



**HAL**  
open science

# Développement d'un spectromètre TéraHertz par différence de fréquences: Application à des molécules d'intérêt atmosphérique.

Ludovic Aballea

► **To cite this version:**

Ludovic Aballea. Développement d'un spectromètre TéraHertz par différence de fréquences: Application à des molécules d'intérêt atmosphérique.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université des Sciences et Technologie de Lille - Lille I, 2009. Français. NNT : . tel-00397811

**HAL Id: tel-00397811**

**<https://theses.hal.science/tel-00397811>**

Submitted on 23 Jun 2009

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

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

# Thèse

Présentée à l'Université Lille 1



En vue de l'obtention du titre de

## Docteur de l'université Lille 1

Spécialité : Optique et Lasers – Physico-Chimie – Atmosphère

Par

**LUDOVIC ABALLEA**

Sujet de thèse :

**DÉVELOPPEMENT D'UN SPECTROMÈTRE  
TÉRAHERTZ PAR DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES :  
APPLICATION À DES MOLÉCULES D'INTÉRÊT  
ATMOSPHÉRIQUE.**

Directeur de thèse : M. GEORGES WLODARCZAK, Professeur, Université Lille1.  
M. LUCIEN CONSTANTIN, Chargé de recherches, Université Lille1.

Rapporteurs : MME. ANNE AMY-KLEIN, Professeur, Université Paris13.  
MME. PASCALE ROY, Directrice de recherches, Synchrotron Soleil.

Examineurs : M. JOHANNES ORPHAL , Professeur, Université Paris 12.  
M. GAËL MOURET , Maître de conférence, Université du Littoral-  
Cote d'Opale.

Soutenue le 25 Mai 2009



## Remerciements :

Je voudrais avant tout remercier les personnes qui ont accepté d'évaluer ce travail en faisant partie du jury de cette thèse. Je remercie en particulier Anne Amy-Klein et Pascale Roy qui ont bien voulu corriger et critiquer ce mémoire. Merci à Johannes Orphal d'avoir bien voulu présider ce jury avec enthousiasme.

Cette thèse est le résultat d'un travail de longue haleine. Je voudrais montrer ma gratitude à tout ceux qui l'ont rendue possible.

Tout d'abord à Georges Wlodarzack, mon directeur de thèse qui a su, malgré ses responsabilités de directeur de laboratoire, poser les questions qui m'ont fait avancer dans ma rédaction tout en me laissant une grande liberté. J'ai apprécié sa confiance, et aussi les discussions informelles que nous avons eues sur la spectroscopie. Ensuite à François Rohart qui s'est creusé la tête avec moi sur cette « satanée » molécule d'eau, sa bonne humeur, sa disponibilité et sa rigueur m'ont permis d'avancer plus aisément dans le domaine alors inconnu pour moi des largeurs de raie.

La mise en place du montage expérimental n'aurait pas pu être réalisée sans les grandes compétences de Lucien Constantin, avec qui j'ai principalement collaboré et qui a imaginé ce spectromètre. Depuis mon DEA, son encadrement m'a appris à être plus autonome. Son exigence, ses commentaires et ses critiques m'ont permis de me dépasser. Je n'oublierai pas nos journées « à la cave » et les discussions au-dessus de la table optique qui m'ont fait prendre goût à la métrologie de fréquence et comprendre qu'aligner une cavité est moins simple qu'il n'y paraît.

Le spectromètre n'aurait pas vu le jour sans l'aide de nombreuses personnes. Parmi elles, Denis Bacquet a posé certaines des pierres de fondation de la cavité FP de haute finesse. Je tiens aussi à remercier toute l'équipe de l'atelier de mécanique, en particulier Laurent Manet et Daniel Lesage qui n'ont pas compté les heures passées, perplexes, devant mes premiers plans autocad et ont su faire preuve d'humour pour m'apprendre l'art délicat de la cotation et de la représentation orthogonale. Le guide du dessinateur industriel perdu par un inconnu

sur mon bureau a fait un heureux. Mes sollicitations envers l'équipe d'électronique ont été nombreuses, et je veux donc saluer Hervé Damart, Michel Gamot, Christian Libaert, Thierry Robidet et Bernard Lesecq, dont les coups de main ont été innombrables. Ils ont su garder leur calme malgré les prêts de matériel d'une durée extra longue, les changements de Typons de dernière minute et mes questions d'électronique parfois farfelues.

Durant cette thèse, j'ai été intégré à l'équipe de spectroscopie du laboratoire, je les remercie tous de leur accueil. Plus particulièrement je voudrais remercier ma collègue de bureau Karine Demyk pour sa gentillesse, mais aussi Laurent Margulès pour son franc parler, son humour et l'aide qu'il m'a apportée ; promis, je ramène la jauge Baratron. Je suis aussi très reconnaissant à Thérèse Huet et Manuel Goubet qui ont eu le malheur de répondre présent lors de la mise en place du vide dans la cellule du spectromètre ; leurs conseils et leur patience m'ont été d'un grand secours. Je voudrais aussi saluer Gaël Mouret et Arnaud Cuisset de l'Université du Littoral avec qui j'ai pu avoir des discussions instructives sur le photomélangé.

L'aide matérielle apportée par des personnes d'autres thématiques que la mienne a aussi été très importante dans la réalisation de ce travail. Le switch ultrarapide de Pascal Szriftgiser a permis de caractériser la cavité FP et son viseur infrarouge a été capital lors de la mise en place des diodes cavité étendue, je voudrais donc lui témoigner ma gratitude pour sa gentillesse lors de mes périodes de harcèlement. L'analyseur de spectre optique prêté par Philippe Verkerk et le lambda-mètre de l'équipe photonique ont aussi été d'une utilité de tout premier plan. Je voudrais aussi remercier Emmanuel Courtade et François Anquez qui en tant que voisins de « salle de manip » m'ont parfois bien aidé quand je manquais de bras et ont contribué de manière involontaire (et malheureusement moins désirée) à mon étude des asservissements.

Je veux encore saluer toute l'équipe des thésards du vendredi soir, Maxence Lepers, Julien Chabé, Cécile Danilo, Pierre-Emmanuel Morant, Clément Evain, Aurélie Bétourne, Paul Dély, Constant Vandermoere, François Anquez. Ils ont permis de lancer cette dynamique du séminaire des thésards pour les thésards, séminaire finissant régulièrement en soirée au bar. Ils m'ont permis de m'ouvrir à d'autres domaines de la physique tout en passant de bons moments. Pendant plus de trois ans ils ont subi mes plaintes et jérémiades incessantes du midi et mes coups de déprime.

Enfin ces remerciements ne seraient pas complets sans que j'exprime ma gratitude à ceux qui ont supporté mes doutes, m'ont soutenu dans les moments difficiles et ont toujours eu foi en moi de manière inconditionnelle, Marie-Ange et mes parents.

*La seule façon de renforcer notre intelligence est de n'avoir  
d'idées arrêtées sur rien, de laisser l'esprit accueillir toutes  
les pensées.*

*John Keats*



# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Généralités</b>	<b>9</b>
1.1 Introduction.	9
1.2 Le rayonnement Téraherz.	10
1.2.1 De multiples utilités.	10
1.2.2 Un outil d'étude astrophysique.	12
1.3 Différentes méthodes de génération Téraherz.	18
1.3.1 Méthodes directes.	18
1.3.2 Méthodes indirectes.	20
1.4 Spectromètre haute résolution par différence de fréquences.	24
1.4.1 Principe général de ce spectromètre.	24
1.4.2 Un outil complémentaire pour la spectroscopie.	28
<b>2 Génération de rayonnement THz par photomélangé.</b>	<b>31</b>
2.1 Introduction.	31
2.2 Système optique pour le photomélangé.	32
2.2.1 Les sources de rayonnement.	32
2.2.2 Dispositif optique infrarouge.	33
2.3 Principe de l'accordabilité en fréquence.	36
2.3.1 Modulation acousto-optique en double passage.	36
2.3.2 Performances du système d'accordabilité.	42
2.4 Photomélangé.	47
2.4.1 Généralités.	47
2.4.2 Modélisation physique du photomélangé.	50
2.5 Résultats expérimentaux.	56
2.5.1 Couverture spectrale du dispositif photomélangé.	56
2.5.2 Couplage infrarouge.	58
2.5.3 Couplage du rayonnement Téraherz.	60

2.5.4	Facteurs influençant l'efficacité de génération de rayonnement TéraHertz. . . . .	63
2.6	Caractérisation du photomélangeur. . . . .	66
2.6.1	Comportement du système de différence de fréquences. . . . .	66
2.6.2	Couplage à la cellule de spectroscopie. . . . .	72
2.6.3	Performances spectroscopiques. . . . .	73
2.7	Conclusion. . . . .	75
<b>3</b>	<b>Stabilisation des sources de rayonnement</b>	<b>77</b>
3.1	Introduction. . . . .	77
3.2	Asservissement Pound-Drever-Hall. . . . .	78
3.2.1	Stabilisation d'une diode laser. . . . .	78
3.2.2	Signal d'erreur. . . . .	83
3.3	Méthode PDH appliquée au spectromètre TéraHertz. . . . .	87
3.3.1	Schéma général de l'asservissement. . . . .	87
3.3.2	Cavité Fabry-Pérot. . . . .	90
3.3.3	Optimisation du système optique pour la stabilisation. . . . .	93
3.3.4	Rétro-contrôle électronique. . . . .	99
3.3.5	Sources de bruit. . . . .	103
3.4	Caractérisation de l'asservissement. . . . .	111
3.4.1	Caractéristiques de la cavité. . . . .	111
3.4.2	Performances de l'asservissement. . . . .	114
3.4.3	Perspectives d'amélioration de l'asservissement. . . . .	124
3.5	Conclusion. . . . .	125
<b>4</b>	<b>Applications du spectromètre</b>	<b>127</b>
4.1	Introduction. . . . .	127
4.2	Étude sur le Chlorométhane. . . . .	127
4.2.1	Spectre rotationnel de $CH_3^{35}Cl$ . . . . .	128
4.2.2	Caractérisation du spectromètre par la spectroscopie de $CH_3^{35}Cl$ . . . . .	130
4.2.3	Conclusion des essais. . . . .	144
4.3	Élargissement collisionnel de raies d'absorption de l'eau. . . . .	145
4.3.1	Une molécule d'intérêt atmosphérique. . . . .	145
4.3.2	Principe des mesures. . . . .	147
4.3.3	Mise en oeuvre du protocole : Intensité de la raie à 1322GHz	149
4.3.4	Application aux mesures d'élargissement collisionnel. . . . .	156
4.3.5	Conclusion de l'étude. . . . .	171
	<b>Conclusion</b>	<b>173</b>

<i>Table des matières</i>	3
<b>Annexes</b>	<b>177</b>
<b>A Rappels sur les faisceaux gaussiens</b>	<b>179</b>
<b>B Cavité résonante</b>	<b>185</b>
<b>C Description statistique de l'émission laser.</b>	<b>193</b>
<b>D Photos du montage expérimental</b>	<b>197</b>
<b>E Vers un spectromètre multipassage.</b>	<b>203</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>215</b>



# Introduction

Les pages de ce manuscrit émettent du rayonnement TéraHertz sans que nous nous en rendions compte ! Ce type de fréquences est en effet émis par rayonnement du corps noir de tout objet porté à une température supérieure à 14 K. Le rayonnement TéraHertz a commencé à être étudié sérieusement à partir des années 20 [1]. Cependant l'enthousiasme lié à sa découverte a rapidement buté contre des barrières technologiques importantes. En effet son utilisation dans des applications scientifiques et techniques nécessite d'obtenir beaucoup plus de puissance de rayonnement que celle apportée par le seul rayonnement de corps noir. Il n'existait, à l'époque, que quelques techniques confidentielles permettant d'obtenir ces puissances à des coûts exorbitants et très peu de moyens de détecter ce rayonnement. Le rayonnement TéraHertz a donc pendant longtemps été complètement sous-exploité en raison de ces handicaps.

Depuis quelques dizaines d'années cet état de fait est en train de changer, motivé par la conjugaison de plusieurs phénomènes.

De nouvelles problématiques de société ont tout d'abord vu le jour dans les pays développés. La protection des populations et des états vis à vis des menaces terroristes ou du grand banditisme est devenu un sujet important de préoccupation.

Dans un tout autre domaine, une prise de conscience nouvelle de l'impact environnemental des activités humaines et de la pollution qu'elles engendrent est en train de s'amorcer. La nécessité de diminuer la pollution rejetée dans l'atmosphère pousse maintenant de nombreux pays à prendre des mesures préventives et à se regrouper pour élaborer des protocoles de sauvegarde de la planète, comme celui de Kyoto.

Dans le domaine des sciences dites « dures », l'étude de notre univers a fait des bonds énormes et débouche sur de nouveaux domaines d'exploration comme l'analyse de la dynamique des nuages interstellaires. La détection de molécules dans le milieu interstellaire par des observations terrestres ou au moyen de satellites est devenue commune et sert de travail fondamental dans ces études.

De grandes avancées technologiques en matière d'optoélectronique et de matériaux ont eu lieu de manière parallèle, avec le développement de lasers solides de type impulsionnel, mais aussi la maîtrise nouvelle de matériaux semi-conducteurs comme l'arséniure de Gallium et le développement de techniques de microélectronique donnant la possibilité de réaliser des composants électriques à l'échelle de quelques microns.

La rencontre de ces problématiques émergentes et des avancées techniques majeures réalisées de manière récente, a remis au goût du jour la plage de fréquence TéraHertz. Elle a fait tout d'abord ressortir ses multiples utilités et applications en matière d'imagerie, de télécommunication, ou encore de spectroscopie et a rendu son utilisation plus accessible de manière commune par le développement de sources de rayonnement plus puissantes et de détecteurs ultrasensibles.

Ces nouvelles perspectives ont rapidement été appliquées aux sciences fondamentales. En effet la détection de drogues ou d'explosifs, la détection atmosphérique de polluants ou la détermination des espèces présentes dans les nuages de gaz interstellaires demande de pouvoir se baser sur des « cartes d'identité » fiables des molécules recherchées. L'obtention de ces données sur les molécules passe de manière obligatoire par leur étude en laboratoire par des méthodes diverses. Parmi celles-ci, l'analyse spectroscopique des molécules a très largement fait ses preuves.

C'est dans cette thématique que s'inscrit notre équipe au laboratoire PhLAM. Nous utilisons le rayonnement TéraHertz pour obtenir des spectres caractéristiques des molécules. En tirant partie des nouvelles techniques permettant la génération et la détection de rayonnement TéraHertz, notre laboratoire a développé des moyens d'analyse fiables des molécules en phase gaz dans ce domaine de fréquences. Au cours des trois dernières années, un nouveau spectromètre générant du rayonnement par différence de fréquences de sources proche infrarouge sur un élément issu des derniers développements en matériaux a été mis en place par nos soins. Ce dispositif original doit apporter :

1. Une large accordabilité en fréquence, utile pour les études de molécules dont les raies d'absorption sont dispersées sur une large gamme spectrale.
2. Une bonne sensibilité assurant la détection aisée des raies d'absorption lors des études.
3. Une métrologie des fréquences d'absorption correcte afin de pouvoir évaluer les caractéristiques précises de la molécule étudiée.
4. Une relative facilité d'utilisation par rapport aux dispositifs dont dispose déjà le laboratoire.

Élaboré pour la spectroscopie haute résolution, le spectromètre s'appuie ainsi sur des diodes lasers infrarouges et un dispositif optoélectronique appelé photomélangeur pour générer du rayonnement par différence de fréquences et sur une technique d'asservissement complexe pour obtenir une bonne métrologie de fréquence lors des études. Ce montage a dans un premier temps été calibré par la mesure de raies d'absorption du chlorométhane ( $CH_3^{35}Cl$ ), molécule dont le spectre est connu avec une bonne précision dans la plage spectrale TéraHertz. Son utilisation dans ce cadre a permis de valider son application pour des études spectroscopiques ultérieures. Il a ensuite été utilisé dans une étude préliminaire de l'élargissement de raies d'absorption de l'eau par les deux gaz composants majoritairement l'atmosphère terrestre que sont  $N_2$  et  $O_2$ . Ces études permettront de quantifier l'impact de l'élargissement de certaines raies de l'eau par l'air aux fréquences TéraHertz.



# Chapitre 1

## Généralités

### 1.1 Introduction.

Longtemps laissée inexplorée, la plage spectrale TéraHertz est mise en lumière depuis une vingtaine d'années. De nombreuses publications font état d'avancées dans des domaines variés comme l'électronique, les télécommunications, ou encore l'imagerie qui tirent profit de cette plage spectrale.

Nous verrons tout d'abord ce qu'est ce rayonnement TéraHertz et traiterons brièvement des raisons multiples de l'intérêt pour cette gamme de fréquences. Parmi ceux-ci, l'utilité de sonder la matière et l'univers avec du rayonnement TéraHertz sera tout particulièrement abordée. Dans ce but de nombreuses missions scientifiques sont en chantier nécessitant un travail de caractérisation en laboratoire. Un aperçu des différentes sources de rayonnement actuellement disponibles pour ces applications permettra de se pencher plus précisément sur les techniques de génération de rayonnement TéraHertz par différence de fréquences. Appliquées à l'étude de molécules pour la spectroscopie en laboratoire, nous verrons sur quel principe un spectromètre TéraHertz à haute résolution par différence de fréquences a été mis en oeuvre au cours de cette thèse.

