divers cristaux sont disponibles au laboratoire et nous présentons ici en particulier les résultats obtenus avec un cristal de PPLT puis avec un cristal de PPLN. Cela nous permet d'illustrer l'effet de la modification de la phase relative sur la forme de la bande de gain paramétrique.

1. Bande de gain typique observée sur un premier réseau (cristal de PPLT)

Le premier réseau étudié a été celui d'un cristal de tantalate de lithium périodiquement retourné (PPLT).

Si nous mesurons la bande de gain pour deux positions transverses données d'un réseau du cristal selon la procédure définie au paragraphe précédent, nous obtenons la figure 60 ci-dessous.

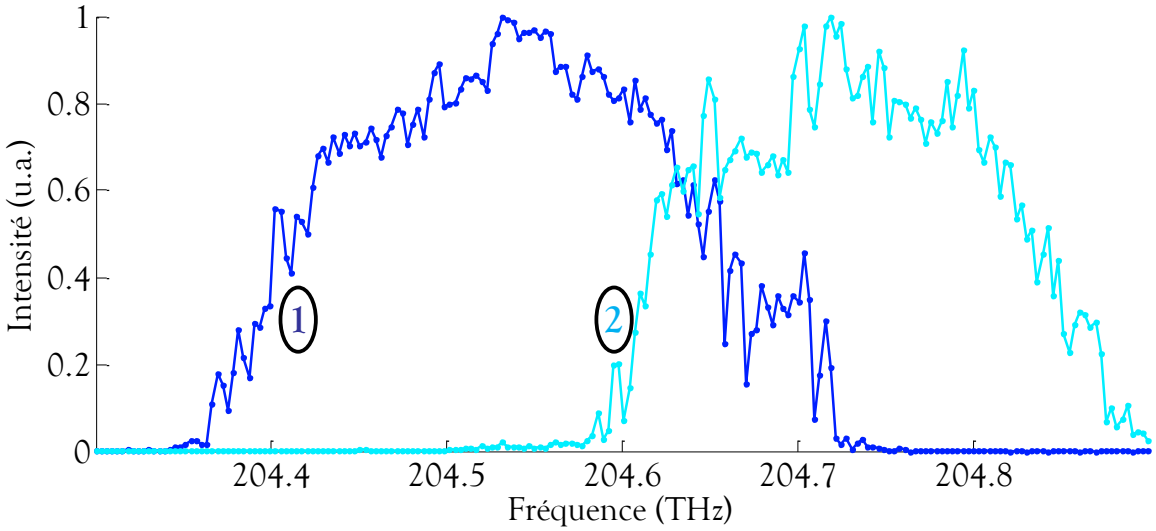


Figure 60 : Mesure de la bande de gain paramétrique pour deux positions transverses différentes du cristal. L'intensité est normalisée indépendamment pour chacune des courbes.

Les positions du cristal sont telles que le faisceau passe par l'une puis par l'autre extrémité du cristal. Sur ces courbes nous n'observons pas de dédoublement de la bande de gain paramétrique. Cependant, nous remarquons un décalage fréquentiel de cette dernière avec la position du cristal. La figure 61 illustre plus finement le décalage expérimental de la bande de gain en fonction de la position du cristal dans la cavité.

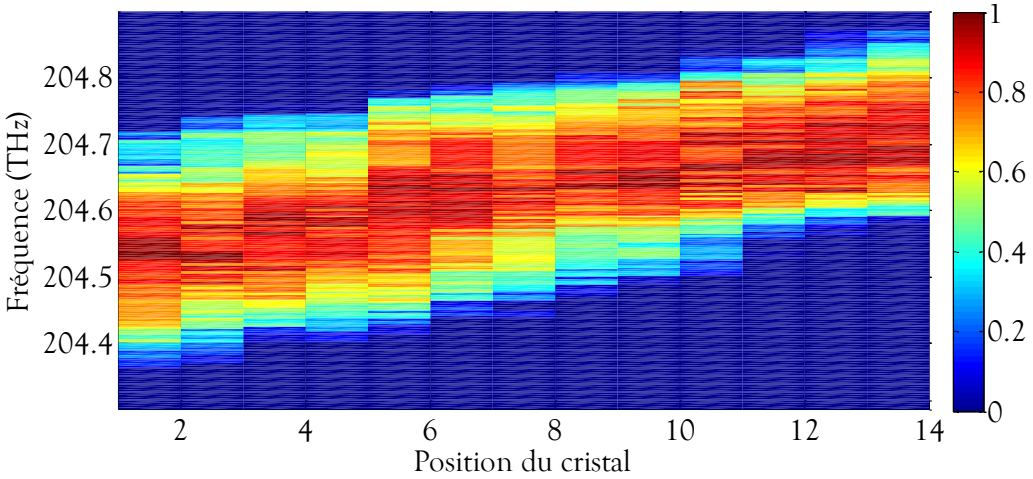


Figure 61 : Décalage spectral expérimental de la bande de gain paramétrique en fonction des positions transverses du cristal. Les 14 positions permettent de parcourir la largeur du réseau.

Le décalage est bien régulier et à aucun moment, nous n'observons une bande de gain à deux lobes. Il faut donc, dans un premier temps, vérifier si ce décalage correspond bien à une variation de la phase relative. Les photographies de la figure 62 présentent une vue au microscope (grandissement : ×1000) des extrémités du réseau étudié. Les réseaux des cristaux de PPLT disponibles au laboratoire sont moins larges que ceux du PPLN. Le réseau étudié ici, mesure 1,0 mm, pour un même angle de polissage de la face arrière, la variation du déphasage relatif est donc plus faible.

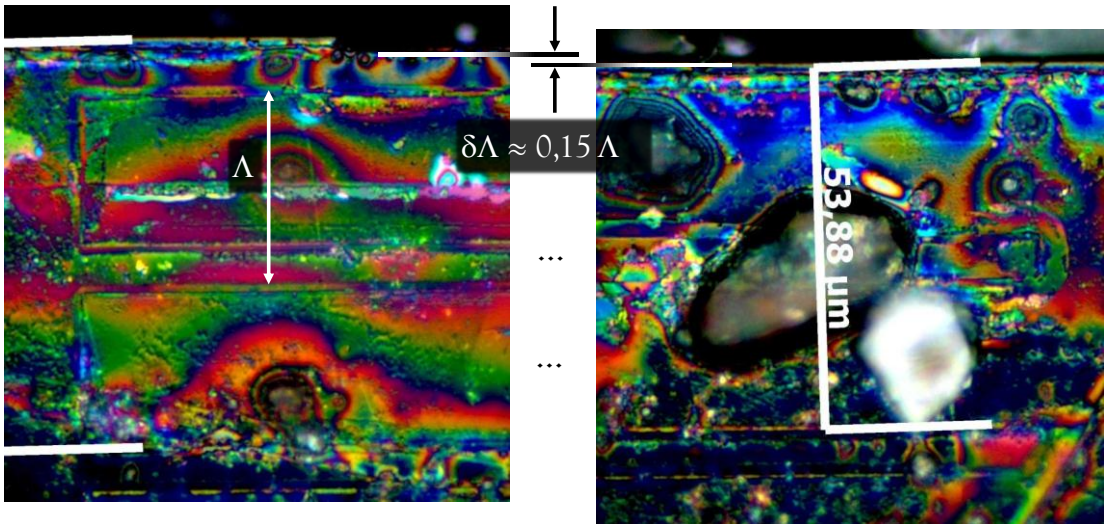


Figure 62 : Photographies au microscope des extrémités du réseau de PPLT étudié (grandissement : ×1000).

Grâce aux agrandissements de la figure 62 nous mesurons une variation de 0,15Λ, c'est-à-dire 15 % de la période (Λ) de retournement du réseau. Or nous avons vu que pour que la

phase relative change de π, il fallait une variation de 0,25Λ (Chapitre 2.II.B.2.b). Ainsi, sur la largeur de ce réseau, les photographies montent que le déphasage relatif doit varier de 0,6π. Cela dit, les diamètres des faisceaux étant de l'ordre de 100 à 150 µm, une partie non négligeable du réseau n'est pas exploitable. Nous pouvons donc nous attendre à une variation un peu plus faible.

De plus, nous ne savons pas à quelle phase relative correspond chaque extrémité, nous ne pouvons donc vérifier que la variation de la phase relative d'une extrémité à l'autre et non la valeur absolue. Étant donné que nous n'avons qu'un seul lobe, nous supposons par exemple que la phase relative est à nulle pour la courbe n°1 (figure 60). Cela revient à dire que le centre de la courbe n°1 est à l'accord de phase. Un léger décalage de l'origine par rapport au cas réel n'a pas d'importance, vu que nous cherchons à mesurer des positions relatives.

Pour comparer ces bandes de gain expérimentales au calcul théorique, il faut déterminer la correspondance entre la fréquence de l'onde signal obtenue expérimentalement et la distance à l'accord de phase ($\Delta kL/2$) utilisée pour la théorie. La correspondance s'obtient en écrivant simplement :

$$\Delta kL/2 = (k_p - k_s - k_c - k_r)L/2 = 2\pi(n_p\nu_p - n_s\nu_s - n_c\nu_c - c/\Lambda)L/2c \qquad \text{Éq. 19}$$

La figure 63 montre la superposition des courbes 1 et 2 de la figure 60 avec le calcul théorique tel qu'il a été présenté précédemment (Chapitre 1.II.B.3.b).

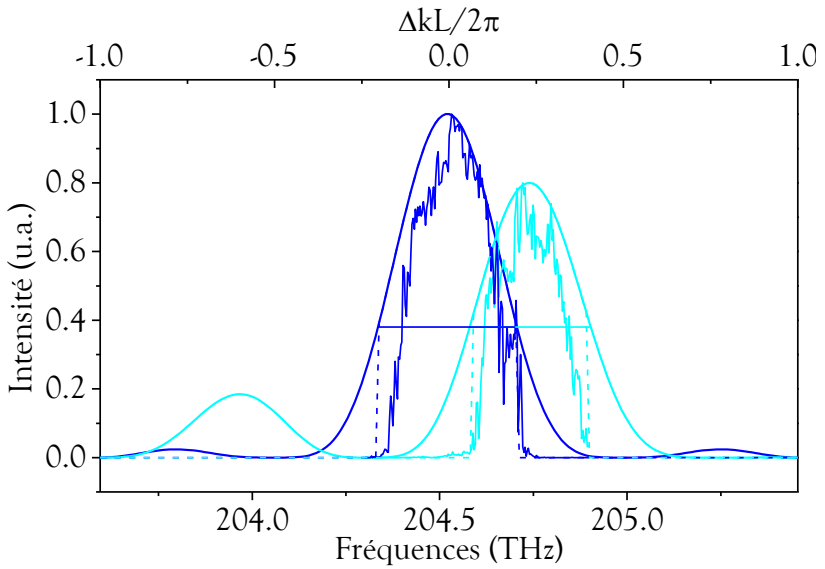


Figure 63 : Décalage de la bande de gain paramétrique entre deux extrémités du réseau comparé au décalage théorique du lobe principal dû à une variation de 0,55π de la phase relative. Les traits horizontaux représentent la limite d'oscillation (taux de pompage : trois fois le seuil).

La comparaison entre l'expérience et le calcul théorique montre que le décalage spectral observé sur les courbes correspond à une variation de la phase relative d'environ 0,55π. Cela correspond donc très bien à ce que prévoyaient les observations au microscope.

Nous observons aussi que la largeur de la bande de gain expérimentale semble plus étroite que la courbe théorique. Cependant, le taux de pompage pour cette expérience était inférieur à trois fois le seuil d'oscillation. Par conséquent, les lobes des courbes expérimentales sont tronqués. Les traits pointillés de la figure 60 simulent cet effet sur la courbe théorique.

Comme nous le verrons (Chapitre 3.II.A), le cas où la bande de gain ne présente qu'un seul lobe, est particulièrement intéressant pour rendre l'OPO monomode.

2. Mise en évidence du dédoublement de la bande de gain (PPLN)

L'étude d'un deuxième cristal, de PPLN, a permis d'observer l'autre mode de fonctionnement, lorsque la bande de gain paramétrique présente deux lobes distincts.

a. Observation d'une bande de gain paramétrique à deux lobes

La même expérience de mesure de la bande de gain en fonction du déplacement transverse du cristal non linéaire est réalisée sur un réseau de ce cristal avec un taux de pompage de 2 à 4 fois le seuil d'oscillation suivant la valeur de la phase relative. Nous obtenons ainsi la figure 64.

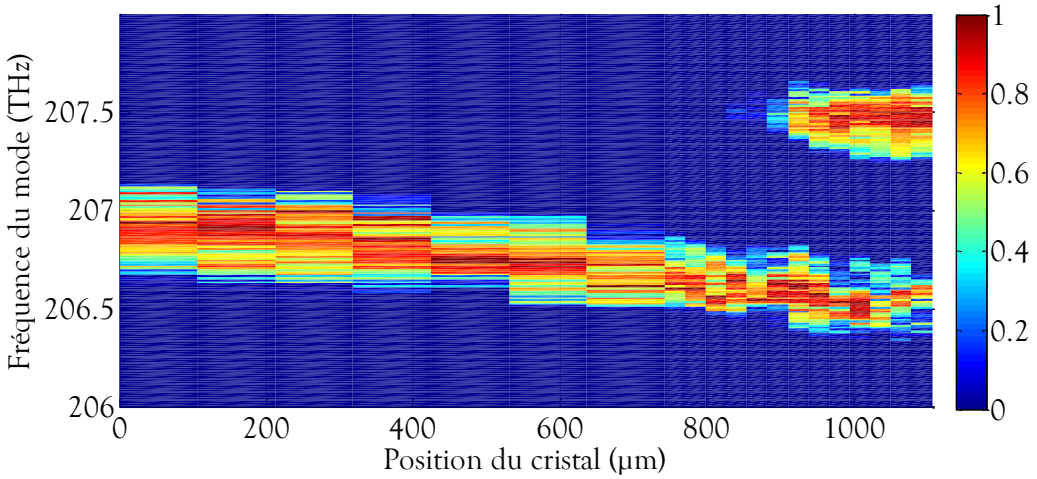


Figure 64 : Décalage spectral de la bande de gain paramétrique et apparition d'un second lobe en fonction de la position transverse du cristal.

L'observation au microscope du dernier domaine du cristal a permis de repérer une variation de 0,21Λ de la largeur du dernier domaine ferroélectrique du cristal pour un décalage transverse sur la totalité de la largeur du cristal soit 1,3 mm (figure 65 et figure 45 b)).

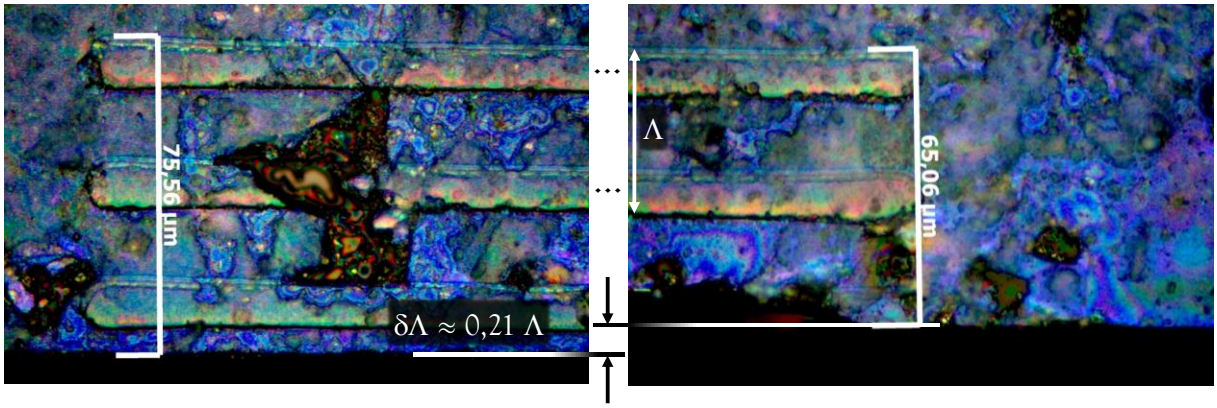


Figure 65 : Mise en évidence d'une variation d'épaisseur de 0,21 Λ entre deux extrémités du réseau (grandissement : ×1000).

Pour réaliser la figure 64 le déplacement transverse total était de 1,1 mm soit une variation de 0,18Λ de l'épaisseur du cristal. Cela revient à un décalage de la phase relative de 0,72π. Un ajustement avec les courbes théoriques montre par ailleurs que la phase relative varie d'une extrémité à l'autre du réseau d'environ 0,4 à 1,1π, confirmant les observations au microscope.

La figure 66 superpose le calcul théorique et la mesure expérimentale. Contrairement à la figure 63 la courbe 2 (cyan) ne correspond pas à une extrémité du réseau, mais à la zone du cristal où la bande de gain paramétrique présente deux lobes équilibrés.

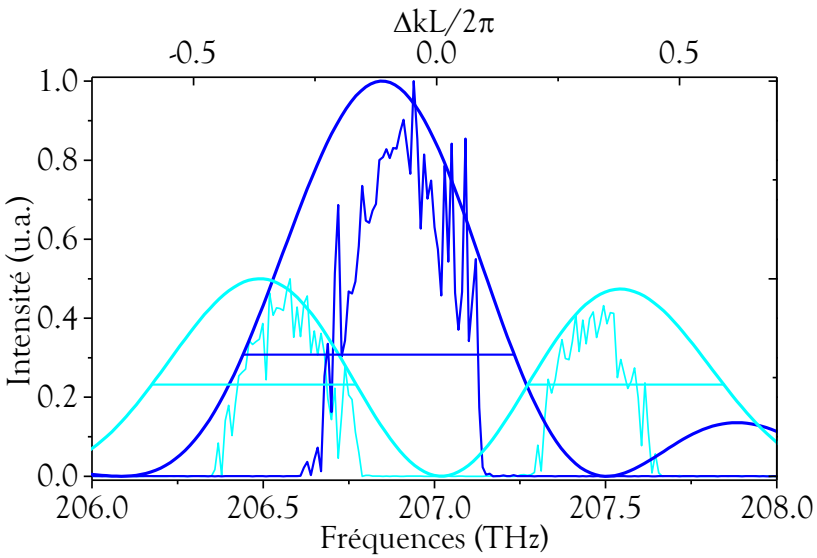


Figure 66 : Modulation expérimentale de la bande de gain paramétrique par déplacement transverse du réseau comparée à la modulation théorique. Les traits horizontaux représentent la limite d'oscillation.

La correspondance entre les courbes théoriques et expérimentales est bonne. Nous pouvons toutefois remarquer que les deux lobes expérimentaux apparaissent plus rapprochés que les lobes théoriques (courbes 2). De plus, les lobes expérimentaux apparaissent ici nettement plus étroits que les lobes théoriques.

b. Considérations sur le fonctionnement à deux lobes

Nous pouvons remarquer sur la figure 64 que le second lobe apparaît de manière peu progressive. Comme le taux de pompage est inférieur à 3, dès que des modes sont émis dans le second lobe, le gain est déjà presque équilibré entre les deux zones du spectre. D'après la figure 64, les deux lobes ne sont présents que sur 300 µm, soit seulement 10 % de la distance nécessaire pour faire varier la phase relative de 2π. La bande de gain est donc majoritairement monolobe lorsque le taux de pompage est limité.

Nous pouvons aussi regarder l'importance de la phase relative sur le seuil d'oscillation de l'OPO. La figure 67 représente l'évolution du seuil d'oscillation en fonction de la position transverse du cristal.

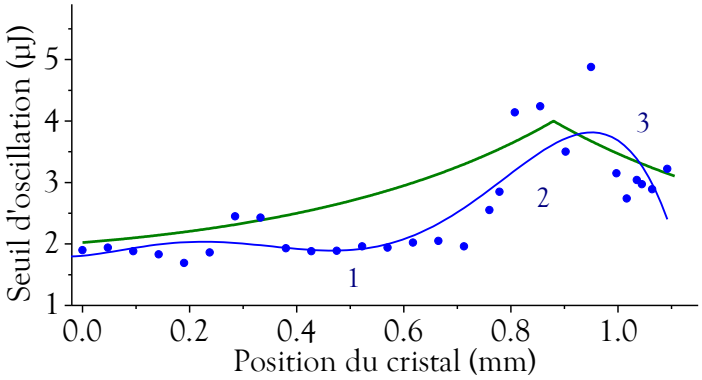


Figure 67 : Évolution du seuil d'oscillation expérimental en fonction de la position transverse du cristal et donc de la phase (bleu, points : valeurs expérimentales, trait : ajustement (*fit*) polynomial). La courbe verte correspond à la variation relative théorique du seuil.

La mesure du seuil est affectée par plusieurs paramètres dont l'alignement de la cavité, et les défauts du cristal. Néanmoins, nous pouvons relever sur la courbe bleue trois zones particulières. La zone 1 (de 0 à 0,75 mm) où le seuil croît lentement.

Puis, la zone 2 (de 0,7 à 1,0 mm) met en évidence la variation du gain due à la valeur de la phase relative optimisée pour une bande de gain à deux lobes.

Nous remarquons aussi que la largeur de la zone 2 est relativement courte, et très vite, le seuil diminue de nouveau (zone 3). Nous pouvons aussi noter une remontée du seuil due à un léger débordement des faisceaux à la fin du réseau vers 1,1 mm.

Les résultats expérimentaux présentés en figure 67, confirment ce que prévoyaient Bjorkholm *et al.* à savoir que le seuil double lorsque la bande de gain présente deux lobes [Bjorkholm '70].

De plus, ces résultats montrent que la variation du seuil est fortement liée à la présence ou non de deux lobes pour la bande de gain. La phase relative semble peu influer sur l'efficacité de conversion lorsque la bande de gain ne présente qu'un lobe.

3. Bilan sur le façonnage de la bande de gain paramétrique à deux lobes

La deuxième expérience présentée a permis pour la première fois de faire la démonstration expérimentale de la théorie émise par Bjorkholm, Ashkin et Smith en 1970 [Bjorkholm '70]. Nous avons pu à la fois observer la présence d'une bande de gain paramétrique à deux lobes et dans le même temps mesurer la variation du seuil d'oscillation due à cette configuration.

Ceci a été possible uniquement grâce au contrôle achromatique de la phase relative. En effet, cela était impossible avec la configuration précédente à cinq miroirs où la phase relative devait être ajustée en fonction de la fréquence émise.

Nous allons voir dans la prochaine partie que cette nouvelle architecture permet aussi de tous nouveaux modes de fonctionnement en ce qui concerne l'accordabilité et la maîtrise du contenu spectral.

II. Le NesCOPO : étude de nouvelles approches pour le contrôle et le balayage fréquentiel de l'émission

La capacité de la source à contrôler la forme de la bande de gain de façon achromatique est unique. Elle permet un contrôle du contenu spectral de l'émission tout à fait nouveau.

Dans cette deuxième partie, nous allons nous placer dans le cas où la bande de gain paramétrique est la plus étroite, lorsqu'elle ne présente qu'un seul lobe. Un ajustement précis des cavités dissociées doit donc permettre à l'OPO d'être monomode sur tout ou une partie de cette bande de gain comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 1.II.B.2.b).

Une fois assurés d'un comportement monomode sur une large plage spectrale, nous étudions de nouvelles façons d'accorder la source en fréquence. Nous verrons alors leurs performances, leur potentiel, et en quoi elles sont spécifiques à cette nouvelle architecture d'OPO.

A. Contrôle de la dissociation des cavités pour une oscillation monomode

Dans cette partie, nous étudions comment obtenir une bonne dissociation des cavités assurant un fonctionnement monomode. Une fois que les longueurs de cavité sont correctement ajustées, nous pouvons passer au contrôle fréquentiel de l'émission.

L'ajustement de la dissociation des cavités ne peut se faire comme sur la précédente architecture à cinq miroirs. En effet, dans la précédente configuration (figure 30), les intervalles spectraux libres des cavités signal et complémentaire pouvaient être déterminés indépendamment l'un de l'autre. Comme nous allons le voir, avec le NesCOPO, la démarche est un peu plus complexe.

Pour ajuster la dissociation des cavités, nous modulons dans un premier temps la position du coupleur M1. Cela va décaler le peigne de fréquences complémentaire alors que le peigne signal va rester fixe. Ainsi, nous allons émettre successivement les modes du peigne signal comme le montre la figure 68.

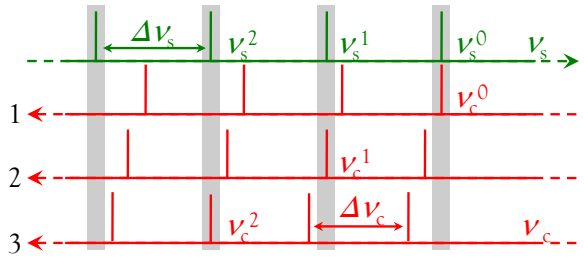


Figure 68 : Émission successive des modes du peigne signal par translation du peigne complémentaire.

La figure 69, présente les différentes longueurs d'onde émises au cours du déplacement de M1, relevées par un lambdamètre. Il s'agit de sauts de modes correspondant à un ISL de la cavité signal.

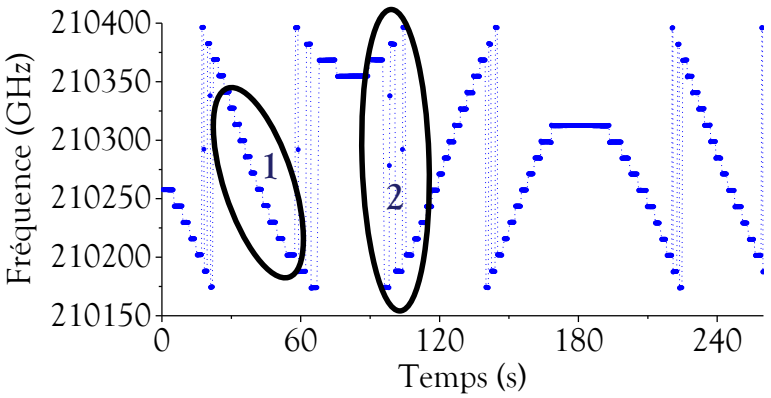


Figure 69 : Variation de la longueur d'onde signal émise par déplacement sinusoïdal du coupleur complémentaire M1.

L'amplitude de commande du transducteur piézoélectrique du miroir M1 est de 35,5 V pour la figure ci-dessus. Sa course étant de 6 µm pour 100 V, nous voyons qu'un déplacement de seulement 2 µm permet de balayer pratiquement deux fois chaque mode de la bande de gain, ici large de 220 GHz (1,5 nm à 1,43 µm).

Sur la figure 69, nous voyons deux types de sauts de modes caractéristiques. Le premier type correspond aux sauts de modes successifs observés au centre de la bande de gain (zone 1 de la figure 69). La deuxième correspond au cas où les modes passent successivement d'un bord à l'autre de la bande de gain (zone 2 de la figure 69).

C'est la largeur spectrale de la zone 1 qui nous permet de déterminer la dissociation. Concrètement, la largeur de la zone 1 correspond à la distance entre deux coïncidences exactes.

Connaissant « n », le nombre de modes successivement émis dans la zone 1, nous pouvons directement déterminer la dissociation par Éq. 16 : $\Delta L/L = 1/n$, pour le cas g = 1 (voir aussi figure 22).

Dans le cas de la figure 69, nous avons n = 12 et donc $\Delta L/L$ = 8,3 %. L'OPO pourra donc être monomode sur la zone 1, soit environ 170 GHz. Pour augmenter la taille de cette zone, il faut diminuer $\Delta L/L$ et donc rapprocher le miroir d'entrée M1.

Cette façon de déterminer la dissociation est rapide et efficace, mais elle possède deux limites dans le cas où $\Delta L/L$ est faible.

Premièrement si la largeur de la zone 1 est supérieure à la largeur de la bande de gain, il n'est par conséquent pas possible de déterminer « n » et donc la dissociation. Nous savons juste qu'elle est inférieure à une borne supérieure déterminée par le cas où la largeur de la bande de gain est égale à la distance entre deux coïncidences exactes.

Deuxièmement, elle ne permet pas de vérifier si les modes voisins de la coïncidence exacte de référence sont susceptibles d'osciller. En effet, le mesureur de longueur d'onde ne donne la mesure que de l'onde ayant la plus forte puissance moyenne. Il ne discriminera pas les différents modes s'ils coexistent.

Dans le cas où le $\Delta L/L$ est faible et non déterminé, il faut vérifier si les modes voisins n'oscillent pas à l'aide d'un analyseur de spectre, comme nous pouvons le voir sur la figure 70.

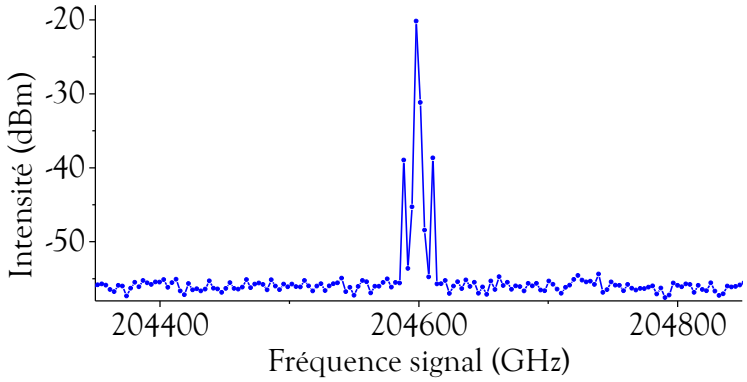
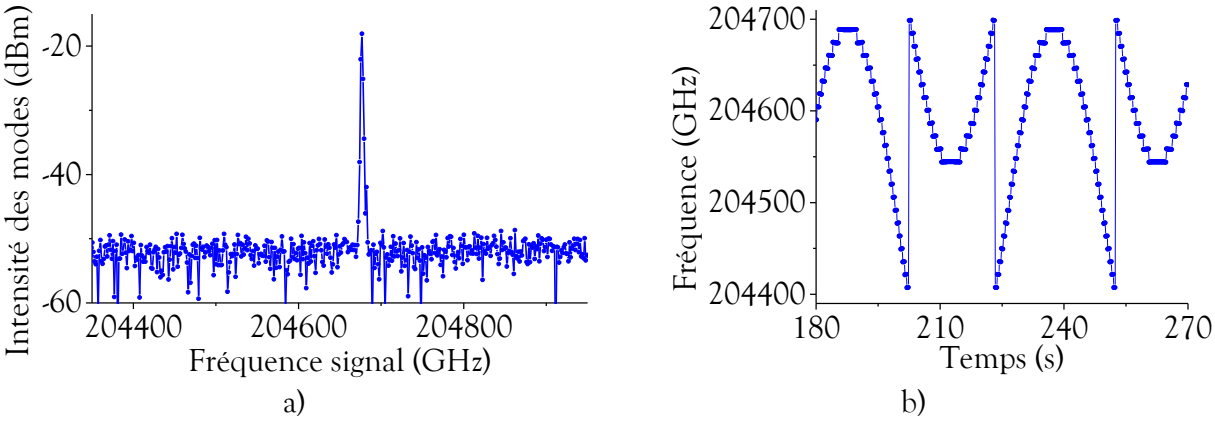


Figure 70 : Mise en évidence d'une dissociation légèrement trop faible : observation de l'oscillation de trois modes groupés.

Si nous observons un groupe de modes, il faut alors augmenter la dissociation en éloignant le miroir d'entrée. Nous arrivons à nouveau à cette étape où il faut trouver un compromis entre des cavités trop dissociées (coïncidences exactes dans la bande de gain) et des cavités pas assez dissociées (oscillation des modes voisins).

Les figures 71 a) et b) illustrent le cas où le compromis a pu être trouvé.



Figures 71 : a) Spectre du Dropo pour une coïncidence exacte : un seul mode signal oscille ; b) sauts de modes successifs lors de la modulation de la position du coupleur M1.

Sur la figure 71 a) nous remarquons la présence d'un unique mode sur la fenêtre d'acquisition de l'analyseur de spectre. Les modes voisins sont atténués à plus de 30 dB du mode principal. La figure 71 b) montre que la distance spectrale entre deux coïncidences exactes est supérieure à la largeur de la bande de gain paramétrique. L'OPO est donc monomode sur l'ensemble de sa bande de gain.

B. Comportement spectral du NesCOPO en régime monomode.

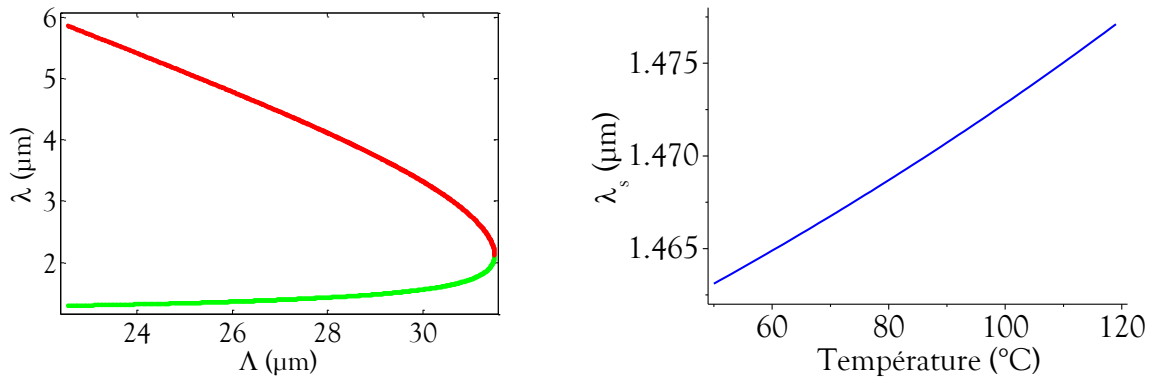
À présent que le NesCOPO est monomode sur l'ensemble de sa bande de gain, nous pouvons caractériser ses performances spectrales. Nous présentons notamment le contrôle fréquentiel automatisé de l'émission du NesCOPO et nous nous intéressons à la stabilisation de l'OPO à une longueur d'onde prédéfinie. Enfin, nous le caractérisons spectralement, en termes d'accordabilité et de stabilité.

1. Le NesCOPO, un synthétiseur optique : contrôle automatisé de la longueur d'onde

Nous allons voir ici, une première méthode pour accorder la fréquence de l'OPO dérivée de la technique développée par A. Berrou au cours de la thèse précédente. D'autres approches innovantes feront l'objet de parties détaillées dans la suite de ce chapitre. Nous présentons aussi dans cette partie quelques illustrations de performances de l'OPO en termes d'accordabilité et de stabilisation.

a. Positionnement de la bande de gain sur le spectre

Pour atteindre un couple de longueurs d'onde (λ_s , λ_c) donné, la première étape consiste à choisir la période (Λ) du réseau du cristal non linéaire. Elle se calcule à partir de la courbe d'accord de phase obtenue à partir de la relation déjà présentée : $\Lambda = 1/(n_p/\lambda_p - n_s/\lambda_s - n_c/\lambda_c)$ (cas particulier de l'équation Éq. 19 où $\Delta kL = 0$, voir figure 72 a)). Pour une période donnée, nous pouvons déplacer l'accord de phase en changeant la température (figure 72 b)). La modification de la température induit en effet une variation de l'indice de réfraction par effet thermo-optique ainsi qu'une variation de la période du réseau (Λ) par dilatation du cristal.



a) b)

Figures 72 : Calcul des couples de longueurs d'onde émis en fonction de la période du réseau du PPLN en accord de phase de type 0 a). Calcul de la variation de l'accord de phase par changement de température. Les indices de réfraction sont calculés à partir de la référence [Jundt '97] b).

Nos fours permettent de chauffer le cristal jusqu'à 120–130 °C. De plus, pour éviter que l'effet photoréfractif ne détériore le cristal de $LiNbO_3$, il est préférable que le cristal soit maintenu à une température supérieure à 50 °C. Comme le montre la figure 72 b), cela nous permet de faire varier l'accord de phase sur environ 14 nm à 1,47 µm, soit environ 2 THz (66 cm $^{-1}$).

Une fois la température fixée, l'OPO va pouvoir émettre dans sa bande de gain, typiquement large de 300 GHz. Même si ces étapes sont réalisables par ordinateur, en pratique l'automatisation commence après, lorsqu'il reste à sélectionner le bon couple de longueurs d'onde dans la plage spectrale délimitée par la bande de gain.

b. Sélection d'un couple de modes dans la bande de gain paramétrique – le balayage continu

Le schéma expérimental est représenté à la figure 73.

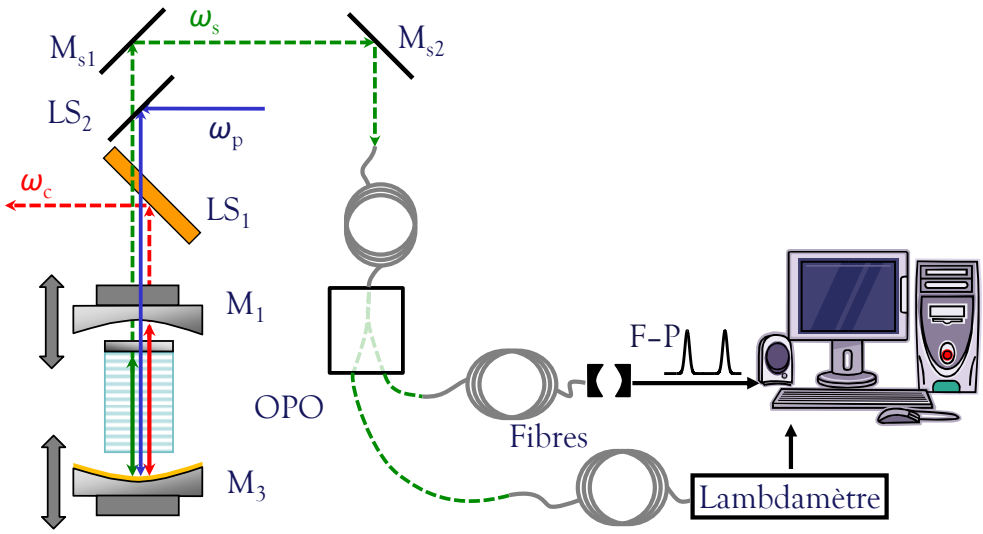


Figure 73 : Schéma expérimental du contrôle spectral de l'OPO.

Les cales piézoélectriques sont contrôlées par ordinateur grâce à un programme développé sous le logiciel LabVIEW®. Ce programme a été initialement développé lors de la thèse précédente et a été modifié au cours de ce travail de thèse pour être adapté au NesCOPO. Le faisceau signal injecté dans une fibre optique est séparé en deux par un coupleur fibré. Une première partie est envoyée vers un mesureur de longueur d'onde. Cela permet d'effectuer une rétroaction sur les cales piézoélectriques pour atteindre la longueur d'onde souhaitée. L'autre partie est envoyée vers un interféromètre de Fabry-Pérot balayable fibré. Il permet de s'assurer de la pureté spectrale de l'OPO.

Nous allons voir comment cette configuration permet d'accorder la fréquence de l'OPO et d'atteindre la longueur d'onde recherchée.

Notre OPO est dans une configuration monomode, nous allons donc pouvoir balayer les longueurs d'onde du peigne signal en déplaçant le coupleur complémentaire M1 comme le montre la figure 74 rappelée ci-dessous.

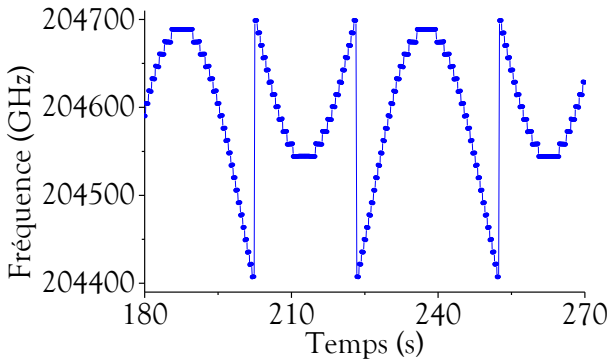


Figure 74 : Balayage des longueurs d'onde signal. La sélection du mode le plus proche de la longueur d'onde recherchée permet de s'en approcher à moins de 15 GHz.

En déplaçant la cale piézoélectrique du miroir M1 qui contrôle la longueur de cavité complémentaire, nous allons pouvoir nous approcher à moins d'un intervalle spectral libre (de la cavité signal) de la longueur d'onde recherchée. Nous sommes donc à moins de 15 GHz (soit 0,1 nm à 1,46 µm).

Une fois que l'ordinateur a trouvé un mode suffisamment proche de la cible, il va balayer continûment la longueur d'onde. Contrairement aux Dropo de générations précédentes, le NesCOPO est simple à contrôler puisque la position de seulement deux miroirs (M1 et M3) doit être ajustée.

Pour balayer continûment la fréquence, il s'agit de conserver la même coïncidence entre les peignes de modes signal et complémentaire (figure 75). Ainsi, une variation de la fréquence signal $\delta\nu_s$ doit s'accompagner systématiquement de la variation opposée pour le complémentaire, de sorte à toujours respecter la conservation de l'énergie, autrement dit, $\delta\nu_s = -\delta\nu_c$.

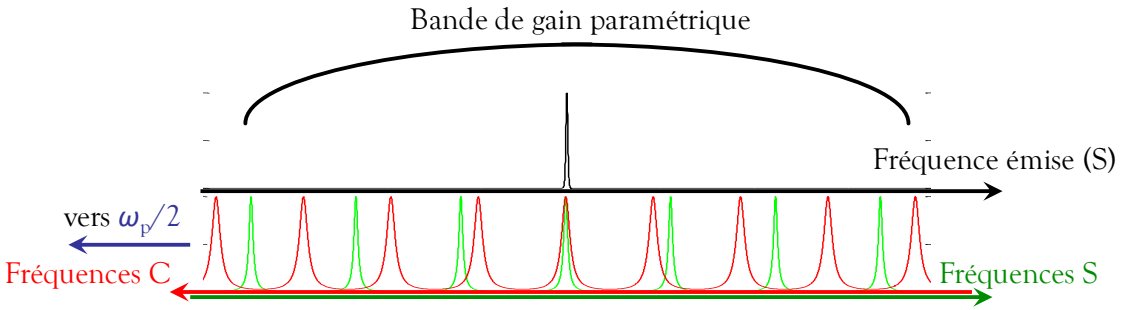


Figure 75 : Pour maintenir la même coïncidence de modes, les peignes signal et complémentaire doivent se déplacer symétriquement vis-à-vis de la dégénérescence ($\omega_p/2$).

Nous avons vu précédemment que $\nu_j = qc/(2L_j)$, ($q \in \mathbb{N}^*$). Nous avons donc au premier ordre : $\delta\nu_j/\nu_j = -\delta L_j/L_j$, avec j = s, c. Dès lors, les variations respectives des cavités signal et complémentaire sont reliées par :

$$\delta L_c = -\frac{\nu_s}{\nu_c}\frac{L_c}{L_s}\delta L_s \,. \qquad \text{Éq. 20}$$

Or, $\delta L_c = \delta e_1 + \delta e_2$ et $\delta L_s = \delta e_2$, où e_1 et e_2 représentent les espaces entre M1 et M2 et entre la face arrière du cristal (antireflet) et M3, respectivement (voir figure 76).

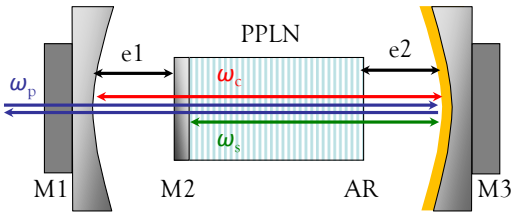


Figure 76 : Schéma du NesCOPO, « e1 » représente l'espace entre les miroirs M1 et M2 et « e2 » l'espace entre l'antireflet et M3.

δe_1 et δe_2 représentent donc les variations de positions des miroirs M1 et M3 relativement au cristal. Nous arrivons finalement à la relation entre les déplacements des deux miroirs pour obtenir un balayage continu :

$$\delta e_1 = -\left(1 + \frac{\nu_s}{\nu_c}\frac{L_c}{L_s}\right)\delta e_2 . \qquad \text{Éq. 21}$$

Dans cette architecture à trois miroirs, une simple relation de proportionnalité relie les deux miroirs. Toutefois, du fait de la non linéarité de la réponse des cales piézoélectriques fonctionnant en boucle ouverte, la commande doit être régulièrement corrigée, ce qui ralentit la vitesse de balayage. À l'aide d'un Fabry-Perot, nous vérifions périodiquement que la coïncidence entre les modes reste optimale. Le programme réajuste ainsi régulièrement la position des miroirs et la course des piézoélectriques. De plus, l'amplitude de déplacement des cales piézoélectriques étant limitée à 6 µm, il n'est possible de ne balayer qu'au maximum 25 GHz d'un seul coup. Pour aller au-delà, il faut remettre à zéro les tensions ce qui ralentit le balayage.

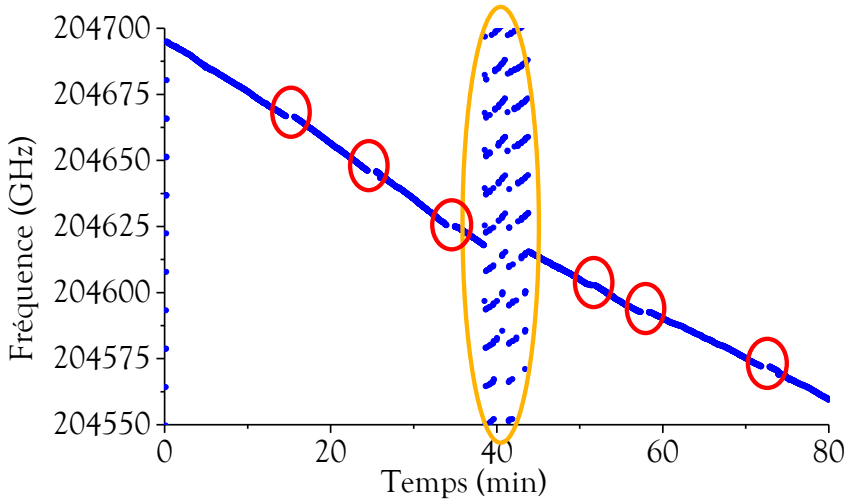


Figure 77 : Balayage continu par morceaux sur 140 GHz. Les cercles rouges correspondent à la réinitialisation de la cale piézoélectrique du miroir M1, la zone orange à celle du miroir doré M3

La figure 77 présente un balayage d'environ 140 GHz. À cause du rapport de proportionnalité (Éq. 21) entre les tensions appliquées aux deux cales piézoélectriques, nous voyons que celle du coupleur complémentaire M1 doit être réinitialisée trois à quatre fois plus souvent. La vitesse de balayage n'est pas ici optimisée. À titre d'exemple, A. Berrou avait réussi à atteindre une vitesse de 0,5 GHz/s [Berrou '08].

c. Stabilisation de la fréquence d'émission du Dropo

Une fois la longueur d'onde recherchée approchée à moins de 2 pm (environ 300 MHz ou 0,01 cm $^{-1}$ à 1,45 µm), il est possible de passer en mode de stabilisation de la fréquence. Concrètement, la longueur d'onde mesurée est comparée à l'aide d'un lambdamètre (HighFinesse WS/6) à la longueur d'onde de consigne pour rétroagir sur les cales piézoélectriques. La relation $\delta\nu/\nu = -\delta L/L$ donne au programme le sens de déplacement des miroirs, mais pas son amplitude. Le déplacement des cales piézoélectriques n'étant pas linéaire, une application stricte de la relation de proportionnalité ne permet pas de stabiliser à mieux

que 100 MHz la longueur d'onde. En ajustant la position des miroirs par application de petites tensions, la stabilisation obtenue est meilleure que 10 MHz en utilisant le signal obtenu au lambdamètre, comme le montre la figure 78.

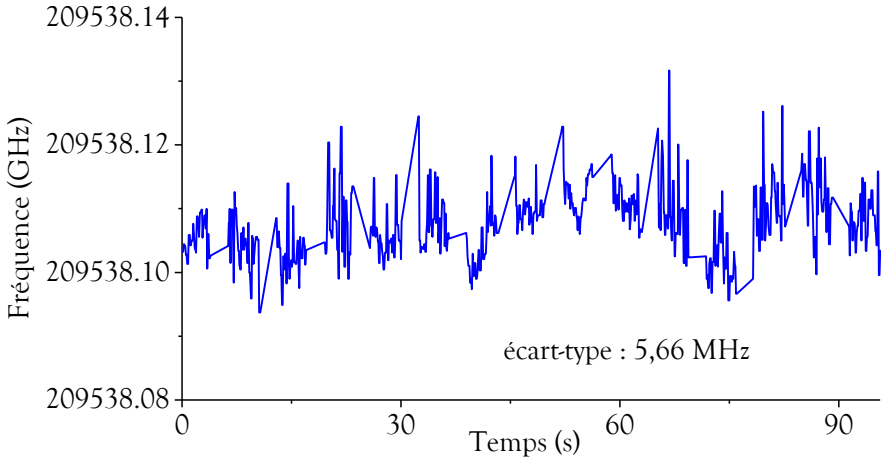
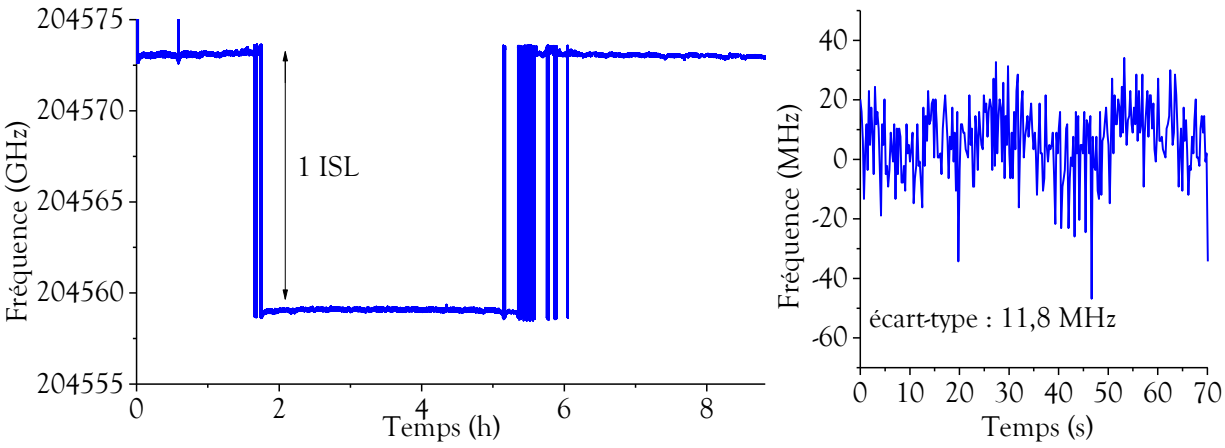


Figure 78 : Stabilisation en boucle fermée de la fréquence de l'OPO à court terme. L'écart-type de 5,66 MHz rms est calculé sur 95 s, ce qui est inférieur à la résolution du lambdamètre (HighFinesse WS/6).

Cette stabilité fréquentielle du NesCOPO asservi (10 MHz) est très bonne, surtout si nous la comparons avec celle de la pompe. Comme montré sur la figure 49 a), cette dernière présente des fluctuations fréquentielles de 100 MHz environ, de période d'une quinzaine de secondes, et un écart-type de plus de 20 MHz rms sur 90 s. Comme nous l'avons évoqué précédemment, les fluctuations fréquentielles de la pompe sont reportées sur le complémentaire. De plus, cette stabilisation est aussi très inférieure aux 100 MHz de la largeur spectrale du signal (≈ 65 MHz pour une impulsion gaussienne de 7 ns limitée par transformée de Fourier [Siegman '86]).

Par ailleurs, la cavité de l'OPO est particulièrement stable par construction. En effet, nous remarquons une très bonne stabilité en boucle ouverte, c'est-à-dire sans rétroagir sur les cavités. L'OPO peut rester des heures sans sauter de mode comme l'atteste la figure 79 a), avec une stabilité à court terme de moins 15 MHz rms sur un peu plus d'une minute (figure 79 b)). Cette stabilité à court terme est du même ordre de grandeur que lorsque l'OPO est asservi. L'asservissement permet néanmoins de corriger les fluctuations fréquentielles dues à la régulation en température de l'OPO et aux fluctuations du laser de pompe (figure 49 a)).

Le changement d'architecture a donc grandement amélioré la stabilité de l'OPO puisqu'elle était limitée à quelques minutes avant un saut de modes sur l'ancienne architecture [Berrou '08].



a) b)

Figures 79 : Stabilisation en boucle ouverte de la fréquence de l'OPO a) à long terme et b) à court terme (écart-type calculé sur 70 s : 11,8 MHz rms). Mesures avec un lambdamètre HighFinesse WS/6.

2. Bilan sur le pilotage fréquentiel de l'OPO

La partie précédente a permis de valider expérimentalement l'architecture NesCOPO. Nous avons pu voir que l'obtention d'une longueur d'onde à la demande était plus facile avec cette configuration, puisqu'il n'y a que deux miroirs, liés par une simple relation de proportionnalité, à contrôler. Grâce au contrôle de la phase relative, toutes les longueurs d'onde de la plage spectrale du cristal non linéaire peuvent être émises. La simplicité et la stabilité mécanique ont aussi amélioré la stabilité fréquentielle du système.

Les différentes étapes de la stabilisation fréquentielle sont résumées dans le tableau 5.

	Étape	Variation dans l'OPO	« Précision » spectrale
1	Choix de l'accord de phase – Choix du pas du réseau	Position transverse du cristal	≈ 15 nm / 2 THz / 70 cm $^{-1}$ Dans la plage de transparence du cristal (jusqu'à 4,5 µm pour le $LiNbO_3$ [Myers '96])
2	Optimisation de la phase relative	Position transverse du cristal sur un réseau donné	–
3	Positionnement de la bande de gain	Température du cristal	≈ 2 nm / 300 GHz / 10 cm $^{-1}$
4	Sauts de modes	Déplacement des cales piézoélectriques	< 0,1 nm / 15 GHz / 0,5 cm $^{-1}$
5	Balayage continu	Déplacement synchrone des cales piézoélectriques	< 2 pm / 300 MHz / 0,01 cm $^{-1}$
6	Stabilisation	Ajustement de la position des cales piézoélectriques	< 0,15 pm / 20 MHz / 7×10^{-4} cm^{-1}

Tableau 5 : Récapitulatif des étapes menant à la stabilisation de l'OPO à une longueur d'onde prédéfinie.

Comme nous avons pu le voir, la procédure de balayage continu est efficace, mais peut être un peu longue (5 GHz/min, sans que nous ayons essayé de l'optimiser). Par ailleurs, l'observation de la stabilité fréquentielle de l'OPO en boucle ouverte démontre l'intérêt de cette architecture très compacte pour des applications de spectroscopie haute résolution. L'OPO reste sur un mode pendant des heures soit un temps très grand devant le temps de rétroaction de l'ordinateur.

III. Nouveau type d'accord en fréquence du NesCOPO : l'accord fréquentiel par effet Vernier

L'un des points importants de la source optique que nous développons est de pouvoir modifier à la demande sa longueur d'onde d'émission pour pouvoir balayer les raies d'absorption de différentes molécules.

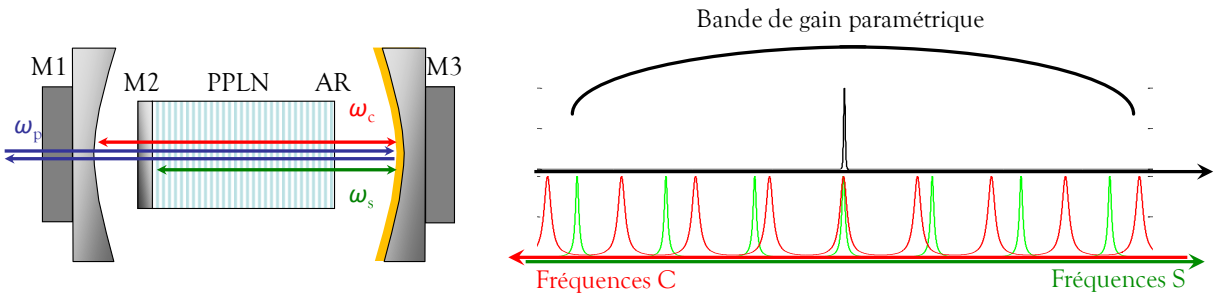
Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que l'OPO peut balayer de grandes plages fréquentielles en déplaçant continûment les cales piézoélectriques des miroirs de cavités. Les performances de la nouvelle cavité sont de ce point de vue, meilleures que celles de l'ancienne. Cependant, se limiter au balayage continu relativement lent et contraignant, sous-exploiterait fortement le NesCOPO. En effet, cette dernière architecture possède un contrôle achromatique de la phase relative en rupture totale avec la génération précédente. En effet, alors que la phase relative devait être contrôlée en temps réel avec l'architecture précédente, elle est ici maintenue quelle que soit la position des miroirs (dans la gamme de déplacement nécessaire à l'accord en fréquence).

Cette spécificité ouvre de nouvelles voies vis-à-vis de l'accordabilité fréquentielle qui sont particulièrement intéressantes en spectroscopie. C'est ce que nous nous proposons d'explorer et de démontrer dans cette partie.

A. Accord fréquentiel discontinu par translation longitudinale des miroirs de cavité

La première nouvelle technique d'accordabilité que nous avons développée est basée sur le contrôle fin de la position des miroirs de cavités M1 et M3 grâce aux transducteurs piézoélectriques (figure 80 a)). Cet accord en fréquence repose sur un échantillonnage fréquentiel par sauts de modes (ou effet Vernier) par translation longitudinale des miroirs de cavité. Pour simplifier son appellation et pour le distinguer des futures méthodes que nous allons présenter, nous l'appellerons « échantillonnage TLM » ou « balayage TLM ».

Comme nous l'avons vu précédemment, les ondes générées dans l'OPO oscillent dans deux cavités séparées (voir figure 80 a)). Cela permet, en choisissant judicieusement les longueurs de ces cavités de pouvoir être monomode stable dans une bande de gain à un lobe (Chapitre 1.II.B.2.b et figure 80 b)).



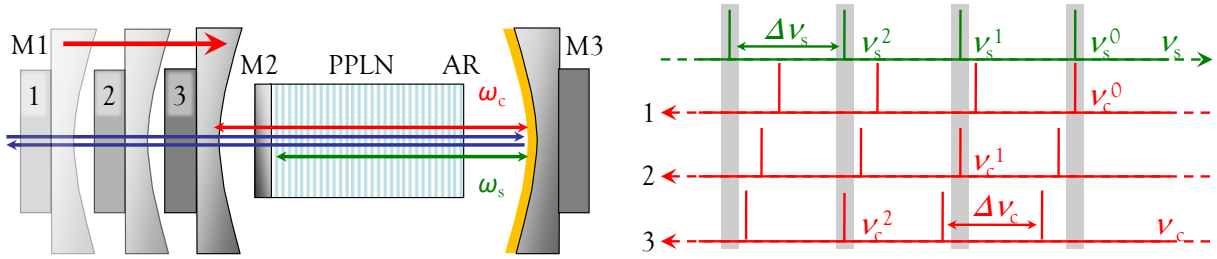
a) b)

Figures 80 : Schéma du Dropo à cavités dissociées a) et peignes de modes signal et complémentaire sur un diagramme de Giordmaine et Miller b).

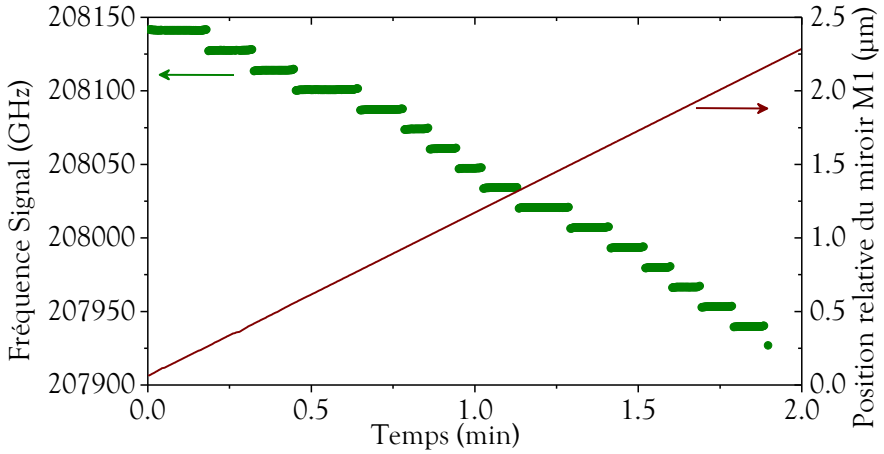
Contrairement au balayage continu, dans cette nouvelle technique d'accord fréquentiel par sauts de modes, les cales piézoélectriques ne sont pas déplacées de façon synchronisée. Des rampes de tension sont appliquées aux cales piézoélectriques des miroirs M1 et M3. Comme cela est détaillé dans le paragraphe suivant, un premier paramètre – l'amplitude donnée à la cale piézoélectrique du miroir M1 – permet de définir la plage fréquentielle qui va être balayée. Un second paramètre – le pas de déplacement donné au miroir M3 – va donner la résolution spectrale du balayage. Cette particularité est uniquement possible grâce à notre architecture de Dropo à cavités imbriquées.

1. Détermination de la plage fréquentielle scannée

La première étape consiste à scanner les fréquences du peigne signal en décalant le peigne complémentaire c'est-à-dire en déplaçant uniquement le miroir M1 comme cela est schématisé par les figures 81 a) et b). La cavité signal (M2–M3) reste fixe.



a) b)



c)

Figures 81 : Schéma du Dropo avec un balayage de la cavité complémentaire a) pour décaler le peigne complémentaire et adresser successivement les modes du peigne signal b). Mesure au lambdamètre des longueurs d'onde émises (vert) au cours du déplacement (bordeaux) de M1 c).

L'amplitude donnée au déplacement du miroir M1 détermine donc le nombre de longueurs d'onde du peigne signal échantillonées et donc la plage fréquentielle adressée.

Ainsi, si nous souhaitons balayer une plage de 200 GHz (7 cm $^{-1}$), et que l'intervalle spectral libre de la cavité signal est de 13,4 GHz (figure 81 c)), il faudra balayer 16 modes. Pour cela il faut donc déplacer le peigne complémentaire de « 16 ($\Delta\nu_s - \Delta\nu_c$) », où $\Delta\nu_j$ représente l'ISL de la cavité « j ». En effet, quand ν_s^0 et ν_c^0 sont en coïncidence, ν_s^1 et ν_c^1 sont séparés par la différence entre les intervalles spectraux libres de chacune des cavités soit environ 1 GHz.

Nous avons déjà vu que la relation entre la variation de longueur de la cavité et le décalage fréquentiel est telle que : $\delta\nu_j/\nu_j = -\delta L_j/L_j$ avec j = s, c (Chapitre 3.II.B.1.b). Dès lors, pour passer d'un mode à l'autre, le miroir M1 doit se déplacer d'environ 150 nm (avec L_c = 12 mm). Ainsi, pour balayer un premier peigne de modes de 210 GHz, un déplacement de 2,4 µm suffit puisque le peigne complémentaire ne doit se déplacer que de 16 × 1 GHz (figure 81 c)).

Maintenant que nous avons déterminé la plage spectrale, nous allons voir comment ajuster la résolution de l'échantillonnage TLM.

2. Détermination de la résolution fréquentielle du balayage

La deuxième étape de l'échantillonnage TLM consiste à décaler le peigne signal de $\delta\nu_s$, puis de déplacer à nouveau le peigne complémentaire pour scanner les nouvelles fréquences (comme le schématisait la figure 81 b)). Ces deux étapes sont répétées jusqu'à ce que le peigne signal ait été décalé d'un intervalle spectral libre ($\Delta\nu_s$), comme le montre la figure 82.

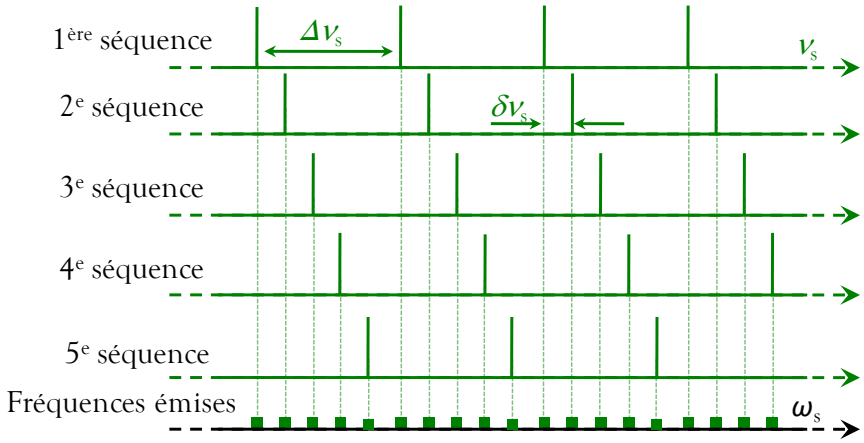
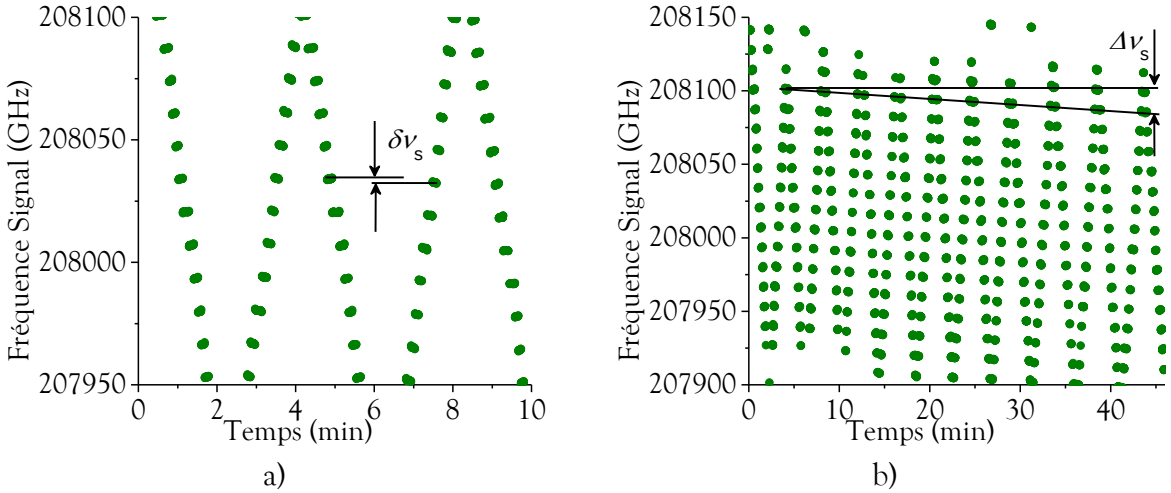


Figure 82 : Schéma du balayage TLM, à chaque séquence (figure 81 b)), les modes du peigne signal sont scannés par le peigne complémentaire (figure 81). Entre chaque séquence, le peigne signal est décalé pour mettre de nouvelles fréquences en résonance. En cinq rampes du miroir M1, toute la plage est balayée avec une résolution de $\delta\nu_s = \Delta\nu_s/5$.

Ainsi, la résolution est entièrement paramétrable par le déplacement du miroir M3. La résolution minimale est définie par le pas minimal de déplacement du miroir M3. Avec une résolution en boucle ouverte de 0,1 nm [PI '11], cela correspond à un décalage spectral de 0,2 MHz. En comparant cette dernière valeur à la largeur spectrale de l'émission (≈ 100 MHz), nous voyons que les transducteurs piézoélectriques ne sont pas limitants vis-à-vis de la résolution.

L'amplitude maximale donnée au peigne signal est d'un ISL. Cela correspond à un déplacement de 720 nm pour le miroir M3 (pour ν_s = 208,1 THz). Cependant, comme nous le détaillons dans la partie suivante, dans certains cas nous devons nous assurer de balayer toujours les mêmes modes. Dans ce cas, le miroir M1 doit être décalé proportionnellement au miroir M3 (Éq. 21) avant de réaliser une nouvelle rampe.

La figure 83 présente les longueurs d'ondes émises lors d'un balayage TLM.



Figures 83 : Mesure des longueurs d'onde signal émises pendant un balayage TLM. Mise en évidence du décalage $\delta\nu_s$ du peigne signal entre chaque rampe du miroir M1 a) ; le balayage est terminé une fois que le peigne signal s'est décalé d'un ISL b).

Cette technique présente l'avantage d'être très polyvalente. Elle permet d'adapter le balayage au type de mesure effectuée. Ainsi pour de la spectroscopie haute résolution nous pouvons choisir un $\delta\nu_s$ faible. Au contraire, pour des mesures atmosphériques où les largeurs de raies sont plus grandes, nous pouvons accélérer la mesure en augmentant $\delta\nu_s$ et donc en limitant le nombre de rampes du miroir M1. De même, la plage spectrale est optimisée en contrôlant l'amplitude de déplacement du miroir M1. Cette technique est encore une fois spécifique à notre architecture, car elle bénéficie de l'imbrication des deux cavités.

3. Avantages et limites de la méthode de balayage TLM

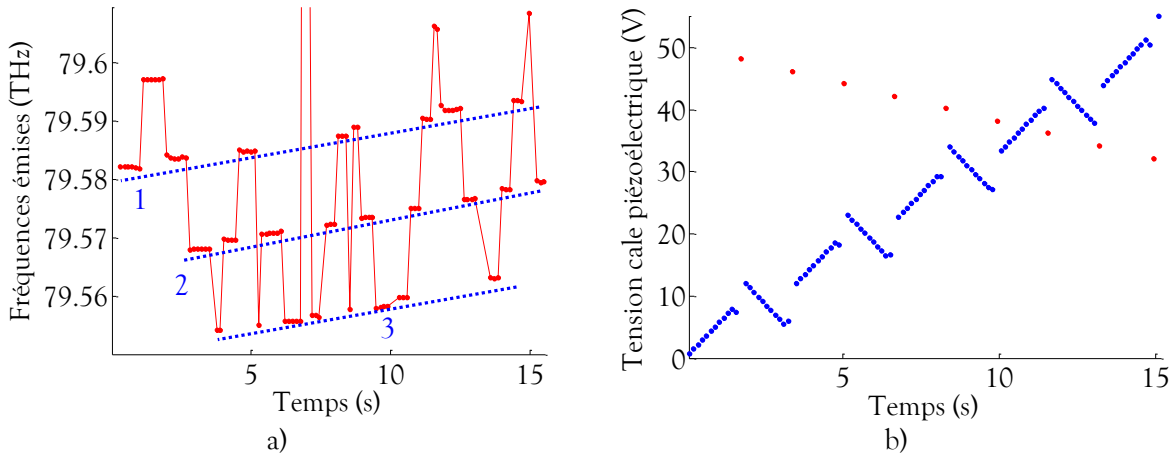
Nous venons de présenter le fonctionnement de l'échantillonnage TLM, nous allons ici, revenir sur ses avantages et limites.

a. Élargissement de la plage spectrale balayée

Nous avons vu précédemment que le balayage continu est limité à 25 GHz par l'amplitude maximale de la cale piézoélectrique du miroir M1 (Chapitre 3.II.B.1.b). Agissant sur des fréquences plus élevées, la cale piézoélectrique du miroir M3 permet de balayer un peu plus de 100 GHz (3 cm^{-1}). Ainsi, pour balayer de grandes plages, les cales piézoélectriques doivent être régulièrement mises à zéro. Au contraire, le balayage TLM permet d'atteindre une plage spectrale beaucoup plus grande malgré la dynamique restreinte des transducteurs piézoélectriques. Avec ce type d'accord fréquentiel, c'est la cale piézoélectrique du miroir M1 qui détermine la largeur de la plage fréquentielle émise en balayant les modes du peigne signal.

i. Cas d'une plage spectrale prédéterminée de largeur inférieure à la bande de gain paramétrique

Dans le cas où une partie restreinte de la bande de gain doit être balayée, le miroir M1 doit aussi compenser l'influence du déplacement du miroir M3 sur le peigne de modes complémentaire, pour s'assurer de balayer toujours les mêmes modes (voir figures 84 a) et b)). Comme M3 se déplace d'au maximum 720 nm correspondant à un intervalle spectral libre de la cavité signal (avec ν_s = 208,1 THz), pour compenser, M1 doit se déplacer d'environ 0,72 × 3,9 ≈ 2,8 µm. Le facteur de proportionnalité de 3,9 est calculé à partir de l'équation Éq. 21. Expérimentalement, il peut être sensiblement différent et atteindre 2,7.



Figures 84 : a) Fréquences des trois modes émis par l'OPO ; b) tensions de commande des transducteurs piézoélectriques (bleu : miroir M1, rouge : miroir M3).

Cela laisse donc 3,2 µm pour balayer les modes du peigne signal, soit environ 13 à 14 modes ce qui correspond à environ 180 GHz. Expérimentalement, compte tenu de la variation du facteur de proportionnalité entre les deux miroirs M1 et M3, nous pouvons balayer de 200 à 250 GHz (8 cm^{-1}) comme le montre la figure 83.

Finalement, avec des transducteurs piézoélectriques de même dynamique, nous sommes capables d'adresser des plages prédéterminées plus de huit fois plus grandes qu'en balayage continu.

ii. Cas du balayage de l'ensemble de la bande de gain paramétrique

Dans le cas où toute la bande de gain doit être balayée, la compensation du déplacement du miroir M3 par le miroir M1 n'est pas nécessaire. En effet, si toute la bande de gain est balayée, tous les modes du peigne signal sont adressés. Lorsque le miroir M3 va se décaler, une nouvelle rampe du peigne complémentaire va de nouveau adresser l'ensemble des modes du peigne signal contenus dans la bande de gain. Le fait de ne pas compenser le déplacement du miroir M3 va juste changer l'ordre d'adressage de modes, mais au final ils seront bien tous émis.