## 1.2 Le rayonnement TéraHertz.

### 1.2.1 De multiples utilités.

#### Qu'est ce que le rayonnement TéraHertz ?

La plage de fréquence TéraHertz est bordée par le domaine infrarouge et le domaine micro-onde, c'est pourquoi on appelle aussi ce rayonnement infrarouge lointain ou rayonnement submillimétrique [2]. Le terme TéraHertz désigne les fréquences couvrant une large gamme allant de  $0,1 \cdot 10^{12}$  Hertz à  $10 \cdot 10^{12}$  Hertz (FIG. 1.1). Pour fixer les idées il est commode de dire qu'une fréquence de 1 THz équivaut à  $33 \text{ cm}^{-1}$  en nombre d'onde, ou encore, une longueur d'onde de  $300 \mu\text{m}$ .

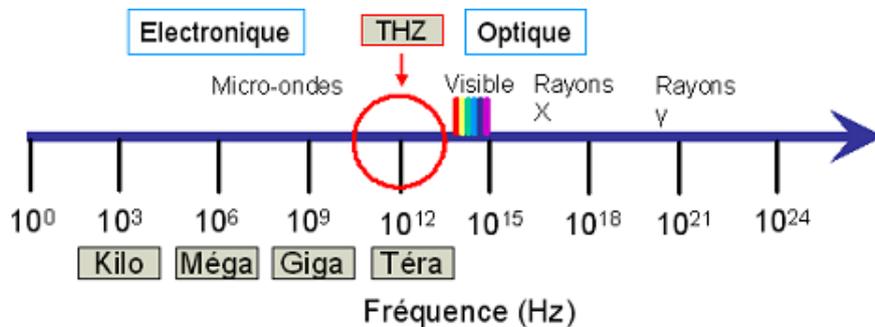


FIG. 1.1: Localisation des fréquences TéraHertz dans le spectre électromagnétique.

Au cours des 20 dernières années, une réelle pénurie de sources et de détecteurs fonctionnant à ces fréquences a été constatée. Le TéraHertz est, en effet, situé à la frontière entre des méthodes de génération de rayonnement de manière électroniques et optiques. Il existait alors un trou dans les méthodes de génération de rayonnement, le « gap TéraHertz ». Ce trou est en train d'être comblé avec l'essor de nouvelles sources de rayonnement et de détecteurs liés à la micro-électronique et aux avancées en matière de matériaux. La gamme de fréquence submillimétrique bénéficie maintenant d'un regain d'intérêt, car elle se révèle utilisable dans de nombreux domaines [3].

#### Un regain d'intérêt pour le THz.

**Imagerie** L'idée de développer des techniques d'imagerie dans le domaine de l'infrarouge lointain est une des causes de l'intérêt pour le rayonnement Téra-

hertz [4, 5]. L'utilisation la plus répandue de ces techniques est l'étude du comportement des matériaux semi-conducteurs. Le modèle de Drude, qui décrit le mouvement des porteurs de charges dans le silicium dopé, a ainsi été validé par des études en spectroscopie TéraHertz résolue en temps [6]. Le TéraHertz permet de pénétrer des milieux restant opaques aux infrarouges ou au rayonnement visible, comme le bois ou le plastique et de nombreux produits ont dans ce domaine de fréquence, une signature spectrale caractéristique. Les techniques d'imagerie TéraHertz peuvent avoir des applications en matière de sécurité. Elles permettent dans ce cas, la détection de produits dangereux, de drogues ou d'armes [7, 8]. Le domaine médical est aussi une piste intéressante d'utilisation. Ce domaine est limité par l'absorption importante du rayonnement infrarouge lointain par l'eau, ce qui restreint sa pénétration dans les tissus vivants. Cependant le dépistage de tumeurs cancéreuses sous-cutanées et la détection de caries dentaires sont envisagés [9, 10]...

Ces techniques d'imagerie sont non invasives et d'ores et déjà applicables à une échelle semi industrielle.

**Télécommunications** Le domaine des télécommunications aux fréquences TéraHertz, bien que faisant ses premiers pas, contribue à l'intérêt croissant du rayonnement submillimétrique. L'attractivité des communications TéraHertz est liée à la saturation prochaine des fréquences plus basses utilisées actuellement, à laquelle s'ajoute un taux de transmission des informations dans cette gamme de fréquence, plus rapide et sur une plus large bande passante [11, 12]. Ce domaine se développe sous les deux aspects principaux que sont les communications terrestres et spatiales.

Les communications spatiales entre satellites avec du rayonnement TéraHertz semblent prometteuses. Elles évitent l'inconvénient de l'absorption du rayonnement par l'atmosphère et induisent une réduction de la taille des antennes de réception des informations. Ce serait un atout dans la réduction du poids des équipements envoyés dans l'espace [13]. Pour les télécommunications terrestres, le développement de fibres acheminant le rayonnement submillimétrique sur de moyennes distances avec des pertes minimales serait la solution au problème de l'absorption atmosphérique. De nombreuses géométries de fibre et plusieurs matériaux (plastique, métal) sont actuellement étudiés dans ce but [14, 15].

Des techniques de modulation de signaux télécom aux fréquences TéraHertz en utilisant un laser à cascade quantique [16] ou dans une matrice AsGa [17] ont aussi été rapportées de manière récente. Ces techniques permettent d'utiliser les outils développés à une longueur d'onde de  $1.5\mu m$  pour propager une information aux fréquences THz.

**Détection de molécules** De nombreuses espèces de molécules polluantes (en particulier certains organo-volatiles) ne sont pas détectables par les moyens d'analyse classiques comme les sondages de transitions électroniques ou vibrationnelles. Certaines d'entre elles ont, par contre, des spectres d'absorption intenses dans le domaine submillimétrique permettant cette détection.

Enfin les fréquences TéraHertz sont aussi d'un grand intérêt pour le domaine d'étude astrophysique [18]. Le rayonnement émis par l'univers comporte une composante TéraHertz importante. Quatre-vingt-dix huit pour cent des photons émis depuis sa naissance, provenant en majorité de poussières froides, l'ont été dans le domaine submillimétrique. Il est donc tout naturel de vouloir sonder le domaine interstellaire dans cette gamme spectrale riche en informations.

## 1.2.2 Un outil d'étude astrophysique.

### De nombreux projets d'études.

Si l'absorption atmosphérique, très importante au delà de 1 THz, nous interdit des observations dans le submillimétrique depuis le sol [4, 18] ; il est possible de les réaliser depuis la haute atmosphère et l'espace. De nombreux grands projets d'observations scientifiques dans le domaine le TéraHertz ont été lancés [19] de manière récente.

### Étude de l'atmosphère terrestre.

**Odin** L'étude du comportement de la couche d'ozone est un des objectifs prioritaires du télescope ODIN, lancé en 2001. ODIN, est équipé d'un récepteur submillimétrique (SMR) utilisable dans les bandes spectrales 486.1 – 503.9 et 541.0 – 580.4 GHz [20]. SMR a été prévu pour mesurer et détecter les spectres de petites molécules comme O<sub>3</sub>, ClO, N<sub>2</sub>O, HNO<sub>3</sub>, CO ou bien encore H<sub>2</sub>O. Il a, au cours d'une mission de quatre ans, recueilli des données scientifiques importantes [21] qui ont permis de mieux comprendre les mécanismes de l'évolution de la couche d'ozone. Ce satellite est encore en activité et sert aussi dans des études astrophysiques. Il a contribué à l'étude de la présence de H<sub>2</sub>O dans la haute atmosphère de Mars et à l'analyse d'émissions provenant de plusieurs comètes [22].

**EOS Aura** Plus récemment, a été lancé en juillet 2004 le satellite du programme "Earth Observing System", EOS Aura [23]. Équipe d'un instrument

baptisé MLS (microwave limb sounder), il comporte deux canaux dans le Téra-hertz (1.3 THz et 2.5 THz). Lancé pour étudier la chimie stratosphérique, son sujet est plus particulièrement basé sur le cycle de vie de l'ozone. Il observe dans ce but les gaz à effet de serre et leur implication dans le réchauffement climatique. Les molécules ClO et HCl et plus généralement toutes les molécules destructrices de la couche d'ozone sont observées simultanément. D'autres gaz comme OH et HO<sub>2</sub>, gaz étapes dans le cycle de l'ozone stratosphérique sont aussi étudiés grâce à cet instrument [24].

### **Étude du milieu interstellaire.**

**Herschel** Le domaine interstellaire reste le domaine de prédilection des études lancées dans la plage submillimétrique. Le Télescope Herschel doit ainsi être lancé en 2009 par l'ESA pour une durée d'opération de quatre ans. Le spectromètre infrarouge lointain à très haute résolution HIFI sera l'un des trois instruments embarqués à son bord [25]. Il sera capable d'analyser des objets lointains et encore mal connus à l'heure actuelle sur une plage spectrale allant de 480 à 1910 GHz grâce à deux lignes de mesure (fonctionnant respectivement entre 480 à 1250 GHz et 1410 à 1910 GHz).

Les grandes thématiques d'observation du satellite portent sur la recherche de trace d'H<sub>2</sub>O, la détection de traces dans les nuages interstellaire (petites molécules et PAH) et aussi la mesure précise de la transition du carbone ionisé, C<sup>+</sup>, à 158 microns. Ce satellite sera accompagné de l'instrument Planck, d'une gamme spectrale proche, qui observera le rayonnement diffus du fond cosmique [26].

**Sofia** SOFIA (Stratospheric Observatory for Infrared Astronomy) consiste en un télescope de miroir principal de 2.5 mètres de diamètre embarqué à bord d'un avion [27]. Le projet est équipé de deux spectromètres hétérodynes à mélangeurs, GREAT et CASIMIR, couvrant respectivement les gammes spectrales 60-200  $\mu m$  et 250-600  $\mu m$

Tout comme Herschel, SOFIA est principalement destiné à observer le milieu interstellaire et les nuages moléculaires. Ce projet pourra, en plus de ses thématiques habituelles, être plus facilement mobilisé pour l'étude d'un phénomène ponctuel (éclipse solaire ou encore observation d'une novae) qu'un satellite.

**ALMA** La construction de ALMA (Atacama Large Millimeter Array), a débuté en juillet 2003. Il devrait commencer à être actif vers 2010. Il permettra de détecter des sources mille fois plus faibles qu'avec les télescopes actuels.

Ce télescope, implanté sur le site d'Atacama au Chili, comportera 64 antennes de 12 mètres de diamètre chacune. L'antenne APEX mise en service en 2005 [28], qui préfigure de manière prometteuse ce projet, a déjà permis de réaliser de nombreuses observations [29, 30].

ALMA devrait comporter dans sa version finale 10 bandes de mesure ( TAB. 1.1).

Bande	Couverture spectrale (GHz)	Type de Récepteur	Bande	Couverture spectrale (GHz)	Type de Récepteur
1	31-45	HEMT	6	211-275	SIS
2	67-90	HEMT	7	275-373	SIS
3	84-116	SIS	8	385-500	SIS
4	125-163	SIS	9	602-720	SIS
5	163-211	SIS	10	787-950	SIS

TAB. 1.1: Fréquences des bandes de réception de l'interféromètre ALMA. Les premières bandes à être installées seront les six bandes 3,4,5,6,7 et 8.

Les projets spatiaux, utilisant la plage de fréquences TéraHertz, ou plus largement, les longueurs d'ondes millimétriques/submillimétriques sont donc nombreux. Le tableau (TAB. 1.2) en donne un aperçu non exhaustif.

Ces systèmes spatiaux pour l'astrophysique sont développés dans l'optique de multiples études couvrant un champ d'investigation très large.

- L'étude de la physique des nuages interstellaires et la formation des galaxies.
- Les disques proto planétaires et la formation de planètes .
- La structure des atmosphères planétaires, des composées de comètes.
- La formation des étoiles et l'étude de leur dynamique.
- L'étude de la présence de molécules pré-biotiques.

Dans toutes ces thématiques de recherche, il est important de déterminer les composés chimiques présents, leur concentration, mais aussi les conditions de pression, et de température qui régissent le milieu étudié. Cette connaissance est tributaire de l'enregistrement de nombreux spectres par les télescopes. Ces spectres sont par la suite identifiés par comparaison avec des bases de données astrophysiques, ce qui nécessite un travail amont en laboratoire.

Nom	Lancement	Champs d'études	Couverture spectrale	Agence	Etat
ODIN	2001	Atmosphère terrestre et Astrophysique	118, 490-500, 540-580 GHz	Suède	En fonction
Spitzer	2003	Astro-physique	1.66-60 THz	NASA	En fonction
MIRO	2004	Comète	188,560 GHz	ESA	En fonction
AURA MLS	2004	Atmosphère terrestre	118,180, 240,640, 2520 GHz	NASA	En fonction
AKARI	2006	Astro-physique	1-180 $\mu$ m	JAXA	En fonction
Herschel	2009	Astro-physique	480-1900 GHz	ESA	Attente de lancement
Planck	2009	Astro-physique	30-70, 100-850 GHz	ESA	Attente de lancement
SMILES	2009	Atmosphère terrestre	625-650 GHz	JAXA	Attente de lancement
Vesper	2012+	Atmosphère de Vénus	460-560 GHz	NASA	Projet approuvé

TAB. 1.2: Derniers satellites d'observation spatiale en projet ou déjà opérationnels dans les domaines millimétriques et submillimétrique.

### Spectroscopie TéraHertz en laboratoire.

La spectroscopie de laboratoire est le moyen d'accéder aux différentes caractéristiques des molécules en phase gaz en enregistrant des relevés, en fonction de la fréquence, de leur absorption. L'analyse de ces spectres d'absorption nécessite une approche quantique sophistiquée basée sur les transitions entre les niveaux d'énergies discrets des molécules. Cette analyse permet alors d'obtenir un ensemble de paramètres spectroscopiques précis pour une molécule. L'étude de la largeur spectrale des raies d'absorption d'une molécule permet de remonter à des caractéristiques du milieu étudié en terme de pression et de température. La comparaison des spectres des molécules réalisés en laboratoire et des spectres astrophysique est donc un élément essentiel pour déterminer la composition du

milieu interstellaire (FIG. 1.2).

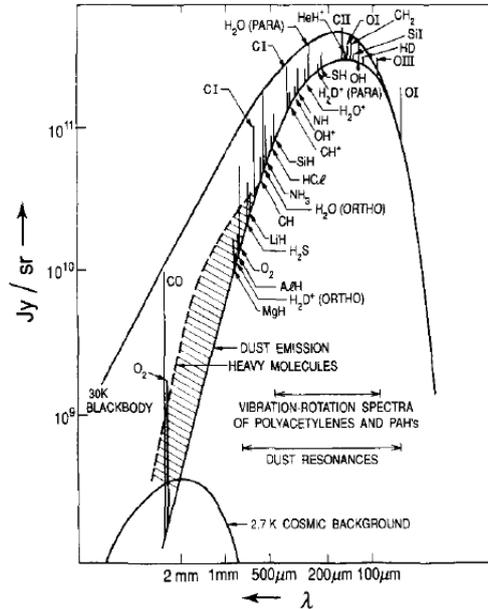


FIG. 1.2: Espèces détectables dans un nuage de gaz interstellaires dans le domaine submillimétrique et millimétrique [31].

La spectroscopie submillimétrique participe de cette démarche en permettant, suivant la molécule étudiée, d'obtenir plusieurs types d'informations.

Dans le cas de petites molécules à faible moment d'inertie, le rayonnement THz permet de sonder les transitions entre les niveaux d'énergie de rotation. On enregistre alors leur spectre de rotation pure [32]. Il est aussi possible de détecter des radicaux et d'avoir accès à la structure hyperfine de certains atomes et ions de manière similaire. La spectroscopie TéraHertz en laboratoire a, par exemple, permis la détection de petites molécules gazeuses contenant de l'hydrogène [31], tels que  $\text{NH}_3$ , dans les spectres astrophysiques de nuages interstellaires. Dans le cas de molécules plus grosses comme les molécules aromatiques polycycliques (PAH), le rayonnement TéraHertz donne des informations sur les spectres rovibrationnels des composés (FIG. 1.3).

Ce travail d'analyse de spectres et de détermination des constantes spectroscopiques « carte d'identité » des molécules est important pour alimenter les bases de données astrophysiques comme celle de Cologne (CDMS) [33] ou du JPL [34].

Il permet aussi de « nettoyer » les spectres astrophysiques des molécules déjà connues pour trouver de nouvelles espèces. A l'heure actuelle environs 140 mo-

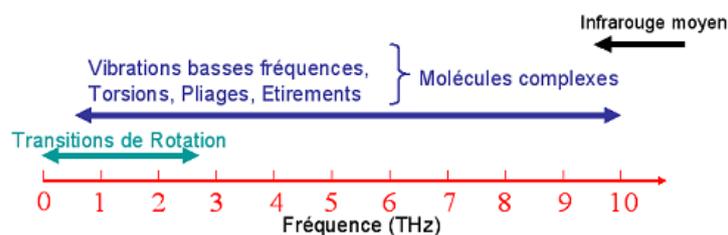


FIG. 1.3: Transitions sur lesquelles il est possible d’obtenir des informations dans la plage TéraHertz. On constate que la plage spectrale de 0 à 3 THz est particulièrement riche.

2 atomes	3 atomes	4 atomes	5 atomes	6 atomes	7 atomes	8 atomes	9 atomes
H <sub>2</sub>	C <sub>3</sub>	c-C <sub>3</sub> H	C <sub>5</sub>	C <sub>6</sub> H	C <sub>6</sub> H	CH <sub>3</sub> C <sub>3</sub> N	CH <sub>3</sub> C <sub>4</sub> H
AlF	C <sub>2</sub> H	I-C <sub>3</sub> H	C <sub>4</sub> H	I-H <sub>2</sub> C <sub>4</sub>	CH <sub>2</sub> CHCN	HC(O)OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CN
AlCl	C <sub>2</sub> O	C <sub>3</sub> N	C <sub>4</sub> Si	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	CH <sub>3</sub> C <sub>2</sub> H	CH <sub>3</sub> COOH	(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> O
C <sub>2</sub>	C <sub>2</sub> S	C <sub>3</sub> O	I-C <sub>3</sub> H <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub> CN	HC <sub>3</sub> N	C <sub>7</sub> H	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> OH
CH	CH <sub>2</sub>	C <sub>3</sub> S	c-C <sub>3</sub> H <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub> NC	CH <sub>3</sub> CHO	H <sub>2</sub> C <sub>6</sub>	HC <sub>7</sub> N
CH+	HCN	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> CCN	CH <sub>3</sub> OH	CH <sub>3</sub> NH <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> OHCHO	C <sub>8</sub> H
CN	HCO	NH <sub>3</sub>	CH <sub>4</sub>	CH <sub>3</sub> SH	c-C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> O	I-HC <sub>6</sub> H	CH <sub>3</sub> C(O)NH <sub>2</sub>
CO	HCO+	HCCN	HC <sub>3</sub> N	HC <sub>3</sub> NH+	H <sub>2</sub> CCHOH	CH <sub>2</sub> CHCHO	C <sub>8</sub> H-
CO+	HCS+	HCNH+	HC <sub>2</sub> NC	HC <sub>2</sub> CHO	C <sub>6</sub> H-	CH <sub>2</sub> CCHCN	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>
CP	HOC+	HNCO	HCOOH	NH <sub>2</sub> CHO		H <sub>2</sub> NCH <sub>2</sub> CN	
SiC	H <sub>2</sub> O	HNCS	H <sub>2</sub> CNH	C <sub>6</sub> N			
HCl	H <sub>2</sub> S	HOCO+	H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O	I-HC <sub>4</sub> H			
KCl	HNC	H <sub>2</sub> CO	H <sub>2</sub> NCN	I-HC <sub>4</sub> N			
NH	HNO	H <sub>2</sub> CN	HNC <sub>3</sub>	c-H <sub>2</sub> C <sub>3</sub> O			
NO	MgCN	H <sub>2</sub> CS	SiH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub> CCNH			
NS	MgNC	H <sub>3</sub> O+	H <sub>2</sub> COH+				
NaCl	N <sub>2</sub> H+	c-SiC <sub>3</sub>	C <sub>4</sub> H-				
OH	N <sub>2</sub> O	CH <sub>3</sub>	HC(O)CN				
PN	NaCN						
SO	OCs						
SO+	SO <sub>2</sub>						
SiN	c-SiC <sub>2</sub>						
SiO	CO <sub>2</sub>						
SiS	NH <sub>2</sub>						
CS	H <sub>3</sub> +						
HF	H <sub>2</sub> D+ HD <sub>2</sub> +						
SH	SiCN						
HD	AlNC						
FeO	SiNC						
O <sub>2</sub>	HCP						
CF+	CCP						
SiH							
PO							

10 atomes	11 atomes	12 atomes	13 atomes
CH <sub>3</sub> C <sub>3</sub> N	HC <sub>9</sub> N	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	HC <sub>11</sub> N
(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CO	CH <sub>3</sub> C <sub>6</sub> H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OCH <sub>3</sub>	
(CH <sub>2</sub> OH) <sub>2</sub>			
CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO			

FIG. 1.4: Molécules et ions détectés à l’heure actuelle dans les nuages interstellaires ou circumstellaires, la majeure partie l’a été grâce à son spectre millimétrique et/ou submillimétrique (CDMS).

lécules ont été effectivement détectées (FIG. 1.4) très majoritairement grâce à leur spectre millimétrique et submillimétrique.

## 1.3 Différentes méthodes de génération TéraHertz.

Les méthodes de génération de rayonnement TéraHertz, dont nous avons vu les multiples utilités, se sont grandement multipliées dans le courant de ces quinze dernières années. Nous allons donner ici un aperçu des méthodes les plus connues et voir comment celles ci sont utilisées pour la spectroscopie.

### 1.3.1 Méthodes directes.

#### Composants électroniques.

Les sources électroniques utilisées dans la génération directe de rayonnement TéraHertz sont pour la plupart des diodes surtout efficaces en deçà de 1 THz.

Les diodes Gunn généralement basées sur un substrat AsGs ou InP oscillent avec une constante de temps de l'ordre de la picoseconde. Leur puissance de sortie peut atteindre 100 mW à 100 GHz pour chuter à 300  $\mu$ W à 300 GHz. L'utilisation de seconde harmonique [35] permet de remonter leur puissance utile vers 300 GHz au delà du mW de signal. Les diodes IMPATT fonctionnent sur l'effet avalanche pour générer des porteurs de charges qui se déplacent entre les bornes d'une capacité polarisée. Ce déplacement induit une oscillation qui est traduite en rayonnement et permet de générer quelques 100 mW vers 100 GHz. Cette puissance de sortie décroît jusqu'à obtenir environ 200  $\mu$ W vers 400 GHz [36]. Enfin les diodes à tunnel résonnant utilisent l'effet tunnel à travers deux hétérojonctions de type InAs/AlSb. Elles ont montrées des performances allant jusqu'à 300 nW à 720 GHz.

#### BWO - Carcinotron.

Aussi appelé Carcinotron, le Backward Wave Oscillator est la seule source commerciale pouvant osciller au delà de 1 THz. Il a été développé dans les années 70 en France et en Russie respectivement par Thomson-CSF et ISTOK . Dans le BWO, une cathode chauffée émet des électrons guidés par un fort champ magnétique ; ceux-ci circulent vers l'anode en décélérant. Ce paquet d'électron crée en retour une onde électromagnétique dont la fréquence dépend de la vitesse des électrons, et donc de la tension entre anode et cathode du BWO. Le niveau de puissance de ce type de source est compris entre 1 W aux basses fréquences et quelques milliwatts au delà de 1 THz [37] pour une très bonne pureté spectrale (de l'ordre de 1 kHz). Cependant les fluctuations de la tension d'alimentation des tubes nécessitent une stabilisation en fréquence. En spectroscopie, ce type

de système permet des mesures de fréquence de raies d'absorption d'une précision de l'ordre de 50 kHz [38] et est largement utilisé [39, 40].

### **Laser à électron libre et rayonnement synchrotron.**

Le LEL est une source directe et intense qui peut émettre du rayonnement sur une très large gamme spectrale, des rayons X aux ondes sub-millimétriques. Le TéraHertz n'y est pas produit par des atomes préalablement excités comme dans un laser conventionnel. Ici, c'est un rayonnement synchrotron lié à des électrons accélérés circulant dans un onduleur créant un champ magnétique périodique. La fréquence des ondes à laquelle il peut y avoir amplification ne dépend ici que de l'énergie des électrons et de la période de l'onduleur. Cette source permet d'obtenir un rayonnement puissant, typiquement plusieurs kW. Cependant il existe peu de LEL rayonnant dans le Submillimétrique. Deux à l'université de Californie permettent de couvrir des fréquences entre 120 GHz et 4760 GHz [41]. Un autre (FELIX) se trouve au Pays Bas et couvre la gamme spectrale entre 1.5 THz et 750 THz [42].

Un rayonnement TéraHertz peut aussi être généré dans les anneaux synchrotron [43]. Les premières observations d'un rayonnement cohérent dans le TéraHertz ont été réalisées à BESSY en Allemagne [44]. Sur l'anneau du Jefferson lab, des puissances de rayonnement de 20W ont été obtenues [45] avec un spectre d'émission centré à 0.6 THz. En France, la ligne AILES du synchrotron SOLEIL a été mise en service en 2008 ; elle est dédiée à la spectroscopie et doit permettre de réaliser des mesures de 100 GHz à 100 THz par transformée de Fourier haute résolution [46].

### **Laser moléculaire.**

Les lasers dans le domaine submillimétrique sont des dispositifs optiquement pompés par des lasers CO<sub>2</sub> de forte puissance (typiquement de l'ordre de 150 W) [47]. Le milieu actif de ces lasers est gazeux. De multiples gaz sont utilisables parmi lesquels les plus classiques sont le méthanol (CH<sub>3</sub>OH) et l'acide formique (HCOOH). Une centaine de raies d'émission, pour les plus intenses, puissantes de quelques dizaines de mW, sont connues entre 500 GHz et 4400 GHz [48, 49]. La technique pour rendre ce laser accordable est la génération de bandes latérales. Pour cela on réalise un mélange à l'aide d'un élément non linéaire, du type diode Schottky, entre la fréquence laser et le signal provenant d'une source micro-onde accordable [50]. Les puissances de signal utile à la spectroscopie sont avec cette technique, de quelques dizaines de microwatts pour une pureté

spectrale du rayonnement de l'ordre du kHz. Cette technique a contribué à la réalisation de nombreuses études spectroscopiques sur le spectre de rotation d'ions ( $H^+$ ,  $OD^+$ ,  $OH^+$ ) [51] ou de rotation / rovibration de molécules neutres [52, 53].

### **Laser à cascade quantique.**

Le laser à cascade quantique, ou QCL, a vu le jour en 1994 [54]. Dans un QCL, les électrons font des transitions entre états liés, créés par confinement quantique dans des couches alternées ultraminces de matériaux semi-conducteurs. À cause du confinement quantique, les électrons ne peuvent passer d'un état d'énergie à l'autre que par pas discrets, en émettant des photons. Cela a permis la réalisation de lasers émettant dans l'infrarouge lointain utilisant les matériaux AsGa/AlGaAs. Kohler et al. ont atteint 4.4 THz avec un QCL opérant à 50 K, pour des puissances de l'ordre de 2 mW [55]. On fait aussi état d'émissions de rayonnement à une fréquence de 2.1 THz [56]. La pureté spectrale de ces sources est de l'ordre de 20kHz [57]. Le problème de l'application des QCLs à la spectroscopie reste leur manque d'accordabilité ; cependant des techniques expérimentales commencent à voir le jour avec cette technologie [58, 59].

### **1.3.2 Méthodes indirectes.**

Les méthodes de génération de signal de manière indirecte les plus courantes utilisent les effets non linéaires d'un matériau pour rayonner dans la gamme de fréquence TéraHertz. On peut pour cela utiliser des harmoniques de fréquence, ou un mélange à plusieurs ondes.

#### **Génération d'harmonique.**

La génération de rayonnement par utilisation d'harmoniques est une technique ancienne qui doit son essor actuel au développement de demandes de système tout solide pour satellite. Cette technique s'appuie sur une source millimétrique de type klystron, diode Gunn [60] ou encore sur une source micro-onde de type synthétiseur. Le rayonnement de la source est couplé sur un composant non linéaire qui crée des harmoniques de fréquence. Le signal de départ, aux fréquences millimétriques ou micro-onde, est multiplié de manière successive pour atteindre les fréquences TéraHertz.

Les composants non linéaires majoritairement utilisés dans ce type de technique sont du type diode Schottky, ou diode HBV<sup>1</sup> qui fonctionnent comme des doubleurs ou des tripleurs de fréquence. En associant des montages doubleurs de fréquence de ce type [61], on rapporte des puissances de rayonnement de 1 mW à 800 GHz [62], ou encore 75  $\mu$ W à 1200 GHz et 100 nW à 2.7 THz [63]. Le rayonnement ainsi généré pour la spectroscopie bénéficie d'une très bonne pureté spectrale liée à la référence à laquelle est comparée la source millimétrique [64].

Les harmoniques de fréquence peuvent aussi être générées par des techniques de multiplicateur « superréseau ». Ces multiplicateurs génèrent des harmoniques d'ordre élevé (jusqu'à l'harmonique 13) du rayonnement provenant d'une source BWO émettant jusqu'à 260 GHz. De cette manière est obtenue une puissance de 200  $\mu$ W à 340 GHz qui décroît avec l'ordre de l'harmonique utilisée pour atteindre 2 nW à l'harmonique 11 pour une fréquence d'émission de 1.2 THz [65]. On rapporte une génération de rayonnement par cette méthode jusqu'à 2.7 THz [66]. Stabilisé sur une transition du rubidium, Endres et al. rapportent une pureté spectrale du rayonnement émis par harmonique superréseau de l'ordre de 10 kHz [65].

### **Génération d'impulsion Téraherz ultracourtes.**

La génération de rayonnement Téraherz a aussi bénéficié des avancées en matière de lasers impulsions. Celle ci peut être réalisée de deux manières différentes, par rectification optique, ou par photoconduction.

La rectification optique est basée sur l'obtention d'impulsions Téraherz de large bande spectrale à partir d'impulsions ultracourtes envoyées dans un cristal présentant une non linéarité de second ordre de type LiTaO<sub>3</sub> [67], DAST [68], ZnTe ou encore AsGa. Les impulsions générées de cette manière sont très large bande (plusieurs centaines de Gigahertz) avec des champs générés intenses [69].

La photoconduction se base sur des impulsions provenant d'un laser femtosecondes qui sont envoyées sur un élément photoconducteur [70]. L'élément photoconducteur génère alors un photocourant ensuite rayonné par une antenne sous forme d'impulsion Téraherz large bande (entre 0.1 et 2 THz) [71]. Ces impulsions de rayonnement Téraherz sont produites à un taux de répétition de quelques hertz à plusieurs kilohertz avec de fortes puissances, typiquement plusieurs dizaines de Watt [72].

Cette méthode de génération de rayonnement associée à des techniques de détection cohérente a permis le développement de la spectroscopie Téraherz résolue

---

<sup>1</sup>High barrier varactor

en Temps (TDS) [73, 74]. Cette technique est basée sur la déformation de l'impulsion TéraHertz lors de son passage dans la cellule qui contient l'échantillon étudié. Cette déformation est détectée et par transformée de Fourier permet de remonter aux caractéristiques spectrales de l'échantillon.

### **Différence de fréquences.**

Plusieurs méthodes de différence de fréquences sont mise en pratique, une première est basée sur les caractéristiques non linéaire d'un élément électronique, ou encore d'un cristal comme AsGa ou  $LiNbO_3$ , une seconde utilise un élément photoconductif dans lequel sont créés des porteurs de charges oscillant aux fréquences TéraHertz et générant un courant rayonné par la suite.

**Mélange d'ondes** Le mélange à trois ondes issues de deux lasers et d'une source micro-ondes, sur une diode MIM fait partie de la première catégorie. Avec cette technique, la métrologie de fréquence est très bonne (pureté spectrale du rayonnement de 10 kHz) de même que la couverture spectrale (jusque 6 THz avec deux lasers  $CO_2$  et 9 THz avec un laser  $CO_2$  et un laser  $NH_3$ ) mais la puissance est faible, de l'ordre de  $0.1 \mu W$  [75, 76]. On peut aussi utiliser la différence de fréquences dans un cristal non linéaire comme AsGa, malheureusement cette technique bien maîtrisée dans l'infrarouge ne possède dans le TéraHertz qu'un faible rendement [77] et nécessite un équipement lourd, de type laser  $CO_2$  nanosecondes [78]. La génération de rayonnement TéraHertz est aussi réalisée par l'utilisation d'oscillateurs paramétriques optiques [79]. Ces OPO utilisent des cristaux de  $LiNbO_3$  [80] pompés par un laser YAG nanoseconde pour permettre la génération de rayonnement largement accordable entre 0.9 et 3.1 THz avec des puissances crête de l'ordre de quelques milliwatts.

**Photomélange** La seconde méthode de génération de rayonnement par différence de fréquences a vu le jour avec l'apparition d'éléments dit « photomélangeurs »[81]. Ces éléments photoconductifs se composent d'un substrat semiconducteur et d'une antenne sur lesquels on envoie la superposition de deux rayonnements de fréquences différentes. L'illumination du substrat provoque la création de porteurs de charges oscillant. Ces porteurs oscillent à la fréquence différence des deux rayonnements incidents. Ils circulent alors dans l'antenne polarisée à une tension continue. L'antenne traduit l'oscillation des porteurs en rayonnement à la fréquence d'oscillation. Ce principe est appliqué pour rayonner aux fréquences THz. Parmi ces éléments semiconducteurs permettant la génération de rayonnement TéraHertz, une technique basée sur les propriétés de l'arsé-

niure de gallium utilisant des sources de rayonnement infrarouges s'est particulièrement développée. Dans cette thèse, ce principe sera appliqué à la mise en place d'un spectromètre TéraHertz haute résolution par différence de fréquences.

Le tableau suivant (FIG. 1.5) permet d'avoir une vision d'ensemble de ces différents types de source et des performances qu'elles peuvent engendrer appliquées à une expérience de spectroscopie.