Ainsi, toute la dynamique du transducteur piézoélectrique du miroir M3 peut être utilisée pour augmenter la largeur de la plage spectrale scannée. Ainsi avec un déplacement de 6 µm, ce sont plus de 35 modes signal qui peuvent être adressés en considérant les mêmes paramètres que précédemment. Soit potentiellement plus de 450 GHz (15 cm^{-1}), pour peu que la bande de gain paramétrique soit assez large et que l'OPO soit monomode sur une telle plage.

iii. Bilan sur la largeur de la plage fréquentielle balayée

Les paragraphes précédents ont permis de mettre en évidence l'extension de la zone fréquentielle adressable par le seul déplacement des miroirs M1 et M3. Comme nous l'avons dit, M1 agissant sur des fréquences plus courtes, son déplacement est moins efficace que celui de M3. Il pourrait être alors intéressant d'inverser le rôle des miroirs M1 et M2 et de faire osciller, le complémentaire entre M2 et M3 et le signal entre M1 et M3. Cela devrait permettre d'adresser des plages spectrales plus grandes.

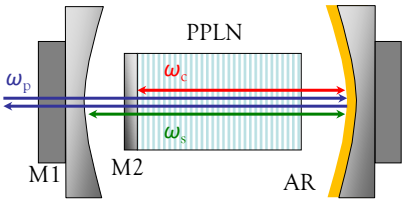


Figure 85 : Schéma du Dropo avec inversion des cavités signal (M1–M3) et complémentaire (M2–M3).

Cependant, il serait alors difficile, voire impossible, d'obtenir une bonne dissociation des cavités, puisque la dispersion dans le cristal jouerait alors en notre défaveur. Les dissociations ($\Delta L/L$) faibles seraient alors inatteignables mécaniquement (voir Chapitre 2.II.B.3).

Il est donc plus intéressant de garder la configuration actuelle. D'autant qu'elle nous permet déjà de balayer l'ensemble de la bande de gain.

b. Suppression du contrôle en temps réel de la pureté spectrale de l'OPO

Le balayage continu nécessite de maintenir en temps réel les deux modes signal et complémentaire en coïncidence. La pureté spectrale doit donc être optimisée régulièrement pour s'assurer que l'OPO ne glisse pas d'un couple de mode à un autre et nous devons utiliser pour cela un Fabry-Perot fibré. Au contraire de la technique par sauts de modes où les coïncidences glissent de l'une à l'autre avec le déplacement du miroir M1, comme cela est schématisé sur la figure 86.

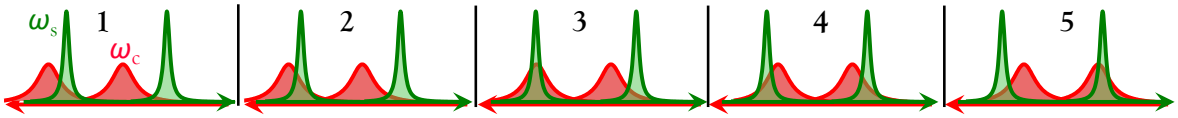
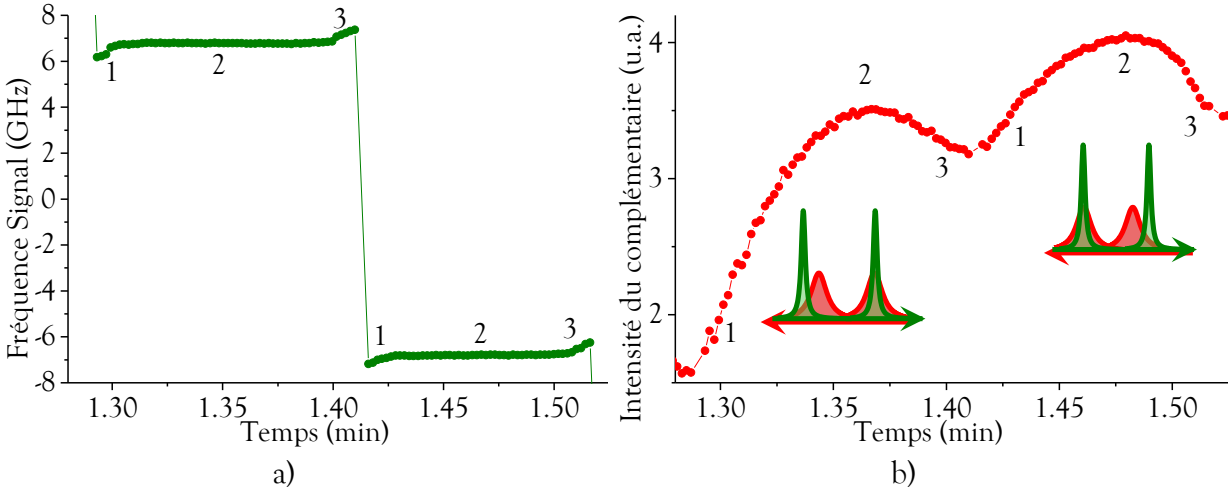


Figure 86 : Variation du recouvrement entre un mode signal et un mode complémentaire au cours du balayage TLM.

Lorsque le recouvrement s'éloigne de la coïncidence exacte, il se rapproche dans le même temps de la coïncidence suivante. Le saut de modes donc progressif, il y a une variation de la répartition d'énergie entre les deux modes.

La figure 87 a) présente la mesure au lambdamètre (HighFiness WS/6) de la longueur d'onde lors du balayage de deux coïncidences de modes. Le balayage est ici fortement ralenti pour obtenir un grand nombre d'acquisitions par mode émis.



Figures 87 : Mise en évidence de l'erreur de mesure de la longueur d'onde lorsque deux modes coexistent a) ; variation de l'intensité du faisceau complémentaire lors du balayage successif de deux modes b).

Nous remarquons que la mesure de la longueur d'onde à un mode donné est composée de trois phases comme l'indique la figure 87 a) ci-dessus. Les première et troisième phases sont à proximité des sauts de modes lorsque l'OPO émet sur deux modes adjacents. Du fait d'un recouvrement quasi équivalent entre deux couples différents (voir étape 4 de la figure 86), le lambdamètre est perturbé et réalise une mesure erronée. La deuxième zone sur la figure 87 a) montre au contraire la période pendant laquelle l'OPO est bien monomode.

Nous pouvons voir sur la figure 87 b) la variation de l'intensité complémentaire au cours du temps pour les deux modes de la figure 87 a). Nous remarquons bien l'augmentation du gain lorsque le couple de mode s'approche de la coïncidence exacte puis sa diminution comme le simulaient Padgett *et al.* en 1994 [Padgett '94].

Comme nous le verrons par la suite (Chapitre 4.II.A.4), il est important lors de la réalisation d'une mesure de spectroscopie, de bien séparer les cas où l'OPO est monomode de ceux où il est entre deux modes. Cela se fait aisément par un filtrage numérique qui supprime les points à proximité d'un saut de modes, en repérant les discontinuités de la courbe de longueur d'onde.

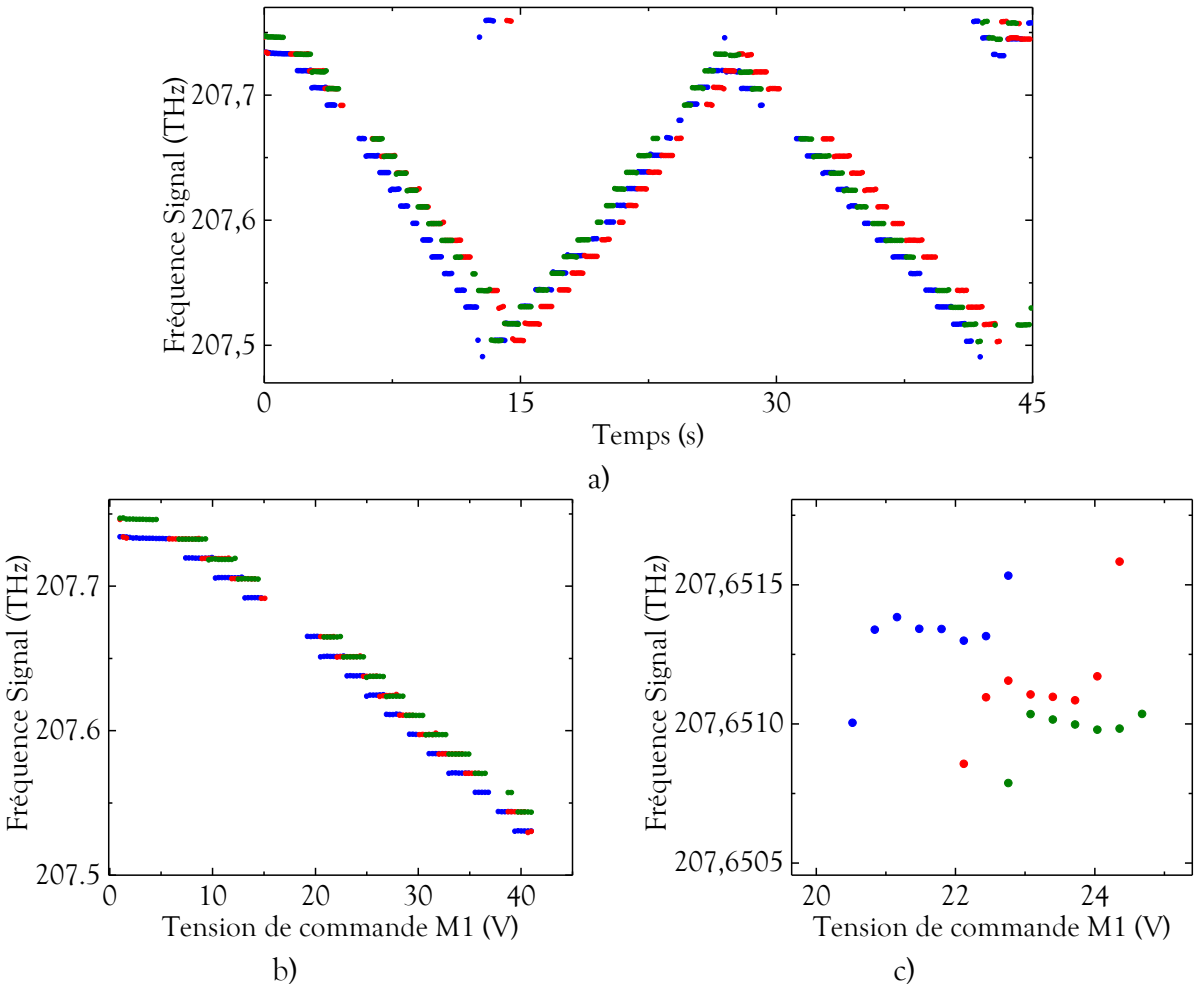
Finalement, cette technique présente l'avantage ne plus avoir besoin du Fabry-Perot fibré pour contrôler la pureté de l'émission. En effet, la pureté spectrale est assurée lors de la mise en place du Dropo, par une bonne gestion des longueurs de cavité. Un simple filtre numérique permet alors d'éliminer les valeurs correspondantes. Les modalités et les effets de ce filtrage seront détaillés dans le chapitre suivant (Chapitre 4.II.A.4).

c. Reproductibilité du balayage TLM

La figure 88 a) présente trois balayages par sauts de modes différents réalisés consécutivement pour des mêmes conditions expérimentales. C'est-à-dire que le cristal non linéaire est maintenu à une température constante et que la commande sur les transducteurs piézoélectriques est la même pour chaque balayage.

Nous remarquons un léger décalage de la fréquence émise entre chacune des mesures. La figure 88 b) présente les fréquences émises en fonction de la tension de commande

appliquée à la cale piézoélectrique du miroir M1. Cette figure correspond à la première rampe descendante de la figure 88 a).



Figures 88 : Fréquences signal en fonction du temps lors de trois balayages successifs a), en fonction de la tension de commande appliquée au transducteur piézoélectrique du miroir M1 pour une position du miroir M3 fixe b) et zoom sur un mode signal.

Cette figure 88 b) semble mettre en évidence que pour une même tension de commande, nous ne pouvons pas déterminer de façon systématique sur quel couple de modes l'OPO va osciller. Si nous effectuons un zoom un couple de modes (voir figure 88 c)), nous remarquons que le peigne de modes signal est aussi perturbé dans des proportions non négligeables.

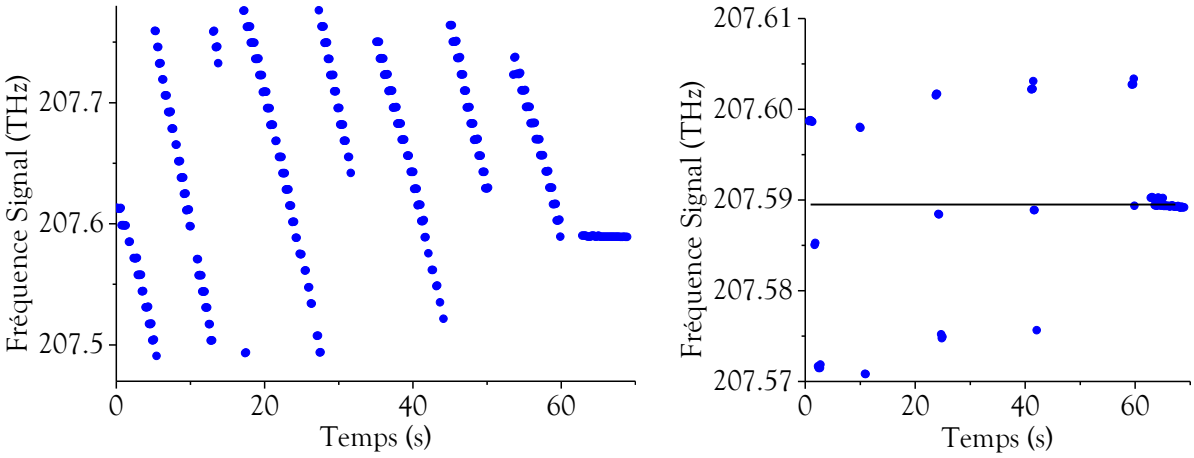
Nous observons sur la figure 88 b) que pour une même tension de commande sur la cale piézoélectrique du miroir M1, l'OPO peut émettre sur deux voire trois modes différents tous les autres paramètres étant *a priori* constants. Pour « passer » d'un mode au suivant nous avons vu que le peigne complémentaire doit se déplacer de $|\Delta\nu_s - \Delta\nu_c|$, soit la différence entre les deux *ISL* des cavités. Dans l'exemple présenté ici, $\Delta\nu_s$ est de 13,4 GHz et $\Delta\nu_c$ est de 12,9 GHz. Le peigne complémentaire doit donc se déplacer d'environ 0,5 GHz pour passer d'une coïncidence de modes à la suivante.

Nous avons vu que la fréquence du laser de pompe pouvait fluctuer de près de 150 MHz sur moins d'une minute (voir figure 49 a)). Les fluctuations fréquentielles du laser sont donc en partie responsables des perturbations observées, mais elles ne suffisent pas à expliquer

complètement les observations de la figure 88 b). Comme les deux peignes semblent être affectés par les perturbations dans des proportions du même ordre de grandeur, il est vraisemblable qu'elles soient dues à des fluctuations thermiques du corps de l'OPO ou à des vibrations mécaniques.

d. Stabilisation de fréquence par des sauts de modes contrôlés

Le balayage TLM permet aussi d'accélérer le processus de stabilisation à une fréquence prédéterminée ainsi que d'améliorer sa fiabilité en supprimant l'étape de balayage continu (Chapitre 3.II.B.1). Ainsi, pour se stabiliser à une longueur d'onde donnée, nous déplaçons le miroir M1 sur une grande plage de sorte à s'assurer que tous les modes de la bande de gain soient émis comme le montre la figure 89 a).



Figures 89 : Processus de stabilisation par sauts de modes, le peigne signal est décalé à chaque rampe du peigne complémentaire de sorte à obtenir une coïncidence exacte à la fréquence recherchée a) et mise en évidence de la convergence du mode le plus proche vers la fréquence à atteindre b).

Une fois que tous les modes ont été émis au moins une fois, le programme de contrôle calcule la distance spectrale entre la fréquence recherchée et celle du mode émis le plus proche. En utilisant la formule $\delta\nu_j/\nu_j = -\delta L_j/L_j$ avec j = s, c (Chapitre 3.II.B.1.b), le programme peut alors déduire une nouvelle tension de commande pour le miroir M3 pour que le mode signal le plus proche soit décalé à la fréquence recherchée. Cependant la réponse des transducteurs piézoélectriques n'étant pas idéale, il faut recalculer parfois plusieurs fois le décalage jusqu'à converger vers la fréquence recherchée comme le montre le zoom effectué à la figure 89 b). En effet, si la réponse des cales piézoélectriques était parfaite, la mesure d'une seule longueur d'onde et des tensions de commande correspondantes suffirait à déduire les tensions à appliquer pour émettre directement à la fréquence désirée.

B. Balayages rapides sur de très grandes gammes spectrales

La technique de balayage que nous venons de présenter possède de nombreux avantages. Elle permet des balayages avec une résolution totalement paramétrable et qui peut

descendre sous la largeur spectrale de l'émission (≈ 100 MHz). De plus, elle permet de balayer l'ensemble de la bande de gain paramétrique malgré une amplitude limitée des transducteurs piézoélectriques. Mais justement, sa dynamique se limite, pour l'instant, à la largeur de la bande de gain. Nous allons voir dans cette partie, comment étendre cette plage spectrale de balayage au-delà du térahertz (30 cm^{-1}).

1. Balayage par variation de température sur une plage spectrale atteignable de plusieurs térahertz

Nous avons vu que le balayage TLM nécessite simplement de faire varier les longueurs optiques des cavités. Nous avons présenté le cas où ces longueurs variaient par l'intermédiaire de la position des miroirs de la cavité. Mais, il est aussi possible d'agir sur les longueurs optiques des cavités en changeant la température du cristal. En effet, si nous augmentons la température du cristal, il va se dilater et son indice de réfraction va changer et donc les longueurs optiques des cavités vont s'agrandir.

La figure 90 présente les variations des longueurs optiques des cavités signal et complémentaire ainsi que du cristal, lorsque la température de ce dernier passe de 50 à 110 °C[1].

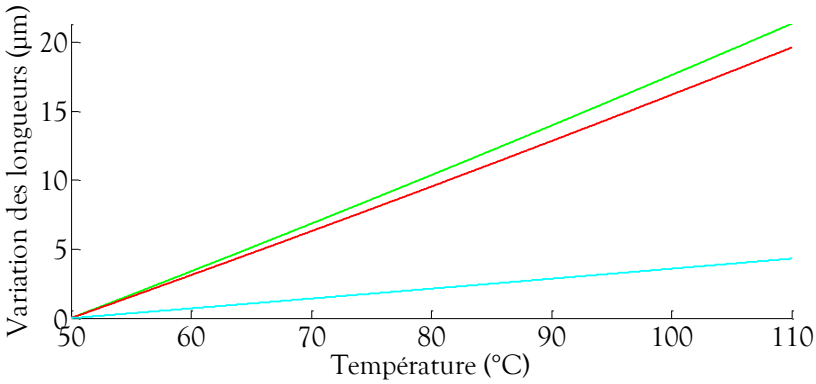


Figure 90 : Calcul de la variation de la longueur optique de la cavité signal (vert), de la cavité complémentaire (rouge), et de la longueur physique du cristal (turquoise) en fonction de la température.

Nous pouvons remarquer que les variations des longueurs sont plus importantes que la dynamique des transducteurs piézoélectriques. Les variations sont d'une vingtaine de micromètres pour une variation de température de 60 °C (figure 90). Nous pouvons donc nous attendre à ce que les coïncidences de modes défilent rapidement en fonction de la température. De plus, les longueurs de cavités varient dans le même sens et donc les coïncidences entre les peignes de modes signal et complémentaire vont défiler d'autant plus rapidement.

D'autre part, quand la température du cristal varie, l'accord de phase est aussi modifié (Chapitre 3.II.B.1.a). La bande de gain va donc se déplacer sur l'axe fréquentiel comme le montre la figure 91.

[1] Pour un cristal de $LiNbO_3$ de 4,5 mm [Jundt '97].

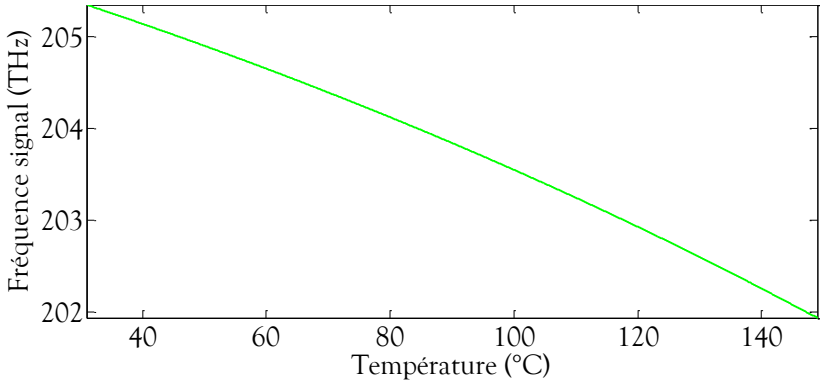
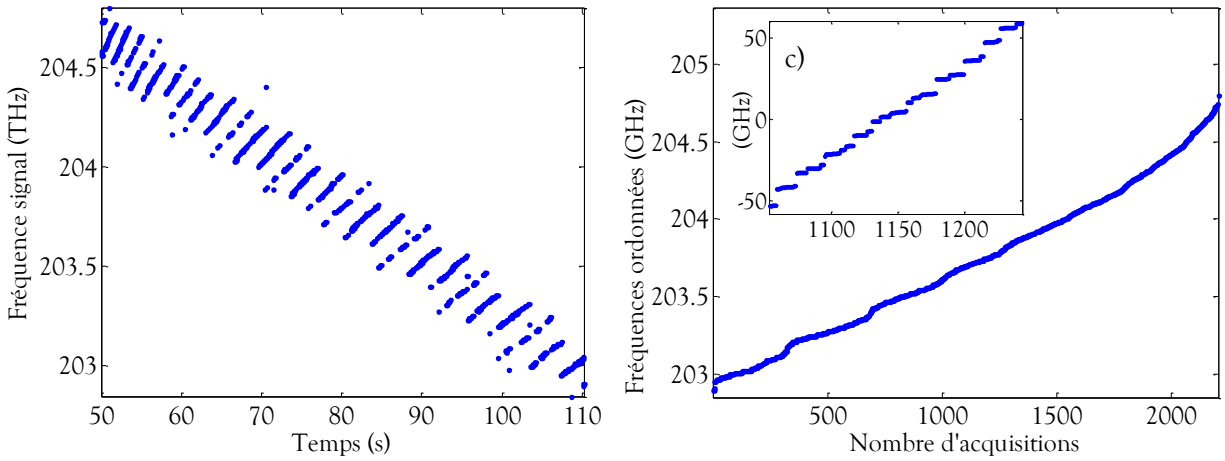


Figure 91 : Calcul de la fréquence signal à l'accord de phase dans le cristal non linéaire pour une température variant de 30 à 150 °C.

D'après la figure ci-dessus, pour une variation de 120 °C, nous pouvons nous attendre à un déplacement de près de 3,5 THz (120 cm^{-1}) de la fréquence signal à l'accord de phase.

Au cours d'un balayage, nous allons donc pouvoir parcourir de très larges plages spectrales. La figure 92 a) présente les longueurs d'onde émises expérimentalement lors d'une variation de température de 60 °C du cristal non linéaire, les positions des miroirs restant fixes.



a) b)

Figures 92 : Mesures des longueurs d'onde émises par l'OPO en fonction de la température a). Tri par ordre croissant des longueurs d'ondes émises b) et zoom mettant en évidence la densité de points et la résolution spectrale du balayage c).

Nous observons que l'OPO émet bien sur près de 2 THz (65 cm^{-1}) pour une variation de température de 60°C. Nous pouvons remarquer aussi que les sauts de modes progressent en sens inverse du déplacement de la bande de gain paramétrique. En effet, cela vient du fait que la cavité complémentaire est plus grande que la cavité signal. De plus, quand les cavités signal et complémentaire s'allongent de 20 et 18 µm, respectivement, leur peigne de modes se décalent dans le même sens d'environ 350 et 100 GHz[1], respectivement. Et donc les peignes de fréquences « ω_s » et « $\omega_p - \omega_c$ », respectant la conservation de l'énergie (diagrammes de Giordmaine et Miller), se croisent. Donc si les deux intervalles spectraux libres sont différents

[1] Pour des longueurs optiques telles que L_s = 12 mm et L_c = 13 mm, et pour des fréquences telles que ν_s = 208 THz et ν_c = 74 THz.

de 1 GHz, ce sont 450 modes qui seront émis au cours du balayage. Cela permet une bonne densité des fréquences émises au cours du balayage comme le montrent les figures 92 b) et c).

Cette technique d'accord fréquentiel, permet donc de décrire de très larges raies d'absorption, mais aussi de multiples raies d'une même espèce ou bien d'espèces différentes. Cependant, de même que le balayage TLM utilisant seulement les transducteurs piézoélectriques, le balayage en température n'est pas strictement reproductible (figure 93). Nous remarquons sur la figure 93, que d'une expérience à l'autre, les modes émis ne sont pas strictement les mêmes pour une température donnée. Par contre, l'écart à une même température ne dépassera pas la largeur de la bande de gain paramétrique. En effet, celle-ci présente un décalage spectral très reproductible. Nous pouvons aussi observer que la pente des sauts de modes varie en fonction de la température. Cela est probablement dû à un décalage variable entre la mesure effectuée par la thermistance collée sur le four et la température effective du cristal.

Le balayage par variation de température nécessite donc toujours l'utilisation d'un système externe pour mesurer la longueur d'onde en temps réel.

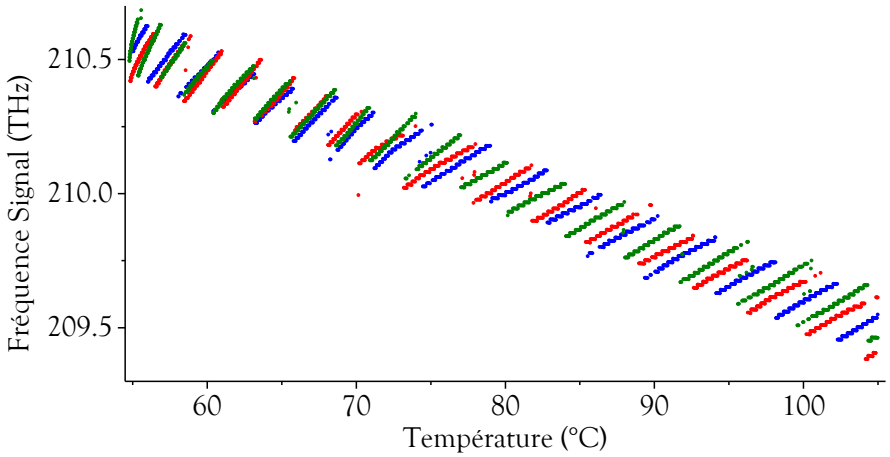


Figure 93 : Fréquences signal en fonction de la température pour trois balayages réalisés dans les mêmes conditions expérimentales. D'une expérience à l'autre, les modes émis ne sont pas strictement les mêmes pour une température donnée.

En conclusion, cette méthode permet de balayer de très grandes plages spectrales pouvant atteindre 3 THz (≈ 100 cm^{-1} soit 170 nm à 4,1 µm) par réseau si le four du cristal est adapté. Les longueurs de cavité variant dans le même sens, la densité de modes permet une résolution qui sera souvent largement suffisante. En effet, lorsqu'on cherche à parcourir de telles plages fréquentielles, ce n'est pas pour décrire de fines raies d'absorption, mais plutôt pour détecter des molécules complexes à bandes d'absorption larges ou encore pour de la détection de plusieurs espèces. Dans le cas contraire, le balayage par déplacement longitudinal des miroirs suffit. Cela démontre encore la polyvalence de cette nouvelle source optique.

2. Accordabilité fréquentielle par translation du cristal non linéaire

Dans les paragraphes précédents, pour accorder la fréquence, nous avons joué sur la position longitudinale des miroirs ou sur la température. Lors de cette thèse, nous avons réalisé une architecture d'OPO avec un cristal prismatique, il est donc aussi possible de jouer sur la position transverse du cristal pour modifier les longueurs des cavités. Une nouvelle méthode

d'accord fréquentiel peut ainsi être développée : il s'agit du « balayage par translation transverse du cristal non linéaire », appelée balayage TTC par la suite. L'intérêt est substantiel car cette nouvelle technique de balayage doit permettre d'allier la dynamique du balayage par température avec la résolution et l'agilité du balayage TLM.

Cependant, nous allons voir qu'exploiter cette méthode n'a pas été réalisable expérimentalement avec les moyens dont nous disposions pendant la thèse et dans le temps imparti.

Dans cette partie, nous allons donc déterminer dans quelle mesure ce balayage est possible. Puis, dans un deuxième temps, nous expliciterons quelles sont les conditions expérimentales pour lesquelles le fonctionnement de cette technique est possible. Enfin, nous présenterons des simulations mettant en évidence le fort potentiel de cette méthode.

a. Principes de fonctionnement et simulations

Comme cela vient d'être dit, cette technique doit permettre une dynamique de balayage de plusieurs térahertz, mais avec une même capacité de contrôle des longueurs d'onde émises que par le balayage par translation longitudinale des miroirs.

i. Fonctionnement

Pour comprendre le fonctionnement de cette méthode, regardons l'effet d'un déplacement transverse du cristal. La figure 94 rappelle le schéma de l'architecture où l'angle du prisme a volontairement été exagéré.

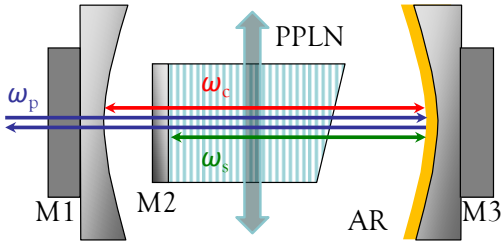


Figure 94 : Schéma de l'architecture à trois miroirs. L'angle du prisme est exagéré, mettant en évidence une variation des longueurs optiques lorsque le cristal est translaté transversalement.

En supposant que le miroir M2 est strictement orthogonal aux faisceaux, le déplacement transverse du cristal va changer les longueurs optiques des cavités du fait de la longueur variable du cristal. En connaissant l'angle de taille du prisme et l'indice de réfraction du cristal, il est possible de prédire la variation des longueurs optiques et donc du balayage fréquentiel. De plus, nous ne sommes pas limités à un balayage strictement perpendiculaire aux faisceaux. Au contraire, déplacer le cristal légèrement en biais, tout en gardant bien le miroir M2 orthogonal aux faisceaux, peut conduire à des situations particulièrement intéressantes.

Dans la suite, nous revenons rapidement sur les contraintes imposées au cristal non linéaire avant de détailler les relations entre le déplacement du cristal et le déplacement des peignes de fréquences.

ii. Conséquences d'un déplacement transverse du cristal non linéaire sur les peignes de fréquences signal et complémentaire

Même si nous avons vu que l'accord de phase n'était pas strictement colinéaire, les angles de propagation entre les différents faisceaux sont considérés comme négligeables. Les trois faisceaux sont donc supposés strictement superposés. La figure 95, présente le schéma de principe du balayage.

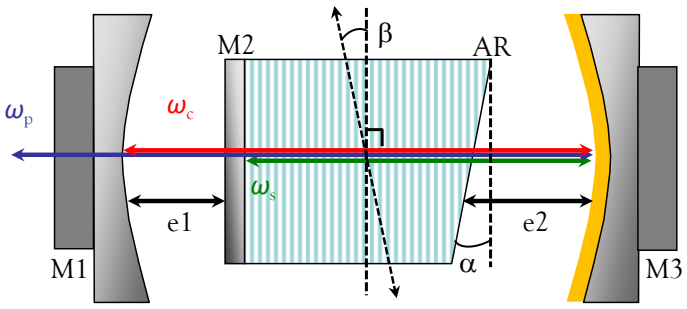


Figure 95 : Schéma de principe du balayage par déplacement transverse du prisme. La face arrière du cristal est taillée avec un angle α et le cristal se déplace avec un angle (π/2 – β) par rapport à l'axe formé par les faisceaux.

Pendant le balayage, nous supposons les miroirs M1 et M3 fixes, seul le cristal est en mouvement. Le cristal est prismatique avec un angle de coupe α par rapport au miroir M2. Il se déplace en biais avec un angle de β toujours par rapport au miroir M2.

D'après le schéma de la figure 95, les longueurs optiques des cavités signal (L_s) et complémentaire (L_c) sont telles que :

$$L_s = n_s \times L_{cri} + e2$$
$$L_c = e1 + n_c \times L_{cri} + e2 \qquad \text{Éq. 22}$$

Où n_j représente l'indice de réfraction du cristal à la longueur d'onde j et L_{cri} la longueur physique du cristal. Dans cette configuration une variation δx de la position du prisme induit pour chacune des longueurs optiques de cavité les variations suivantes :

$$\delta L_s = -\delta x\,(n_s - 1)\tan(\alpha) + \delta x \tan(\beta)$$
$$\delta L_c = -\delta x\,(n_c - 1)\tan(\alpha) \qquad \text{Éq. 23}$$

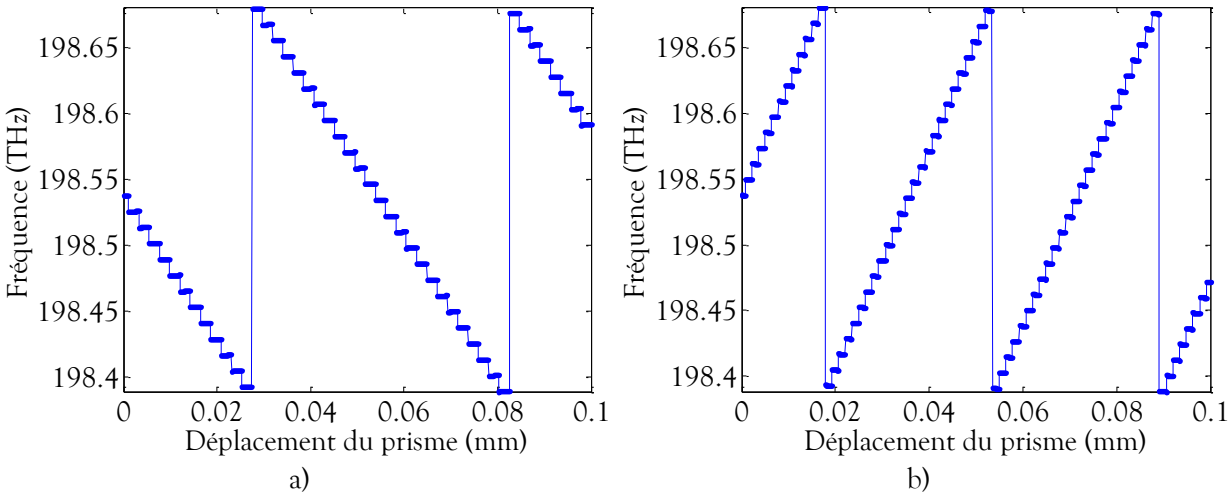
Toute la flexibilité de cette technique est ici mise en évidence par le terme « δx tan(β) » de l'équation Éq. 23. En effet, la cavité complémentaire n'est pas sensible à l'angle β au contraire de la cavité signal qui ne dépend que de « e2 ».

Cela montre que l'angle de déplacement du prisme β permet de contrôler la variation de longueur des deux cavités indépendamment l'une de l'autre. Par conséquent, le déplacement de chacun des peignes de fréquences est particulièrement souple. L'accord fréquentiel est donc fortement modulable.

Le paragraphe suivant présente des simulations permettant de comprendre le potentiel et la polyvalence de cette technique.

iii. Simulations de balayage

Les figures 96 a) et b) présentent les modes du peigne signal émis lors d'un déplacement transverse du cristal de seulement 100 µm pour deux angles β de 0 (a)) et 2° (b)) tandis que α est de 0,5°.



Figures 96 : Simulation de succession de sauts de modes du peigne signal pour un déplacement transverse du prisme de 0,1 mm et un angle de déplacement β de a) 0 et b) 2°.