Source du spectromètre	Fréquence accessibles	Couverture spectrale	Puissance	Pureté spectrale	Sensibilité (cm <sup>-1</sup> )	Avantage et inconvénient
Transformée de Fourier	De 1 à 100 THz et plus	100%		30 MHz	10 <sup>-3</sup>	Faible pureté spectrale, nécessite les filtres appropriés
Génération d'impulsion TéraHertz	De 100GHz à 2THz	100%			10 <sup>-3</sup>	Permet de remonter au spectre par transformée de Fourier
BWO	De 100GHz à 1THz	100%	De 1W à 0.5mW	20 kHz	10 <sup>-7</sup>	
Laser moléculaire	De 500GHz à 4.4THz	70%	De 30 μW à 1μW	20 kHz	10 <sup>-6</sup>	
Génération d'harmoniques	De 200GHz à 2.7THz	75%	De 10mW à 100nW	20 kHz	10 <sup>-4</sup>	
Superréseau	De 340GHz à 2.7 THz	100%	De 200 μW à 2nW	10 kHz	10 <sup>-4</sup>	
Différence de fréquence	De 600GHz à 9THz	70%	0.1μW	10 kHz	10 <sup>-5</sup>	Faible puissance de sortie
Photomélangé	De 100GHz à 3.2THz	100%	De 1μW à 1nW	Variable	10 <sup>-4</sup>	La pureté spectrale dépend de celle des sources

FIG. 1.5: Tableau comparatif des performances de sources de rayonnement TéraHertz appliquées dans le cadre d'un spectromètre. Les valeurs de sensibilité sont donnée à titre indicatif.

Nous devons ajouter à ce panel de techniques pour la spectroscopie TéraHertz, la possible utilisation de sources de type corps noir. Les sources corps noir, comme les lampes à Mercure, sont utilisées dans le cadre de spectromètres à transformée de Fourier [82]. Ces spectromètres nécessitent l'utilisation de séparatrices appropriés pour recueillir un interférogramme qui permet de remonter au spectre de l'échantillon par transformée de Fourier. Ils sont peu précis (précision de mesure de l'ordre de plusieurs MHz) mais permettent d'enregistrer des spectres sur une large gamme spectrale. Ce type de spectromètre donne aussi la possibilité de réaliser la spectroscopie d'émission de molécules [83] et présente l'avantage d'être disponible commercialement.

## 1.4 Spectromètre haute résolution par différence de fréquences.

Le laboratoire PhLAM qui dispose déjà d'un spectromètre TéraHertz basé sur un laser moléculaire s'est engagé dans la mise en place d'un spectromètre haute résolution par différence de fréquences sur un élément photomélangeur. Ce nouveau spectromètre utilise un système de diodes lasers infrarouges stabilisées sur une cavité Fabry-Pérot de haute finesse pour générer du rayonnement.

### 1.4.1 Principe général de ce spectromètre.

#### Génération de rayonnement pour la spectroscopie.

Le principe du photomélangement par différence de fréquences dans le but de générer du rayonnement TéraHertz peut se décrire en un ensemble de quatre étapes :

- Génération de deux rayonnements sources, de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  tels que  $\omega_1 - \omega_2 \geq 0.1\text{THz}$ .
- Superposition spatiale des rayonnements que l'on envoie sur le photomélangeur.
- Photodétection du battement des sources avec le photomélangeur.
- Rayonnement de signal à la fréquence différence des deux sources par l'antenne du photomélangeur.

A ces quatre étapes s'associe une cinquième. En effet le rayonnement TéraHertz généré par photomélangement doit être fortement accordable pour les études de spectroscopie. Il faut donc pouvoir accorder les deux rayonnements sources.

L'élaboration du spectromètre TéraHertz est basée sur ces différentes étapes. Il obéit au schéma de principe de la figure (FIG. 1.6).

La première étape impose le choix de deux sources de rayonnements. Celles-ci doivent permettre de générer dans le substrat AsGa d'un photomélangeur, des porteurs de charges oscillants aux fréquences TéraHertz. Pour cela l'énergie de bande interdite de l'arséniure de gallium (1.4 eV) nous impose une longueur d'onde des sources utilisées aux alentours de 860nm. Les sources mises en place sont donc des diodes émettantes à 820nm (infrarouge proche) permettant la condition  $\omega_1 - \omega_2 \geq 0.1\text{THz}$ .

Chacun des rayonnements est mis spatialement en forme puis polarisé pour être envoyé vers un montage d'accordabilité en fréquence. Les deux sources sont accordées largement par deux systèmes de modulation acousto-optique en double

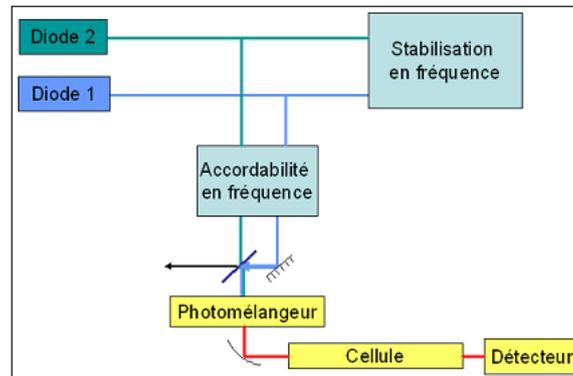


FIG. 1.6: Schéma bloc de principe régissant la mise en place du spectromètre TéraHertz haute résolution par différence de fréquences.

passage que nous verrons plus en détail par la suite. Au sortir de ces montages d'accordabilité, la deuxième étape du photomélange nous impose de superposer spatialement les deux signaux lasers. La superposition est réalisée sur une lame séparatrice 50% / 50%. Les deux faisceaux confondus sont dirigés par la suite sur l'élément photomélangeur. Le photomélangeur dans un troisième temps se comporte comme un photodétecteur et réagit au battement de fréquences des deux sources incidentes.

Il rayonne, par le biais de son antenne, un signal à la fréquence différence des deux sources infrarouges ajustées en fréquence. Ce rayonnement est ensuite couplé pour la spectroscopie dans une cellule d'étude précédant un détecteur ultrasensible de type bolomètre.

### Dispositifs optoélectroniques pour la différence de fréquences : état de l'art.

De nombreuses expériences basées sur ce principe de photomélangeur ont été mises en place.

A l'heure actuelle les expériences les plus abouties sur le photomélange basées sur un substrat actif AsGa, avec deux sources infrarouges continues, ont été menées par Brown et al. [84, 85]. Brown annonce des puissances de signal rayonnées de l'ordre de  $1\mu W$  à 100 GHz jusqu'à quelques nanowatt à 2.5 THz (FIG. 1.7). Cette même équipe développe des photomélangeurs basés sur une géométrie différente permettant de rayonner du signal avec des puissances optiques faibles ( $0.1nW$ ) jusqu'à 3.8 THz [86]. Cette technologie de photomélangeur est

maintenant mature, elle a été adoptée par de nombreux groupes [87] et a été appliquée à la spectroscopie, par exemple pour l'étude de  $NH_3$  ou  $SO_2$  [88, 89, 90].

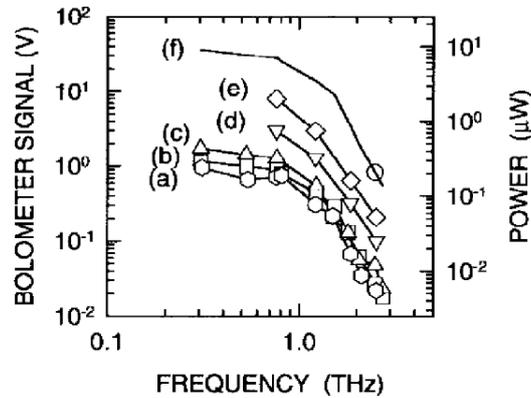


FIG. 1.7: Etat de l'art de la génération de fréquence Téraherz par photomélangement [85]. Courbes (a,b,c) : Photomélangement à température ambiante, Courbes (d,e,f) : photomélangement refroidi.

De nouvelles perspectives apparaissent avec l'utilisation d'un substrat nouveau de type InAsGa [91, 92, 93] mais reste encore peu répandue. Ce type de photomélangement est développé dans l'idée de bénéficier de l'expertise développée à  $1.5\mu m$  autour des fréquences utilisées couramment en télécommunication [94]. En effet, à ces fréquences, on peut disposer de laser fibrés moins sensibles aux bruits mécaniques que les lasers semiconducteurs à 820nm et d'amplificateur plus puissants. Les puissances maximales générées par ce type de photomélangement rapportées à l'heure actuelle sont du même ordre de grandeur que celle communément obtenues sur AsGa pour des dispositifs à peignes interdigités et antenne spirale à 1 THz [95].

### Métrie des fréquences et affinement spectral.

**Principe général** La spectroscopie Téraherz haute résolution d'une molécule nécessite de déterminer précisément la fréquence de ses raies d'absorption. On doit aussi pouvoir résoudre avec la plus grande netteté ces raies. Dans cette optique, il nous faut une calibration très précise de la fréquence d'émission du photomélangement. Il nous faut aussi une pureté spectrale d'émission du rayonnement Téraherz élevée. Dans le montage vu (FIG. 1.6), il nous faut donc contrôler avec précision les caractéristiques de fréquence et pureté spectrale des deux diodes infrarouges qui permettent la génération du rayonnement Téraherz.

Cependant, la pureté spectrale de l'émission des diodes lasers infrarouges (1.5 MHz non asservie) est insuffisante pour la spectroscopie Téraherz haute résolution. La largeur Doppler des raies d'absorption des molécules au delà du Téraherz étant du même ordre de grandeur (plus de 1 MHz), il nous faut donc un système plus résolvant.

Pour résoudre précisément le spectre des molécules étudiées, nous avons décidé de référencer les émissions des diodes sur deux pics différents de résonance d'une cavité Fabry-Pérot haute finesse. On réalise sur cette cavité haute finesse une stabilisation en fréquence des diodes lasers par une méthode de Pound-Drever-Hall [96] (FIG. 1.8).

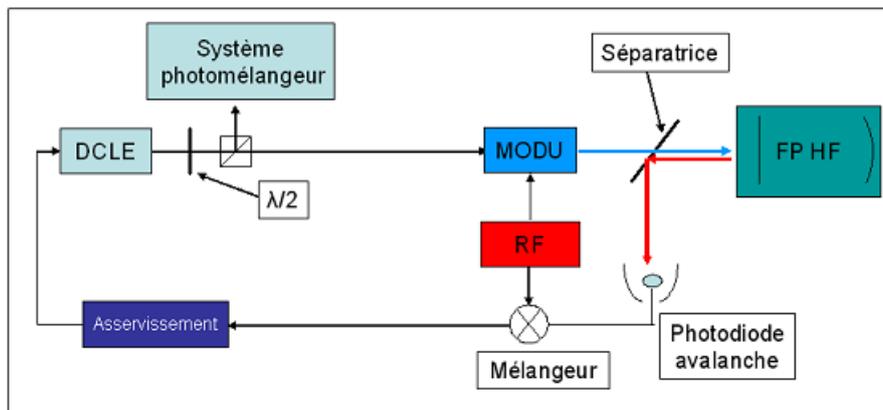


FIG. 1.8: Schéma de principe de l'asservissement Pound-Drever-Hall d'une diode laser. Une modulation en fréquence (MODU) est appliquée à la diode par une référence (RF).

La stabilisation Pound-Drever-Hall (PDH) utilise le rayonnement réfléchi par la cavité Fabry-Pérot de référence pour asservir sur une résonance la fréquence d'émission des diodes et affiner leur pureté spectrale [97].

Quand la fréquence d'une diode infrarouge est résonante avec la cavité, celle-ci transmet totalement le signal. Mais si la fréquence d'émission se décale alors la cavité va réfléchir le signal. La stabilisation en fréquence d'une diode laser va donc consister à réduire à 0 le signal réfléchi par la cavité et à le maintenir à cette valeur.

Pour cela, le signal hors résonance (réfléchi) est envoyé par une lame séparatrice vers une photodiode ultrarapide à avalanche. La photodiode détecte un signal qui permet de générer un signal d'erreur. Le signal d'erreur est ensuite introduit dans une boucle de stabilisation électronique qui joue sur les moyens de contrôle

de fréquence des diodes. Des corrections sont apportées aux fluctuations de fréquence rapide (jitter) et aussi lente (dérive de fréquence) des diodes infrarouges ce qui permet l'amélioration de la pureté spectrale et la calibration en fréquence de l'émission de chaque diode.

**Etat de l'art de la stabilisation Pound-Drever-Hall** La méthode de stabilisation Pound-Drever-Hall est une technique très puissante, utilisée pour la première fois par Pound en 1947 dans le domaine micro-onde [98]. Cette méthode de stabilisation a été adaptée par Drever et al. pour stabiliser en fréquence l'émission d'un laser [96] et est maintenant maîtrisée pour de nombreux lasers émettant dans une large gamme spectrale comme les lasers YAG [99] ou des diodes [100, 101]. Les progrès réalisés dans l'expertise des revêtements réfléchissants permettent de réaliser à l'heure actuelle des cavités Fabry-Pérot de finesse supérieure à 500000 [102]. L'amélioration des caractéristiques de ces cavités couplée avec une électronique adaptée en terme de gain et de bande passante de correction permet maintenant une stabilisation en fréquence absolue très efficace. Les lasers stabilisés selon cette méthode utilisant des cavités de très haute finesse affichent des puretés spectrales record passant en dessous de la barre du Hertz [103, 104]. Bien entendu cette méthode est aussi très sensible aux problèmes de bruits liés au type de laser stabilisé, à la cavité mais aussi au milieu ambiant, qui limitent la stabilité et la pureté spectrale accessible [105, 106, 107].

#### 1.4.2 Un outil complémentaire pour la spectroscopie.

Le développement de ce spectromètre a été motivé par les nombreux avantages que celui-ci peut procurer.

##### Taille de la source de rayonnement.

Le système de spectromètre laser à bandes latérales est un montage expérimental puissant mais lourd. Il nécessite l'usage d'un laser  $CO_2$  de forte puissance (typiquement 150W) pour pomper le laser moléculaire générateur du signal, il faut de plus changer la nature du gaz suivant la plage spectrale à laquelle on veut accéder.

Le système de génération de rayonnement TéraHertz par photomélange est lui beaucoup plus compact. Il utilise deux diodes lasers infrarouges dont les faisceaux sont focalisés sur un élément semi-conducteur de faible dimension. Sa mise en oeuvre permet donc un allègement du dispositif expérimental. La « contrepartie » étant une puissance de rayonnement plus faible.

**Couverture spectrale.**

Le laser moléculaire n'émettant que sur un nombre de raies discrètes, on utilise la technique de la génération de bandes latérales de fréquence accordables par le biais d'une diode Schottky. Cependant le spectromètre reste limité par les fréquences d'émission du laser moléculaire (TAB. 1.4) et certaines plages de fréquences restent encore difficilement accessibles.

Fréquence (GHz)	Gaz	Fréquence (GHz)	Gaz
584.388	HCOOH	783.486	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
590.551	CH <sub>2</sub> CHF	889.341	CH <sub>2</sub> CHF
612.245	CH <sub>2</sub> CHF	1035.552	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
634.222	CH <sub>2</sub> CHF	1145.430	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
653.821	HCOOH	1193.727	CH <sub>3</sub> OH
672.331	HCOOH	1267.085	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
673.997	CH <sub>2</sub> CHF	1397.118	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
692.951	HCOOH	1626.602	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
693.788	HCOOH	1838.839	CH <sub>3</sub> OH
716.156	HCOOH	2216.263	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
759.143	CH <sub>2</sub> F <sub>2</sub>	2522.781	CH <sub>3</sub> OH
761.608	HCOOH	3105.936	CH <sub>3</sub> OH

TAB. 1.4: Raies laser accessibles suivant le gaz excité dans le laser moléculaire.

Le dispositif de différence de fréquences est lui optimisé pour émettre de manière continue sur toute la plage de fréquence allant de 0.1 THz à 2.5 THz. Il permettra donc de couvrir les plages laissées inexplorées par le système à laser moléculaire.

**Facilité d'utilisation.**

Un aspect trivial, mais néanmoins à prendre en compte, est celui de la facilité avec laquelle on peut intervenir sur le montage expérimental.

Le rayonnement TéraHertz est difficilement manipulable pour de multiples raisons. L'atmosphère terrestre chargée d'eau est fortement absorbante pour ce type de fréquence. Une forte divergence rend problématique une propagation sur de grandes distances ; les pertes de rayonnement lors de la propagation sont donc problématiques. Les détecteurs qui sont utilisables (bolomètres, détecteur pyro-électriques...) dans le domaine TéraHertz sont de manière générale encombrants et peu maniables, ou peu sensibles. Il est, pour ces raisons, difficile d'intervenir sur le trajet optique du rayonnement dans le cadre du spectromètre à bandes

latérales. Intervenir sur la chaîne du spectromètre Téraherz à différence de fréquences est à l'inverse relativement aisé. Les détecteurs de rayonnement infrarouge sont facilement manipulables ; le rayonnement émis par nos diodes lasers peut être vu à l'oeil nu en utilisant une carte photosensible. De plus, le rayonnement infrarouge est nettement moins divergent ce qui permet sa propagation sur de grandes distances sans perte.

Le spectromètre Téraherz haute résolution par différence de fréquences semble donc avoir tous les atouts pour être un complément précieux aux dispositifs de mesure millimétrique et sub-millimétrique dont est déjà équipé le laboratoire.

## Chapitre 2

# Génération de rayonnement THz par photomélange.

### 2.1 Introduction.

La première étape dans la mise en oeuvre du spectromètre, est celle de la génération du rayonnement TéraHertz (THz) utilisable pour la spectroscopie. Pour ce faire, une source basée sur la différence de fréquences a été mise en place. Appliquée aux longueurs d'onde submillimétrique, cette technique utilise un élément semi-conducteur non linéaire appelé photomélangeur sur lequel on focalise le rayonnement de deux sources infrarouges décalées en fréquence.

Afin d'utiliser ce photomélangeur dans le cadre d'un spectromètre haute résolution, on doit conférer une large plage d'accordabilité au signal THz émis par différence de fréquences. Or nous avons vu au chapitre précédent que les diodes lasers permettant la génération du rayonnement TéraHertz sont stabilisées en fréquence sur des résonances d'une cavité Fabry-Pérot. Lors de l'enregistrement d'un spectre, les fréquences des sources infrarouges restent donc fixes. L'accordabilité des émissions infrarouges est rendue possible par l'insertion au sein du spectromètre, de systèmes de modulation en fréquence *via* des modulateurs acousto-optiques. Ceux-ci modifient sur une large plage spectrale et de manière continue la fréquence du rayonnement des deux sources. Ces rayonnements sont ensuite spatialement superposés et acheminés vers un photomélangeur. Le photomélangeur est un photodétecteur ultrarapide couplé à une antenne. Lorsqu'on polarise celui-ci alors qu'il est illuminé par les deux sources infrarouges, un rayonnement dont la fréquence correspond à l'écart de fréquence entre les diodes lasers est émis par l'antenne.

## 2.2 Système optique pour le photomélangement.

### 2.2.1 Les sources de rayonnement.

La génération de rayonnement TéraHertz par différence de fréquences sur un photomélangeur AsGa impose d'utiliser des diodes émettant à une longueur d'onde proche de 860nm (cf. chapitre 1, section 1.4.1). Pour cela nous avons opté pour des diodes lasers commerciales TOPTICA qui émettent à une longueur d'onde de 820 nm, avec un courant de seuil de 34 mA. Ces diodes disposent d'une large plage d'accordabilité de l'ordre de 15 nm sans saut de mode et sont positionnées dans un montage en cavité étendue (DLCE) en configuration Littrow (FIG. 2.1)

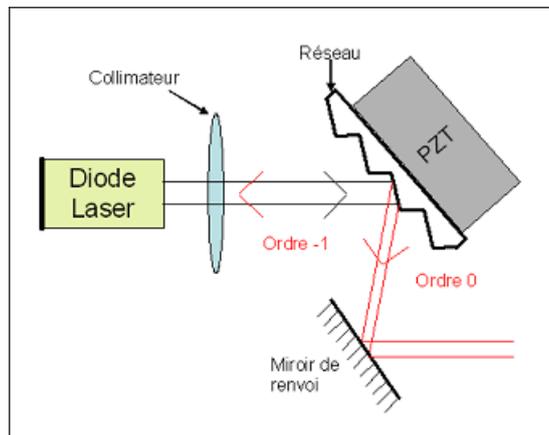


FIG. 2.1: Schéma de principe de la diode laser en cavité étendue sous configuration Littrow. L'ordre 0 de diffraction du réseau est celui utilisé en sortie de cavité

L'extrémité de cette cavité est fermée par un réseau de diffraction blazé de 1800 traits par millimètre, fixé sur cale céramique piézo-électrique. L'ordre -1 de diffraction du réseau est renvoyé dans la diode, alors que l'ordre 0 s'échappe de la cavité. Ce type de cavité étendue a pour rôle de réduire le bruit de fréquence de la diode laser, et donc d'affiner sa pureté spectrale à 1.5 MHz, tout en assurant une puissance d'émission de l'ordre de 100 mW de manière continue au maximum de courant d'injection. Le faisceau de chaque laser est collimaté par une lentille pour régler sa divergence en sortie de diode.

Les diodes lasers sont montées sur des supports en laiton stabilisés en température à 2mK près. L'asservissement en température est assuré par un montage de

type Proportionnel Intégrateur Différentiel (PID) qui agit sur un module Peltier. Les boîtiers contenant les diodes sont montés sur des socles en laiton stabilisés en température à 35° qui servent de masse thermique.

## 2.2.2 Dispositif optique infrarouge.

### Montage optique.

Après sortie de la structure des diodes, les rayonnements infrarouges traversent des isolateurs optiques de coefficient d'extinction 60dB. Les faisceaux infrarouges ont un profil elliptique en sortie des diodes qu'il faut corriger. L'utilisation d'une lame demi-onde et d'un système de prismes anamorphoseurs permet alors d'obtenir un profil spatial circulaire du faisceau de chaque diode.

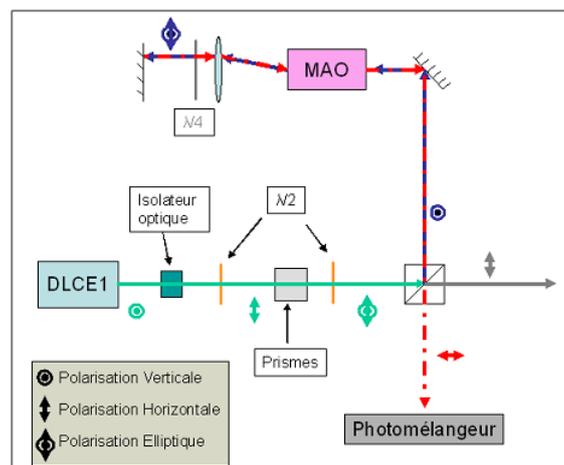


FIG. 2.2: Schéma de principe d'une des deux lignes laser du spectromètre Térahertz à différence de fréquences.

Une partie du rayonnement infrarouge est utilisée pour stabiliser en fréquence les émissions des diodes (Faisceau gris). L'autre partie est dédiée au photomélange (FIG. 2.2). Pour que la majeure partie du rayonnement se dirige vers le photomélangeur, on adapte les polarisations des faisceaux en sortie de prismes anamorphoseurs en utilisant des lames  $\lambda/2$  et des cubes séparateurs polarisants. L'orientation de la lame demi-onde permet de faire varier la polarisation des faisceaux infrarouges, ce qui permet de définir la puissance du rayonnement transmis par les cubes vers le montage de stabilisation et celle réfléchie vers les modulateurs acousto-optiques, utilisée pour le photomélange.

### Propagation des faisceaux.

La taille des faisceaux infrarouges au long de leur propagation constitue un point important dans le développement du spectromètre. Le rayon des faisceaux infrarouges conditionne l'efficacité de la modulation acousto-optique mise en place. Il joue aussi un rôle important lors de la génération de rayonnement TéraHertz.

Le mode de propagation des faisceaux infrarouges se fait suivant le modèle de propagation gaussien. Chaque faisceau de longueur d'onde  $\lambda$  peut être modélisé au long de son trajet optique pour connaître son rayon de ceinture  $\omega(z)$  et son rayon de courbure  $R(z)$ . Lors d'une propagation libre dans l'air

$$\omega^2(z) = \omega_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right] \quad (2.1)$$

$$R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right] \quad (2.2)$$

Où  $\omega_0$  est le rayon de col du faisceau.

Dans le but d'évaluer le comportement des rayonnements infrarouges utilisés, on mesure, en fonction de la distance à la diode laser, la taille des faisceaux. Ces mesures permettent d'obtenir une projection approximative des rayons de ceinture au cours de la propagation sur des distances de l'ordre de quelques mètres.

Les mesures de rayon de ceinture pour les deux faisceaux lasers ont été réalisées avec l'aide d'un analyseur de faisceau. Elles confirment que le profil spatial des faisceaux des diodes reste circulaire au cours de la propagation. Le profil du faisceau des deux diodes conserve un rapport d'ellipticité<sup>1</sup> de l'ordre de  $0.9 \pm 0.1$  sur une distance de propagation de deux mètres. L'approximation gaussienne sur une dimension est donc valable pour le profil complet de chacun de nos deux lasers (FIG. 2.3).

La figure (FIG. 2.4) montre le résultat des mesures pour les faisceaux des deux diodes. Une courbe de régression simple d'équation  $y = \sqrt{ax^2 + b}$  basée sur (2.1) permet alors d'estimer une valeur du rayon de col  $\omega_0$  pour les deux diodes lasers.

- Diode 1 :  $\omega_0$  est de l'ordre de  $490 \mu m$
- Diode 2 :  $\omega_0$  de l'ordre de  $460 \mu m$ .

A partir de ces valeurs on peut simuler le comportement du profil spatial des faisceaux, suivant leur trajet optique et la distance à la diode. Pour cela, on utilise

<sup>1</sup>(rapport du diamètre minimum sur le diamètre maximum de la section du faisceau)

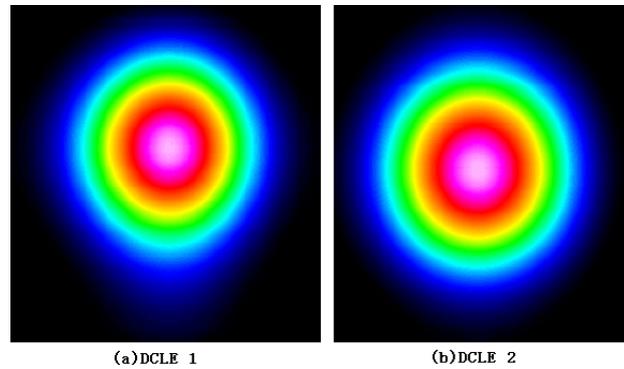


FIG. 2.3: Profil spatial du faisceau (a) de la diode 1 (b) de la diode 2 en fausses couleurs, après une propagation libre de 2 mètres. Le caractère circulaire des profils est donc bien conservé lors de la propagation (rapport d'ellipticité respectivement de 0.866 et 0.896).

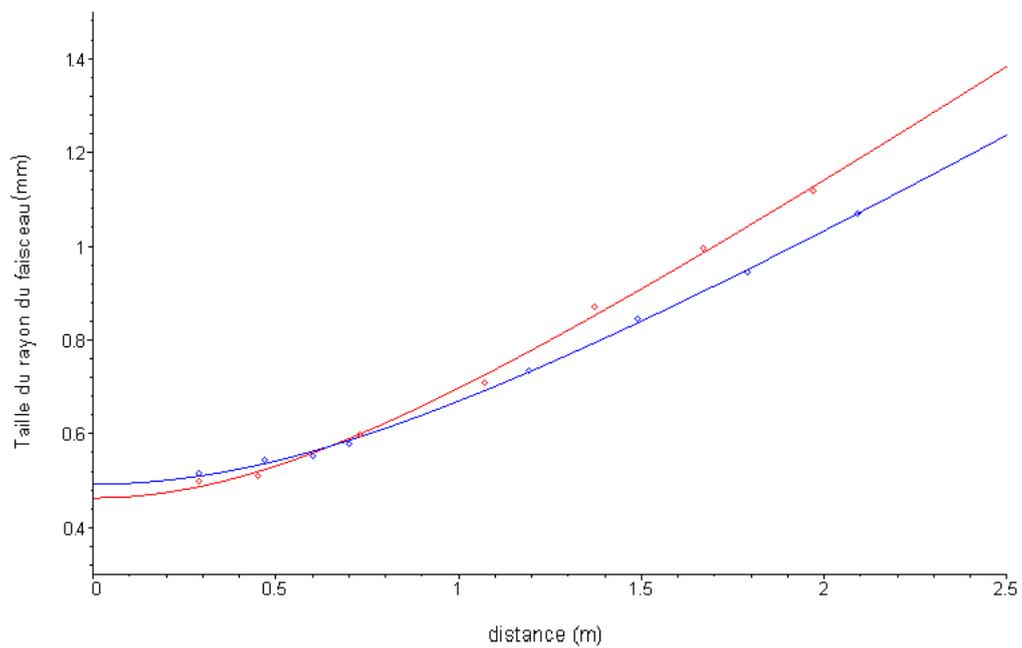


FIG. 2.4: Taille de rayon des faisceaux en fonction de la distance de propagation pour la diode 1 (courbe bleue) et la diode 2 (courbe rouge)

un logiciel de propagation simple fonctionnant sur le principe des matrices de transfert ABCD de faisceaux gaussiens [108].

## 2.3 Principe de l'accordabilité en fréquence.

### 2.3.1 Modulation acousto-optique en double passage.

La majeure partie du rayonnement infrarouge provenant des diodes lasers est utilisée pour le photomélangé. Après avoir brièvement vu le principe de la modulation acousto-optique, nous verrons comment celle-ci est mise en oeuvre pour accorder en fréquence le rayonnement infrarouge avant photomélangé.

#### Principe de la modulation acousto-optique.

Basée sur les prédictions de Brillouin en 1921 [109] puis les observations de Sears et Debye [110], l'effet acousto-optique permet de décaler la fréquence d'un laser par le biais d'une onde acoustique. Dans les modulateurs acousto-optiques (MAO), cet effet modifie la fréquence d'un rayonnement infrarouge d'une valeur déterminée par la fréquence de l'onde sonore imposée. L'onde ultra-sonore y est générée dans un cristal par une céramique piézo-électrique.

**Diffraction acousto-optique :** Pour modéliser l'effet acousto-optique [111], on considère une onde lumineuse plane de longueur d'onde  $\lambda$ , incidente sur un milieu d'indice  $n$ , de dimension infinie. Dans ce milieu, se propagent des ultrasons de longueur d'onde  $\lambda_a$ .

Cette onde acoustique se propage dans le matériau, occasionnant une succession de compressions et de dilatations auxquelles on va associer un réseau de période  $\lambda_a$  de variations d'indice  $n + \delta n$ . Ce réseau d'indice apparaît immobile vis-à-vis de l'onde lumineuse dans une première approximation. Le système étudié est alors dans un régime dit de Bragg [112], ce qui permet d'écrire la relation de Bragg (2.3).

$$2\lambda_a \sin \theta_b = \lambda / n \quad (2.3)$$

L'onde incidente va se retrouver diffractée par le réseau d'indices du milieu (FIG. 2.5). Il n'y aura interférence constructive que si le faisceau lumineux arrive avec un angle  $\theta_b$  par rapport aux plans d'onde acoustique, où l'angle  $\theta_b$  est appelé angle de Bragg. Le rayon diffracté d'ordre M est alors dévié par rapport au faisceau incident dans le milieu d'un angle  $2M.\theta_b$ .

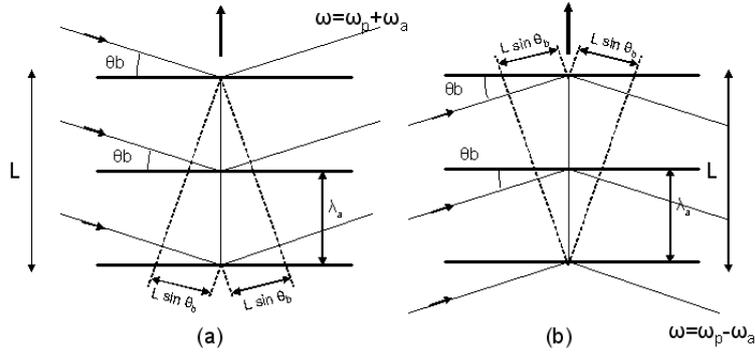


FIG. 2.5: Principe de la diffraction de l'onde optique incidente sur le réseau d'indice du milieu (a) diffraction suivant l'ordre 1 du réseau (b) diffraction suivant l'ordre -1 du réseau.

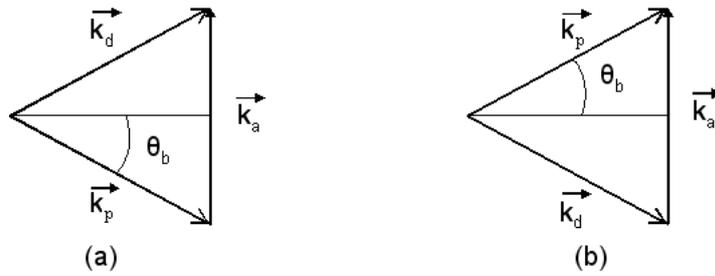


FIG. 2.6: Composition des vecteurs d'onde (a) Dans le cas d'une modulation d'ordre +1 ; (b) Dans le cas d'une modulation d'ordre -1.

Cette interaction entre onde acoustique et optique, peut aussi être considérée comme une interaction stricte entre photon et phonon, qui donne lieu à un photon diffusé. Suivant la direction de propagation de l'onde acoustique, on a diffraction suivant un ordre 1 ou -1. Les règles de conservation de l'énergie et des vecteurs d'onde (FIG. 2.6) donnent alors les relations (2.4) pour les fréquences et (2.5) pour les vecteurs d'onde.

$$v_d = v_p \pm v_a \tag{2.4}$$

$$\vec{k}_d = \vec{k}_p \pm \vec{k}_a \tag{2.5}$$

Suivant l'ordre de diffraction utilisé, il est donc possible de décaler la fréquence laser de plus ou moins la fréquence imposée par une onde ultrasonore. Pour le

montage expérimental on ne s'intéressera qu'aux ordres  $\pm 1$  de diffraction qui sont les ordres de diffraction les plus intenses créés par les MAO.

### **Implantation des MAO au sein du spectromètre.**

Les MAO étant peu encombrants et facilement pilotables par des synthétiseurs leur utilisation est idéale pour décaler la fréquence d'émission de nos diodes lasers.

**Présentation des modulateurs :** Pour réaliser cette modulation, nous disposons de deux MAO identiques, à cristaux de dioxyde de tellurium ( $\text{TeO}_2$ ), qui permettent de décaler la fréquence d'un signal de  $270\text{MHz} \pm 67\text{MHz}$ . Ils supportent une puissance d'entrée de 1W pour une efficacité constructeur évaluée de 70% à 785 nm et une taille de faisceau de 1mm de diamètre.