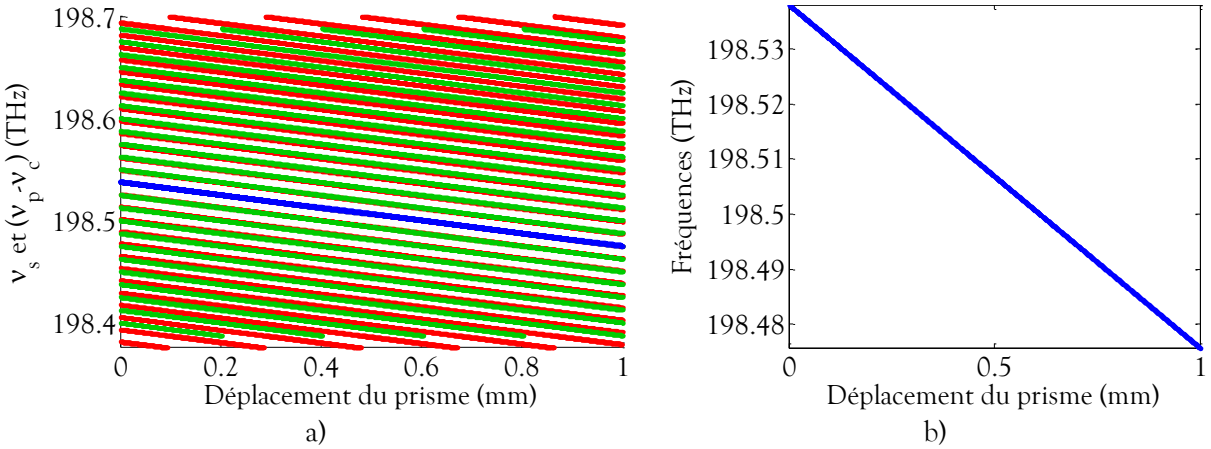
Le tableau 6 récapitule les paramètres utilisés pour les simulations de cette partie :

Longueur d'onde pompe	λ_p = 1,0644 µm
Longueur d'onde signal (à l'accord de phase)	λ_{s0} = 1,51 µm
Longueur du cristal	L_{cri} = 4 mm
Longueur optique initiale (cavité signal / complémentaire)	L_{s0} = 12 mm / L_{c0} = 12,5 mm
Largeur bande de gain	300 GHz (10 cm $^{-1}$)
Angle du prisme (α)	0,5°
Amplitude de déplacement (δx)	100 µm

Tableau 6 : Paramètres définis pour les simulations des figures 96, 97 et 101

Les deux figures 96 a) et b) mettent en évidence la grande dépendance de la figure de sauts de modes à l'angle de déplacement (β). En effet, sur la figure 96 a) la fréquence émise décroît lorsque le prisme se déplace. Au contraire, sur la figure 96 b) elle augmente, avec une valeur absolue de pente plus importante. Lors de la simulation, si nous faisons varier « continûment » β de 0 à 2° degrés, la valeur absolue de la pente va progressivement diminuer, jusqu'à atteindre une valeur β_0 où la pente va alors s'inverser et augmenter progressivement.

Quand le prisme se déplace exactement à l'angle β_0, le balayage devient continu. L'OPO reste sur la même coïncidence de modes, les peignes fréquentiels signal et complémentaire se déplacent exactement en sens inverse pour respecter la loi de conservation de l'énergie comme le montre la figure 97.



Figures 97 : a) Décalage fréquentiel des peignes de modes signal (vert) et complémentaire (rouge) lors du déplacement transverse du prisme. L'angle de déplacement du prisme β est de 0,786° ce qui permet de maintenir la même coïncidence (bleue) au cours du balayage. b) Zoom sur le mode balayé continûment.

Cette figure présente trois types de courbes, des vertes, des rouges et une bleue. Chaque courbe verte représente le décalage fréquentiel d'un mode du peigne signal au cours du déplacement du prisme. Ainsi, le réseau de courbes vertes représente l'ensemble des modes du peigne signal contenus dans la bande de gain paramétrique.

De même pour les courbes rouge vis-à-vis du complémentaire. Pour faciliter la visualisation de la conservation de l'énergie, ce sont les fréquences (ν_p – ν_c) qui sont représentées sur la figure, de la même façon que pour les diagrammes de Giordmaine et Miller.

Pour dresser un premier bilan avant d'aller plus loin dans les simulations, nous pouvons remarquer que l'angle « β » est le paramètre clé du balayage par déplacement transverse du cristal prismatique. En effet, il permet de contrôler le décalage relatif d'un peigne fréquentiel par rapport à l'autre et donc la figure de sauts de modes. Le cas particulier du balayage continu peut même être ainsi obtenu.

b. Proposition d'une nouvelle architecture de cavité pour un accord fréquentiel par déplacement transverse du cristal non linéaire

Les paragraphes précédents ont permis de présenter le principe de fonctionnement de cette toute nouvelle méthode d'accord en fréquence. Nous pouvons maintenant donner plus de détail sur son fonctionnement et ainsi montrer son potentiel à allier la dynamique d'un balayage par température et la capacité de contrôle des modes émis du balayage par déplacement longitudinal des miroirs. Pour cela nous proposons une configuration innovante pour le NesCOPO, qui a par ailleurs fait l'objet d'un dépôt de brevet.

i. Contraintes sur le cristal non linéaire

Comme nous l'avons vu au début de ce chapitre, un déplacement transverse du cristal implique une modification de la phase relative. Cela conduit à passer par des zones où la bande de gain paramétrique présente deux lobes séparés. La bande de gain étant alors beaucoup plus large que dans le cas monolobe, la dissociation des cavités risque fortement de ne pas être compatible avec un fonctionnement monomode.

Pour pouvoir exploiter cette nouvelle technique, cela suppose donc d'aller plus loin avec l'architecture de sorte qu'elle garantisse un contrôle de la phase relative qui reste achromatique, mais qui soit aussi indépendant de la position transverse du cristal.

Pour cela, il faut que la face antireflet soit parallèle au dernier domaine ferroélectrique du cristal non linéaire. Idéalement, le polissage doit être fait exactement à la frontière entre deux domaines de polarisation du cristal (Chapitre 2.I.B.3) comme l'illustre la figure 98.

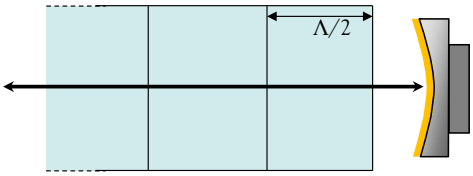


Figure 98 : Troncature du cristal non linéaire parallèlement au dernier domaine ferroélectrique.

Le polissage de la face arrière du cristal parallèlement au dernier domaine semble réalisable techniquement. D'autant que le parallélisme doit juste garantir une bande de gain paramétrique à un lobe sur la plage de déplacement du cristal (quelques millimètres).

Par contre, polir l'extrémité du cristal exactement au bon endroit semble plus délicat. Cependant, la phase relative peut être corrigée avant son retour dans le cristal. Comme nous l'avons vu, cela pourrait se faire par l'intermédiaire de miroirs diélectriques multicouches (Chapitre 2.I.B.1).

Dans la suite de cette partie, nous supposerons toujours que la bande de gain paramétrique ne présente qu'un seul lobe quelle que soit la position transverse du cristal.

ii. Plage d'accord fréquentiel, utilisation d'un cristal non linéaire périodiquement retourné à pas variable

Ce qui permet une grande dynamique d'accord en fréquence lors d'un balayage par température, c'est la variation de la condition d'accord de phase. La bande de gain se décale sur l'axe spectral au cours du balayage.

L'utilisation d'un cristal à pas variable ou en éventail (dit *fan-out* en anglais, schématisé sur la figure 99) permet de modifier la condition d'accord de phase pour cette nouvelle méthode.

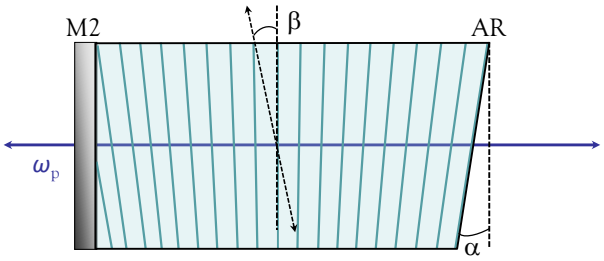
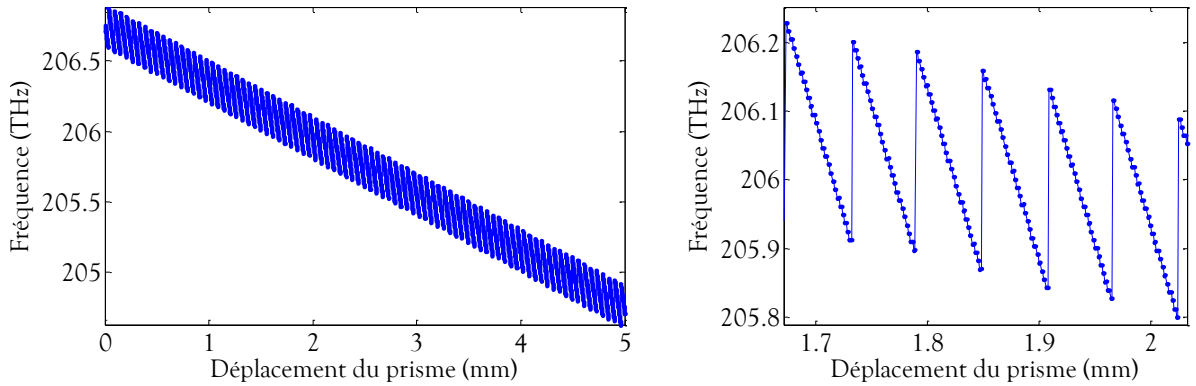


Figure 99 : Schéma d'un cristal non linéaire dont le réseau est de type *fan-out*, le pas varie selon l'axe transverse du cristal.

L'utilisation d'un tel cristal permet alors d'augmenter considérablement la dynamique du balayage. Ainsi, un balayage sur plus de 5 THz est réalisable en utilisant un cristal dont la période du réseau varie selon l'axe transverse de 28,37 à 29,04 µm (Éq. 19), comme le montre la simulation des figures 100 a) et b).



Figures 100 : Mise en évidence théorique du décalage de l'accord de phase lors du balayage par déplacement transverse d'un cristal non linéaire possédant un réseau de type *fan-out* a) et zoom sur les sauts de modes réalisés b).

Bien entendu, quand le balayage devient trop grand des paramètres jusque-là négligés sont alors à prendre en compte. Nous en discutons par la suite (Chapitre 3.III.B.2.c).

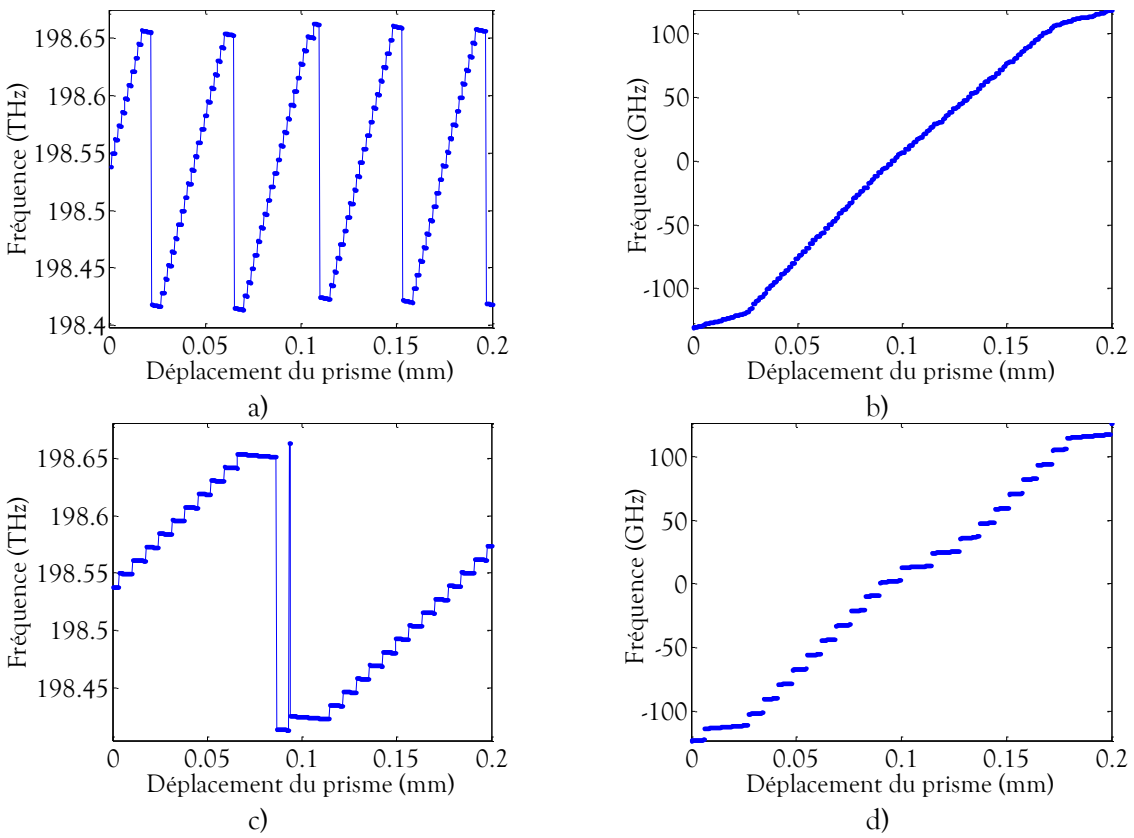
iii. Contrôle de la résolution fréquentielle du balayage par déplacement du cristal non linéaire

Nous venons de voir que l'utilisation d'un cristal *fan-out* permettait d'obtenir des plages d'accord fréquentiel supérieures au balayage par température. Nous allons voir ici comment il est possible de contrôler la résolution de la mesure.

Le système d'équations Éq. 23 montre que le seul paramètre permettant de changer la pente du décalage fréquentiel du peigne complémentaire, en fonction de la position du transverse du cristal, est α, c'est-à-dire la valeur de l'angle entre le miroir M2 et l'antireflet (figure 99). Par conséquent, une fois taillé, il n'est plus possible d'ajuster la variation du peigne fréquentiel en fonction du déplacement du cristal.

La figure de sauts de modes dépend alors uniquement de l'angle β permettant d'affecter la pente du peigne signal.

Plus la valeur absolue de la pente du peigne signal est forte (relativement à celle du complémentaire) plus le nombre de modes émis augmente pour un déplacement du cristal donné. Il faut donc s'intéresser à la valeur $|\beta - \beta_0|$, où β_0 est l'angle de déplacement du cristal où les pentes des peignes signal et complémentaire sont strictement symétriques vis-à-vis de la dégénérescence (voir figure 97).



Figures 101 : Succession de sauts de modes (a) et c)) du peigne signal pour un déplacement transverse du prisme de 0,2 mm et un angle de déplacement ($\beta - \beta_0$) de 1° a)-b) et 0,25° c)-d). Les figures b) et d) représentent les modes émis triés par ordre croissant, mettant en évidence la résolution des balayages a) et c), respectivement.

Ainsi, si une mesure précise est nécessaire, il est possible de balayer plus lentement le cristal avec un angle $|\beta - \beta_0|$ important afin de multiplier les longueurs d'onde émises. Au contraire, une mesure d'une large plage spectrale pourra être réalisée très rapidement avec peu de modes émis.

c. Avantages et limites du balayage TTC

Après avoir montré le potentiel de cette technique de balayage propre à notre nouvelle architecture, nous revenons ici sur ses limites intrinsèques. Puis, nous détaillons les avantages attendus qui justifient une étude expérimentale.

i. Une plage spectrale sans limite de largeur ?

Lorsque nous avons introduit cette nouvelle technique, nous avons vu qu'elle nécessitait de maîtriser la phase relative sur toute la largeur du cristal.

Mise à part cette difficulté technologique, la méthode n'a pas vraiment de limites si ce n'est la plage de transparence du cristal non linéaire.

En effet, bien que les paramètres listés ci-après puissent varier fortement lorsque la plage d'accord devient importante, ils peuvent être pris en compte avant la mesure.

- La largeur de la bande de gain paramétrique : en type 0, elle s'élargit considérablement à l'approche de la dégénérescence. Il faut donc s'assurer que l'OPO est monomode même lorsque la largeur de la bande de gain est à sa plus grande valeur. Ainsi, des balayages de plus de 10 THz peuvent être réalisés, si l'OPO émet loin de la dégénérescence ou bien si nous nous plaçons en accord de phase de type 2.
- La variation des longueurs de cavité : si les longueurs varient trop, la différentiation des cavités change et c'est encore la pureté spectrale qui doit être remise en cause. Mais c'est aussi la figure de sauts de modes qui est fortement modifiée.
- La dispersion du cristal non linéaire induit une variation des indices de réfraction qui modifie aussi la figure de sauts de modes.

Finalement, cette technique reste à être expérimentée et validée. En effet, nous ne connaissons pas sa sensibilité aux perturbations telles que des défauts de surface du cristal par exemple.

Nous ne connaissons pas non plus sa reproductibilité. Par conséquent, elle dépend toujours *a priori* d'un système de mesure de la longueur d'onde en temps réel.

ii. *Rapidité, stabilité, polyvalence : une nouvelle façon de concevoir l'accord en fréquence*

Outre le potentiel démontré en balayage fréquentiel, cette nouvelle méthode permet de coller les miroirs, laissant le cristal non linéaire être la seule partie mobile de la source. Cela promet un gain conséquent vis-à-vis de la stabilité fréquentielle de l'impulsion. La compacité de la source pourra aussi être améliorée. En effet, toute la mécanique nécessaire aux cales piézoélectriques n'aura plus lieu d'être.

De plus, déplacer le prisme transversalement permet d'être beaucoup moins contraint sur la résolution du déplacement. En effet, expérimentalement nous avons vu qu'un déplacement de 15 nm suffisait au miroir M3 pour changer de coïncidence de modes. Or, théoriquement, il faut 1,6 µm au prisme pour changer de mode (pour la simulation de la figure 101 a)). Cela permet donc de ne plus utiliser de transducteurs piézoélectriques dont nous avons vu que la non linéarité pouvait poser problème au profit de platines motorisées [SmarAct '11]. Nous gagnons ainsi en dynamique et en résolution (relativement aux effets du déplacement de la partie mobile).

Pour conclure sur cette nouvelle technique, cette dernière pourrait même permettre de se passer du lambdamètre dans le cas où un balayage continu serait réalisable et reproductible. Nous avons vu que pour un certain angle β_0, une même coïncidence de mode pouvait être maintenue lors du déplacement du prisme (voir figure 97 et figure 102).

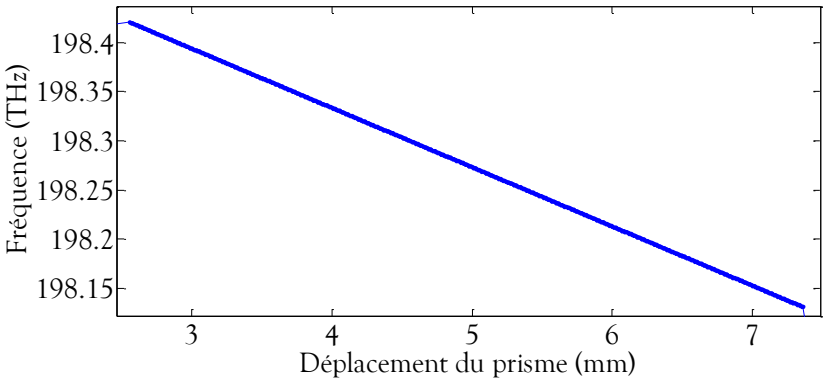


Figure 102 : Simulation d'un balayage continu sur 300 GHz pour un angle β_0 = 0,7829°.

Cependant, ce cas particulier est beaucoup plus sensible aux paramètres énoncés précédemment (Chapitre 3.III.B.2.c.i), limitant *a priori* la plage balayée. Néanmoins, l'utilisation d'un laser accordable voire l'ajustement de la longueur du cristal par effet électro-optique devrait alors permettre d'augmenter la dynamique.

C. Bilan sur les balayages par effet Vernier

Les paragraphes précédents ont mis en évidence la rupture technologique induite par notre nouvelle source Dropo à contrôle achromatique de la phase. Le degré de liberté supplémentaire qu'apporte cette architecture a permis de concevoir de nouveaux modes d'accord en fréquence.

Trois nouvelles techniques ont ainsi été présentées :

- le balayage par translation longitudinale des miroirs de cavité (TLM) ;
- le balayage par variation de température du cristal non linéaire ;
- le balayage par translation transverse du cristal non linéaire (TTC).

La première technique expérimentée avec succès (Chapitre 4.II), nous permet de nous passer du miro Fabry-Perot fibré et d'optimiser le balayage de la mesure à réaliser.

Cette technique est particulièrement efficace pour des plages d'accords fréquentiels inférieures ou égales à la largeur de la bande de gain.

Le balayage par température a permis de rapidement étendre la plage de balayage à plusieurs térahertz. Malgré cette grande dynamique, la résolution reste précise (< GHz).

Enfin, le balayage par translation transverse du cristal non linéaire promet une vitesse de balayage augmentée, une dynamique encore plus grande et dans le même temps une résolution paramétrable par l'angle de déplacement du cristal. De plus, la stabilité de la source peut ainsi être grandement améliorée en supprimant les transducteurs piézoélectriques et ainsi fixer les miroirs M1 et M3.

En dernier lieu, cette technique pourrait même permettre de se passer d'un contrôle en temps réel de la longueur d'onde en conservant la même coïncidence de modes au cours du balayage.

IV. Façonnage de la bande de gain et oscillation bimode

La première partie de ce chapitre a permis de prouver expérimentalement la capacité de la nouvelle architecture à façonner la bande de gain paramétrique. Nous avons ainsi pu voir deux modes de fonctionnement suivant que la bande de gain présente un ou deux lobes.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons pu voir l'apport d'une bande de gain affinée par un fonctionnement monolobe sur la maîtrise du contenu spectral de l'OPO. Nous avons pu démontrer la mise en place expérimentale d'une oscillation monomode stable. Puis, dans une troisième partie, nous avons étudié de nouvelles méthodes d'accord en fréquence spécifiques à notre architecture.

Dans cette quatrième partie, nous nous proposons d'étudier les possibilités offertes par une bande de gain paramétrique à deux lobes. Nous allons étudier la possibilité d'être monomode stable dans chacun des lobes de la bande de gain. Autrement dit, nous allons rechercher à émettre de façon bimode stable.

Dans un premier temps, nous revenons rapidement sur un intérêt particulier de ce type d'oscillation, à savoir la génération de fréquences térahertz.

Dans deuxième temps, nous étudions et définissons la configuration expérimentale permettant d'arriver à une oscillation bimode stable.

Enfin, nous caractérisons ce tout nouveau mode de fonctionnement pour déterminer ses perspectives d'utilisation.

A. Le NesCOPO, vers une nouvelle source de rayonnement térahertz ?

Nous avons vu que notre Dropo pouvait émettre dans une bande de gain paramétrique séparée en deux lobes dont les maxima sont séparés d'environ 1 THz. Si l'OPO est capable d'être monomode simultanément dans chacun des lobes, par différence de fréquence, il doit être possible de générer des ondes térahertz.

Par ailleurs, la génération de rayonnement térahertz fait actuellement l'objet d'un engouement particulier, pour de nombreuses applications. Dans le domaine de la santé, par exemple, les ondes térahertz peuvent permettre d'étudier en profondeur les tissus biologiques, tout en évitant les effets indésirables des rayons X liés à leur très haute énergie [Humphreys '04].

Cette capacité à sonder la matière peut aussi s'avérer déterminante en sécurité [Chan '07], pour la détection d'objets dangereux, par exemple dans les aéroports. De plus, cette imagerie térahertz peut aussi servir en caractérisation des matériaux, notamment dans les chaînes de montage pour du contrôle qualité [Nguyen '06].

D'autre part, ces ondes térahertz pourraient aussi augmenter sensiblement la bande passante pour les télécommunications en servant de porteuses à haute fréquence [Kleine-Ostmann '04].

Bien que les applications soient très nombreuses, l'engouement pour de telles sources reste assez récent. Il n'existe donc pas encore à l'heure actuelle de technologie totalement mature pour la réalisation de sources à la fois compactes, fiables et à faible coût de production.

Dans un premier temps, nous devons démontrer que l'émission du NesCOPO respecte deux caractéristiques essentielles. Premièrement, l'OPO doit pouvoir émettre un rayonnement bimode stable. Deuxièmement, pour pouvoir être utilisés, les modes doivent être émis simultanément, avec une répartition d'énergie du même ordre de grandeur à chaque impulsion du laser de pompe.

C'est ce que nous nous proposons d'étudier dans les deux parties suivantes.

B. Obtention d'une oscillation bimode stable à l'aide du NesCOPO

L'objectif de cette partie est de déterminer s'il est possible que le Dropo à maintien de phase achromatique émette sur deux couples de modes signal-complémentaire, un dans chaque lobe, de façon stable.

1. Approche théorique de l'oscillation bimode

a. Introduction à l'oscillation bimode dans un Dropo dont la bande de gain présente deux lobes séparés

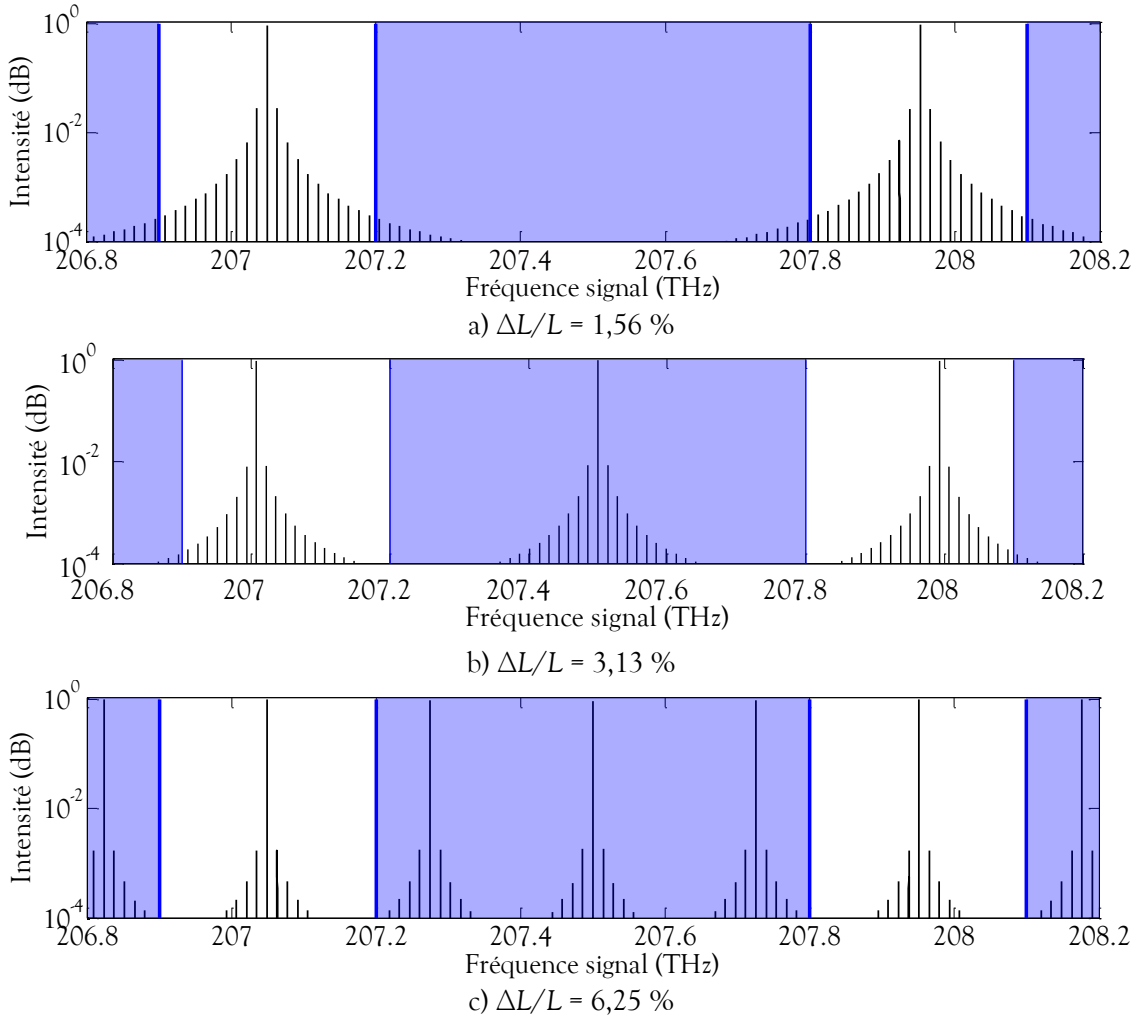
Précédemment, nous avons vu comment en ajustant les longueurs respectives des cavités une oscillation monomode stable dans une bande de gain à un lobe est réalisable (Chapitre 1.II.B.2.b). Dans cette configuration, il faut s'assurer qu'une unique coïncidence de mode oscille dans la bande de gain. Nous avons vu que deux phénomènes susceptibles de rendre l'OPO multimode encadraient la configuration adéquate. Il s'agit, d'une part, de la présence de plusieurs coïncidences exactes au sein de la bande de gain due à des cavités trop dissociées et, d'autre part, de l'oscillation des modes voisins de la coïncidence principale due à des cavités trop peu dissociées.

Dans le cas d'un fonctionnement bimode, les mêmes difficultés se présentent, auxquelles s'ajoutent deux nouvelles problématiques : il faut gérer l'équivalent de deux bandes de gain monolobes et le domaine fréquentiel est trois à quatre fois plus large.

Les figures 103 a), b) et c) schématisent différentes configurations de dissociation de cavités permettant une oscillation bimode. Pour réaliser ces figures, nous calculons les positions des modes signal et complémentaire sur l'axe fréquentiel en fonction des paramètres de la cavité. Pour le calcul, les modes sont modélisés par des lorentziennes (voir Chapitre 1.II.B.2.b.iii) dont la largeur dépend de la finesse des cavités et de la largeur de l'intervalle spectral libre (*ISL*).

Les courbes représentent le produit des intensités des modes signal avec celles du peigne de modes complémentaire. Un calcul des intégrales de recouvrement aurait été plus rigoureux, mais il ralentit fortement la simulation. De plus, il n'est pas nécessaire pour simplement mettre en évidence les coïncidences exactes.

Enfin, les lobes de la bande de gain paramétrique sont choisis larges de 300 GHz et distants pic à pic de 900 GHz.



Figures 103 : Positions des coïncidences exactes pour trois dissociations de cavités. Les zones blanches représentent les lobes de la bande de gain, en dehors (en bleu) le gain est trop faible pour permettre l'oscillation.

Les figures 103 a), b) et c) présentent trois dissociations de cavité ($\Delta L/L$) permettant théoriquement d'obtenir une oscillation monomode dans chacun des lobes. L'OPO serait alors bimode. La figure 103 a) correspond à une dissociation très faible. L'intervalle spectral entre deux coïncidences exactes est alors égal à la distance pic à pic entre les deux lobes de la bande de gain paramétrique. La figure 103 b) présente une autre configuration possible avec la présence d'une coïncidence exacte entre les deux lobes de la bande de gain. Comme le gain doit y être nul, l'OPO doit donc bien être bimode. La figure 103 c) va plus loin encore et montre trois coïncidences exactes entre les lobes.

Le cas de la figure 103 a) a cependant dû être écarté en raison de la trop faible dissociation qu'il exige. Premièrement, elle est très difficile à obtenir mécaniquement, le miroir M1 devant être particulièrement proche du cristal. Deuxièmement, elle facilite trop l'oscillation des modes voisins.

De même, le cas de la figure 103 c) ne sera pas propice à un fonctionnement stable. En effet, comme nous le verrons dans la suite de cette partie, les lobes de la bande de gain expérimentale ne sont pas des fonctions « portes » idéales. Dès lors, la multiplicité des

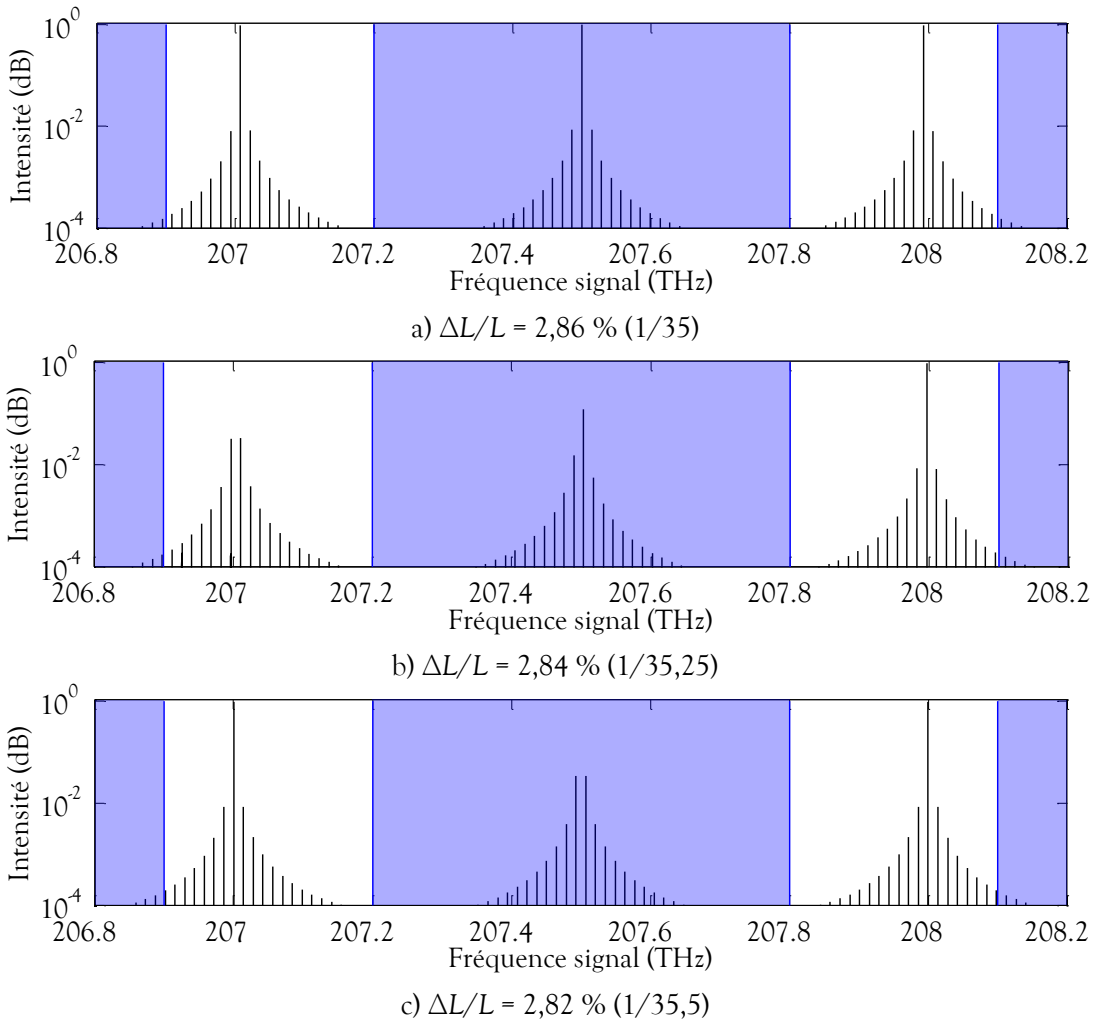
coïncidences exactes ne permettra pas de garantir une bonne maîtrise du contenu spectral de l'OPO.

Le schéma de principe de la figure 103 b) est donc celui retenu pour les expériences. Nous observons alors qu'entre deux coïncidences exactes « utiles » (localisées dans une zone à gain), il existe une autre coïncidence. Comme nous le détaillons dans la suite, cela à des conséquences importantes sur le choix de la dissociation des cavités.

b. Contrôle de la dissociation des cavités pour la mise en place d'une oscillation bimode

i. Effet d'une variation faible de la dissociation sur le recouvrement des modes

La configuration de la figure 103 b), rappelée en figure 104 a), correspond au cas particulier d'une dissociation d'environ 2,86 % ou exactement 1/35. Cela signifie que 35 modes séparent deux coïncidences exactes (voir Chapitre 1.II.B.2.b)). Si la dissociation varie légèrement à 1/35,25 puis à 1/35,5, nous obtenons les configurations des figures 104 b) et c).



Figures 104 : Positions des coïncidences exactes pour trois dissociations de cavités très rapprochées. Les configurations a) et c) sont favorables à l'obtention d'une oscillation bimode.

La figure 104 c) correspond donc aussi à une configuration bimode stable. Elle correspond au cas de l'hyperbole « g = 2 » (voir figure 20). Pour rappel, il y a coïncidence exacte si et seulement si $\Delta L/L = g/n$ où g et n sont des entiers premiers entre eux. La configuration de la figure 104 c) correspond à $\Delta L/L = 1/35{,}5 = 2/71$, où 2 et 71 sont bien premiers entre eux.

ii. Choix d'une plage de dissociation des cavités pour la mise en place d'une oscillation bimode

Dans le cas monolobe, il est possible de déterminer les différenciations de cavité favorables à une oscillation monomode (Chapitre 1.II.B.2.b.iii). Nous pouvons adapter cette méthode au cas bimode.

La figure 105 correspond ainsi à une adaptation de la figure 22 au cas bimode d'une configuration du type de la figure 103 a).