Chacun est piloté par un synthétiseur dont le signal est amplifié par un amplificateur alimenté avec une tension de 24V, de gain 30dB. Ces synthétiseurs permettent de balayer continûment la plage spectrale de modulation des MAO. Les modulateurs sont positionnés sur des platines de rotation afin de pouvoir modifier l'angle d'incidence des faisceaux lasers et donc de pouvoir maintenir l'incidence à l'angle de Bragg pour différentes fréquences de modulation. Nous avons décidé de positionner ces modulateurs en montage de double passage. Cette technique présente comme on le verra plusieurs avantages.

**Principe du MAO en double passage :** Dans un montage en double passage, le faisceau infrarouge une première fois modulé est renvoyé dans le MAO par un miroir. Il est alors modulé une deuxième fois et décalé en fréquence à la sortie du montage de deux fois la fréquence de l'onde sonore imposée. En jouant sur les ordres  $\pm 1$  de diffraction des modulateurs, il est alors possible de couvrir, sans modifier les fréquences d'émission des diodes, une plus large plage spectrale qu'en un seul passage. La fréquence  $\omega_1$  de l'émission laser à la sortie d'un système MAO en double passage est de la forme

$$\omega_1 = \omega_{DCLE1} \pm 2\omega_{MAO1} \quad (2.6)$$

Où  $\omega_{DCLE}$  représente la fréquence d'émission de la diode laser et  $\omega_{MAO}$  la fréquence de modulation acoustique imposée. Dans notre montage, la plage spectrale couverte pour l'ordre de diffraction +1 s'étend entre

$$\omega_1 = \omega_{DCLE1} + 2 \times 203.10^6 Hz \quad \text{et} \quad \omega_{1'} = \omega_{DCLE1} + 2 \times 337.10^6 Hz$$

Le système mis en place pour une source laser peut ainsi couvrir un plage spectrale de 268 MHz de part et d'autre de la fréquence d'origine des lasers suivant l'ordre de diffraction choisi (FIG. 2.7).

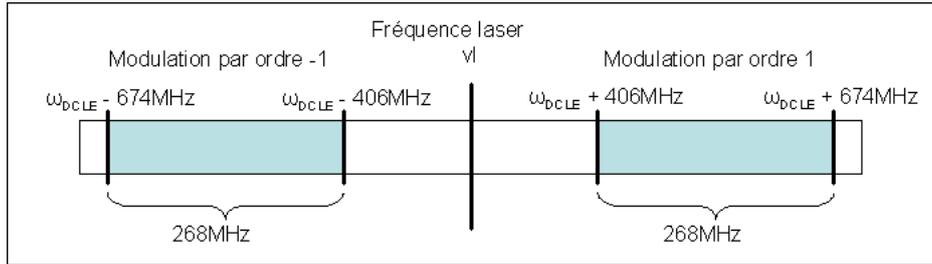


FIG. 2.7: Plage de décalage en fréquence accessible à partir de la fréquence d'émission d'une diode infrarouge par un montage de modulation acoustique en double passage. Suivant l'ordre de modulation utilisé on diminue ou augmente la fréquence du signal.

Chacune des diodes lasers voit son émission modulée suivant ce principe. Cette configuration en double passage nous apporte donc une meilleure couverture spectrale tout en amoindrissant le nombre de réglages à effectuer directement sur les diodes lasers ce qui sera un atout dans la procédure de stabilisation. Lors du photomélangement les diodes conservent les mêmes fréquences d'émission alors qu'on balayera une plus importante plage spectrale en une fois, ce qui est un atout pour la spectroscopie.

**Mise en place dans le spectromètre :** Nous avons vu que pour un ordre  $M$  de diffraction donné, le faisceau émergent du MAO est dévié d'un angle  $2M \cdot \theta_b$  par rapport au faisceau incident, où  $\theta_b$

$$\theta_b = \arcsin \left( \frac{\lambda}{2n\lambda_a} \right) \quad (2.7)$$

L'angle de Bragg (2.7) augmente donc avec la fréquence de modulation imposée, ce qui est problématique dans le chemin optique retour pour la deuxième modulation. Pour que le montage double passage soit efficace, il faut disposer d'un système qui permet de passer outre les contraintes de décalage angulaire

causé par la première modulation. Il doit pouvoir renvoyer le faisceau laser une première fois modulé dans le MAO pour tous les angles de Bragg. La modulation des fréquences laser en double passage est donc organisée en utilisant un montage œil de chat pour s'affranchir de ce problème [113]. Le dispositif comporte, une lentille de focale 10 cm, une lame  $\lambda/4$ , ainsi qu'un miroir de renvoi. Dans ce système, l'ordre 0 de diffraction, qui est inutile, est éliminé en lui faisant écran (FIG. 2.8).

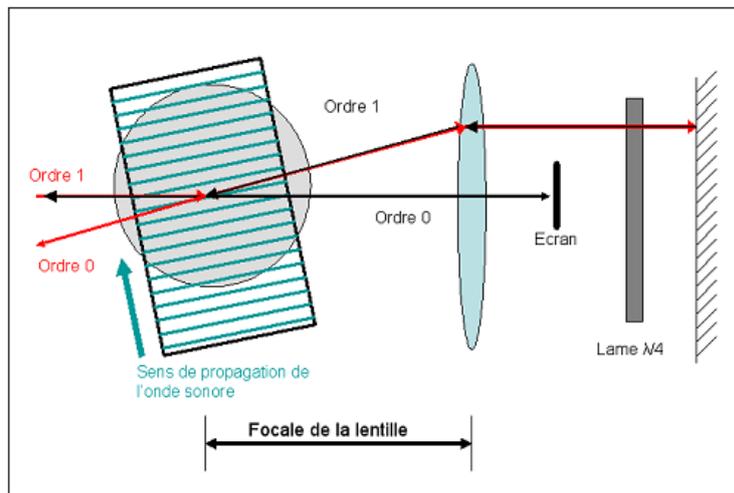


FIG. 2.8: Principe de la modulation acousto-optique en double passage. L'ordre 0 qui est inutile est écranté après son passage dans la lentille.

Dans le montage œil de chat, la lentille est placée à distance focale du centre du MAO. Après passage par cette lentille, le faisceau laser une première fois modulé est rigoureusement parallèle à l'axe optique du système [114]. Le trajet de la lumière est alors rigoureusement identique après la première modulation et au retour du faisceau vers le MAO pour la deuxième modulation. Afin de diminuer les trajets optiques ; le miroir de renvoi est placé 10 cm derrière la lentille et le faisceau de retour se trouve alors focalisé par la lentille dans le modulateur.

Lors de cette deuxième modulation l'onde lumineuse est encore une fois diffractée et l'ordre 1 (ou -1) de diffraction qui nous intéresse est là encore dévié de l'angle  $2\theta_b$  (où  $-2\theta_b$ ). Les déviations angulaires de la première et seconde modulation se compensent. Le faisceau de sortie du montage d'accordabilité en fréquence se retrouve, de ce fait, confondu avec le faisceau d'entrée. Les montages œil de chat confèrent donc au trajet optique des faisceaux une indépendance de comportement vis-à-vis de la fréquence de modulation. Il sera alors plus facile de superposer spatialement les deux faisceaux pour le photomélange.

A l'entrée du système de modulation en double passage, les faisceaux infrarouges sont polarisés verticalement. La lame quart d'onde placée après la lentille assure que les faisceaux de sortie des systèmes MAO aient une polarisation horizontale. A leurs retour il sont alors transmis par les cubes polarisants (FIG. 2.9) vers le photomélangeur.

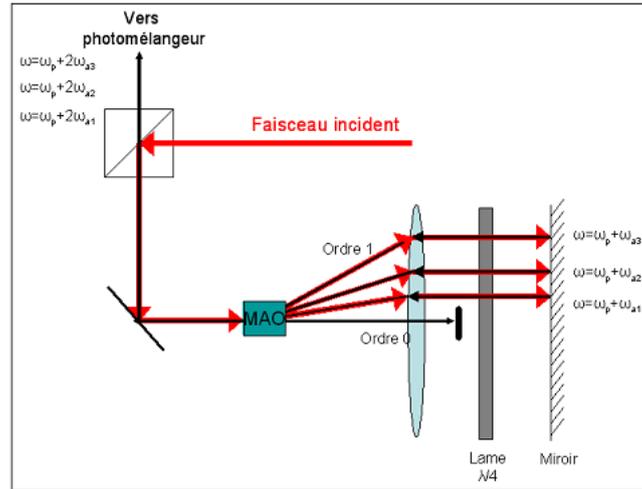


FIG. 2.9: Détail du fonctionnement de l'œil de chat et marche des rayons pour différents angles de Bragg. Pour des fréquences de modulation différentes du MAO, le retour du faisceau laser infrarouge doublement modulé reste le même. Le faisceau de sortie du système est superposé avec celui d'entrée.

Pour obtenir la meilleure efficacité de modulation possible, il est important de prendre en compte la taille du faisceau laser incident sur le MAO. En effet, le phénomène de modulation ne donne son entière efficacité que sur une zone de l'ordre du mm. Le positionnement des MAO a tenu compte de ce facteur (TAB. 2.1). La simulation de la propagation des faisceaux donne alors une première idée de la position idéale des modulateurs qui a été ensuite confirmée expérimentalement à l'aide de l'analyseur de faisceau.

Diode	Distance à la diode laser (cm)	Rayon de ceinture simulé	Rayon de ceinture effectif
1	64	571 $\mu\text{m}$	560 $\mu\text{m}$
2	70	589 $\mu\text{m}$	596 $\mu\text{m}$

TAB. 2.1: Position des Modulateurs acousto-optiques par rapport à la diode laser et rayon simulé et effectif des faisceaux infrarouges en entrée de modulateur.

### 2.3.2 Performances du système d'accordabilité.

#### Performances des MAO en double passage.

**Efficacité :** Dans la caractérisation de ce montage en double passage, nous nous sommes intéressés à l'efficacité de modulation<sup>2</sup>. Pour cela on réalise des mesures de puissances transférées de la porteuse en entrée du système MAO à l'ordre un de diffraction à sa sortie. Une première caractérisation est réalisée en modulation simple, puis une deuxième après le double passage dans le système MAO. Pour ces essais la puissance de l'onde sonore est mise à son maximum (30dB de signal d'entrée, amplificateur à l'intensité limite de 500 mA) et l'angle d'incidence du faisceau dans le modulateur acousto-optique est retouché à chaque point pour rester à l'angle de Bragg. On relève l'efficacité de modulation du MAO en fonction de la fréquence de l'onde sonore imposée (FIG. 2.10).

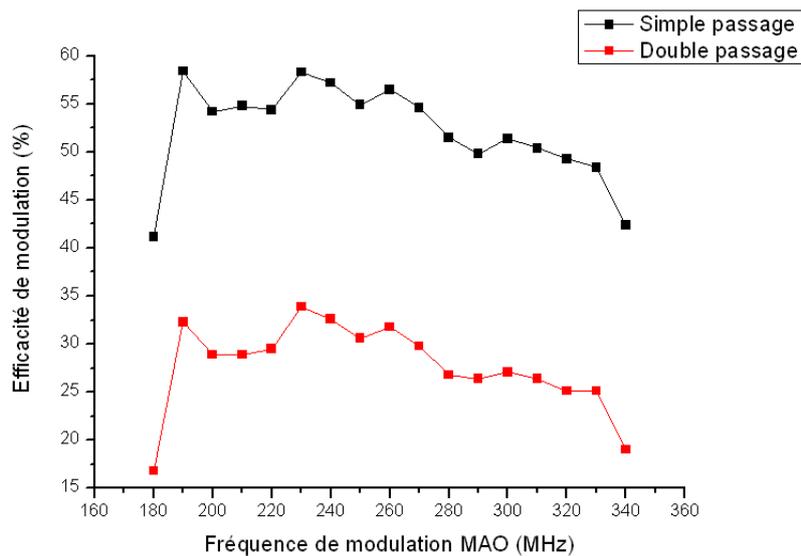


FIG. 2.10: Efficacité de modulation des MAO en simple (courbe noire) et double passage (courbe rouge) en fonction de la fréquence de l'onde sonore imposée avec ajustement de l'angle de Bragg pour chaque point de mesure.

Cette efficacité décroît avec l'élévation de la fréquence de modulation. Au début de la plage de modulation, à 200 MHz, l'efficacité de modulation est maximale aux alentours de 30%. Elle décroît ensuite progressivement. Au bout de la plage d'accordabilité, à 330 MHz, l'efficacité atteint une valeur de 25% .

<sup>2</sup>Définie comme le rapport entre la puissance incidente dans le MAO en entrée et la puissance modulée de sortie

Il est aussi intéressant de noter que les mesures des efficacités sur chacun des deux passages ont été comparée afin de juger l'impact du passage du faisceau par l'oeil de chat sur l'efficacité de modulation (FIG. 2.11). On constate que les efficacités de modulation au premier et deuxième passage sont sensiblement équivalentes. La focalisation liée à la lentille lors de la deuxième modulation n'affecte donc pas l'efficacité de modulation globale du système.

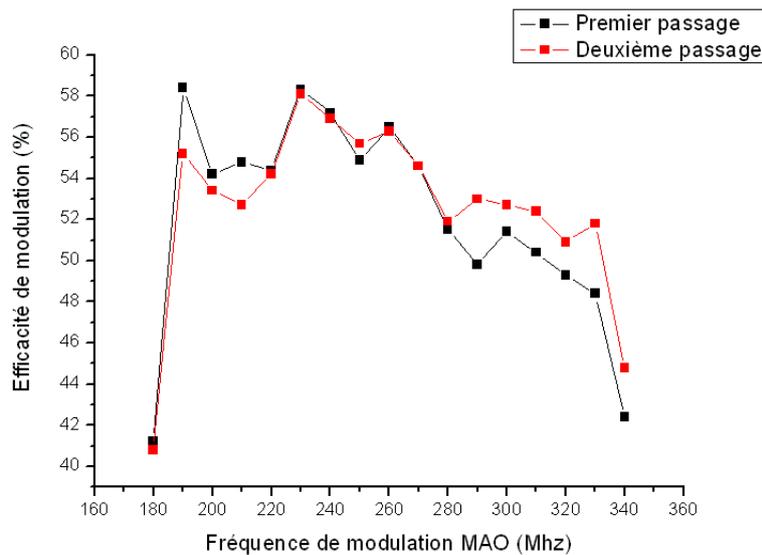


FIG. 2.11: Efficacité de la modulation à l'aller (courbe noire) et au retour (courbe rouge) du faisceau infrarouge en fonction de la fréquence de l'onde sonore imposée au MAO avec ajustement de l'angle de Bragg pour chaque point de mesure.

La puissance d'émission des diodes lasers infrarouges se situe pour un courant d'injection moyen, à 70 mW de signal utile. On considère que sur ce signal utile, 69 mW sont destinés à la spectroscopie, et arrivent en entrée du système d'accordabilité. Les puissances de signal doublement modulé obtenues en sortie des systèmes MAO sont dans ce cas de figure, comprises entre 20.7 et 17.2 mW sur la plage d'excursion en fréquence de 268 MHz. Les puissances de signal infrarouge doublement modulé qui sortent des systèmes MAO provenant des deux diodes sont donc très suffisantes pour réaliser le mélange non linéaire sur l'élément photomélangeur.

**Bande passante :** Les MAO ont une bande passante<sup>3</sup> de l'ordre de 134 MHz, allant de 203 MHz à 337 MHz. Cependant, cette bande passante n'est pleinement utilisable, que sous conditions. Pendant tout un balayage du spectre en fréquence de la modulation, on doit maintenir l'angle d'incidence du faisceau infrarouge à l'angle de Bragg  $\theta_b$ . Actuellement, la condition précédente ne peut être vérifiée sur toute la plage d'accordabilité du système dans le cadre d'un balayage « One shot ». Au moment de la rédaction de cette thèse, les MAO sont positionnés sur des platines de rotation fonctionnant manuellement. Il en résulte sans modification continue de l'angle de Bragg une bande passante en une acquisition que l'on peut voir sur la figure (FIG. 2.12) dans le cas d'une optimisation de l'angle de Bragg  $\theta_b$  pour une modulation à 240MHz.

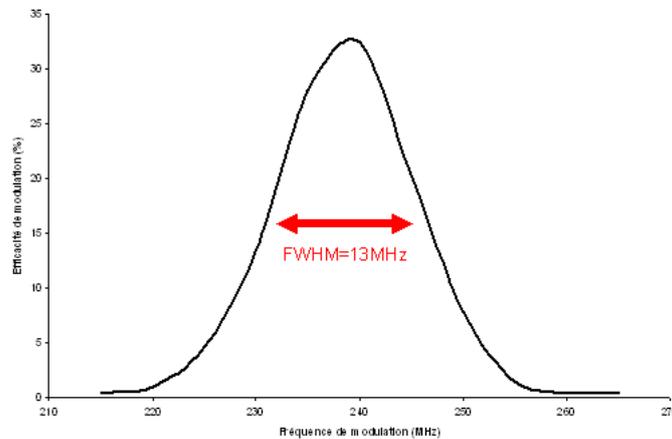


FIG. 2.12: Bande passante de modulation effective des MAO en double passage sans modification de l'angle de Bragg, au cours du balayage en fréquence. La position du MAO est ici optimisé pour une fréquence de modulation de 240 MHz.