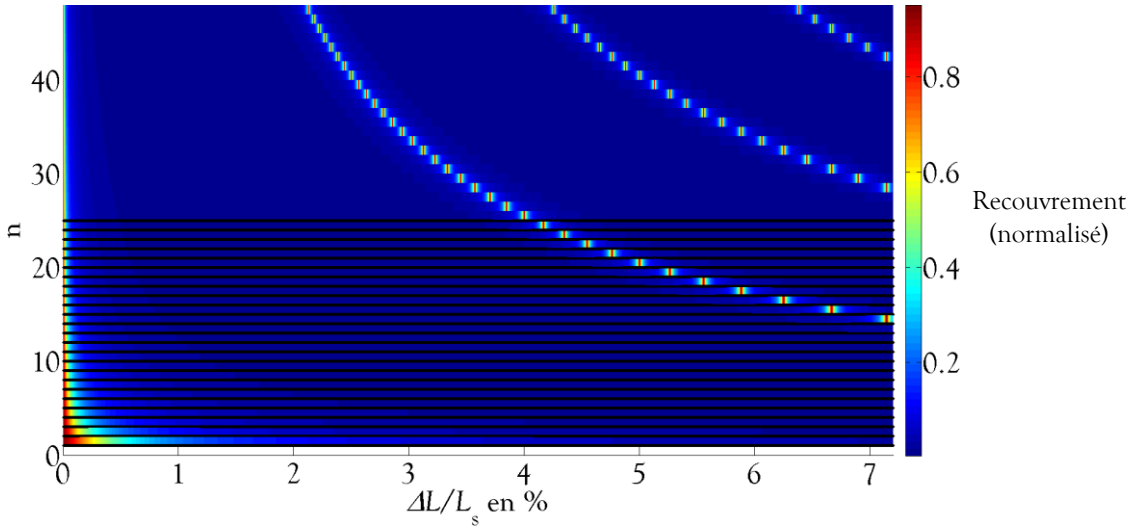


Figure 105 : Intégrales de recouvrement autour des coïncidences exactes pour des finesses de cavités F_s = 313 (signal) et F_c = 250 (complémentaire). La partie hachurée correspond à la demi-zone interlobe supposée sans gain.

Pour cette figure 105, nous avons simulé les configurations des figures 103 b) et c) (avec une coïncidence exacte au centre de la zone sans gain) en ne représentant que la moitié de l'axe spectral. Les courbes étant symétriques par rapport à la coïncidence exacte centrale qui correspond à n = 0. Comme nous pouvons le voir, la demi-largeur de la zone interlobe est de 22 sauts de modes signal (partie hachurée) soit environ 300 GHz. La distance entre les pics des deux lobes est de 900 GHz pour une largeur de lobes de 300 GHz. Cela laisse donc bien un espace entre les lobes de 600 GHz sans gain.

Cependant, il convient aussi de prendre en compte la configuration de la figure 104 c), où il n'y a pas de recouvrement maximal dans la zone interlobe sans gain. La figure 106 correspond à cette configuration.

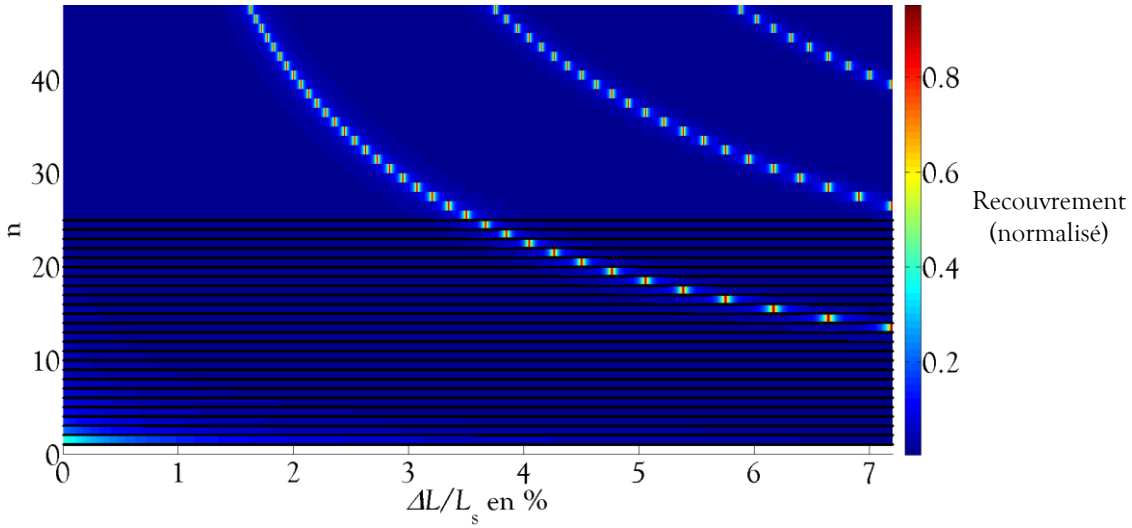


Figure 106 : Intégrales de recouvrement autour des coïncidences exactes pour des finesses de cavités F_s = 313 (signal) et F_c = 250 (complémentaire). La partie hachurée correspond à la demi-zone interlobe supposée sans gain.

Sur la figure 106, nous observons que dans le cas où la dissociation est nulle, il n'y a pas de recouvrement maximal. En effet, les deux peignes signal et complémentaire sont alors décalés d'un demi-ISL l'un de l'autre.

De manière analogue à ce que nous avons fait dans le cas monolobe, nous pouvons dans un premier temps projeter les deux figures précédentes sur l'axe des abscisses. Nous obtenons alors la figure 107, pour une dissociation de cavité comprise entre 2 et 4,1 %, ce qui correspond aux configurations des figures 104 a), b et c).

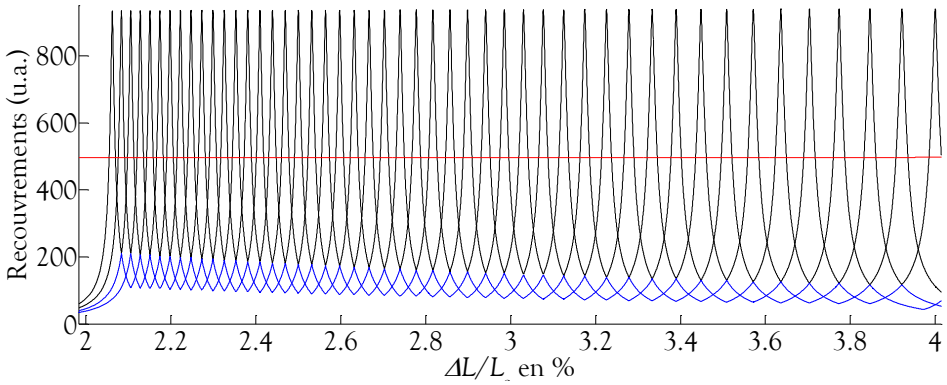


Figure 107 : Mise en évidence des zones bimodes stables en fonction de la dissociation des cavités. La courbe rouge correspond au recouvrement minimal pour osciller [Eckardt '91]. La courbe noire correspond au recouvrement maximal dans le lobe de la bande de gain considéré et la bleue le second maximum.

La figure ci-dessus présente trois courbes. La courbe rouge représente le recouvrement minimal entre un mode signal et un mode complémentaire permettant l'oscillation (comme dans le cas monomode). La courbe noire représente le recouvrement maximal dans la zone à gain, pour une dissociation donnée. La courbe bleue représente le deuxième recouvrement maximal dans la zone à gain.

C'est-à-dire que pour être au moins bimode, il faut que la courbe noire soit au-dessus de la courbe rouge. Cela montre qu'il y a une coïncidence dans le lobe. Par symétrie, l'autre lobe non représenté possède la même coïncidence. Mais, il faut, dans le même temps, que la courbe bleue soit en dessous de la courbe rouge. Cela montre qu'il n'y a pas d'autre couple de modes susceptibles d'osciller.

2. Approche expérimentale de l'oscillation bimode

La partie précédente a permis de présenter schématiquement les conditions pour être bimode. Nous avons surtout présenté comment les peignes de modes signal et complémentaire devaient être ajustés l'un par rapport à l'autre. Cependant, la mise en place expérimentale s'est avérée, en pratique, plus délicate que d'avoir à simplement respecter la condition suivante $2{,}2 < \Delta L/L < 4{,}5$ %.

a. Effet de la finesse des cavités sur la pureté spectrale de l'émission

En effet, lorsque l'OPO fonctionnait pour une émission monomode, le miroir M1 (coupleur) avait une réflectivité de 72 % à la longueur complémentaire. La finesse de la cavité était alors d'environ 19. Avec une telle finesse, la figure 107 devient (figure 108) :

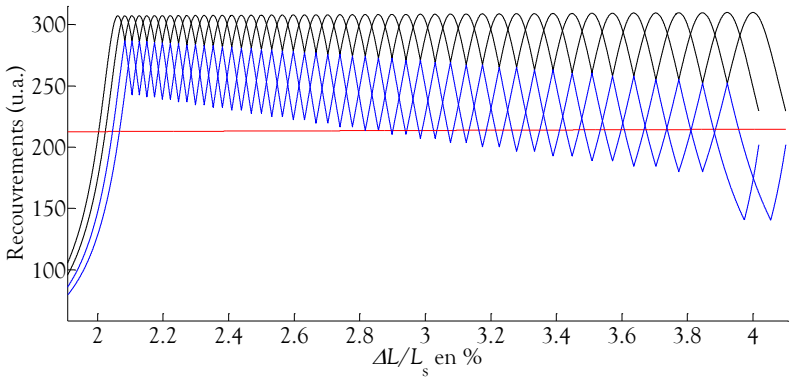
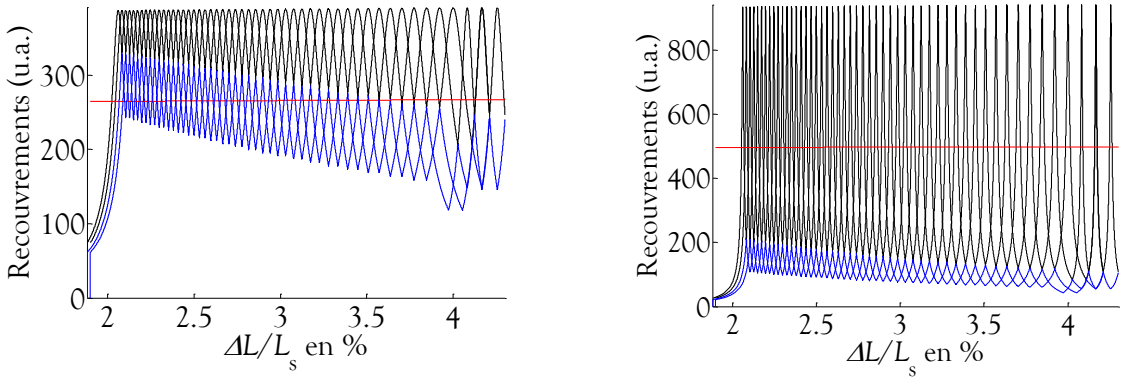


Figure 108 : Mise en évidence de l'effet de la finesse de la cavité complémentaire sur le recouvrement des modes secondaires (F_s = 312 et F_c = 19).

Avec une telle finesse pour la cavité complémentaire, il ne semble donc pas possible d'être bimode du fait d'une dissociation trop faible, cela a été confirmé expérimentalement. Des dissociations plus importantes correspondant à la configuration de la figure 103 c) ont aussi été expérimentées sans succès, l'OPO étant fortement multimode quelle que soit la dissociation.

Pour cela, nous avons approvisionné des miroirs de plus grande réflectivité à 80-85 % (figure 109 a)) mais qui n'ont pas non plus permis d'obtenir une émission bimode stable. Nous avons alors utilisé des miroirs réfléchissants à 98,5 % disponibles au laboratoire.



a) R = 82 %, F_c = 30 b) R = 98,5 %, F_c = 250

Figures 109 : Rejet des seconds modes pour deux réflectivités du miroir M1 différentes.

Avec ces derniers nous avons pu travailler dans la configuration des figures 104 a) b) et c). Cela nous a permis de ne pas être perturbés par des coïncidences exactes trop proches. Ce que nous observons dans la zone 2. Et dans le même temps, les modes voisins ne perturbaient pas l'oscillation même lorsque la dissociation s'approchait des 2 %.

b. Effet d'une variation faible de la dissociation sur le recouvrement des modes

La réelle difficulté de l'obtention d'une oscillation bimode est finalement de bien respecter la condition définie lors de l'approche théorique : la courbe noire au-dessus de la courbe rouge et la courbe bleue en dessous.

Afin d'illustrer cette difficulté, la figure 110 présente un zoom de la figure 109 b) autour de $\Delta L/L$ = 2,82 %.

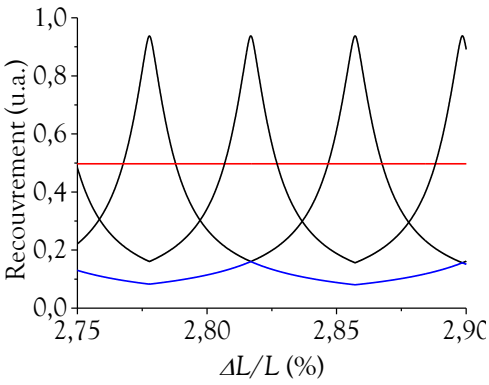
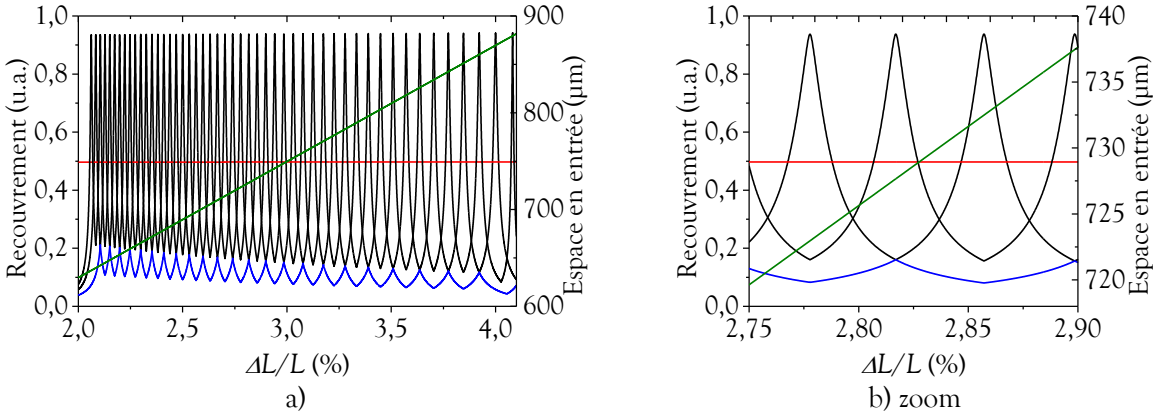


Figure 110 : Mise en évidence de la discrétisation des dissociations de cavité permettant une oscillation bimode stable.

Nous observons que la courbe noire n'est pas systématiquement au-dessus de la courbe rouge, mais seulement à proximité de certains points particuliers que nous avons évoqués précédemment. Pour la figure 110 il s'agit des cas où $\Delta L/L$ = 1/36 (≈ 2,78%) – 1/35,5 (≈ 2,82%) – 1/35 (≈ 2,86%) – 1/34,5 (≈ 2,90%) (voir aussi les figures 104 a), b) et c)).

Les conséquences expérimentales de cette forte sensibilité à une très faible variation de dissociation des cavités sont importantes. En effet, cela conduit à une très forte criticité du positionnement du miroir M1 par rapport au cristal. Pour illustrer cette difficulté, les figures

111 a) et b) présentent la variation de position du miroir M1 vis-à-vis des recouvrements des couples de modes en fonction de la dissociation des cavités.



Figures 111 : Influence de la position relative du miroir M1 vis-à-vis des pics de recouvrement, en fonction de la dissociation des cavités entre 2 et 4,1 % a) et entre 2,75 et 2,9 %. La courbe verte représente la distance entre le miroir M1 (coupleur) et le miroir M2 (face d'entrée du cristal).

Nous remarquons qu'une simple variation de 250 µm fait passer la dissociation de 2 à 4,1 % et donc 49 pics de recouvrement. De même, pour passer d'un pic de recouvrement au suivant autour de 2,82 %, un déplacement de 5 µm suffit.

La réalisation expérimentale de l'oscillation bimode demande donc une précision sur le positionnement des miroirs beaucoup plus importante que dans le cas monomode.

c. Contrôle de la dissociation des cavités

Les précédentes parties ont permis de mettre à jour deux besoins particuliers pour obtenir une oscillation bimode stable. Premièrement la finesse de la cavité complémentaire doit être augmentée. Pour cela, nous avons utilisé un miroir réfléchissant à 98,5 % à 4 µm. Deuxièmement, il faut un contrôle très précis de la dissociation des cavités.

Pour ce deuxième point, la question est de savoir si nous sommes capables d'obtenir une telle précision. Comme nous l'avons vu, expérimentalement, la dissociation se gère à l'aide de petites cales cylindriques dont les plus fines mesurent une centaine de micromètres (Chapitre 2.II.B.3). Elles ne permettent donc pas de s'ajuster précisément sur un pic de recouvrement.

De plus, il faut pouvoir mesurer cette dissociation. La méthode que nous avons développée ne fonctionne que dans le cas monolobe. Par conséquent, nous devons faire en premier lieu, une mesure de la dissociation dans le cas monolobe. Puis, nous translatons le cristal pour obtenir une bande de gain à deux lobes. Mais cela ne nous donne jamais une mesure suffisamment précise pour savoir si nous sommes ou non sur un pic de recouvrement.

Afin de contourner cette difficulté, nous avons utilisé un transducteur piézoélectrique, pour le miroir M1, possédant une course de 12 µm (contre 6 µm pour les transducteurs utilisés précédemment). Donc si la dissociation est proche de 2 – 3 %, il doit être possible avec la dynamique de la cale piézoélectrique de passer d'un pic de recouvrement à un autre et donc de trouver un point de fonctionnement. Nous pourrons alors vérifier à l'aide d'un analyseur de spectre optique si l'émission de l'OPO est bien bimode stable.

C. Démonstration et caractérisation d'une émission bimode stable

Comme le laissent penser les considérations précédentes, l'oscillation bimode a été particulièrement délicate à obtenir. Contrairement à l'oscillation monomode, il n'est pas possible de balayer au sein de chaque lobe un unique couple de modes. En effet, accorder la fréquence suppose de modifier les longueurs de cavité ce qui change soit la dissociation des cavités soit les *ISL* des deux cavités simultanément.

Néanmoins, il s'agit plutôt ici de trouver une configuration stable où l'OPO émet un unique couple de mode dans chacun des lobes.

1. Observation d'une oscillation bimode stable à l'aide d'un analyseur de spectre optique

Pour mettre en place une oscillation bimode stable, nous avons donc ajusté les cavités de sorte à obtenir une dissociation de l'ordre de 2,5 %. La figure 112 présente la figure de sauts de modes obtenue dans la configuration monolobe en pompant six fois au-dessus du seuil.

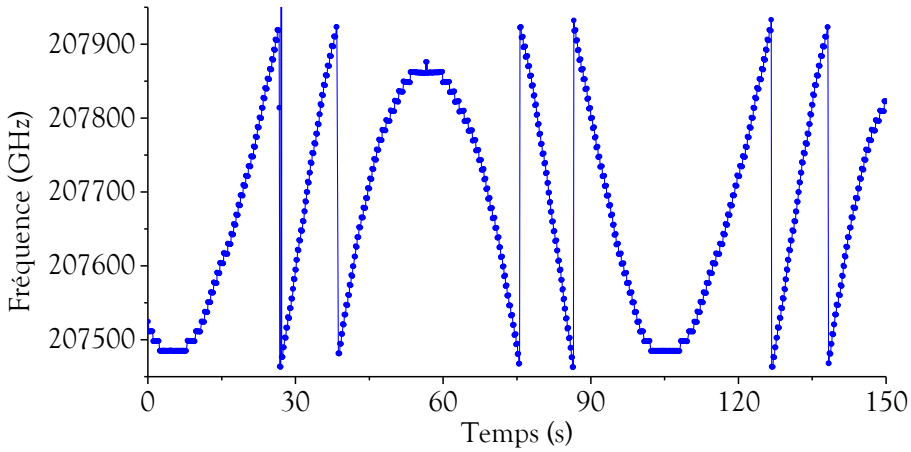
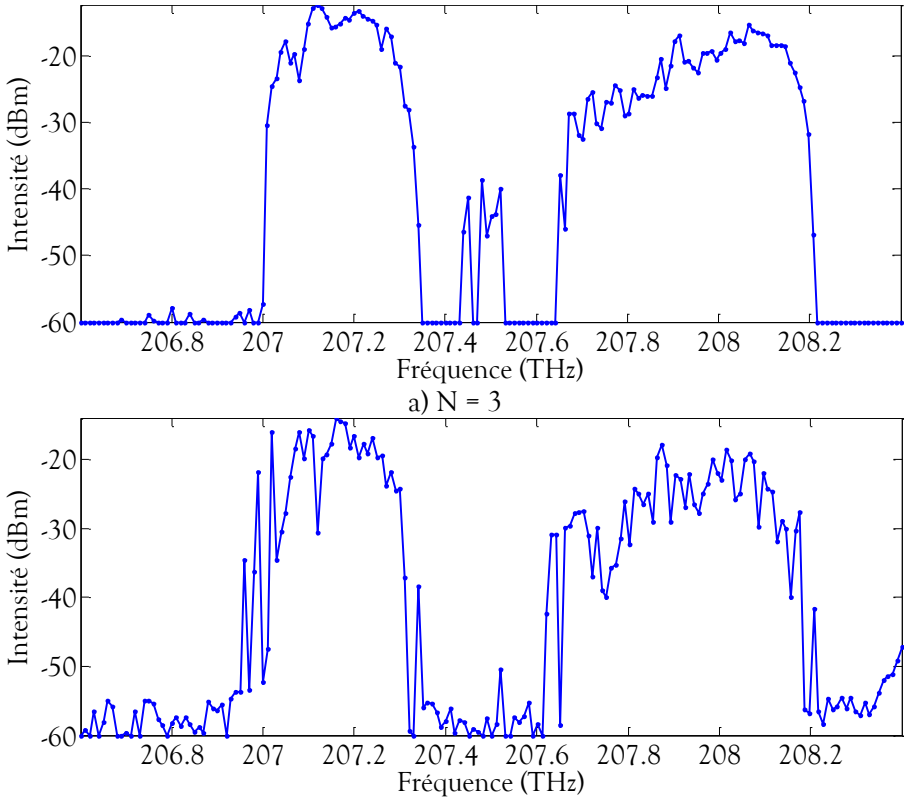


Figure 112 : Figure de sauts de modes pour des cavités très peu dissociées ($\Delta L/L$ < 2,9 %).

Nous remarquons que dans cette configuration l'OPO émet sur 35 modes consécutifs. Nous avons donc une dissociation inférieure à 1/35 et donc $\Delta L/L$ < 2,9 %.

Nous décalons alors le cristal perpendiculairement au faisceau pour se trouver à nouveau dans une configuration à deux lobes. Puis, nous observons le contenu spectral de l'OPO à l'aide d'un analyseur de spectre optique (Ando AQ6317B).

Il faut noter que les simulations présentées jusqu'ici supposaient une bande de gain idéale correspondant à deux créneaux symétriques sur l'axe fréquentiel. En réalité, les lobes ne sont pas aussi bien dessinés comme le montrent les figures 113 a) et b), obtenues en balayant rapidement les coïncidences de modes (Chapitre 3.I.A).



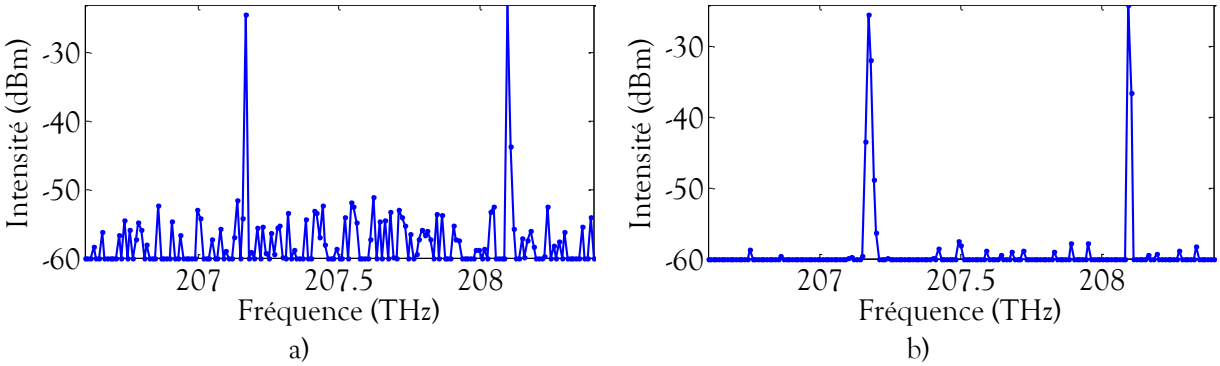
Figures 113 : Observation de la bande de gain expérimentale pour deux taux de pompage différents : a) 3 fois au-dessus du seuil d'oscillation et b) 2,5 fois au-dessus du seuil.

La figure 113 a) montre qu'un taux de pompage trop fort peut entraîner une oscillation même là où le gain est théoriquement très faible.

Une fois qu'une faible dissociation est obtenue et que le taux de pompage est bien ajusté, nous arrêtons la modulation rapide des cales piézoélectriques pour observer le contenu spectral de l'émission. Comme nous l'avons prévu, il n'a pas été possible d'obtenir une oscillation bimode sur l'ensemble de la bande de gain.

Nous avons observé un comportement erratique de l'émission de l'OPO. Parfois monomode, parfois multimode, mais aussi par moment bimode, suivant les tensions appliquées aux transducteurs piézoélectriques des miroirs M1 et M3. L'expérience est reproductible dans le sens où nous pouvons presque systématiquement trouver une émission bimode pour peu que la dissociation et le taux de pompage soient correctement ajustés.

Les figures 114 a) et b), présentent deux enregistrements consécutifs. Nous avons pu observer l'émission par l'OPO de deux mêmes modes pendant plusieurs minutes.



Figures 114 : Enregistrements du spectre de l'OPO en fonctionnement bimode stable.

2. Caractérisation temporelle de l'émission des modes

Les enregistrements obtenus à l'analyseur de spectre ne permettent pas de déterminer si les deux modes sont émis simultanément. En effet, à chaque mesure d'intensité l'analyseur intègre le signal émis par l'OPO pendant plusieurs centaines d'impulsions du laser de pompe.

Or nous avons vu au début de ce chapitre que l'objectif est de réaliser par exemple la différence de fréquence entre ces deux modes. Pour cela, il est nécessaire qu'à chaque impulsion, l'énergie soit équitablement répartie entre les deux modes.

Il reste donc à caractériser la façon dont les modes sont émis d'une impulsion à l'autre.

i. Mise en place expérimentale de la caractérisation temporelle de l'oscillation bimode

La figure 115 présente le schéma du montage expérimental.

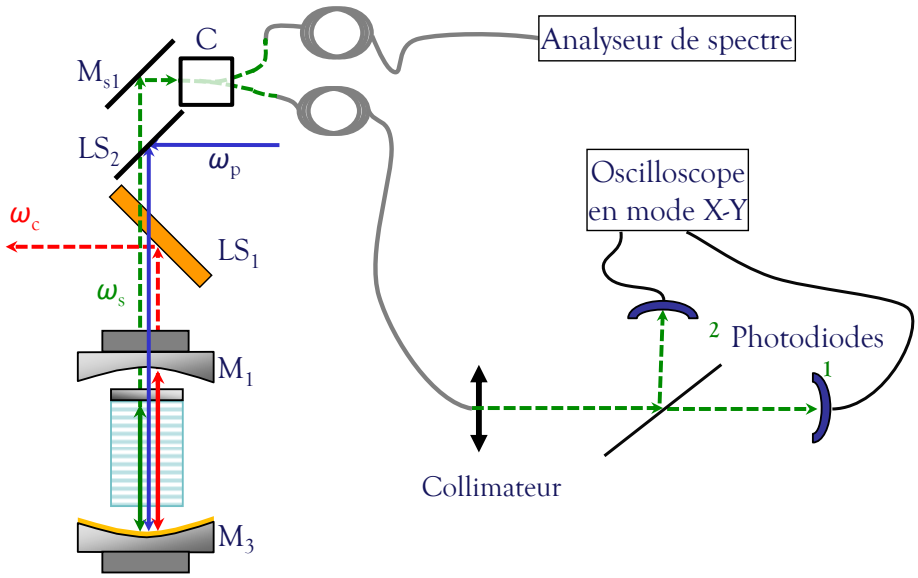


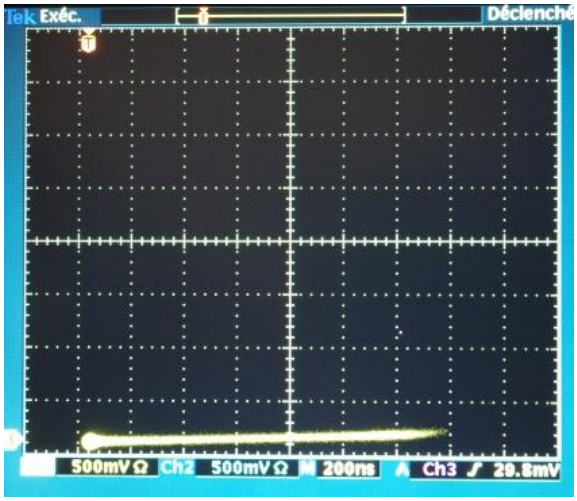
Figure 115 : Schéma expérimental de la caractérisation temporelle de l'émission de l'OPO en fonctionnement bimode.

Le faisceau signal est séparé du complémentaire et de la pompe par les lames séparatrices LS_1 et LS_2. Un coupleur C permet d'envoyer une partie du faisceau vers l'analyseur de spectre. Cela nous permet de contrôler en permanence si l'OPO est toujours bimode.

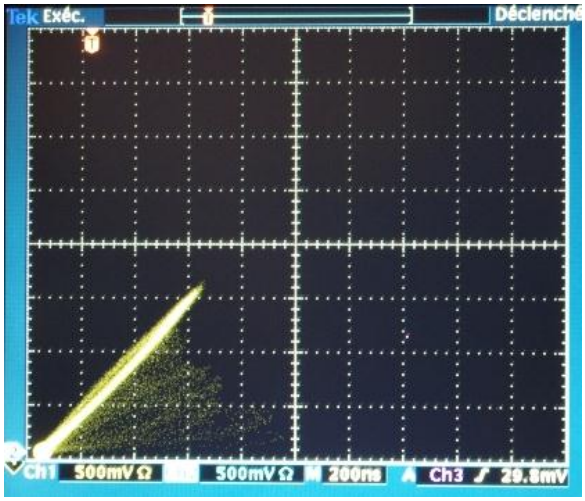
L'autre partie est collimatée et dirigée vers un filtre optique de sorte à séparer les deux fréquences. L'intensité de chacune des fréquences est alors détectée séparément à l'aide de photodiodes en InGaAs. Les photodiodes sont alors reliées à un oscilloscope en mode XY. C'est-à-dire que nous affichons l'intensité de l'OPO à la fréquence ν_s^2 en fonction de l'intensité à la fréquence ν_s^1.

ii. Répartition temporelle et spectrale de l'énergie entre les deux modes de l'émission de l'OPO

En fonctionnement monomode, lorsque l'OPO n'émet que sur la fréquence ν_s^2, l'oscilloscope va présenter un segment vertical. Inversement, si l'OPO n'émet que sur ν_s^1, il présentera un segment horizontal. Les captures d'écran des figures 116 a) et b) illustrent ces deux cas.



a)



b)

Figures 116 : Captures d'écran de l'oscilloscope lorsque l'OPO en fonctionnement monomode oscille à la fréquence ν_s^1 a) et lorsqu'il oscille à la fréquence ν_s^2 b).

Le segment de la figure 116 b) n'est pas tout à fait vertical du fait d'une réflexion parasite résiduelle sur l'autre détecteur qui diminue sa pente.

Si maintenant l'OPO émet en bimode, nous obtenons la figure suivante :

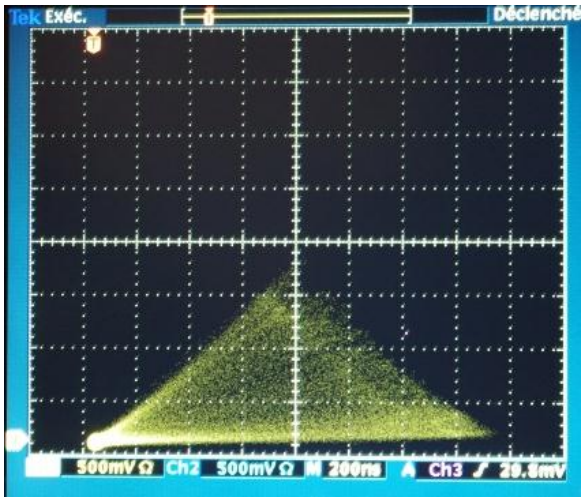


Figure 117 : Capture d'écran de l'oscilloscope lorsque l'OPO est bimode.

Nous vérifions dans le même temps, à l'analyseur de spectre que l'OPO est bien bimode. La figure 117 montre que l'espace entre les deux segments extrêmes est plein. Cela signifie que la répartition d'énergie entre les deux lobes est aléatoire. Au cours d'une même impulsion, tous les cas envisageables de répartitions d'énergie entre les deux modes sont possibles.

D'une part, il est donc difficile de générer des ondes térahertz de manière efficace dans ces conditions. Il aurait pour cela, fallu observer un segment de droite bissecteur de l'angle formé par les deux segments extrêmes (figures 116 a) et b)). Cela aurait démontré une répartition d'énergie tir à tir égale entre les deux modes.

D'autre part, nous observons que la compétition de mode n'a pas le temps de s'établir. En effet, dans ce cas nous n'aurions observé que la trace des deux mêmes segments que sur les figures 116 a) et b).

Or, ici nous observons que la répartition d'énergie peut être réalisée dans toutes les proportions possibles. Les segments extrêmes ne semblent pas particulièrement plus intenses que l'espace intérieur.

D. Bilan sur l'oscillation bimode

La mise en place d'une oscillation bimode se différencie de l'oscillation monomode par le fait d'avoir deux coïncidences de modes à gérer. Pour la mettre en place, il a donc fallu aller plus loin dans la compréhension du recouvrement des peignes de modes.

Nous avons ainsi mis en évidence la forte sensibilité à une très faible variation de la dissociation des cavités. Nous pouvons ainsi montrer que le balayage par sauts de modes en fonctionnement bimode est très limité. En effet, l'amplitude de déplacement des cales piézoélectriques est alors suffisante pour modifier sensiblement la dissociation des cavités et donc perturber le bon fonctionnement bimode.

Le deuxième point important est relié à la caractérisation de l'oscillation bimode. Nous avons en effet remarqué que l'énergie de la pompe est répartie aléatoirement entre les deux

modes d'une impulsion à l'autre alors que statistiquement, elle se répartit dans des proportions égales (voir figures 114 et figure 117).

Il serait intéressant de réaliser la même expérience avec un laser de pompe en régime microseconde par exemple pour caractériser l'effet de la durée d'impulsion sur la compétition entre deux modes de gain équivalent.

Synthèse

Dans ce troisième chapitre, nous avons démontré expérimentalement les capacités uniques de cette nouvelle source à maîtriser son contenu spectral.

Nous avons ainsi vu que l'OPO pouvait avoir deux modes de fonctionnement différents : l'un avec une bande de gain paramétrique à un lobe l'autre avec une bande de gain à deux lobes séparés d'environ 1 THz.

Le fonctionnement à un lobe est particulièrement intéressant pour l'obtention d'une émission monomode. Dans cette configuration, nous avons démontré de toutes nouvelles façons d'accorder la fréquence spécifiques à cette cavité. Les différents types de balayages par sauts de modes présentés montrent la grande souplesse de la source vis-à-vis des mesures à réaliser. Ainsi, d'une part, un déplacement longitudinal contrôlé des miroirs de cavité permet de scanner des plages fréquentielles de la largeur de la bande de gain. Dans le même temps, une résolution inférieure à 100 MHz peut être obtenue. D'autre part, un balayage par la température permet de scanner des plages de plusieurs térahertz en gardant une résolution de l'ordre du gigahertz. En outre, nous avons présenté une évolution très prometteuse de l'architecture en utilisant un cristal fan-out. Cela doit permettre de pouvoir réaliser des balayages de plusieurs térahertz avec une résolution contrôlée et d'améliorer encore la stabilité mécanique de la source. Par ailleurs, dans le cas d'un balayage continu, cette nouvelle technique pourrait permettre de se passer du mesureur de longueur d'onde.

Enfin, dans le deuxième mode de fonctionnement de l'OPO, lorsque que la bande de gain présente deux lobes, nous avons réussi à mettre en place expérimentalement une oscillation bimode. Nous avons pu caractériser cette émission et nous avons démontré le caractère aléatoire de la répartition d'énergie entre les deux modes émis, d'une impulsion à l'autre.

Chapitre 4. Applications à la spectroscopie infrarouge des gaz

---

Objectifs

Nous avons vu précédemment de nouvelles méthodes d'accord en fréquence propres à notre source NesCOPO dont, notamment, le balayage par sauts de modes par translation longitudinale des miroirs (TLM). Cette nouvelle technique de balayage en fréquence nous offre des perspectives intéressantes pour la détection d'espèces gazeuses locales ou à distances. Afin de prouver les capacités de notre nouvelle source optique à répondre au cahier des charges défini en introduction, nous avons réalisé des instruments permettant la détection et la quantification d'espèces gazeuses locale ou à distance, en utilisant la source NesCOPO.

Dans cette partie, nous réalisons un retour rapide sur la spectroscopie infrarouge par absorption. Puis, nous présentons les différents résultats expérimentaux obtenus avec cette technique et discutons des performances obtenues : avec i) un instrument dédié à la mesure de gaz à distance et ii) un instrument destiné à des mesures de gaz locales par technique photoacoustique.

I. Retour sur la spectroscopie infrarouge

A. Généralités sur la spectroscopie infrarouge par absorption

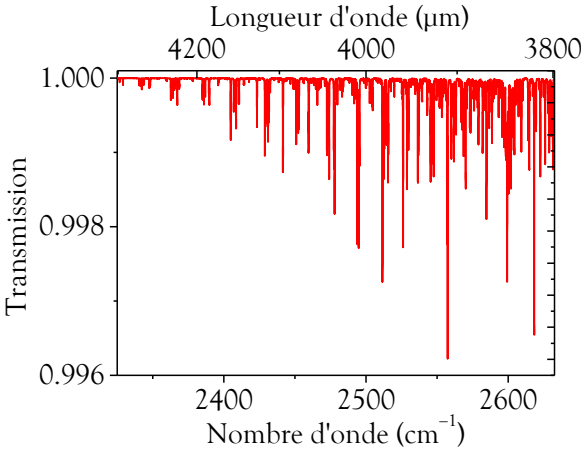
La détection, l'identification et la quantification d'un gaz peuvent s'effectuer de façon précise en mesurant la quantité d'énergie qu'il absorbe à une fréquence donnée. Les fréquences des photons pouvant être absorbés par une molécule correspondent à des transitions entre deux niveaux d'énergie. Les niveaux d'énergie reliés à ces transitions peuvent d'être d'origine électronique, vibrationnelle ou rotationnelle. En première approximation, nous pouvons considérer que les énergies sont additives c'est-à-dire que nous avons [Larkin '11] :

$$\Delta E_t = \Delta E_{élec} + \Delta E_{vib} + \Delta E_{rot}. \qquad \text{Éq. 24}$$

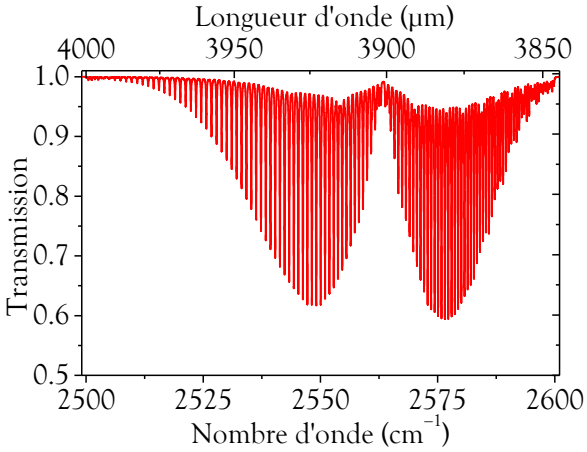
Les transitions correspondant au moyen infrarouge sont les transitions vibrationnelles. À ces bandes d'absorption, s'ajoutent les transitions rotationnelles de beaucoup plus faible énergie.

Chaque molécule possède ses propres énergies de transition, faisant de ces dernières de véritables empreintes digitales permettant de discriminer les espèces gazeuses entre elles.

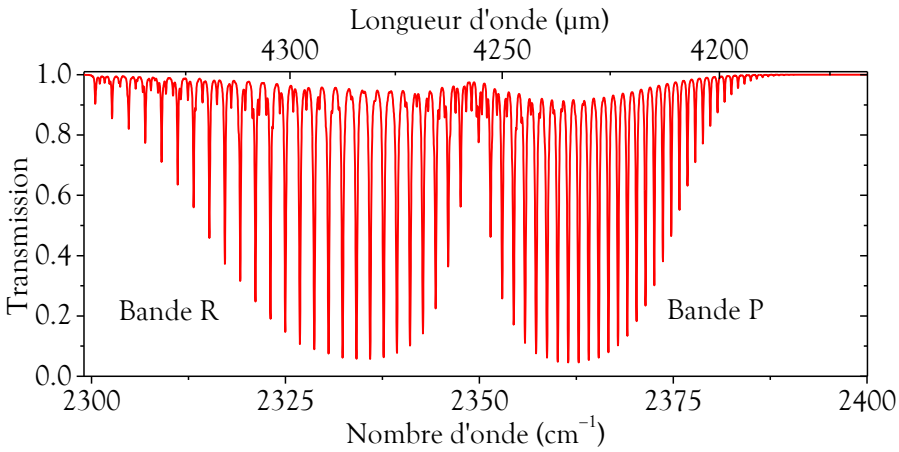
Les figures 118 a), b) et c) présentent les raies d'absorption de trois gaz parmi les six gaz polluants retenus par le protocole de Kyoto [ONU '98], dans la gamme de longueurs d'onde (3,8 – 4,3 µm) atteignables par notre OPO.



a) CH_4



b) N_2O



c) CO_2

Figures 118 : Transmission du méthane (CH_4) a), du protoxyde d'azote (N_2O) b) et du dioxyde de carbone (CO_2) c). Les transmissions sont calculées pour une épaisseur de gaz traversée de 20 cm à une température de 295 K et une pression de 760 Torr (1 atm). Les concentrations sont de 1,75 % pour le méthane, de 1 % pour le protoxyde d'azote et de 400 ppmv pour le dioxyde de carbone soit 10^4, 3×10^4 et 1 fois leur concentration atmosphérique, respectivement [Hitran '04].

Sur les figures 118 a), b) et c) nous observons les larges bandes d'énergies vibrationnelles subdivisées en de multiples raies, beaucoup plus fines correspondant aux transitions rotationnelles [Rothman '05].

D'après les concentrations utilisées pour les simulations (voir la légende des figures 118 a), b) et c)), le CO_2 est un bon candidat pour tester notre source par des expériences à pression et quantités atmosphériques. D'autres gaz peuvent être utilisés pour des mesures dans des cellules de gaz. Dans le paragraphe suivant, nous revenons rapidement sur les contraintes liées au choix de l'utilisation du CO_2 atmosphérique pour des expériences de démonstration.

B. Contraintes expérimentales liées au choix du CO_2 atmosphérique comme gaz de test

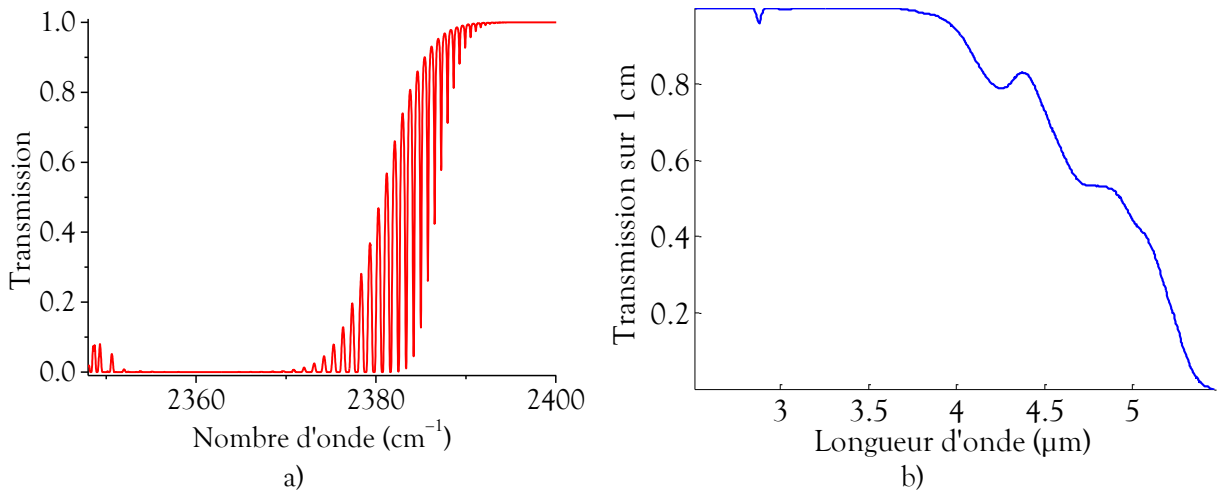
Comme nous pouvons le voir sur la figure 118 c), dans ses proportions atmosphériques, le CO_2 absorbe beaucoup même sur une faible distance (20 cm pour la figure 118 c)). Cela permet donc de réaliser des mesures spectroscopiques par absorption directement dans l'atmosphère.

Cependant, les intensités des raies sont telles qu'il faut veiller à rester dans une zone où les raies sont toujours différentiables (voir figure 119 a) pour une colonne d'air de 20 m). Suivant la quantité d'air traversée par le faisceau complémentaire nous ajustons donc la plage spectrale de balayage pour l'OPO afin que l'absorption ne soit ni trop faible ni trop forte.

À certaines fréquences, l'absorption par le CO_2 peut même devenir problématique pour le bon fonctionnement de l'OPO. En effet, pendant la durée de l'impulsion de pompe le faisceau complémentaire peut parcourir plusieurs dizaines de centimètres dans l'air présent dans la cavité. Les pertes par absorption diminuent alors fortement l'efficacité de l'OPO.

De plus, au-delà de 3,8 µm, le cristal non linéaire de niobate de lithium commence aussi à absorber (figure 119 b)). Pour minimiser cette absorption nous réalisons donc des mesures sur

les plus petites longueurs d'onde complémentaire sur le flanc de la bande P situé vers 4,2 µm soit 2375 cm^{-1}.



Figures 119 : Absorption du CO_2 pour une épaisseur d'atmosphère traversée de 20 m a) et absorption dans le niobate de lithium [Myers '96] b).

II. Intégration du NesCOPO dans un instrument pour des mesures de concentration de CO_2 à distance

Nous cherchons, dans cette partie, à développer un banc optique compact nous permettant de réaliser des mesures de concentration d'espèces chimiques à courte portée. Les applications sont nombreuses et couvrent des domaines variés tels que l'environnement (gaz à effet de serre), la qualité de l'air intérieur ou encore le diagnostic de combustion en sortie de moteur. Pour cela, nous avons développé un banc de mesure compact appelé « minilidar », basé sur une technique d'absorption différentielle.

La majorité des expériences ont été réalisées sur du CO_2 atmosphérique. Elles nous ont permis de tester notre instrument de mesure et notamment sa sensibilité et sa portée.

Nous présentons dans un premier temps l'intégration du NesCOPO dans le banc de mesure d'absorption différentielle. Puis, nous revenons sur divers aspects qui limitent la précision des mesures, avant de discuter des résultats.

A. Développement d'un banc compact « minilidar » dédié à la mesure de concentration de gaz atmosphériques

La figure 120 présente le schéma du banc dit « minilidar », mis en place pour les expériences de mesure d'absorption différentielle.

Le NesCOPO est asservi en fréquence sur la longueur d'onde signal. Le faisceau complémentaire est lui utilisé pour la détection de gaz. Il est séparé des deux autres ondes par la lame LS_1. Une petite partie du faisceau est réfléchie par la lame LS_3 et est focalisée par une

lentille L_1 de courte focale (≤ 50 mm) sur un détecteur infrarouge qui sert de référence. Cela permet de prendre en compte les fluctuations d'intensité de l'OPO. Pour des mesures atmosphériques, il est primordial que le détecteur de référence soit placé le plus près possible de la source, pour limiter l'absorption sur le parcours optique le précédent.

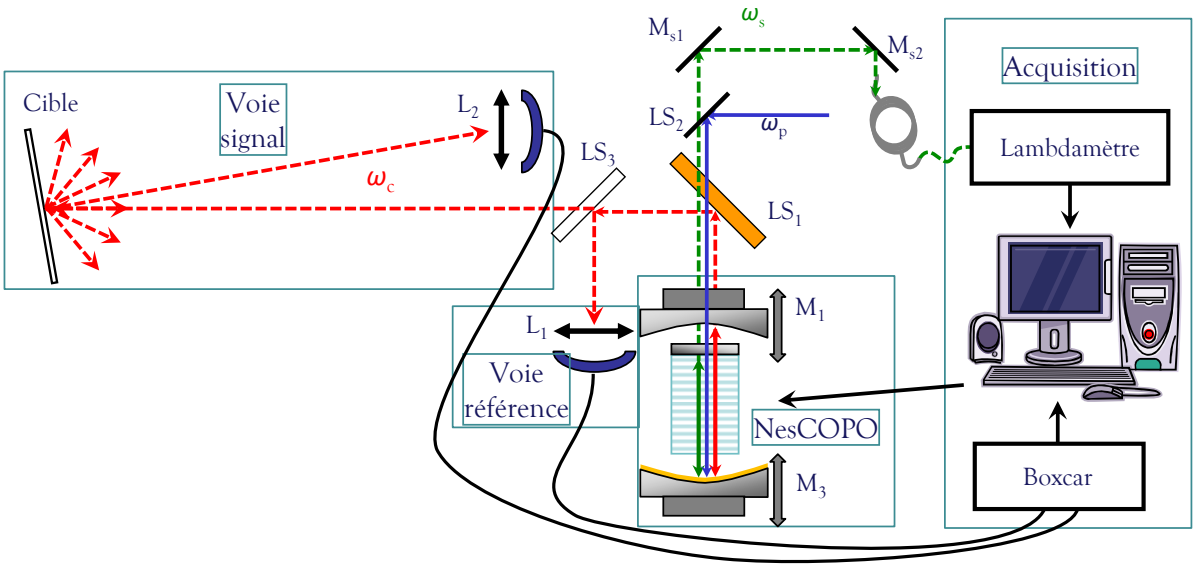


Figure 120 : Schéma du montage mis en place pour des mesures de détection de gaz atmosphérique.

La majeure partie du complémentaire est envoyée vers une cible dite « non coopérative ». En effet, nous utilisons, en règle générale, une feuille de papier blanc (diffuseur lambertien). Nous avons aussi testé le montage en utilisant la diffusion directement sur un mur ou une porte. Néanmoins, ces surfaces ont une réflectivité fortement dépendante de leur revêtement ce qui ne les rend pas idéales pour garder des conditions expérimentales constantes.

La portée de l'instrument est définie par la distance entre la cible à l'instrument. Elle représente donc la moitié de la distance parcourue par le faisceau.

Une lentille L_2 de grande ouverture (8 cm) et de longue focale (40 cm), collecte une partie du flux diffusé par la cible.

Les détecteurs infrarouges (signal et référence) convertissent le flux lumineux en signaux électriques, qui sont intégrés par un intégrateur boxcar (Stanford Research – SR 280 et 250). Ce dernier permet d'intégrer les signaux électriques pendant un certain nombre d'impulsions pour les moyenner temporellement avant que leur amplitude ne soit acquise et stockée sur l'ordinateur de manière synchrone avec la longueur d'onde émise.

Afin d'optimiser le rapport signal sur référence, il a fallu identifier les différentes sources d'erreur et s'en affranchir ou les minimiser.

1. Équilibrage des voies de mesures

Pour séparer le faisceau en deux parties, voie signal et voie référence (voir LS_3 sur la figure 120)), nous avons testé plusieurs solutions. Nous avons utilisé des lames prismatiques et à faces parallèles en ZnSe avant d'approvisionner une lame prismatique en CaF_2. L'avantage du

CaF_2 réside dans son indice de réfraction plus faible, 1,41 contre 2,43 [Malitson '63, Li '84], ce qui limite les pertes de Fresnel à environ 2,9 % par interface.

L'utilisation d'une lame à faces parallèles implique des modulations d'intensité du faisceau sur les deux voies, en fonction de sa longueur d'onde, liées aux effets d'interférences comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 1.II.A.1). Or ces modulations sont nettement plus importantes pour la voie de référence. En effet, la réflexion sur la face arrière de la lame possède une intensité proche de celle due à la face avant, alors que pour la voie signal, l'intensité transmise est nettement plus importante que le faisceau parasite (issu de deux réflexions partielles).

Cela créé donc une modulation du rapport, variant périodiquement avec la longueur d'onde, entre les deux voies comme le montre la figure 121.

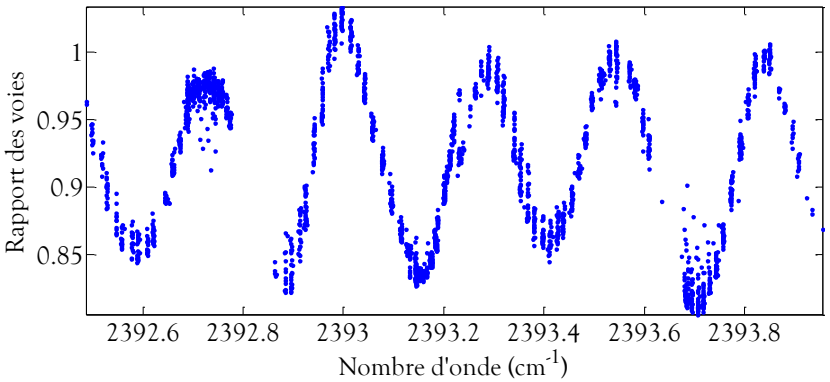


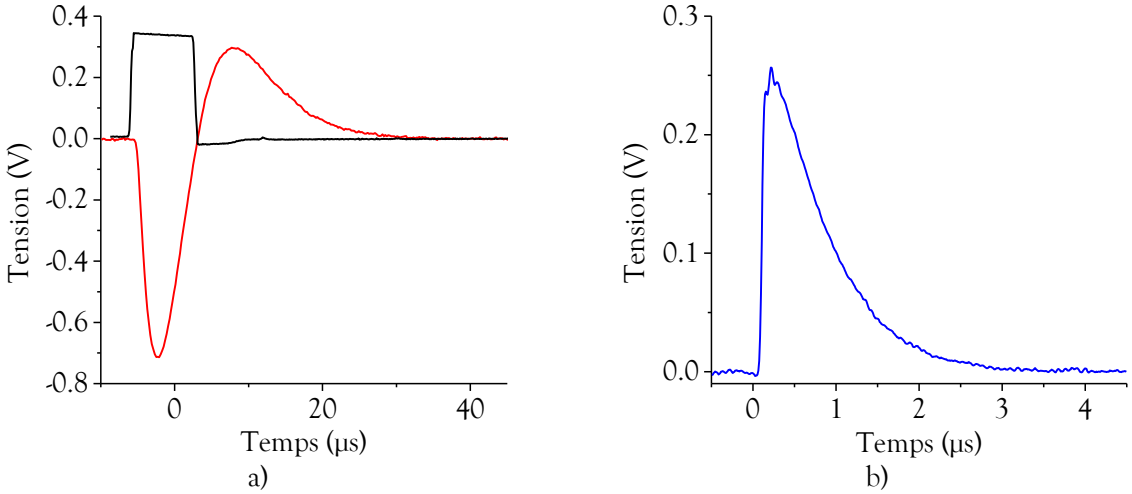
Figure 121 : Fluctuations périodiques sur le signal de mesure, dues à la présence d'un Fabry-Perot formé par les faces parallèles d'une lame de ZnSe, dont l'intensité de la modulation est plus importante pour la voie référence.

Sur la figure ci-dessus les modulations présentent une période de 0,3 cm^{-1} qui correspond à la lame de ZnSe de 0,7 cm d'épaisseur, utilisée pour séparer le faisceau complémentaire en deux parties.

Pour s'affranchir de cette modulation parasite, nous avons approvisionné une lame prismatique en CaF_2.

2. Choix des détecteurs infrarouges

Pour les mesures que nous présentons ici, nous avons utilisé des détecteurs infrarouges amplifiés et refroidis à base de Mercure-Cadmium-Tellure (MCT) disponibles au laboratoire. Le détecteur de la voie de référence est refroidi par effet Peltier. Le détecteur de la voie signal est refroidi à l'azote liquide (Hamamatsu – Type P2748-40). Dans la suite du document, nous parlons alors du MCT-Peltier et du MCT-azote, pour les deux détecteurs et leur amplificateur respectif. Ils sont très détectifs (détectivité de l'ordre de 10^{10} $cm \cdot Hz^{1/2}/W$), mais leur réponse temporelle est particulièrement lente comme le montrent les figures 122 a) et b).



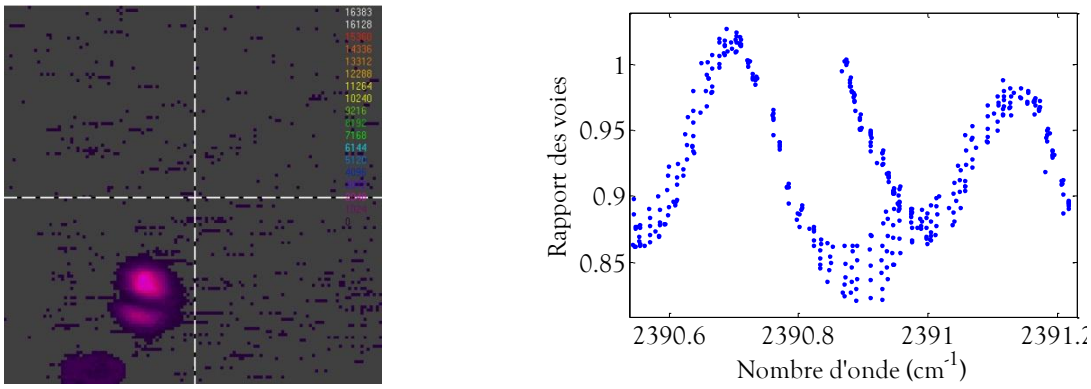
Figures 122 : Visualisation à l'oscilloscope de la porte d'intégration du boxcar (noir – a)) et des réponses temporelles du détecteur-amplificateur MCT refroidi par effet Peltier (rouge – a)) et du détecteur-amplificateur refroidi à l'azote liquide (bleu – b)).

Les réponses temporelles sont obtenues en moyennant le signal à l'oscilloscope sur 512 coups. La réponse du MCT-Peltier est particulièrement longue et n'est pas adaptée à l'utilisation d'un boxcar. En effet, la fenêtre d'intégration du boxcar, limitée à 15 µs, ne peut prendre en compte entièrement la réponse du détecteur. Pour les mesures, nous limitons donc la fenêtre d'intégration à la partie négative de la réponse temporelle (voir figure 122 a)). Cependant, cette solution n'est pas entièrement satisfaisante, car la largeur temporelle de la réponse du détecteur varie avec l'amplitude de cette dernière.

Le deuxième point important concernant ces détecteurs est de connaître leur plage de fonctionnement linéaire, afin que les fluctuations d'intensité de l'OPO n'influencent pas la mesure. Nous avons ainsi vérifié que, dans la gamme 0,05 – 1,2 V pour le MCT-Peltier et dans la gamme 10 – 250 mV pour le MCT-azote, les détecteurs répondaient dans les mêmes proportions à une variation d'intensité du complémentaire, sans saturer.

3. Influence de la qualité spatiale du faisceau complémentaire sur la mesure

Si le faisceau complémentaire issu du NesCOPO n'est pas monomode transverse (TEM_{00}), la répartition spatiale de l'énergie va fortement fluctuer en fonction des modes émis Dès lors, sa stabilité de pointé va être dégradée, ce qui va induire une erreur de mesure. La figure 123 b) présente une mesure réalisée hors raies d'absorption dans l'atmosphère. Il s'agit donc d'une ligne de base qui devrait être constante et égale à 1 pour un instrument idéal (en considérant une réponse spectrale du système similaire sur les deux voies). La courbe représente le rapport entre la voie signal et la voie de référence (voir figure 120).



a) b)

Figures 123 : Visualisation à l'aide d'une caméra de type Pyrocam III d'un faisceau complémentaire TEM_{10} a) et fluctuations de la mesure du ratio des voies signal et référence sans absorption dans l'atmosphère.

Nous remarquons que le rapport des deux voies présente des fluctuations indépendantes de la longueur d'onde émise, ce qui exclut un Fabry-Perot parasite comme source du problème. Par contre, nous remarquons expérimentalement qu'elles dépendent de la position des miroirs dans la cavité et donc de sa géométrie.

De plus, la présence de modes transverses d'ordre supérieur au mode TEM_{00}, peut aussi entraîner une oscillation multimode longitudinale de l'OPO, même si la dissociation des cavités est correctement ajustée.

Ce problème est résolu par un alignement précis du cristal, qui permet de garantir une émission monomode transverse pendant le balayage et supprimer ces fluctuations. Ainsi, un alignement rigoureux suivant la procédure présentée au chapitre 3, permet de supprimer cet effet et de diminuer les fluctuations de la ligne de base. Les fluctuations résiduelles se trouvent alors réduites à quelques pourcents (Figure 124).

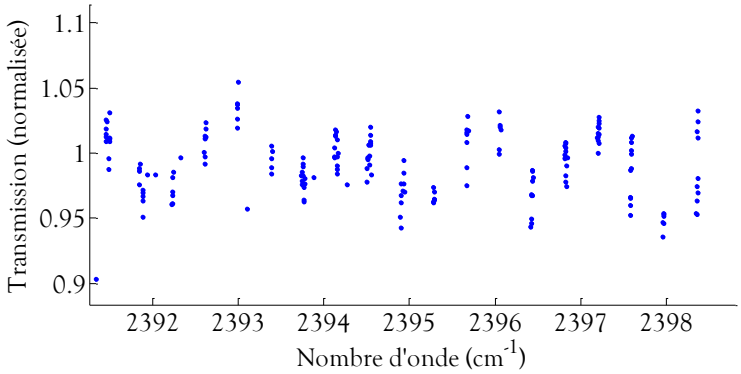
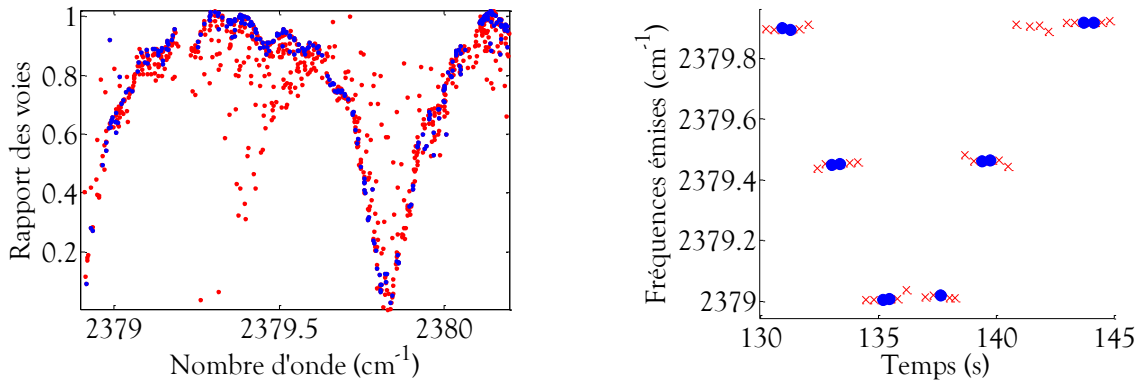


Figure 124 : Fluctuations résiduelles de la ligne de base (zoom de la figure 130).

4. Influence de la pureté spectrale du faisceau complémentaire sur la mesure

Comme nous l'avions déjà évoqué (Chapitre 3.III.A.3.b), pour les mesures d'absorption, l'OPO doit être strictement monomode. Cependant, du fait du balayage par sauts de modes, l'OPO passe systématiquement dans des états où durant le temps de mesure, il émet deux modes longitudinaux différents. Or, le lambdamètre ne discrimine pas la quantité d'énergie contenue à telle ou telle fréquence ; il ne retient que la fréquence contenant le plus d'énergie.

Prenons le cas où, sur le temps d'intégration du boxcar et du lambdamètre, l'OPO a émis à 45 % à une fréquence ν_1 et à 55 % à une fréquence ν_2. La valeur ν_2 est donc retenue, légèrement décalée d'une centaine de mégahertz puisque ν_1 perturbe malgré tout légèrement la mesure (figure 87 a)). Mais, dans le cas où le CO_2 absorbe fortement à ν_1 et faiblement à ν_2, le détecteur de la voie signal relèvera une valeur moyenne, correspondant à la répartition d'énergie entre les fréquences. La mesure est donc faussée : nous observons des raies parasites à des fréquences où le CO_2 n'absorbe pas, comme le montrent les points rouges de la figure 125 a).



a) b)

Figures 125 : Suppression des raies parasites en filtrant les fréquences à proximité d'un saut de modes (en rouge les points filtrés, en bleu les points conservés) a) et zoom sur le balayage fréquentiel de la source mettant en évidence la suppression des fréquences à proximité des sauts de modes.

Afin de s'affranchir de cet effet, les raies parasites sont filtrées numériquement en supprimant les points correspondant à des fréquences trop proches d'un saut de modes. Typiquement, un à deux points sont supprimés de part et d'autre des sauts de modes. Les points bleus des figures 125 a) et b) représentent les mesures et fréquences restantes après l'application du filtre.

B. Mise en œuvre du banc minilidar pour des mesures d'absorption différentielle à distance

Les mesures réalisées sur le CO_2 atmosphérique permettent de valider notre banc. C'est, par ailleurs, en réalisant ces mesures que nous avons développé les nouvelles techniques de balayage par sauts de modes.

Dans cette partie nous présentons les résultats de quelques mesures permettant de comprendre les avantages et limites de notre dispositif.

1. Mesure de concentration de CO_2 atmosphérique

a. Première mesure de concentration de CO_2 (portée de 15 m)

La figure 126 présente le résultat expérimental d'une mesure d'absorption différentielle sur une plage spectrale de plus de 6 cm^{-1} (≈ 200 GHz). Pour cette mesure, la cible était placée à 15 m du banc optique et l'acquisition a duré un peu moins de quatre minutes.

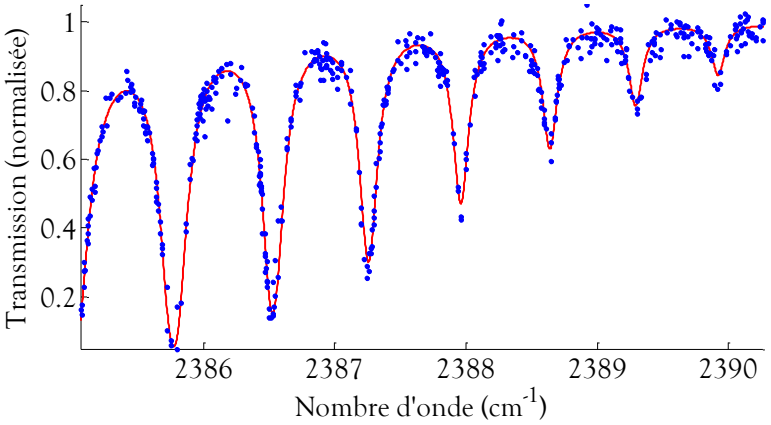


Figure 126 : Description de huit raies d'absorption du CO_2 pour une portée de 15 m (résolution : 0,8 GHz, temps d'intégration : 0,1 s), en bleu la mesure expérimentale, en rouge la simulation à partir de la base de données Hitran.

Un programme d'inversion de spectre permet de déterminer différents paramètres tels que la pression, la concentration ou encore la température du gaz au moment de la mesure. Ce programme a été développé à l'Onera/SLM sous LabVIEW®, il utilise la base de données Hitran pour modéliser les conditions expérimentales.

L'inversion est réalisée en écrivant dans un premier temps :

$$\mathbf{I}^m = \mathbf{I}^{th}(\mathbf{G}) + \boldsymbol{\varepsilon}, \qquad \text{Éq. 25}$$

où $\mathbf{I}^m$ et $\mathbf{I}^{th}$ représentent les intensités expérimentales et les intensités théoriques, respectivement. Le vecteur **G** représente les paramètres ajustables du gaz (pression, température et concentration dans notre cas) et $\boldsymbol{\varepsilon}$ les erreurs entre les valeurs expérimentales et théoriques. L'inversion consiste alors à trouver les valeurs des paramètres du gaz (**G**) qui minimisent la variance pondérée des erreurs $\boldsymbol{\varepsilon}$ par la méthode des moindres carrés.

Cette méthode, inspirée du livre de D. Taupin [Taupin '88], fonctionne par itérations, et permet d'extraire la précision de chacun des paramètres théoriques calculés. Néanmoins, dans notre configuration, il nous est apparu plus cohérent de fixer la température et la pression qui peuvent être mesurées par des appareils dédiés, pour exprimer l'erreur de mesure exclusivement en une erreur sur la mesure de la concentration.

Ainsi, le programme est exécuté deux fois. Une première fois, la pression, la température et la concentration sont ajustables avec les bornes suivantes : 745 Torr et 775 Torr, 290 K et 310 K et 0,04 ppmv et 4×10^5 ppmv, respectivement. La deuxième fois, la température et la pression sont fixées aux valeurs déterminées à la première étape ; la concentration reste le seul paramètre ajustable (toujours entre 0,04 ppmv et 4×10^5 ppmv).

Enfin, il faut avoir réalisé un point de mesure hors absorption pour normaliser les données et pouvoir utiliser le programme. Pour cela, nous utilisons les points de mesure réalisés entre les raies d'absorption au-delà de 2390 cm^{-1} où l'absorption est pratiquement nulle.

Ainsi, en utilisant les données expérimentales de la figure 126 nous obtenons une densité de CO_2 de $1{,}22 \times 10^{16}$ $cm^{-3} \pm 0{,}787 \times 10^{14}$ cm^{-3} soit une concentration de 490 ppmv ± 3,15 ppmv. Pour ce résultat, la première étape du calcul avait déterminé une température de 305 K ± 3,41 K et une pression de 767 Torr ± 14,9 Torr soit 1022 hPa ± 19,9 hPa.

La valeur de 490 ppmv peut paraître un peu élevée comparée à la concentration moyenne d'environ 400 ppmv de l'atmosphère. Néanmoins, la mesures est réalisée dans un bâtiment occupé ce qui tend à augmenter localement la concentration de CO_2. Nous avons d'ailleurs pu observer expérimentalement que celle-ci augmentait en fin de semaine après occupation des lieux.

Nous pouvons surtout remarquer une bonne précision de mesure inférieure au pourcent, de l'ordre de quelques ppmv.

b. Détermination de la portée maximale (jusqu'à 30 m)

En déplaçant la cible, nous avons testé la portée de notre instrument de mesure. La figure 127 présente la courbe expérimentale obtenue en un peu moins de deux minutes pour une portée de 30 m.

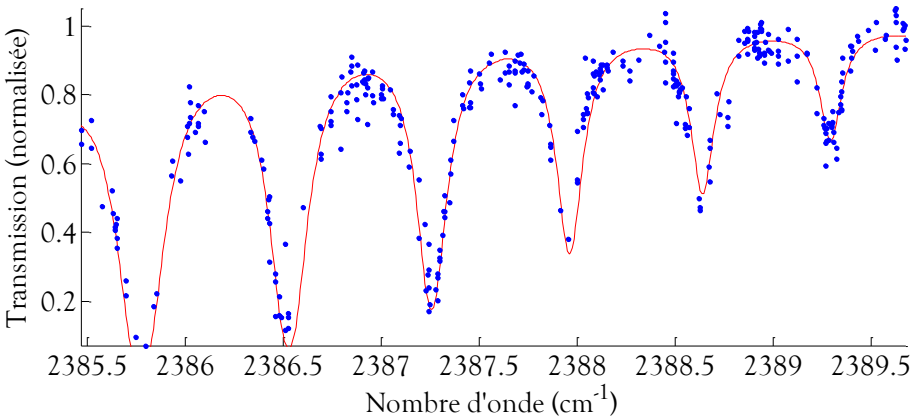


Figure 127 : Description de six raies d'absorption du CO_2 pour une portée de 30 m, en bleu la mesure expérimentale, en rouge la simulation à partir de la base de données Hitran.

Le faisceau parcourt donc 30 m en trajet direct jusqu'à la cible puis 30 m après diffusion jusqu'au détecteur. Le bruit de mesure reste malgré tout contenu. Le programme d'inversion du spectre, nous donne ainsi les conditions expérimentales suivantes pour une colonne d'air traversée de 60 m :

- pression : 766 Torr ± 17,3 Torr (premier calcul) ;
- température : 298 K ± 4,10 K (premier calcul) ;
- densité : $1{,}00 \times 10^{16}$ cm^{-3} $cm^{-3} \pm 1{,}57 \times 10^{14}$ cm^{-3} (second calcul, température et pression fixées) soit 398 ppmv ± 6,12 ppmv.

Par rapport à une mesure à 15 m, nous voyons que l'erreur a augmenté sur chacun des paramètres. Néanmoins, elle reste contenue à 1,5 % pour la concentration. Nous voyons ici l'intérêt d'émettre de nombreuses fréquences sur une grande plage spectrale pour minimiser l'erreur de mesure.

Au-delà de 30 m de portée, le spectre mesuré devient rapidement inexploitable. En effet, l'intensité du flux collecté par la lentille de la voie lidar (L_2 sur la figure 120), devient alors du même ordre de grandeur que bruit du détecteur et de son amplificateur.