La modulation en double passage est efficace à 240 MHz sur une bande passante de l'ordre de 13 MHz sans modification de l'angle d'incidence du rayonnement infrarouge dans le cristal du MAO. Cette bande passante est variable suivant la fréquence de modulation à laquelle est optimisé le système. Cette courbe gaussienne [115] traduisant l'efficacité de modulation acousto-optique sans modification de  $\theta_b$  va conditionner la puissance de rayonnement TéraHertz généré par photomélangement (FIG. 2.13).

<sup>3</sup>Bande spectrale sur laquelle la modulation en double passage atteint 50 % de l'efficacité maximale

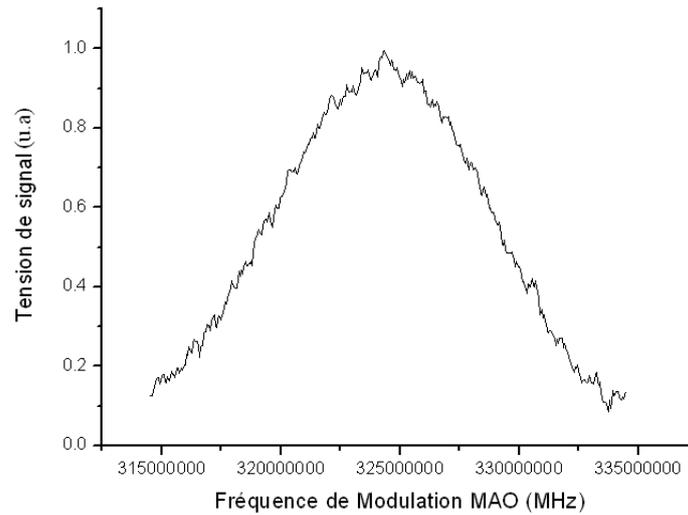


FIG. 2.13: Puissance de rayonnement TéraHertz généré par photomélangage à 1322 GHz obtenue en balayant seulement la fréquence de l'onde sonore du MAO de la diode DCLE1. L'évolution gaussienne de la puissance générée est lié à l'efficacité de modulation du MAO sans modification de l'angle de Bragg.

Pour réaliser un balayage en fréquence complet de la gamme accessible aux MAO, on procédera par étapes successives en réglant l'angle de Bragg après chaque petite excursion en fréquence.

### **Perspectives d'améliorations.**

Les perspectives d'amélioration au niveau de l'accordabilité en fréquence des sources infrarouges se concentrent sur l'augmentation de la plage spectrale balayable de manière automatique.

Pour cela, il semble judicieux de pouvoir automatiser le mouvement des platines de rotations sur lesquelles sont positionnées les modulateurs acousto-optiques. En effet, les décalages angulaires à respecter pour rester à l'angle de Bragg lors du balayage en fréquence de la modulation peuvent être tabulés, en fonction de la fréquence des sources infrarouges et de la fréquence de modulation désirée.

L'utilisation de platines de rotation motorisées et programmables permettrait d'accroître considérablement la plage de fréquence de modulation accessible en une excursion de fréquence en n'étant plus limité que par la bande passante des MAO utilisés.

Une autre piste pour améliorer la plage spectrale balayable est celle mise en place par Chen et al [88]. Elle consiste à utiliser trois diodes laser infrarouges proches au lieu de deux. La troisième diode laser infrarouge proche est alors verrouillée en phase sur une des deux diodes lasers asservie Pound-Drever-Hall d'après le schéma (FIG. 2.14). L'idée est ici de pouvoir balayer de manière continue la fréquence d'émission de la troisième diode sur plusieurs GHz en modifiant la fréquence de consigne du synthétiseur à laquelle est comparée la différence de fréquence des diodes deux et trois, ce qui permettrait une large accordabilité en fréquence du dispositif .

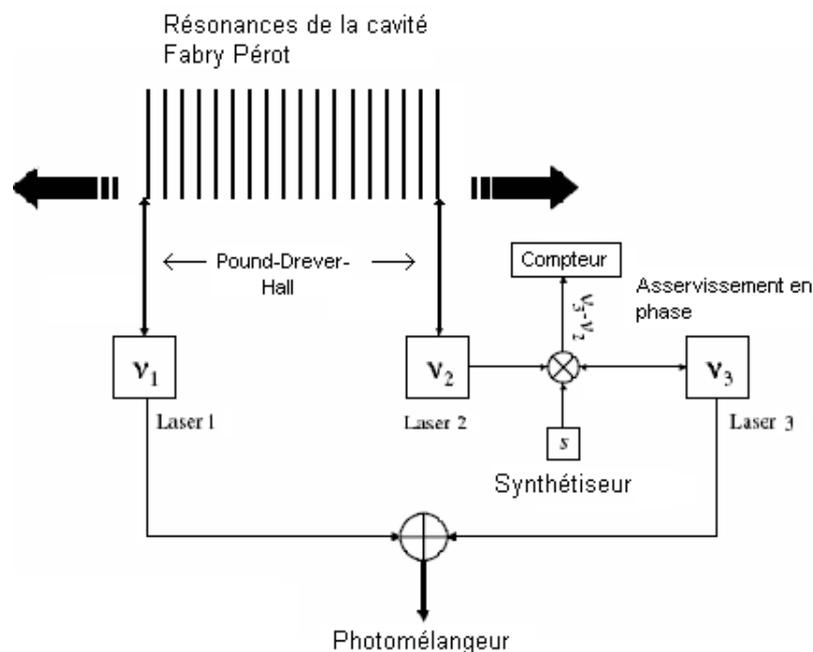


FIG. 2.14: Schéma fonctionnel du dispositif développé par Chen et al. [88]. Le laser 3, asservi en phase sur le laser 2 stabilisé Pound Drever Hall, peut voir sa fréquence d'émission balayée continuellement par modification de la fréquence du synthétiseur.

Ce type de système aurait l'avantage de nous permettre de nous affranchir totalement des contraintes liées à l'utilisation de modulateurs acousto-optiques et d'augmenter la couverture spectrale du dispositif de manière significative sans aucune action sur les diodes asservies sur la cavité Fabry-Pérot.

L'efficacité de modulation pourrait être améliorée en recherchant un meilleur accord entre taille de faisceau et zone active des MAO, ou encore en utilisant des modulateurs fonctionnant à 820 nm permettant la génération d'une onde acous-

tique plus intense. Un moyen d'améliorer la puissance optique en sortie de système d'accordabilité envisageable serait aussi la mise en place d'amplificateurs optiques type MOPA [116].

## 2.4 Photomélangement.

### 2.4.1 Généralités.

Les faisceaux infrarouges, une fois passés par les systèmes d'accordabilité en fréquence, sont envoyés sur un élément photomélangement. On s'attardera sur l'aspect matériel de ce photomélangement composé d'un photodétecteur en forme de peigne interdigité inclus dans une antenne spirale. Nous aborderons ensuite le principe général de fonctionnement de cet élément. Le photodétecteur y sera modélisé par un circuit électrique simple. Nous verrons par la suite comment l'antenne rayonne aux fréquences THz.

#### Photodétecteur

Les éléments photomélangements utilisés ici ont été fournis par l'IEMN. Ils sont composés d'un substrat Arséniure de Gallium (AsGa) [117] de  $500 \mu m$  sur lequel est épitaxié à basse température ( $200^\circ$  au lieu de  $600^\circ$ ), sous surpression d'arsenic, une couche active de AsGa. Cette couche de AsGa BT de deux microns d'épaisseur contient alors 1 à 2% d'arsenic en excès qui va former des précipités lors d'un recuit à  $600^\circ$  [118]. Ce procédé crée des défauts ponctuels de la structure de la surface active. Cette surface est pour le photomélangement illuminée par un rayonnement dont l'énergie est supérieur à l'énergie de bande interdite (1.4eV) [119] qui génère des porteurs de charge de temps de vie sub-picoseconde [120] compatible avec la génération de signal TéraHertz. Sur cet AsGa BT est ensuite imprimé par lithographie électronique un photodétecteur à capacités interdigitées (FIG. 2.15). Celui-ci est composé de deux peignes imbriqués en surface du semiconducteur AsGa [121].

Dans notre cas ce peigne présente les caractéristiques suivantes :

- Espacement entre les doigts  $1.8 \mu m$
- Largeur d'un doigt  $0.2 \mu m$
- Zone active  $8 \mu m \times 8 \mu m$

On focalise les faisceaux infrarouges sur ce peigne car c'est lui qui joue le rôle de photodétecteur. Le peigne est lui-même inscrit dans une structure plus grande

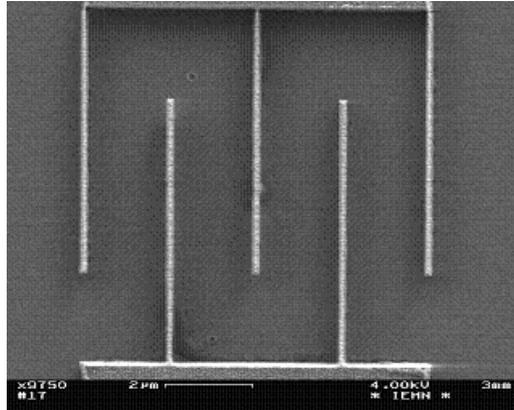


FIG. 2.15: Vue au MEB du peigne interdigité sur lequel les rayonnements infrarouges superposés sont focalisés.

en spirale (FIG. 2.16). C'est cette structure spirale qui joue le rôle d'antenne pour le rayonnement THz.

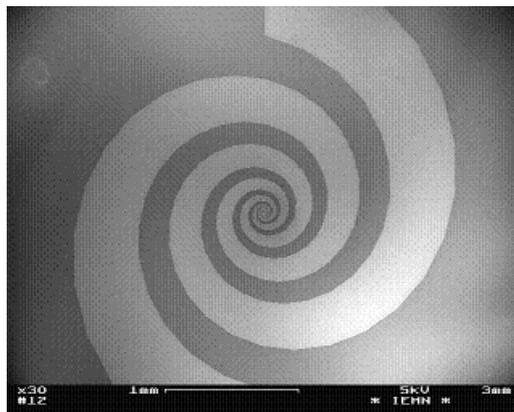


FIG. 2.16: Vue au MEB de l'antenne spirale du photomélangeur permettant l'émission du rayonnement TéraHertz. Le peigne interdigité est inscrit au centre de celle-ci.

### L'antenne :

L'antenne du photomélangeur est une antenne spirale. Chaque bras de l'antenne est formé de deux spirales équiangulaires défini par la relation  $r = r_0 \exp(c\theta)$  en coordonnées polaires. Dans le cas des antennes que nous utilisons  $c = 0.2$  et  $r_0 =$

$8 \mu m$ . En limitant l'extension spatiale de l'antenne à 1.5 mm de longueur on peut construire la figure (FIG. 2.17) qui modélise l'antenne de nos photomélanges. Un bras de l'antenne est construit des courbes  $r_1$  et  $r_2$  d'équation

$$r_1(\theta) = r_0 \exp(c\theta) \quad \text{et} \quad r_2(\theta) = k.r_0 \exp(c\theta) \quad (2.8)$$

où d'après [122]

$$r_2(\theta) = r_1\left(\theta + \frac{\pi}{2}\right) \quad (2.9)$$

ce qui donne la relation

$$k = \exp\left(-\frac{c\pi}{2}\right) \quad (2.10)$$

Le deuxième bras de l'antenne est réalisé par une rotation d'un angle  $\pi$  du premier bras.

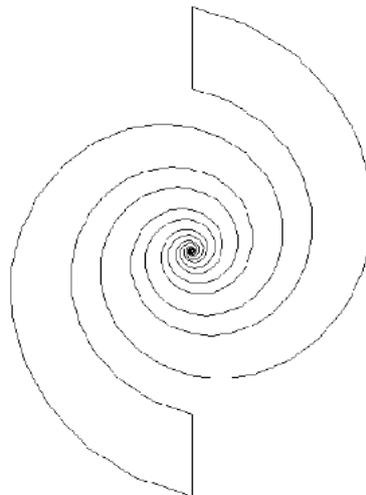


FIG. 2.17: Spirale équiangulaire de coefficient  $c = 0.2$

L'impédance et le diagramme de radiation de ce type d'antenne ont été caractérisés comme largement indépendants de la fréquence d'émission [123]. L'impédance caractéristique d'une antenne  $Z_{sp}$  identique à celle que nous utilisons a été évaluée à  $72 \Omega$  [124] à partir de l'impédance du vide  $Z_0$  et de la constante diélectrique de AsGa  $\epsilon_r$ .

$$Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \quad (2.11)$$

$$Z_{sp} = \frac{Z_0}{2\sqrt{\frac{\epsilon_r+1}{2}}} \quad (2.12)$$

La géométrie d'antenne utilisée ici est optimisée pour pouvoir rayonner sur une plage de fréquence allant de 100 GHz à plusieurs THz avec une fréquence de coupure à 3dB évaluée à plus de 1 THz [125]. Ces atouts font de l'antenne spirale une antenne intéressante pour des expériences de spectroscopie.

## 2.4.2 Modélisation physique du photomélangeur.

Pour modéliser le photomélangeur, on considère un circuit électrique équivalent qui permet de déterminer comment le rayonnement THz sera émis par l'antenne spirale.

### Puissance optique incidente.

On considère tout d'abord deux ondes  $\vec{E}_1(\vec{r}, t)$  et  $\vec{E}_2(\vec{r}, t)$  de pulsations respectives  $\omega_1$  et  $\omega_2$ .

$$\vec{E}_1(\vec{r}, t) = E_1(\cos(\omega_1 t - k_1 \cdot \vec{r} \cdot \vec{n})) \vec{u} \quad (2.13)$$

$$\vec{E}_2(\vec{r}, t) = E_2(\cos(\omega_2 t - k_2 \cdot \vec{r} \cdot \vec{n})) \vec{u} \quad (2.14)$$

Les deux ondes sont spatialement superposées avec un coefficient  $m$  de recouvrement qui peut aller de 0, lorsque les faisceaux ne sont pas superposés, à 1, quand les faisceaux se recouvrent parfaitement. Ces ondes sont alors envoyées en incidence normale sur un élément photomélangeur. La puissance instantanée des deux faisceaux superposés traversant une surface unitaire du photomélangeur est ainsi donnée par la relation

$$\begin{aligned} P(\vec{r}, t) = & \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} [E_1^2(\cos^2(\omega_1 t - k_1 \cdot \vec{r} \cdot \vec{n})) + E_2^2(\cos^2(\omega_2 t - k_2 \cdot \vec{r} \cdot \vec{n})) \\ & + m * E_1 E_2 (\cos((\omega_1 + \omega_2)t + (k_1 + k_2) \cdot \vec{r} \cdot \vec{n})) \\ & + m * E_1 E_2 (\cos((\omega_1 - \omega_2)t + (k_1 - k_2) \cdot \vec{r} \cdot \vec{n}))] \end{aligned} \quad (2.15)$$

Cette expression fait apparaître deux termes de battement aux pulsations somme et différence des pulsations des deux faisceaux.

Le photomélangeur, polarisé par une tension continue  $V_B$ , se comporte comme un photodétecteur. Il détecte la puissance de rayonnement liée à la superposition spatiale des ondes incidentes (2.15). La puissance instantanée  $P(\vec{r}, t)$  de l'équation (2.15) est intégrée pour avoir l'expression de la puissance effectivement détectée par le photomélangeur [126].

En définissant

$$P_1 = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_1^2, \quad P_2 = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_2^2 \quad \text{et} \quad P_0 = P_1 + P_2$$

on obtient l'expression de la puissance suivante

$$P(t) = P_0 + 2\sqrt{mP_1P_2} [\cos(\omega_s t) + \cos(\omega_d t)] \quad (2.16)$$

où

$$\omega_d = \omega_1 - \omega_2 \quad \text{et} \quad \omega_s = \omega_1 + \omega_2$$

sont les termes de battement de fréquences différence et somme des faisceaux incidents.

Le photomélangeur ayant un temps de réponse  $\tau$  tels que

$$\frac{1}{\tau} \simeq \omega_d \quad \text{et} \quad \frac{1}{\tau} \ll \omega_s$$

seul le terme de battement  $\omega_d$  sera effectivement détecté, ce qui réduit (2.16) à

$$P(\omega_d, t) = P_0 + 2\sqrt{mP_1P_2} \cos(\omega_d t) \quad (2.17)$$

### Réponse du photomélangeur.

On considère maintenant les photons des deux faisceaux lasers superposés, d'énergie  $h\nu$ . Ils sont en incidence normale sur un photomélangeur d'épaisseur  $d$  et d'aire active  $A$ . Une partie de ceux-ci sont réfléchis par le substrat du photomélangeur, d'indice  $n_{sc}$  (pour l'AsGa,  $n_{sc} = 3.6$ ). Les autres sont transmis pour être détectés. On peut alors définir un rendement  $\eta$  concernant le nombre de photons détectables par le photodétecteur

$$\eta = 1 - R \quad (2.18)$$

où  $R$  est le coefficient de réflexion du substrat ( $R \simeq 0.32$  pour l'AsGa).

$$R = \frac{(n_{sc} - 1)^2}{(n_{sc} + 1)^2} \quad (2.19)$$

Les photons transmis vont agir sur le photodétecteur en générant dans l'AsGa, des paires électron/trou (FIG. 2.18).