Pour augmenter cette portée, nous avons alors trois possibilités. Premièrement, nous pouvons utiliser des détecteurs optimisés pour cette gamme de longueurs d'onde, moins bruités et/ou plus détectifs. Deuxièmement, nous pouvons augmenter l'ouverture de l'optique de collection sur la voie lidar. Troisièmement, nous pouvons augmenter la puissance crête émise par l'OPO. Pour cela, il faut augmenter la puissance du laser de pompe et donc éventuellement redimensionner l'OPO).

Ces paramètres sont à déterminer en fonction des besoins de l'utilisateur. Néanmoins la configuration actuelle valide le potentiel de notre banc optique pour des mesures de concentration à distance.

c. Mesure rapide sur une unique raie d'absorption

Comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 3.III.A), la technique de balayage TLM (translation longitudinale des miroirs) permet de s'adapter au type de mesure réalisée. Une mesure rapide, ciblée sur une espèce peut donc être réalisée. Ainsi, le balayage de la raie de CO_2 présentée à la figure 128 a été réalisé en seulement 15 s.

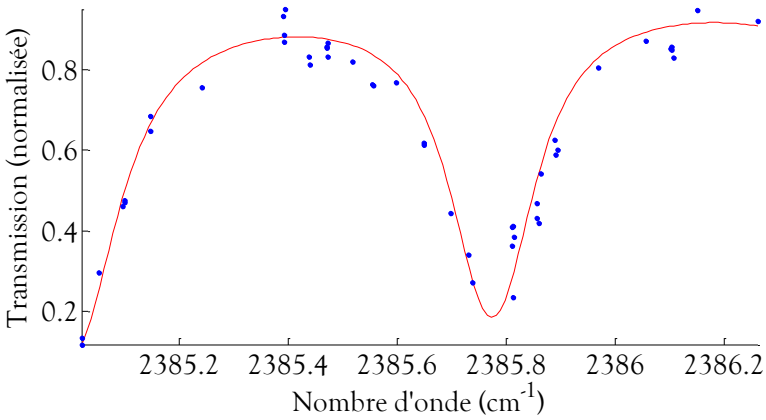
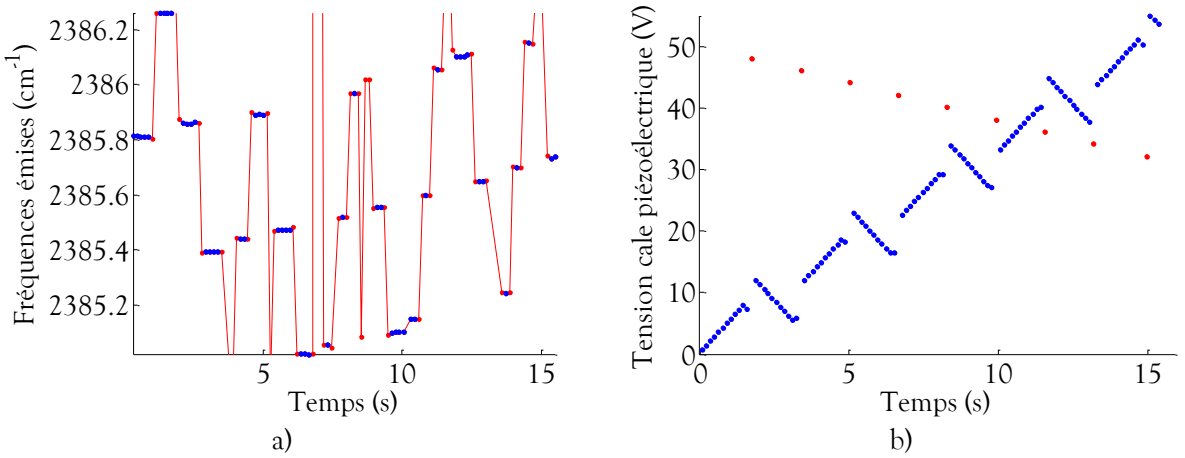


Figure 128 : Description d'une raie d'absorption du CO_2 pour une portée de 10 m, en bleu la mesure expérimentale, en rouge la simulation à partir de la base de données Hitran.

Dans cette plage spectrale, les raies d'absorption du CO_2 sont espacées d'un peu moins d'1 cm^{-1} et la mesure est réalisée sur 1,2 cm^{-1}. La figure 129 a) présente les fréquences émises dans l'ordre chronologique.



Figures 129 : a) Fréquences des trois modes émis par l'OPO. Les points bleus correspondent aux fréquences conservées après filtrage (Chapitre 4.II.A.4) ; b) tensions de commande des transducteurs piézoélectriques (bleu : miroir M1, rouge : miroir M3) appliquées pour parcourir une courte plage spectrale.

Nous remarquons que pour réaliser cette mesure, l'OPO a émis principalement sur trois modes. Les modes sont décalés progressivement en déplaçant le transducteur piézoélectrique du miroir M3 comme nous l'avons déjà vu (Chapitre 3.III et points rouges de la figure 129 b)). Chaque rampe complémentaire est très courte et dure environ 1,5 s (points bleus de la figure 129 b)).

Cependant, comme les raies atmosphériques sont suffisamment larges pour se recouvrir, le faisceau est partiellement absorbé même entre deux raies. Par conséquent, nous n'avons pas de point, sur cette acquisition, pouvant servir à normaliser la mesure. Pour contourner cette difficulté, nous avons rapidement réalisé une mesure en dehors des raies d'absorption, suite à la mesure, vers 2400 cm^{-1}.

Le programme d'inversion nous donne alors les valeurs suivantes, pour une colonne d'air traversée de 20 m :

- pression : 767 Torr ± 46,9 Torr (premier calcul) ;
- température : 304 K ± 12,3 K (premier calcul) ;
- densité : $1{,}14 \times 10^{16}$ cm^{-3} cm^{-3} ± $4{,}17 \times 10^{14}$ cm^{-3} (second calcul, température et pression fixées) soit 456 ppmv ± 16,7 ppmv.

Cette mesure réalisée très rapidement et sur une plage spectrale plus étroite présente une marge d'erreur plus importante que les mesures précédentes. Néanmoins, l'erreur reste limitée à moins de 4 % de la concentration mesurée pour cette acquisition réalisée en 15 s.

Actuellement, la vitesse d'acquisition est limitée par le lambdamètre et l'intégrateur boxcar. Pour chaque mesure, le boxcar moyenne une centaine d'impulsions ce qui correspond à 25 ms pour une cadence de 4 kHz. Pour augmenter la vitesse d'acquisition du boxcar, il faut donc augmenter le taux de répétition du laser de pompe. En diminuant le bruit sur la chaîne de détection (augmentation du flux collecté, changement des détecteurs…), nous pouvons aussi diminuer le nombre de coups moyennés.

Pour diminuer le temps d'intégration du lambdamètre, il faut augmenter la puissance moyenne du signal. Pour cela, il faut donc augmenter l'énergie par impulsion et/ou le taux de répétition du laser.

Par ailleurs, les expériences de Lidar Dial, fonctionnant en émettant deux longueurs d'onde (sur et en dehors de la raie d'intérêt), nécessitent habituellement une source d'injection par longueur d'onde désirée. Les mesures multi longueurs d'onde deviennent alors impossibles à mettre en place raisonnablement. Or ces mesures ont un réel intérêt pour améliorer la précision de mesure [Wirth '09].

Avec le balayage par sauts de modes, nous pouvons, nous pouvons émettre rapidement à de nombreuses longueurs d'onde prédéterminées avec une seule source.

d. Balayage par température pour la détection de CO_2 atmosphérique

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précèdent, le balayage par variation de température permet d'atteindre de grandes plages spectrales, bien au-delà de la largeur de la bande de gain. La figure 130 présente une mesure expérimentale sur 30 cm^{-1}, soit près d'un térahertz, réalisée en faisant varier la température du cristal non linéaire de 60 à 100 °C. La durée de l'expérience est d'une quinzaine de minutes.

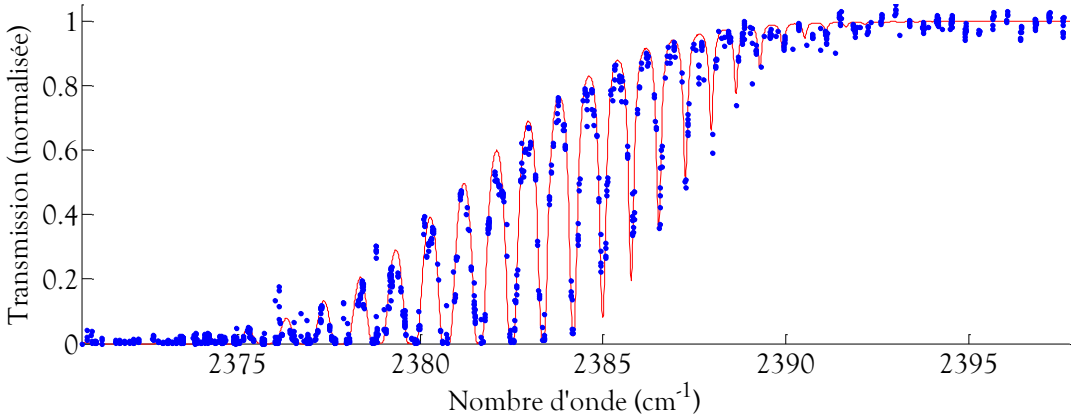


Figure 130 : Description du flanc de la bande vibrationnelle P du CO_2, en bleu la mesure expérimentale, en rouge la simulation à partir de la base de données Hitran.

Nous observons sur la figure 130 pour les fréquences inférieures à 2 375 cm^{-1} la saturation des raies d'absorption. Elles ne peuvent donc plus être discriminées. De même, au-delà de 2 390 cm^{-1}, les raies deviennent trop peu intenses pour être détectées. Plus la colonne d'air traversée est grande, plus la zone d'intérêt, où les raies sont discriminables (de 2 375 à 2 390 cm^{-1} dans notre exemple), va se réduire et se décaler.

Les paramètres calculés par le programme d'inversion pour cette courbe pour une colonne d'air traversée de 20 m :

- pression : 774 Torr ± 11,2 Torr (premier calcul) ;
- température : 310 K ± 9,03 K (premier calcul) ;
- densité : $1{,}33 \times 10^{16}$ cm^{-3} ± $1{,}15 \times 10^{14}$ cm^{-3} (second calcul, température et pression fixées) soit 530 ppmv ± 4,58 ppmv.

Il est clair que cette technique d'accord fréquentiel n'est pas particulièrement adaptée à la détection de CO_2 atmosphérique. En effet, nous ne profitons pas de la grande plage spectrale accessible et la résolution est moins adaptée. Cette technique convient mieux à la détection

d'espèces chimiques en phase liquide ou solide qui présentent généralement de larges bandes d'absorption, ou encore à l'analyse d'un mélange gazeux. Au cours de la thèse, il n'a pas été possible de réaliser de telles expériences. Cependant, dans le cas d'un développement d'un NesCOPO émettant dans la bande III de transmission de l'atmosphère, cette technique pourrait s'avérer très utile par exemple pour la détection d'explosifs.

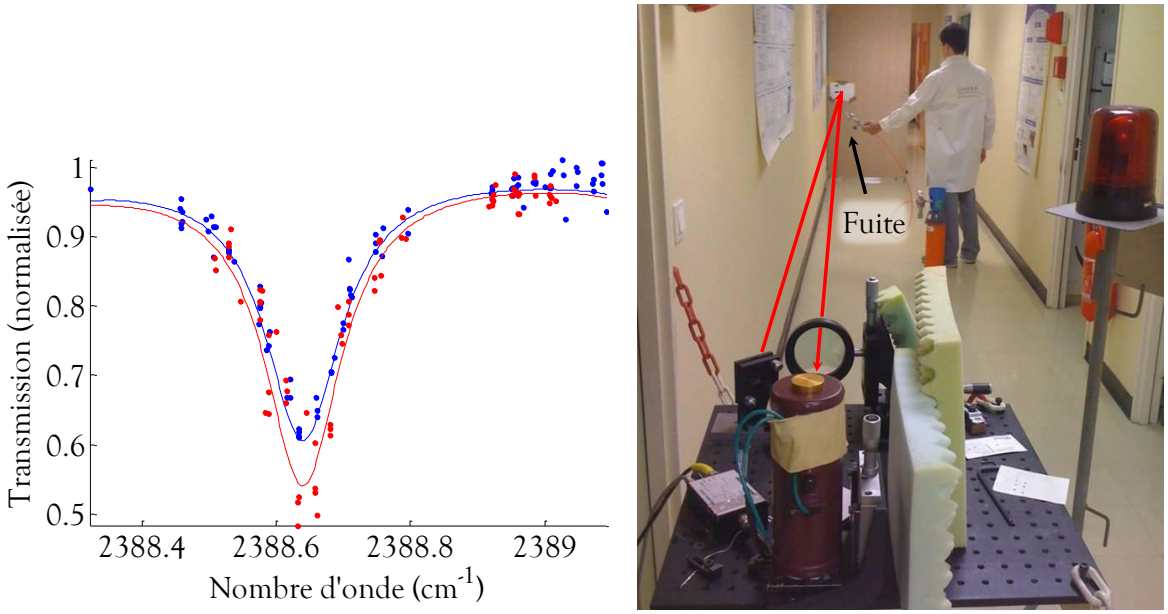
Néanmoins, la mesure présentée à la figure 130 démontre la capacité de notre instrument à réaliser une mesure pertinente sur plus de 30 cm^{-1}.

2. Potentiel du banc minilidar pour du suivi de la concentration d'espèces gazeuses

Les mesures présentées dans la partie précédente ont été réalisées dans des conditions expérimentales stables. Cependant, notre banc de mesure peut être aussi utilisé pour la détection en temps réel d'une variation de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère. Pour illustrer cette application, nous présentons deux expériences. Une première, pour la détection de fuite de gaz où la source balaye périodiquement la même raie d'absorption. Une deuxième pour l'analyse de gaz expiré où la source optique est stabilisée sur un pic d'absorption du CO_2.

a. Détection d'une fuite de gaz

La figure 131 a) présente deux balayages successifs de la même raie d'absorption du CO_2. Après un premier balayage (bleu), une bouteille de CO_2 est ouverte à proximité du chemin optique du faisceau complémentaire (figure 131 b)).



a) b)

Figures 131 : a) Détection de l'augmentation de la concentration de CO_2 sur le parcours du faisceau complémentaire : en bleu avant la fuite, en rouge pendant la fuite. Les points représentent la mesure expérimentale et les courbes sont calculées par le programme d'inversion. b) Photographie de l'expérience.

Nous observons alors un creusement de la raie dû à une augmentation de la concentration de CO_2. Le programme d'inversion nous donne ainsi des concentrations de 821 ppmv ± 12,1 ppmv avant la fuite et de 972 ppmv ± 25,9 ppmv pendant la fuite. La colonne d'air traversée par le faisceau complémentaire est de 20 m (portée de 10 m).

La concentration est élevée même avant la fuite, du fait de l'accumulation dans la zone expérimentale de CO_2 libéré pour des tests préliminaires.

La mesure montre une augmentation de près de 20 % de la densité de CO_2 dans l'atmosphère à partir du moment où la bouteille est ouverte.

Nous remarquons que, sans que cela ne soit excessif, la mesure pendant la fuite est plus bruitée et est moins bien corrélée au spectre simulé. En effet, le balayage d'une raie dure entre 10 et 20 s. La concentration de CO_2 varie donc fortement pendant le balayage en fréquence, la raie mesurée est alors déformée. Dès lors, la mesure de concentration est une moyenne sur le temps d'acquisition.

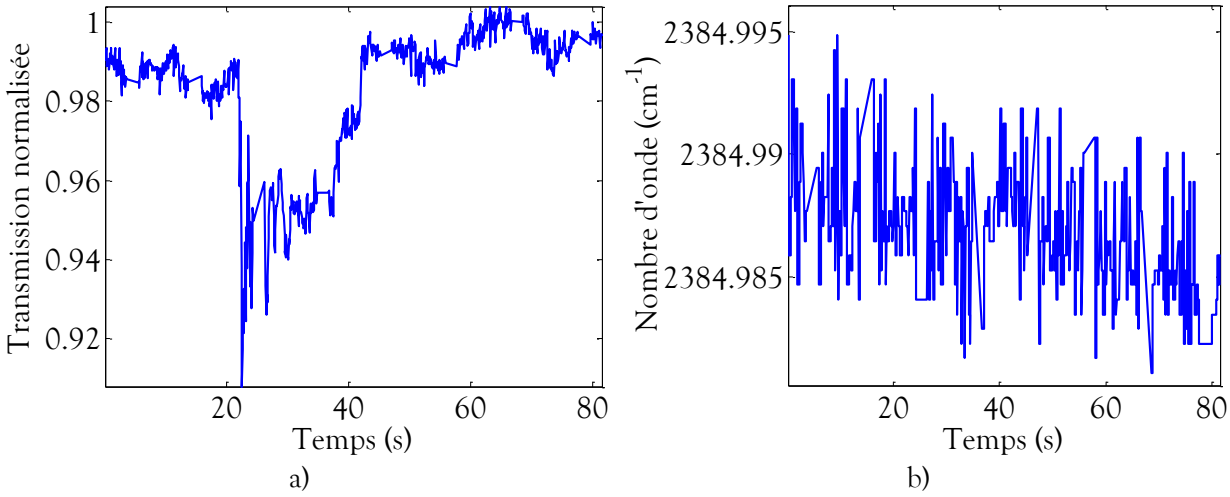
Pour mesurer plus rapidement des variations de concentration, il peut alors être intéressant de stabiliser la source en fréquence sur un pic d'absorption. Ainsi, nous pouvons enregistrer plus de dix points par seconde comme nous le voyons dans le paragraphe suivant.

b. Observation du gaz carbonique expiré

Les mesures spectroscopiques présentées précédemment utilisent un scan fréquentiel pour décrire une ou plusieurs raies d'absorption du CO_2.

Cependant, pour surveiller en temps réel la concentration d'un gaz il est aussi possible de stabiliser la source en fréquence. Pour des mesures locales, il est préférable de stabiliser la source à un pic d'absorption du gaz, pour minimiser les effets des fluctuations fréquentielles.

La figure 132 a) présente le suivi de la concentration de CO_2 dans le laboratoire. Pour cette expérience, la distance parcourue par le faisceau complémentaire est de 10 m (portée de 5 m). La source est stabilisée sur un pic d'absorption du CO_2 à 2384,99 cm^{-1} (figure 132 b)).



Figures 132 : Détection d'une augmentation momentanée de la concentration de CO_2 sur le parcours du faisceau complémentaire a) et fluctuations fréquentielles de la source au cours de la mesure b).

Nous observons sur la figure 132 a) une chute de la transmission, correspondant à un instant où une personne a expiré sur le parcours du faisceau complémentaire. Bien que le taux

de CO_2 n'excède pas 5 % du volume d'air expiré, sa détection se fait sans ambiguïté. Cette sensibilité peut être grandement améliorée en diminuant le chemin parcouru par le faisceau complémentaire ce qui permet de se placer sur une raie plus forte, vers 2365 cm^{-1} par exemple.

L'expiration ne dure pas plus de cinq secondes, mais en absence de ventilation active, nous observons que le « nuage » de CO_2 reste localisé autour du faisceau pendant près de vingt secondes.

Cette expérience montre l'intérêt que peut avoir notre banc optique pour plusieurs applications telles que l'analyse de la qualité de l'air, en couplant le suivi de concentration à un système de ventilation, ou encore pour de l'analyse de l'air expiré pour des applications médicales. Plusieurs gaz peuvent être contrôlés en changeant la fréquence de stabilisation périodiquement, pour atteindre des raies d'absorption caractéristiques de chacun des gaz. Pour ces expériences, la quantification du flux est, par contre, plus difficile.

III. Développement d'un capteur local pour la caractérisation d'espèces gazeuses à l'état de traces

Pour la détection locale de gaz à l'état de traces, il est intéressant de se tourner vers une autre technique de mesure : la détection photoacoustique. Bien que l'effet photoacoustique ait été découvert dès la fin du XIXe siècle [Bell '81], cette technique ne s'est développée que vers la fin des années 1960 avec les premiers systèmes basés sur les lasers [Kerr '68, Kreuzer '71].

En effet, il a fallu attendre l'avènement des lasers pour disposer de sources de forte puissance et monochromatiques dans le moyen infrarouge. Comme pour la méthode par absorption différentielle, il est important de disposer d'une source spectralement fine et largement accordable, pour réaliser des mesures sensibles sur diverses espèces. La détection photoacoustique connaît actuellement un renouveau depuis les récentes avancées de sources optiques cohérentes largement accordables dans l'infrarouge telles que les diodes laser, les OPO et les QCL par exemple, [Sigrist '08].

Dans cette partie, nous revenons rapidement sur le principe de la détection photoacoustique. Puis, nous présentons un premier résultat expérimental obtenu avec notre architecture NesCOPO couplé à une cellule photoacoustique commerciale.

A. Retour rapide sur la détection photoacoustique

La détection photoacoustique repose sur la génération d'une onde acoustique par l'éclairement périodique d'un milieu absorbant selon le schéma de principe de la figure 133.

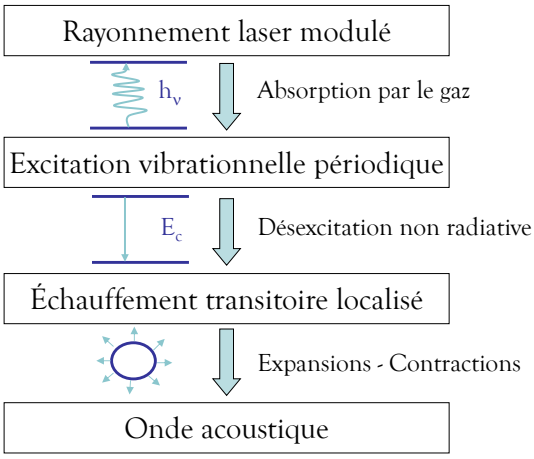


Figure 133 : Principe de la génération d'une onde acoustique par éclairement périodique d'un milieu absorbant.

Comme l'indique le schéma de la figure 133, le gaz absorbe l'énergie du faisceau laser via les transitions vibrationnelles et rotationnelles des molécules qui le composent (voir Chapitre 4.I.A). Le gaz relaxe alors par collisions entre les molécules. Ces collisions entraînent un échauffement et une dilatation localisés du gaz. La répétition du phénomène conduit à la génération d'une onde sonore dont la fréquence est égale à la fréquence de modulation du laser.

L'amplitude de l'onde acoustique peut être fortement augmentée en plaçant le gaz dans une cellule résonante. Il est alors souhaitable de disposer d'un laser à cadence variable pour ajuster précisément le taux de répétition à la fréquence de résonance de la cellule.

B. Mise en œuvre expérimentale du NesCOPO pour de la détection photoacoustique

L'expérience de spectroscopie photoacoustique présentée ici a été réalisée au cours de cette thèse, dans le cadre du stage M. Barbier [Barbier '11]. La figure 134 présente le schéma du montage mis en place.

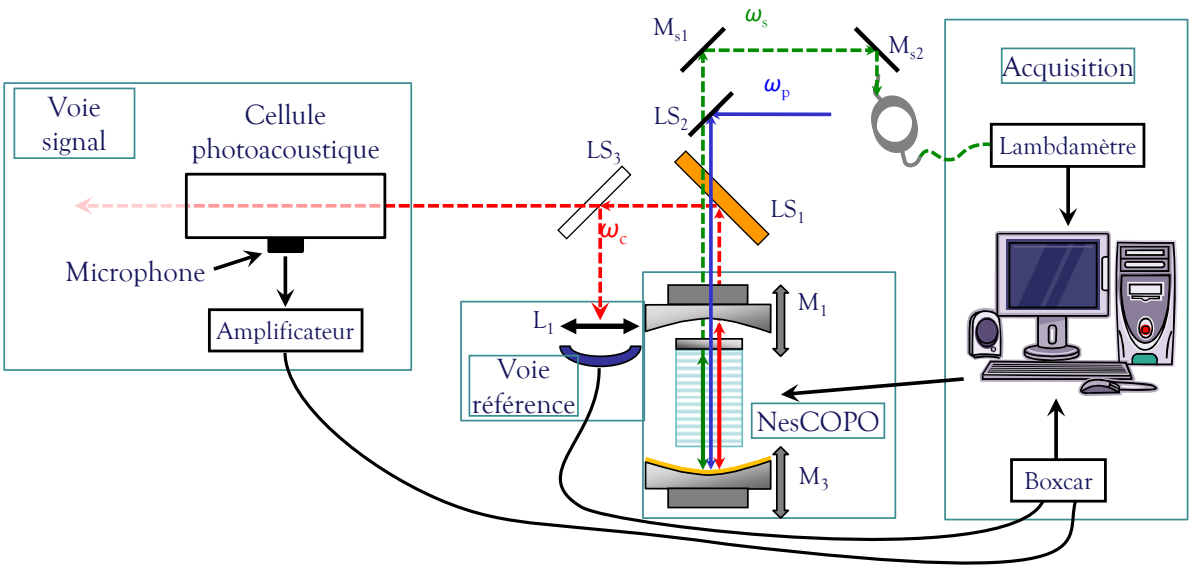


Figure 134 : Schéma de montage pour les expériences de détection photoacoustique.

Le banc optique mis en place est une déclinaison de celui développé pour les mesures par absorption différentielle. Le NesCOPO est identique à celui utilisé pour les expériences précédentes. Une partie du complémentaire (environ 4 %) est dirigée vers un détecteur de référence pour tenir en compte des fluctuations d'intensité de l'OPO.

La voie signal quant à elle, est modifiée ; elle se compose désormais d'une cellule photoacoustique, dans laquelle le faisceau est focalisé, d'un microphone qui convertit le signal sonore en signal électrique et d'un amplificateur audio commercial. Ce dernier permet, ici, d'augmenter l'amplitude du signal d'un facteur 100. Comme nous allons le voir par la suite, l'utilisation d'un intégrateur boxcar n'est pas adaptée au traitement du signal photoacoustique. Néanmoins, nous n'avons pas pu disposer, au moment de l'expérience, d'une détection synchrone mieux adaptée à ce type de signal.

Le laser de pompe a été remplacé par un laser à cadence variable pour adapter son taux de répétition à la fréquence de résonance de la cellule. Nous y revenons plus en détail dans la partie suivante.

1. Cellule photoacoustique et laser de pompe

a. Présentation de la cellule photoacoustique

Le résonateur contenu dans la cellule photoacoustique utilisée peut être modélisé comme un tube ouvert de longueur « l », comme l'illustre la figure 135.

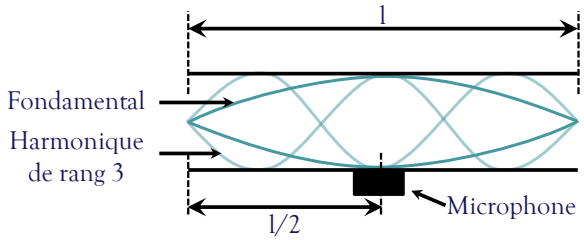


Figure 135 : Schéma de la cellule photoacoustique.

Afin de maximiser l'amplitude perçue par le microphone, il est préférable de le placer sur un ventre de l'onde acoustique, soit au centre du tube pour les harmoniques de rang impair, ce qui est le cas sur cette cellule. De même, la cadence de répétition du laser est de préférence choisie pour exciter le mode de résonance fondamental de la cellule.

La longueur « l » de la cellule étant de 4,3 cm ± 0,2 cm, la fréquence du fondamental (f_r) est théoriquement de 3,95 kHz ± 0,18 kHz en considérant la vitesse du son dans l'air : c_{air} égale à 340 m/s.

À l'aide d'un haut-parleur intégré à la cellule, la valeur expérimentale de la fréquence de résonance a pu être mesurée. Le haut-parleur, commandé par un générateur de fonctions, émet une onde sonore de fréquence pure ajustable entre 1 et 15 kHz. Cela permet de déterminer la réponse spectrale de la cellule, en supposant que le microphone et le haut-parleur ont une réponse plate sur la gamme fréquentielle considérée. Pour la caractérisation dans l'air ambiant, nous obtenons ainsi la courbe de la figure 136.

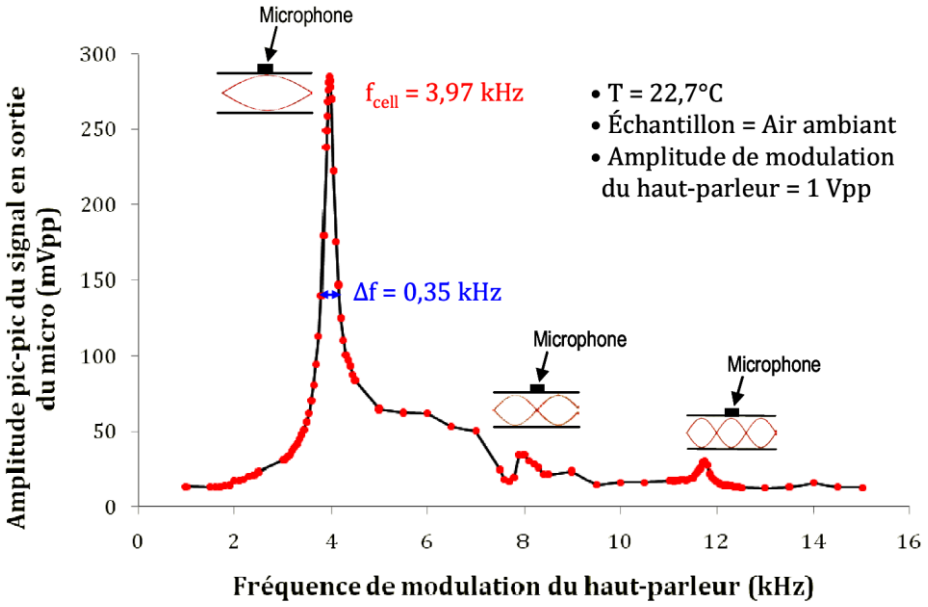


Figure 136 : Réponse spectrale de l'ensemble « cellule-microphone-hautparleur » dans l'air ambiant.

La fréquence de résonance (f_r) ainsi mesurée est de 3,97 kHz avec une largeur à mi-hauteur de 0,35 kHz ce qui est cohérent avec la valeur précédemment calculée. Cette mesure nous permet aussi de définir le facteur de qualité de la cellule, il est de $f_r/\Delta f \approx 11$.

À la fréquence de résonance, le signal acoustique mesuré à l'oscilloscope est un signal sinusoïdal de fréquence f_r.

b. Le laser fibré à cadence variable

Le laser utilisé pour cette expérience a été fourni par Teem Photonics. Il est basé sur la même architecture que le laser présenté précédemment (Chapitre 2.II.C.2). Cependant, la sortie du laser est fibrée. Il délivre en sortie du collimateur 6,5 µJ par impulsion pour une durée de 8 ns.

Surtout, son taux de répétition est ajustable entre 2 kHz et 5 kHz. Le déclenchement est assuré par modulation du courant de la diode de pompe. Au-delà de 5 kHz, il devient très

délicat de conserver un fonctionnement monomode. En effet, une variation du taux de répétition du laser change notamment la thermique du cristal de Nd: YAG. Pour une cadence donnée, il faut donc s'assurer que le laser reste bien monomode en ajustant par exemple la température du cristal, comme nous l'avons vu précédemment (Chapitre 2.II.C.2). De même, la longueur d'onde d'émission du laser varie légèrement en fonction du taux de répétition. À 3,97 kHz, pour cette expérience, il émet à 1 064,4254 nm.

2. Mesure de concentration de CO_2 atmosphérique par détection photoacoustique, limite de détectivité et pistes d'amélioration

La figure 137 présente le spectre expérimental obtenu par détection photoacoustique comparé au spectre d'absorption calculé sous Hitran. Le balayage fréquentiel est réalisé par sauts de modes par la technique de translation longitudinale des miroirs (TLM).

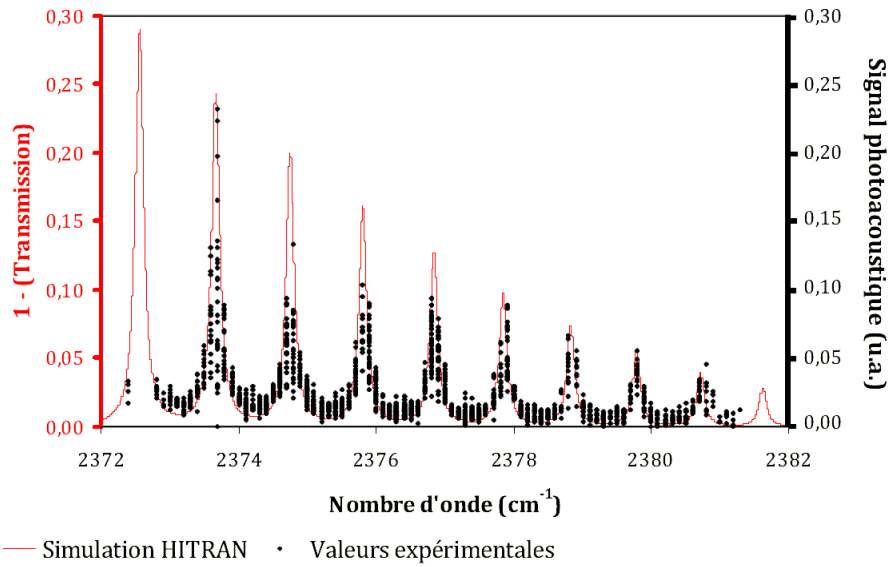


Figure 137 : Spectre sur huit raies d'absorption du CO_2. En noir est représentée l'intensité du spectre photoacoustique proportionnel à l'absorption. L'absorption théorique est calculée comme (1 – transmission$_{théorique}$) à partir de la base de données Hitran.

Sur la figure 137, nous observons une fluctuation de la ligne de base (points de mesure entre les raies) de 5,5 % du signal photoacoustique maximal mesuré. Ces fluctuations conduisent donc à une limite de détection de 22 ppmv.

Cette limite de détection est assez élevée. Néanmoins, plusieurs pistes d'amélioration sont envisagées.

D'un point de vue matériel, il serait intéressant de disposer d'un résonateur avec un plus grand facteur de qualité. Il faut cependant veiller à ce que le *jitter* fréquentiel dû au déclenchement du laser reste petit devant la largeur à mi-hauteur du pic de résonance. À titre d'exemple, dans l'expérience présentée ici, le *jitter* dû au laser est de 16 Hz et nous avons vu que la largeur à mi-hauteur de la résonance de la cellule photoacoustique est de 350 Hz. Un facteur 10 peut ainsi être gagné sur le facteur de qualité.

Pour diminuer le signal de fond (signal résiduel sans absorption dans la cellule), nous pourrions aussi tester des fenêtres traitées antireflet à la place des fenêtres en CaF_2 qui ferment actuellement la cellule photoacoustique.

La cellule photoacoustique dont nous disposons est un produit commercial destiné à une application précise qui n'est pas la détection de gaz à l'état de traces. Une cellule conçue spécifiquement pour nos applications permettrait sans nul doute d'améliorer la détectivité.

Enfin, toujours d'un point de vue matériel, l'utilisation d'une détection synchrone[1] qui est particulièrement bien adaptée aux signaux photoacoustiques, doit permettre de fortement diminuer le bruit de la chaîne de détection. En effet, nous avons vu que le signal photoacoustique est une sinusoïde de fréquence égale à la fréquence de résonance de la cellule soit une période de 250 µs pour f_r = 4 kHz. L'intégrateur boxcar n'est donc pas adapté à un tel signal (voir Chapitre 4.II.A.2).

D'un point de vue expérimental, divers tests, menés sur d'autres configurations, ont montré que l'alignement de la cellule photoacoustique est particulièrement critique. Or, pour notre expérience, nous n'avons pas pu disposer d'un système de positionnement précis. Dès lors, le signal de fond n'a pas pu être minimisé de façon optimale.

Enfin, le résonateur étant relativement court (≈ 4 cm), nous avons dû nous placer sur de fortes raies d'absorption du CO_2. Dès lors, le rapport entre les deux voies est fortement perturbé par l'absorption sur le parcours des faisceaux, vers le détecteur de référence d'une part et vers la cellule photoacoustique d'autre part. Il aurait été intéressant de pouvoir réaliser des essais sur d'autres espèces, sans être absorbé en amont de la cellule, afin de pouvoir bénéficier de toute la puissance émise par l'OPO.

Enfin, de la même manière que pour la spectroscopie par absorption différentielle, augmenter la puissance moyenne et la puissance crête permettrait de diminuer le bruit de mesure et ainsi d'améliorer la sensibilité de notre banc.

Finalement, le premier résultat obtenu et présenté ici, est assez encourageant. Il montre le potentiel de notre source pour être intégré dans des capteurs de gaz locaux. Les pistes d'amélioration présentées ici, seront expérimentées ultérieurement à ces travaux.

[1] La détection synchrone (*lock-in* en anglais) peut être vue comme un filtre passe-bande très sélectif centré sur la fréquence de modulation du signal étudié permettant d'obtenir l'amplitude de ce dernier sans le bruit à toutes les autres fréquences.

Synthèse

Ce quatrième chapitre décrit la réalisation d'instruments de mesures dédiés à des expériences de spectroscopie à distance ou locale, par mesure d'absorption différentielle et par détection photoacoustique, respectivement.

Après un rapide retour sur la spectroscopie infrarouge par absorption, nous avons, dans un premier temps, détaillé l'intégration du NesCOPO dans un banc de mesure à distance. Nous avons mis en évidence les difficultés liées aux contraintes des mesures atmosphériques et détaillé pour chacune d'elles les solutions apportées.

Nous avons présenté des mesures de concentration de CO_2 atmosphérique, réalisées dans différentes conditions expérimentales, mettant en avant le potentiel de la source et de ce banc pour des applications environnementales ou de sécurité.

Ainsi, nous avons pu mettre en œuvre les nouveaux types d'accord fréquentiel développés au chapitre 3. Ils nous permettent de décrire une raie d'absorption du CO_2 en quinze secondes seulement. Le balayage par température a permis de balayer le flanc de la bande vibrationnelle P du CO_2 sur près d'un térahertz démontrant l'intérêt de cette méthode pour détecter des espèces chimiques présentant de larges bandes d'absorption ou d'identifier des espèces dans des mélanges gazeux.

De plus, nous avons testé notre source pour le de concentration d'espèces en détectant des variations de concentration de CO_2 au cours d'une mesure. Ainsi, stabilisé en fréquence, notre banc de mesure peut détecter une fuite de gaz en moins d'une seconde.

Enfin, nous avons montré que le balayage TLM présentait un avantage décisif pour des expériences lidar multi longueur d'onde, en permettant d'émettre de nombreuses longueurs d'onde prédéterminées avec une seule source.

Par ailleurs, nous avons présenté un instrument de détection locale par technique photoacoustique couplée à notre NesCOPO. Nous avons détaillé sa mise en place expérimentale et nous avons présenté différentes pistes pour améliorer la détectivité du système.

Ces différentes techniques peuvent être utiles pour l'analyse d'un contenu gazeux, pour diverses applications. Par exemple, l'application d'analyse de la qualité de l'air intérieur, fait partie du cadre d'un transfert de technologie du NesCOPO, vers la société Blue Industry & Science.

Conclusion et perspectives

Conclusion

Au cours de ce travail de thèse, une nouvelle source optique a été réalisée et caractérisée. Cette nouvelle architecture d'OPO doublement résonant permet une maîtrise achromatique de la phase relative des ondes en interaction et le façonnage de la bande de gain paramétrique a pu être réalisé grâce à cette propriété. Nous avons aussi vu que ce façonnage offre la possibilité de maîtriser le contenu spectral de l'OPO ce qui a ouvert la porte au développement de nouvelles méthodes d'accord en fréquence, très profitables pour des expériences de spectroscopie.

Ainsi, le **chapitre 1,** de ce manuscrit a rappelé les principes fondamentaux de l'interaction non linéaire entre les trois ondes mises en jeu dans un OPO. Nous avons ensuite montré les limites des approches rapportées dans la littérature visant à rendre un OPO nanoseconde fin spectralement. Nous avons alors présenté la solution développée depuis maintenant plusieurs années à l'Onera : l'OPO doublement résonant (Dropo) à cavités imbriquées.

Dès lors, nous avons expliqué les avantages de cette solution, à savoir la possibilité d'émettre un rayonnement monofréquence sur l'ensemble de la bande de gain paramétrique. Pour cela, il a fallu d'une part revenir sur la problématique des coïncidences de modes dans les Dropo. Nous avons alors rappelé qu'un ajustement précis de la dissociation des cavités rendait possible une émission monomode. D'autre part, nous avons discuté de l'importance de la maîtrise de la phase relative dans les Dropo à double passage de pompe pour garantir l'efficacité de conversion à une fréquence donnée. De plus, maîtriser la phase relative de façon achromatique permet de façonner la bande de gain paramétrique et de contrôler le contenu spectral émis.

Ces analyses nous ont notamment permis de comprendre les avantages et les limites de l'architecture Dropo à cinq miroirs développée au cours des thèses précédentes et de comprendre comment une nouvelle architecture, permettant un contrôle achromatique de la phase relative, permettrait de s'affranchir de ces limitations.

Dès lors, nous avons détaillé au **chapitre 2** le développement d'une nouvelle cavité Dropo répondant à ces objectifs, tout en respectant le cahier des charges défini en introduction pour nos applications de détection d'espèces. Pour cela, il a fallu, dans un premier temps, définir un nouveau mode de contrôle de la phase relative. Une étude bibliographique a permis d'appréhender différentes méthodes présentées dans la littérature. Puis, nous avons présenté la solution proposée par l'Onera et brevetée dès 2007. Nous avons alors détaillé sa mise en œuvre

et sa réalisation expérimentale. Cette solution consiste en l'association d'un cristal non linéaire à polarisation périodiquement inversée prismatique et d'un miroir achromatique.

Grâce à cette nouvelle méthode de contrôle achromatique de la phase relative, nous avons pu présenter une nouvelle architecture de Dropo particulièrement compacte à trois miroirs : le NesCOPO (nested-cavity OPO). Nous avons alors détaillé le dimensionnement de cette architecture, notamment pour les applications de spectroscopie visées.

Les très bonnes performances spatiales et énergétiques de cette source ont été mesurées : un seuil d'oscillation de l'ordre du microjoule a été obtenu avec une très bonne qualité spatiale des faisceaux signal et complémentaire (TEM_{00}). Le contrôle et la caractérisation du contenu spectral émis par la source ont ensuite constitué le cœur de ce travail de thèse.

Ainsi, au **chapitre 3**, nous avons étudié, dans un premier temps, les capacités du NesCOPO à contrôler de façon achromatique la phase relative. Cette propriété a pu être démontrée au cours de cette thèse, en façonnant expérimentalement la bande de gain paramétrique, pour la première fois depuis les calculs théoriques de Bjorkholm *et al.* remontant à 1970. Deux modes de fonctionnement différents ont été mis en évidence. Pour le premier, la phase relative est optimisée pour obtenir un maximum d'efficacité pour les ondes en quasi-accord de phase. La bande de gain paramétrique présente alors un lobe affiné par rapport au cas d'un simple passage de pompe, ce qui est intéressant pour obtenir une émission monofréquence par notre méthode. Pour le second, la phase relative est ajustée pour annuler le gain pour les ondes en quasi-accord de phase. La bande de gain présente alors deux lobes distincts, espacés d'environ 1 THz.

Dans la configuration monolobe, nous avons démontré que le NesCOPO, possédant des cavités dissociées, peut émettre un rayonnement monofréquence si les longueurs de ces cavités sont correctement ajustées. Nous avons pu apprécier les progrès, en termes de stabilité fréquentielle notamment, apportés par ce nouvel arrangement plus compact. En effet, sans asservissement des longueurs des cavités, le NesCOPO peut émettre un rayonnement monofréquence sans saut de modes pendant des heures. Cette performance a été très favorable à la mise en œuvre d'un système d'asservissement et de contrôle en fréquence. De plus, concernant cet asservissement, la cavité est plus simple à contrôler que les versions précédentes, avec seulement deux miroirs de position ajustable.

Par ailleurs, le contrôle achromatique de la phase relative a permis de développer trois nouvelles méthodes d'accord en fréquence, en plus du balayage continu sans saut de modes. Ces balayages fréquentiels sont réalisés en effectuant des sauts de modes en modifiant les longueurs optiques de chacune des deux cavités. Un premier type de balayage par translation des miroirs de cavité (TLM), permet de balayer rapidement l'ensemble de la bande de gain et ce malgré la faible dynamique des cales piézoélectriques. Nous avons aussi démontré que ce balayage par sauts de modes de la source peut être effectué avec une résolution et une plage spectrale choisies.

Une nouvelle méthode de balayage, dite par translation transverse du cristal non linéaire (TTC), a conduit à la proposition d'une évolution de l'architecture NesCOPO et a été brevetée. Cette nouvelle technique est très prometteuse ; des plages spectrales de plusieurs térahertz peuvent être atteintes, avec, dans le même temps, une résolution paramétrable et pouvant atteindre la centaine de mégahertz.

En façonnant une bande de gain paramétrique à deux lobes, nous avons démontré que l'émission bimode de la source était possible, c'est-à-dire qu'elle présente une unique coïncidence de modes dans chacun des lobes. La réalisation de cette oscillation bimode s'est avérée délicate et particulièrement sensible à la dissociation des cavités. Nous avons alors

observé que si l'OPO émettait statistiquement autant d'énergie dans les deux couples de modes, le comportement tir à tir est, lui, très aléatoire, ce qui écarte une utilisation pratique de ce mode de fonctionnement.

Afin de valider son potentiel pour nos applications, le NesCOPO a été intégré dans deux instruments de mesure pour des applications de spectroscopie (**chapitre 4**). D'une part, nous avons utilisé une méthode d'absorption différentielle pour de la détection d'espèces gazeuses à distance. D'autre part, nous avons utilisé une technique photoacoustique pour de la détection locale.

Ces expériences ont bénéficié des nouveaux types d'accord en fréquence développés au cours de cette thèse. La souplesse du balayage TLM, en termes de plage spectrale et résolution, a permis de répondre à plusieurs problématiques de mesures. Nous avons ainsi été capables de décrire une raie d'absorption du CO_2 en 15 s avec une sensibilité d'une quinzaine de ppmv. Le régime impulsionnel de notre OPO nous a permis d'atteindre une portée de 30 m. Ce banc de mesure d'espèces à distance a aussi montré le potentiel du NesCOPO pour le suivi de concentration d'une espèce gazeuse, avec la détection d'une fuite de gaz en moins d'une seconde. Ces méthodes de balayage ouvrent la voie à des instruments de type Lidar, plus précis, permettant de décrire les raies d'absorption d'une ou plusieurs espèces, en offrant la possibilité d'émettre n'importe quelle fréquence dans le moyen infrarouge.

L'expérience mettant en œuvre la technique de spectroscopie photoacoustique a validé le potentiel du NesCOPO pour des mesures locales. Les premiers résultats et les points d'amélioration envisagés justifient que cette voie continue d'être explorée. L'intérêt de notre NesCOPO pour ce type de mesure est notamment la couverture d'un large spectre permettant l'analyse de mélanges gazeux.

Perspectives

Tout au long de ce manuscrit, nous avons démontré le potentiel de l'architecture NesCOPO pour nos applications de spectroscopie. Les perspectives sont donc nombreuses.

D'une part, les expériences très encourageantes de spectroscopie seront poursuivies pour mettre en pratique les pistes d'amélioration présentées et ainsi de continuer à mettre en valeur les capacités du NesCOPO à répondre au cahier des charges défini en introduction.

D'autre part, les expériences à venir devront permettre d'exploiter au mieux cette architecture très particulière.

Ainsi, le potentiel du balayage TTC (Chapitre 3.III.B.2) devra être validé expérimentalement. Ce balayage fonctionne en ne déplaçant que le cristal non linéaire ce qui ouvre alors la voie aux architectures miniaturisées sans réglage. En ce sens l'Onera a déjà commencé à acquérir un savoir-faire dans le domaine de l'ajustement des optiques par collage photosensible dans l'ultra-violet. Un OPO simplement résonant (Sropo) miniature, dont les miroirs de la cavité et le support de la fibre du laser de pompe sont collés, a ainsi déjà été réalisé (figure 138, [Faivre '11]).

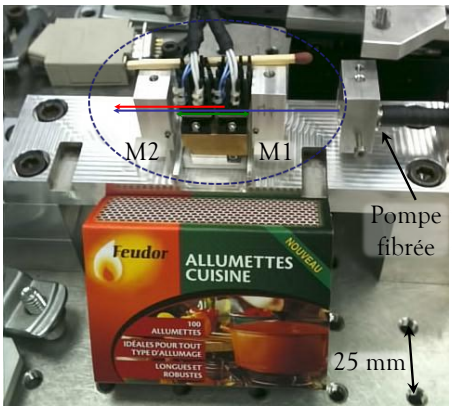


Figure 138 : Photographie d'un Sropo dont les miroirs de la cavité résonante sont collés.

Un NesCOPO dont les miroirs seraient collés verrait son encombrement réduit et sa stabilité mécanique et donc fréquentielle serait sensiblement accrue. Si, de plus, un tel NesCOPO peut être couplé à un laser à fibre accordable, cela laisse présager une maîtrise de l'émission spectrale totalement inédite dans le domaine des sources largement accordables dans l'infrarouge.

Enfin, des sources dans des gammes spectrales et des régimes temporels différents pourront aussi être développées pour répondre à des problématiques concrètes. Pour des applications de spectroscopie fine ou nécessitant une puissance moyenne élevée plutôt qu'une puissance crête élevée, les régimes continu ou quasi-continu (µs ou ms) pourront aussi être explorés avec ce type d'architecture. Ces nouveaux systèmes pourront alors bénéficier des derniers développements des sources fibrées ou des diodes laser pour pomper l'OPO [Henderson '00].

De plus, le fonctionnement en bande III (8 – 12 µm) pourra être réalisé en utilisant les matériaux non linéaires transparents dans cette gamme spectrale (OP GaAs[1] [Skauli '02]). L'intérêt sera alors de pouvoir détecter des agents chimiques neurotoxiques ou des explosifs et leurs précurseurs [Patel '08], avec des instruments permettant une détection locale ou à distance.

En ce sens, le NesCOPO est une architecture générique qui pourra être à même de bénéficier des dernières évolutions des lasers de pompe et des cristaux non linéaire, pour répondre au mieux à des problématiques d'analyse d'espèces chimiques ou gazeuses.

[1] OP-GaAs : *Orientation-patterned gallium arsenide*, arséniure de gallium orienté.

Bibliographie

[Amediek '08] - Amediek A, Fix A, Wirth M and Ehret G, "*Development of an OPO system at 1.57 µm for integrated path DIAL measurement of atmospheric carbon dioxide*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **92** - 2, 295-302, **(2008)**

[Armstrong '62] - Armstrong JA, Bloembergen N, Ducuing J and Pershan PS, "*Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric*", Physical Review, **127** - 6, 1918, **(1962)**

[Barbier '11] - Barbier M, "*Détection locales ou à distances d'espèces chimiques à l'état de traces*", Rapport de stage, Onera, **(2011)**

[Baxter '00] - Baxter GW, Payne MA, Austin BDW, Halloway CA, Haub JG, He Y, Milce AP, Nibler JF and Orr BJ, "*Spectroscopic diagnostics of chemical processes: applications of tunable optical parametric oscillators*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **71** - 5, 651-663, **(2000)**

[Bell '81] - Bell AG, "*The production of sound by radiant energy*", Science, **os-2** - 49, 242-253, **(1881)**

[Berrou '08] - Berrou A, "*Développement d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications*", Thèse de doctorat, École Polytechnique, **(2008)**

[Berrou '10] - Berrou A, Raybaut M, Godard A and Lefebvre M, "*High-resolution photoacoustic and direct absorption spectroscopy of main greenhouse gases by use of a pulsed entangled cavity doubly resonant OPO*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **98** - 1, 217-230, **(2010)**

[Bjorkholm '70] - Bjorkholm JE, Ashkin A and Smith R, "*Improvement of optical parametric oscillators by nonresonant pump reflection*", Quantum Electronics, IEEE Journal of, **6** - 12, 797-799, **(1970)**

[Bjorkholm '69] - Bjorkholm JE and Danielmeyer HG, "*Frequency control of a pulsed optical parametric oscillator by radiation injection*", Applied Physics Letters, **15** - 6, 171-173, **(1969)**

[Blau '08] - Blau P, Pearl S, Fastig S and Lavi R, "*Single-mode operation of a mid-infrared optical parametric oscillator using volume-Bragg-grating cavity mirrors*", Quantum Electronics, IEEE Journal of, **44** - 9, 867-871, **(2008)**

[Brosnan '79] - Brosnan S and Byer R, "*Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies*", Quantum Electronics, IEEE Journal of, **15** - 6, 415-431, **(1979)**

[Chakmakjian '96] - Chakmakjian SH, Gruneisen MT, Koch KW and Moore GT, The United States of America, "*Phased cascading of multiple nonlinear optical elements for frequency conversion*", **5,500,865**, **(1996)**, (*Brevet*)

[Chan '07] - Chan WL, Deibel J and Mittleman DM, "*Imaging with terahertz radiation*", Reports on progress in physics, **70** - 8, **(2007)**

[Colville '94] - Colville FG, Padgett MJ and Dunn MH, "*Continuous-wave, dual-cavity, doubly resonant, optical parametric oscillator*", Applied Physics Letters, **64** - 12, 1490-1492, **(1994)**

[Conroy '99] - Conroy RS, Rae CF, Dunn MH, Sinclair BD and Ley JM, "*Compact, actively Q-switched optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **24** - 22, 1614-1616, **(1999)**

[Conroy '98] - Conroy RS, Rae CF, Friel GJ, Dunn MH, Sinclair BD and Ley JM, "*Compact low-threshold Q-switched intracavity optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **23** - 17, 1348-1350, **(1998)**

[Desormeaux '05] - Desormeaux A, "*Développement, d'un oscillateur paramétrique optique monofréquence et réalisation d'un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire*", Thèse de doctorat, Paris XI - Orsay, **(2005)**

[Dherbecourt '11] - Dherbecourt J-B, Denoeud A, Melkonian J-M, Raybaut M, Godard A, Lefebvre M and Rosencher E, "*Picosecond tunable mode locking of a Cr2+:ZnSe laser with a nonlinear mirror*", Opt. Lett., **36** - 5, 751-753, **(2011)**

[Drag '02] - Drag C, Desormeaux A, Lefebvre M and Rosencher E, "*Entangled-cavity optical parametric oscillator for mid-infrared pulsed single-longitudinal-mode operation*", Opt. Lett., **27** - 14, 1238-1240, **(2002)**

[Eckardt '91] - Eckardt RC, Nabors CD, Kozlovsky WJ and Byer RL, "*Optical parametric oscillator frequency tuning and control*", J. Opt. Soc. Am. B, **8** - 3, 646-667, **(1991)**

[Faist '94] - Faist J, Capasso F, Sivco DL, Sirtori C, Hutchinson AL and Cho AY, "*Quantum Cascade Laser*", Science, **264** - 5158, 553-556, **(1994)**

[Faivre '11] - Faivre V, "*Miniaturisation d'une source paramétrique optique : deux années d'apprentissage à l'Onera*", Rapport de CFA, Institut d'Optique graduate school, **(2011)**

[Fejer '92] - Fejer MM, Magel GA, Jundt DH and Byer RL, "*Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances*", Quantum Electronics, IEEE Journal of, **28** - 11, 2631-2654, **(1992)**

[Germer '09] - Germer M and Wolff M, "*Quantum cascade laser linewidth investigations for high resolution photoacoustic spectroscopy*", Appl. Opt., **48** - 4, B80-B86, **(2009)**

[Giordmaine '65] - Giordmaine JA and Miller RC, "*Tunable Coherent Parametric Oscillation in $LiNbO_3$ at Optical Frequencies*", Physical Review Letters, **14** - 24, 973, **(1965)**

[Giordmaine '66] - Giordmaine JA and Miller RC, "*Optical Parametric Oscillation in $LiNbO_3$*", Physics of Quantum Electronics, - 31-42, **(1966)**

[Groß '10] - Groß P, Lindsay ID, Lee CJ, Nittmann M, Bauer T, Bartschke J, Warring U, Fischer A, Kellerbauer A and Boller K-J, "*Frequency control of a 1163 nm singly resonant OPO based on MgO:PPLN*", Opt. Lett., **35** - 6, 820-822, **(2010)**

[Harris '69] - Harris SE, "*Tunable optical parametric oscillators*", Proceedings of the IEEE, **57** - 12, 2096-2113, **(1969)**

[Haub '95] - Haub JG, Johnson MJ, Powell AJ and Orr BJ, "*Bandwidth characteristics of a pulsed optical parametric oscillator: application to degenerate four-wave mixing spectroscopy*", Opt. Lett., **20** - 15, 1637-1639, **(1995)**

[He '01] - He Y and Orr BJ, "*Tunable Single-Mode Operation of a Pulsed Optical Parametric Oscillator Pumped by a Multimode Laser*", Appl. Opt., **40** - 27, 4836-4848, **(2001)**

[Henderson '00] - Henderson AJ, Roper PM, Borschowa LA and Mead RD, "*Stable, continuously tunable operation of a diode-pumped doubly resonant optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **25** - 17, 1264-1266, **(2000)**

[Hitran '04] - Hitran, Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics, Cambridge MA, USA, **(2004)**

[Hugi '09] - Hugi A, "*External cavity quantum cascade laser tunable from 7.6 to 11.4??m*", Appl. Phys. Lett., **95** - 6, 061103, **(2009)**

[Huisken '95] - Huisken F, Kaloudis M, Marquez J, Chuzavkov YL, Orlov SN, Polivanov YN and Smirnov VV, "*Single-mode $KTiOPO_4$ optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **20** - 22, 2306-2308, **(1995)**

[Humphreys '04]

[Imeshev '98] - Imeshev G, Proctor M and Fejer MM, "*Phase correction in double-pass quasi-phase-matched second-harmonic generation with a wedged crystal*", Opt. Lett., **23** - 3, 165-167, **(1998)**

[Innolight '11] - Innolight, http://www.innolight.de/, **(2011)**

[Jacobsson '09] - Jacobsson B, Pasiskevicius V, Laurell F, Rotari E, Smirnov V and Glebov L, "*Tunable narrowband optical parametric oscillator using a transversely chirped Bragg grating*", Opt. Lett., **34** - 4, 449-451, **(2009)**

[Jacobsson '05] - Jacobsson B, Tiihonen M, Pasiskevicius V and Laurell F, "*Narrowband bulk Bragg grating optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **30** - 17, 2281-2283, **(2005)**

[Jundt '97] - Jundt DH, "*Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, ne, in congruent lithium niobate*", Opt. Lett., **22** - 20, 1553-1555, **(1997)**

[Juwiler '99] - Juwiler I, Arie A, Skliar A and Rosenman G, "*Efficient quasi-phase-matched frequency doubling with phase compensation by a wedged crystal in a standing-wave external cavity*", Opt. Lett., **24** - 17, 1236-1238, **(1999)**

[Kerr '68] - Kerr EL and Atwood JG, "*The Laser Illuminated Absorptivity Spectrophone: A Method for Measurement of Weak Absorptivity in Gases at Laser Wavelengths*", Appl. Opt., **7** - 5, 915-921, **(1968)**

[Kleine-Ostmann '04] - Kleine-Ostmann T, Pierz K, Hein G, Dawson P and Koch M, "*Audio signal transmission over THz communication channel using semiconductor modulator*", Electronics Letters, **40** - 2, 124-126, **(2004)**

[Kogelnik '69] - Kogelnik H, "*Coupled wave theory for thick hologram gratings*", The Bell System Technical Journal, **48** - 9, 2909-2947, **(1969)**

[Kreuzer '69] - Kreuzer LB, "*Single mode oscillation of a pulsed singly resonant optical parametric oscillator*", Applied Physics Letters, **15** - 8, 263-265, **(1969)**

[Kreuzer '71] - Kreuzer LB, "*Ultralow Gas Concentration Infrared Absorption Spectroscopy*", Journal of Applied Physics, **42** - 7, 2934-2943, **(1971)**

[Larkin '11] - Larkin P, "*Infrared and Raman spectroscopy: principles and spectral interpretation*", Elsevier, ISB N: 978-0-12-386984-5, **(2011)**

[Lee '98] - Lee D and Wong NC, "*Tuning characteristics of a cw dual-cavity KTP optical parametric oscillator*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **66** - 2, 133-143, **(1998)**

[Leeb '75] - Leeb W, "*Losses introduced by tilting intracavity etalons*", Applied Physics A: Materials Science & Processing, **6** - 2, 267-272, **(1975)**

[Lefebvre '07] - Lefebvre M, Mohamed AK and Godard A, Onera, "*Oscillateur paramétrique optique avec retour de pompe à maintien de phase achromatique*", **EP2035890**, France, **(2007)**, (*Brevet*)

[Li '84] - Li HH, "*Refractive Index of ZnS, ZnSe, and ZnTe and Its Wavelength and Temperature Derivatives*", Journal of Physical and Chemical Reference Data, **13** - 1, 103-150, **(1984)**

[Malitson '63] - Malitson IH, "*A Redetermination of Some Optical Properties of Calcium Fluoride*", Appl. Opt., **2** - 11, 1103-1107, **(1963)**

[Myers '96] - Myers LE, Eckardt RC, Fejer MM, Byer RL and Bosenberg WR, "*Multigrating quasi-phase-matched optical parametric oscillator in periodically poled LiNbO3*", Opt. Lett., **21** - 8, 591-593, **(1996)**

[Nguyen '06] - Nguyen KL, Johns ML, Gladden L, Worrall CH, Alexander P, Beere HE, Pepper M, Ritchie DA, Alton J, Barbieri S and Linfield EH, "*Three-dimensional imaging with a terahertz quantum cascade laser*", Opt. Express, **14** - 6, 2123-2129, **(2006)**

[Nikogosyan '05] - Nikogosyan D, "*Nonlinear optical crystals*", Springer, ISB N: 0-387-22022-4, **(2005)**

[Nouroozi '10] - Nouroozi R, Suche H, Hellwig A, Ricken R, Quiring V and Sohler W, "*Phase control of double-pass cascaded SHG/DFG wavelength conversion in Ti:PPLN channel waveguides*", Opt. Express, **18** - 13, 14225-14231, **(2010)**

[ONU '98] - Organisation des Nations Unies, "*Protocole de Kyoto à la convention-cadre des nations unies sur les changements climatiques*", **(1998)**

[Optigrate '11] - Optigrate, http://www.optigrate.com/products.html, **(2011)**

[Padgett '94] - Padgett MJ, Colville FG and Dunn MH, "*Mode selection in doubly-resonant optical parametric oscillators*", Quantum Electronics, IEEE Journal of, **30** - 12, 2979-2985, **(1994)**

[Palik '98] - Palik ED, "*Handbook of optical constants of solids*", Academic Press, ISB N: 0-12-281855-5, **(1998)**

[Patel '08] - Patel C, K.N., "*Laser photoacoustic spectroscopy helps fight terrorism: High sensitivity detection of chemical Warfare Agent and explosives*", Eur. Phys. J. Special Topics, **153** - 1-18, **(2008)**

[Pearl '99] - Pearl S, Lotem H, Shimony Y and Rosenwaks S, "*Optimization of laser intracavity second-harmonic generation by a linear dispersion element*", J. Opt. Soc. Am. B, **16** - 10, 1705-1711, **(1999)**

[PI '11] - PI, http://www.physikinstrumente.com/en/pdf/S310_Datasheet.pdf, **(2011)**

[Poberaj '02] - Poberaj G, Fix A, Assion A, Wirth M, Kiemle C and Ehret G, "*Airborne all-solid-state DIAL for water vapour measurements in the tropopause region: system description and assessment of accuracy*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **75** - 2, 165-172, **(2002)**

[Raki '95] - Raki AD, "*Algorithm for the determination of intrinsic optical constants of metal films: application to aluminum*", Appl. Opt., **34** - 22, 4755-4767, **(1995)**

[Raymond '94] - Raymond TD, Alford WJ, Smith AV and Bowers MS, "*Frequency shifts in injection-seeded optical parametric oscillators with phase mismatch*", Opt. Lett., **19** - 19, 1520-1522, **(1994)**

[Ribet '01] - Ribet I, "*Oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées pour l'étude de réseaux dynamiques créés par mélange à quatre ondes résolu en temps*", Thèse de doctorat, Paris XI - Orsay, **(2001)**

[Ribet '02] - Ribet I, Drag C, Lefebvre M and Rosencher E, "*Widely tunable single-frequency pulsed optical parametric oscillator*", Opt. Lett., **27** - 4, 255-257, **(2002)**

[Rosencher '02] - Rosencher E and Fabre C, "*Oscillation characteristics of continuous-wave optical parametric oscillators: beyond the mean-field approximation*", J. Opt. Soc. Am. B, **19** - 5, 1107-1116, **(2002)**

[Rothman '05] - Rothman LS, Jacquemart D, Barbe A, Chris Benner D, Birk M, Brown LR, Carleer MR, Chackerian JC, Chance K, Coudert LH, Dana V, Devi VM, Flaud JM, Gamache RR, Goldman A, Hartmann JM, Jucks KW, Maki AG, Mandin JY, Massie ST, Orphal J, Perrin A, Rinsland CP, Smith MAH, Tennyson J, Tolchenov RN, Toth RA, Vander Auwera J, Varanasi P and Wagner G, "*The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database*", Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, **96** - 2, 139-204, **(2005)**

[Scherrer '98] - Scherrer B, "*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)**

[Scherrer '00] - Scherrer B, Ribet I, Godard A, Rosencher E and Lefebvre M, "*Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators: demonstration of pulsed single-mode operation*", J. Opt. Soc. Am. B, **17** - 10, 1716-1729, **(2000)**

[Schlup '03] - Schlup P, "*Passive optical bandwidth control of quasi-phase matched optical parametric oscillators*", University of Otago, Dunedin, New Zealand, **(2003)**

[Schlup '00] - Schlup P, Baxter GW and McKinnie IT, "*Single-mode near- and mid-infrared periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator*", Optics Communications, **176** - 1-3, 267-271, **(2000)**

[Semtsiv '07] - Semtsiv MP, "*Short-wavelength ($\lambda \sim 3.05$ µm) InP-based strain-compensated quantum-cascade laser*", Appl. Phys. Lett., **90** - 5, 051111, **(2007)**

[Siegman '86] - Siegman AE, "*Lasers*", University Science Books, ISB N: 0935702113, **(1986)**

[Sigrist '08] - Sigrist MW, Bartlome R, Marinov D, Rey JM, Vogler DE and Wächter H, "*Trace gas monitoring with infrared laser-based detection schemes*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **90** - 2, 289-300, **(2008)**

[Skauli '02] - Skauli T, Vodopyanov KL, Pinguet TJ, Schober A, Levi O, Eyres LA, Fejer MM, Harris JS, Gerard B, Becouarn L, Lallier E and Arisholm G, "*Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation*", Opt. Lett., **27** - 8, 628-630, **(2002)**

[SmarAct '11] - SmarAct,

http://www.smaract.de/images/Download/SmarAct_Catalogue_Vol8.pdf, **(2011)**

[SNLO '10] - SNLO, *v. 53*, SNLO **(2010)**

[Stankov '88] - Stankov KA, "*A mirror with an intensity-dependent reflection coefficient*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **45** - 3, 191-195, **(1988)**

[Steinmeyer '06] - Steinmeyer G, "*Femtosecond dispersion compensation with multilayer coatings: toward the optical octave*", Appl. Opt., **45** - 7, 1484-1490, **(2006)**

[Stothard '04] - Stothard D, Lindsay I and Dunn M, "*Continuous-wave pump-enhanced optical parametric oscillator with ring resonator for wide and continuous tuning of single-frequency radiation*", Opt. Express, **12** - 3, 502-511, **(2004)**

[Szipöcs '94] - Szipöcs R, Ferencz K, Spielmann C and Krausz F, "*Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers*", Opt. Lett., **19** - 3, 201-203, **(1994)**

[Taupin '88] - Taupin D, "*Probabilities, data reduction and error analysis in the physical sciences*", Les Editions de Physique, ISB N: 2868830889, **(1988)**

[Tittel '03] - Tittel F, Richter D and Fried A, "*Mid-Infrared laser applications in spectroscopy*", Solid-State Mid-Infrared Laser Sources, **89** - 458-529, **(2003)**

[van Herpen '03] - van Herpen M, Bisson SE and Harren FJM, "*Continuous-wave operation of a single-frequency optical parametric oscillator at 4-5 µm based on periodically poled* $LiNbO_3$", Opt. Lett., **28** - 24, 2497-2499, **(2003)**

[Vigo '11] - Vigo, http://www.vigo.com.pl/, **(2011)**

[White '03] - White RT, He Y, Orr BJ, Kono M and Baldwin KGH, "*Pulsed injection-seeded optical parametric oscillator with low frequency chirp for high-resolution spectroscopy*", Opt. Lett., **28** - 14, 1248-1250, **(2003)**

[White '07] - White RT, He Y, Orr BJ, Kono M and Baldwin KGH, "*Control of frequency chirp in nanosecond-pulsed laser spectroscopy. 3. Spectrotemporal dynamics of an injection-seeded optical parametric oscillator*", J. Opt. Soc. Am. B, **24** - 10, 2601-2609, **(2007)**

[Wirth '09] - Wirth M, Fix A, Mahnke P, Schwarzer H, Schrandt F and Ehret G, "*The airborne multi-wavelength water vapor differential absorption lidar WALES: system design and performance*", Applied Physics B: Lasers and Optics, **96** - 1, 201-213, **(2009)**

[Yu '99] - Yu C-S and Kung AH, "*Grazing-incidence periodically poled LiNbO3 optical parametric oscillator*", J. Opt. Soc. Am. B, **16** - 12, 2233-2238, **(1999)**

[Zayhowski '97] - Zayhowski JJ, "*Microchip optical parametric oscillators*", Photonics Technology Letters, IEEE, **9** - 7, 925-927, **(1997)**

Bertrand Hardy-Baranski

Façonnage du contenu spectral d'un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie

Actuellement, un besoin croissant de techniques de détection et de quantification des gaz se manifeste, que ce soit pour la caractérisation de polluants atmosphériques, pour le contrôle de la qualité de l'air intérieur ou encore pour des aspects de sécurité en milieu industriel.

Pour répondre à cette problématique, nous avons développé et caractérisé une source optique compacte, nanoseconde, constituée d'une architecture innovante d'oscillateur paramétrique optique doublement résonant (Dropo). La compréhension du rôle de la phase relative des ondes en interaction a été primordiale pour maîtriser le contenu spectral émis par ce type de sources paramétriques. Au cours de ce travail nous avons abouti à la maîtrise de cette phase, et réalisé une nouvelle architecture, dite *nested-cavity OPO* (NesCOPO). Avec cette cavité originale, un contrôle achromatique de la phase relative est réalisé pour toute la bande de gain paramétrique, permettant de démontrer le façonnage de cette dernière. Nous avons ainsi mis en évidence deux modes de fonctionnement suivant que la bande de gain présente un lobe unique ou deux lobes séparés d'environ un térahertz. Dans la dernière configuration, une émission bifréquence de l'OPO a été démontrée.

Dans la première configuration, une émission monofréquence a été obtenue de manière contrôlée. Cette nouvelle architecture d'OPO – NesCOPO – a ouvert la voie à de nouveaux types d'accord en fréquence, particulièrement intéressants pour des expériences de spectroscopie. En tirant parti de l'imbrication de deux cavités optiques, nous avons ainsi été en mesure de réaliser des balayages fréquentiels automatisés sur toute la bande de gain avec une résolution ajustable. Une autre technique de balayage, promettant des balayages sur plusieurs dizaines de cm^{-1}, a conduit à une évolution de l'architecture du NesCOPO et a été brevetée.

Afin de valider son potentiel pour des applications de spectroscopie, et tirant parti du seuil d'oscillation très bas (1 µJ), nous avons pu implanter le NesCOPO, pompé par microlaser, dans des instruments compacts de mesure de gaz locale (technique photoacoustique) et à distance.

Mots-clés : oscillateur paramétrique optique, phase relative, accordable, monomode, bimode, nanoseconde, infrarouge, microlaser, spectroscopie, lidar, photoacoustique.

Spectral shaping of a doubly resonant OPO by control of the relative phase, applications for spectroscopy

There has currently been a growing interest for gas sensing and quantification, in terms of atmospheric pollutants characterization, as well as indoor air quality control or even security concerns in the industrial domain.

To meet this challenge, we have developed and characterized a compact nanosecond optical source, which relies on an innovative doubly resonant optical parametric oscillator (DROPO) set-up. The understanding of the role of the relative phase between the three interacting waves has been essential to master the spectral emission of this kind of parametric sources. Accomplishing this work has led us to the control of this phase and to the development of a new architecture, called nested-cavity OPO (NesCOPO). With this new concept, an achromatic control of the relative phase is achieved all over the parametric gain bandwidth, allowing the first demonstration of parametric-gain-shaping. We can thereby highlight two different kinds of functioning depending on whether the parametric gain bandwidth has a unique lobe or two lobes separated by a distance of about one terahertz.

In the first configuration, a controlled single mode emission has been obtained whereas a two-frequency emission has been demonstrated in the second mode of operation. This new NesCOPO architecture paves the way to new frequency tuning methods, highly promising for spectroscopic experiments. Taking advantage of the nested-cavities arrangement, we have been able to tune the frequency all over the parametric gain bandwidth with an adjustable resolution. Another tuning technique, opening the perspective for a terahertz frequency scan range, has led to an evolution of the NesCOPO architecture and has been patented.

Taking advantage the low oscillation threshold (1 µJ), we have pumped the Nescopo with a microlaser. Then, in order to validate its potential for spectroscopic applications we have implemented the optical source into compact remote and local (photoacoustique technique) gas sensing devices.

Keywords: optical parametric oscillator, relative phase, tunable, single mode, bimode, nanosecond, infrared, spectroscopy, lidar, photoacoustic.

Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales
BP 72 - 29 avenue de la Division Leclerc
92322 CHÂTILLON CEDEX
Tel. : + 33 (0) 1 46 73 40 40 - Fax : + 33 (0) 1 46 73 41 41
http://www.onera.fr