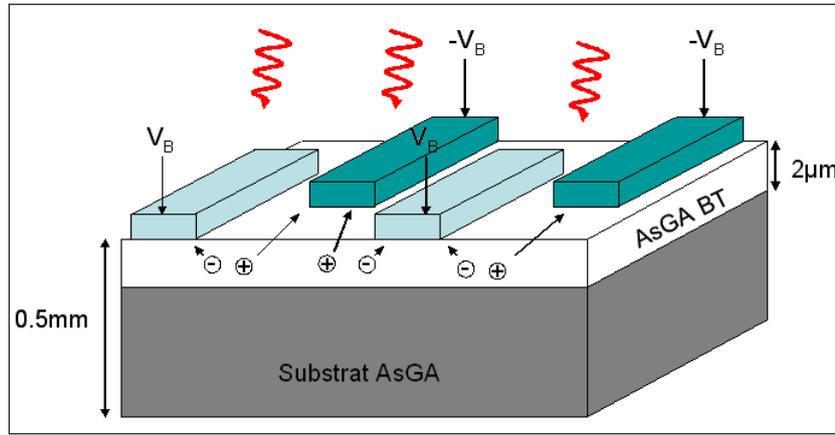


FIG. 2.18: Schéma de principe de la génération des porteurs dans le photomélangeur. Le rayonnement infrarouge d'énergie  $h\nu$  crée des porteurs de charge dans la surface active en AsGa BT qui s'orientent vers les électrodes polarisées avec une tension  $V_B$ .

Les électrons ainsi créés pourront, soit se recombiner après une durée de vie  $\tau$ , soit être balayés par la tension d'alimentation  $V_B$  appliquée au photodétecteur. La densité de ces paires électron/trou est dépendante de la puissance incidente [127] sur le détecteur. L'expression de cette densité mène à une équation différentielle du type.

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\eta}{h\nu Ad} P(\omega_d, t) - \frac{n}{\tau} \quad (2.20)$$

La résolution de l'équation différentielle, en substituant (2.17) dans (2.20) amène à une expression du nombre de porteurs générés dans la surface active du photomélangeur [127].

$$n(\omega_d, t) = \frac{\eta(P_1 + P_2)\tau}{h\nu Ad} \left[ 1 + \frac{2\sqrt{mP_1P_2}}{P_0} \right] \times \left[ \frac{\omega_d \tau \sin(\omega_d t) + \cos(\omega_d t)}{1 + (\omega_d \tau)^2} \right] \quad (2.21)$$

**Modélisation électronique.**

On peut par la suite modéliser le photomélangeur par le circuit électronique de la figure (FIG. 2.19). Ce circuit modèle tient compte de l'antenne d'impédance  $R_L$ , et aussi des électrodes de contact du photomélangeur représentées par une capacité  $C$ , et une résistance  $R_S$ .

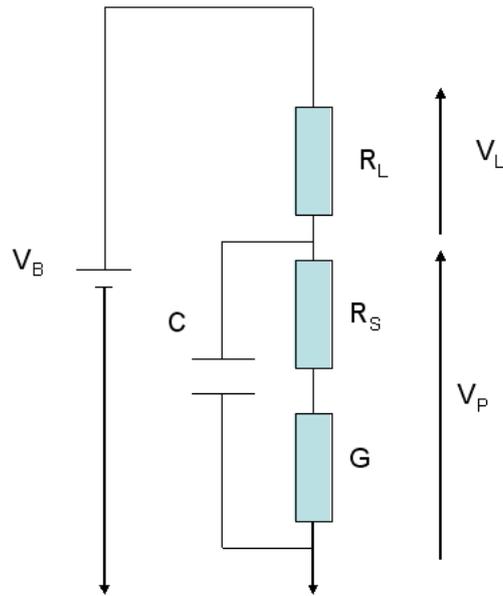


FIG. 2.19: Schéma électrique équivalent du photomélangeur chargé par une antenne

L'expression du nombre de porteurs de charge (2.21), associée au modèle électrique précédent permet de traduire la conductance  $G(\omega_d, t)$  du photodétecteur dépendante du temps en fonction de :  $\mu$ , la mobilité effective des porteurs de charge,  $r$  la largeur de la zone active (dans notre cas  $8 \mu m$ ) et  $q$  la charge de l'électron .

$$G(\omega_d, t) = \frac{q\mu d\sqrt{A}}{r}n(\omega_d, t) \quad (2.22)$$

Le circuit du photomélangeur est alimenté par une tension continue  $V_B$ . En négligeant  $R_S$ , et à partir de l'expression de l'impédance complexe du circuit [125], la puissance qui se dissipe dans la résistance de l'antenne peut alors s'exprimer comme

$$P_{antenne}(\omega_d, t) = \frac{R_L V_B^2}{A} \left[ \frac{q\mu\eta\tau}{rh\nu} \right]^2 \frac{1}{1 + (\omega_d R_L C)^2} \times \left[ P_0 + \frac{2\sqrt{mP_1P_2}}{1 + (\omega_d\tau)^2} (\cos(\omega_d t) + \omega_d\tau \sin(\omega_d t)) \right]^2 \quad (2.23)$$

L'équation (2.23) est constituée de deux termes. En effet une partie de la puissance dissipée par ce circuit du photomélangeur dans l'antenne correspond à la puissance dissipée par effet Joule dans le substrat. L'autre partie de cette puissance est la puissance rayonnée par l'antenne  $P_{out}$  à la fréquence différence des deux faisceaux incidents. La puissance Joule représente la partie stationnaire de (2.23), alors que  $P_{out}$  représente la partie fluctuant aux fréquences THz moyennée en temps [128].

$$P_{joule} = \left[ \frac{q\mu\eta\tau}{rh\nu} \right] \frac{V_B^2}{\sqrt{A}} P_0 \quad (2.24)$$

$$P_{out}(\omega_d) = 2 \frac{R_L V_B^2}{A} \left[ \frac{q\mu\eta\tau}{rh\nu} \right]^2 \frac{mP_1P_2}{[1 + (\omega_d\tau)^2][1 + (\omega_d R_L C)^2]} \quad (2.25)$$

De façon concrète  $P_{joule}$  ne peut augmenter continûment sans une destruction de l'élément photomélangeur. Il existe donc une valeur seuil  $P_{joule}^{max}$  de la puissance Joule qui conditionne la tension de polarisation du photomélangeur maximale  $V_B$ , ainsi que les puissances de rayonnement incident  $P_0$  que l'on peut imposer. Cette valeur seuil est liée au temps de vie des porteurs dans l'AsGa [129].

A partir de celle-ci on peut exprimer la puissance maximale de rayonnement TéraHertz pouvant être émis par l'antenne sans la détruire.

$$P_{out}^{max}(\omega_d) = 2 \frac{R_L P_{joule}^{max}}{\sqrt{A}} \left[ \frac{q\mu\eta}{rh\nu} \right] \frac{mP_1P_2}{P_0} \frac{\tau}{[1 + (\omega_d\tau)^2][1 + (\omega_d R_L C)^2]} \quad (2.26)$$

On constate que (2.26) est dépendante de la différence de fréquences des faisceaux incidents ainsi que de la constante  $R_L C$  de l'antenne et des temps de vie des porteurs photo-crées [81]. A partir de ces expressions, il est aisé de tirer les conditions sur les différentes variables pour pouvoir rayonner des ondes au-delà du THz :

$$\tau \text{ et } R_L C < 10^{-12} \text{secondes}$$

Il faut donc que l'on ait des temps de vie des électrons sub-picosecondes, pour pouvoir générer du rayonnement aux fréquences TéraHertz.

Comme le montre la formule (2.26), les puissances de signal générées, ainsi que les fréquences de coupures des photomélangeurs, sont directement dépendantes des temps de vie des porteurs de charge photo-crées. Cette tendance est nettement visible sur le graphique (FIG. 2.20) où sont reportées les puissances de signal rayonnées par l'antenne à plusieurs fréquences.

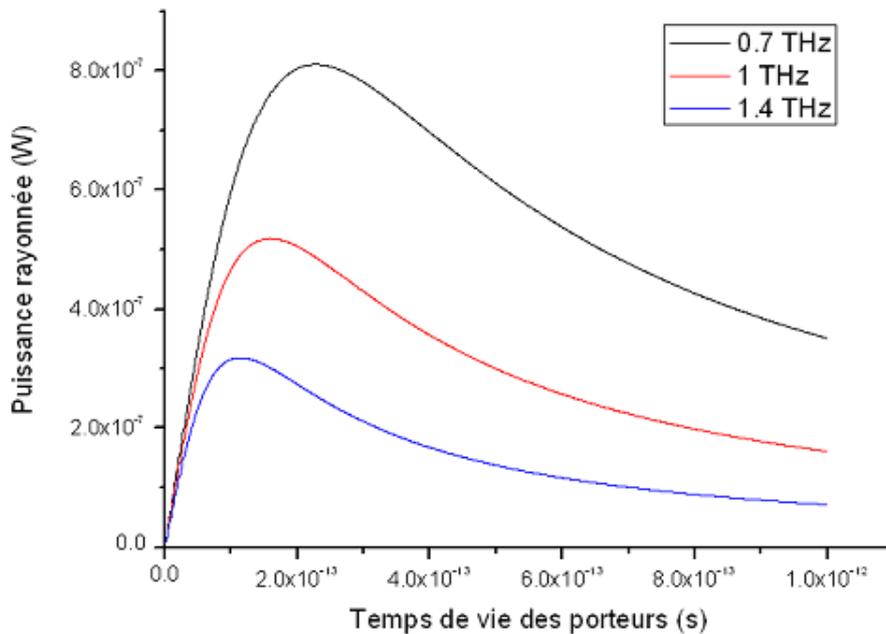


FIG. 2.20: Simulation de la puissance maximale de signal rayonné en fonction des temps de vie des porteurs dans le substrat AsGa du photomélangeur, à plusieurs fréquences d'émission. Plus la fréquence est élevée plus la puissance diminue et plus le maximum de puissance est obtenu pour des temps de vie de porteur faibles.

**Choix expérimental** A l'heure actuelle, nous disposons de photomélangeurs comportant trois temps de vies de porteurs différents :

- 320 femtosecondes
- 540 femtosecondes
- 1,2 picosecondes

La simulation de la puissance rayonnée en fonction de la fréquence d'émission de chacun de ces types de photomélangeur montre bien que plus le temps de vie

des porteurs de charge est grand et plus la fréquence de coupure est faible (FIG. 2.21).

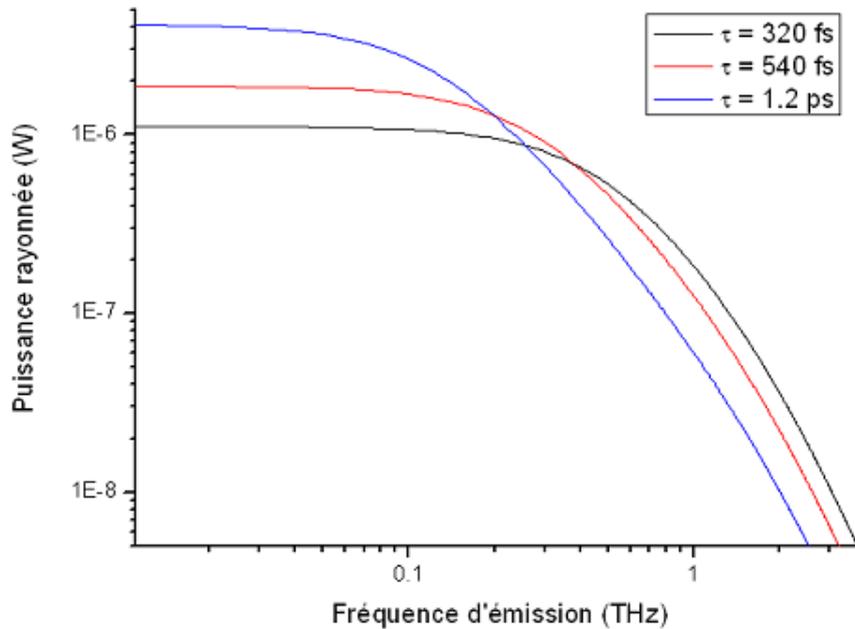


FIG. 2.21: Simulation des puissances rayonnées par les trois types de photomélangeurs. Plus le temps de vie de porteur est grand et plus la puissance est importante à basse fréquence. Par contre la bande passante est plus restreinte.

Dans l'application pour la spectroscopie nous avons privilégié l'utilisation du photomélangeur ayant la plus grande bande passante, soit celui ayant un temps de vie de porteur de 320 femtosecondes.

## 2.5 Résultats expérimentaux.

### 2.5.1 Couverture spectrale du dispositif photomélangeur.

Le spectromètre THz développé dans ce travail couple donc un élément photomélangeur à des systèmes de balayage en fréquence par MAO. On s'intéresse à la couverture spectrale d'émission que peut accorder ce montage.

Nous avons vu précédemment que le photomélangeur rayonne un signal à la fréquence différence des deux sources incidentes sur le peigne interdigité. Dans notre cas, ces sources sont les diodes lasers infrarouges dont les fréquences sont

modulées par les modulateurs acousto-optiques en double passage. Pour chacune d'elle le faisceau incident sur le photomélangeur obéit à la relation (2.6) dépendante de la fréquence de modulation de chacun des MAO  $\omega_{MAO1}$  et  $\omega_{MAO2}$ .

Le photomélangeur rayonnera donc à la fréquence  $\omega$  telle que

$$\omega = \omega_1 - \omega_2 \quad (2.27)$$

$$\omega = (\omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2}) \pm 2(\omega_{MAO1} \pm \omega_{MAO2}) \quad (2.28)$$

Le système de stabilisation en fréquence des diodes lasers repose sur l'asservissement des fréquences d'émission des deux diodes infrarouges sur deux fréquences de résonance différentes d'une cavité FP. Cette cavité est d'intervalle spectral libre (ISL) de 750 MHz. L'écart de fréquence entre les deux diodes stabilisées sur la cavité est donc égal à un nombre entier R de fois l'ISL noté  $\Delta\nu_{FSR}$ .

$$\omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2} = R \times \Delta\nu_{FSR} \quad (2.29)$$

En posant la relation (2.30) on obtient la fréquence d'émission du photomélangeur (2.31)

$$\omega_{DCLE} = \omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2} \quad (2.30)$$

$$\omega = \omega_{DCLE} \pm 2(\omega_{MAO1} \pm \omega_{MAO2}) \quad (2.31)$$

En jouant uniquement sur  $\omega_{MAO1}$  et  $\omega_{MAO2}$ , ainsi que sur les ordres  $\pm 1$  de diffraction de chacun des modulateurs, le rayonnement du photomélangeur peut couvrir sans modification des fréquences d'émission des diodes (une seule valeur de R) une plage spectrale importante (FIG. 2.22).

Pour couvrir la totalité de la gamme spectrale du photomélangeur, il nous faut ensuite changer d'entier R et modifier la fréquence d'asservissement d'une des diodes. Des mesures sur trois R successifs permettent de couvrir une plage de presque 3GHz de manière continue. La figure (FIG. 2.23) montre ainsi les recouvrements de gamme spectrale accessible sur trois R successifs.

En renouvelant le processus sur toute la gamme spectrale accessible au rayonnement du photomélangeur, soit 100 GHz à 2.3 THz, on peut couvrir cette plage spectrale de manière continue.

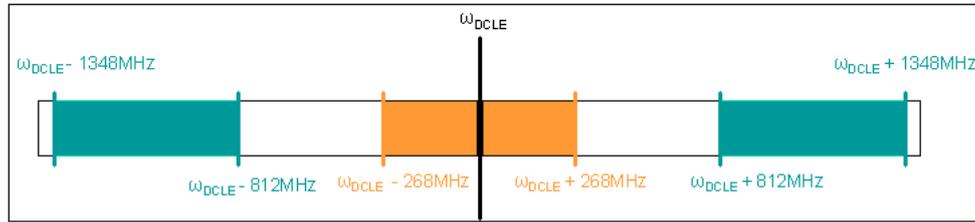


FIG. 2.22: Couverture d'émission THz sans modification des fréquences d'émission des diodes lasers.

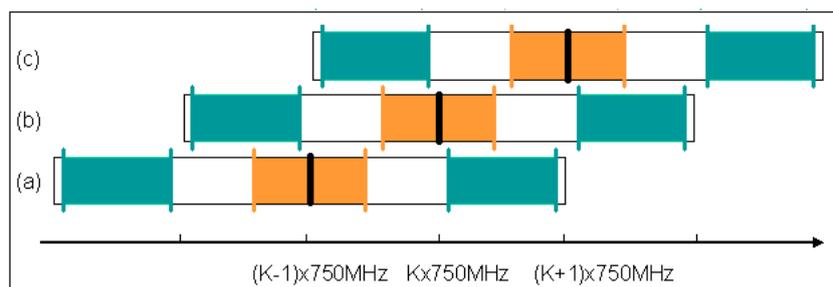


FIG. 2.23: Plage d'excursion spectrale accessible pour trois multiples de 750 MHz successifs (a)(R-1),(b)R,(c)R+1. On constate que les plages spectrales accessibles par seule modulation acousto-optique se recouvrent ce qui permet une accordabilité continue .

### 2.5.2 Couplage infrarouge.

Les photomélangeurs sont placés par trois sur une plaquette en époxy, et reliés à un circuit par fils d'or. La plaquette est ensuite positionnée sur une monture commerciale Thorlabs (FIG. 2.24) modifiée pour éviter tout court circuit dommageable. En effet, le photomélangeur est très vulnérable à toute décharge d'électricité statique. Il est donc important de bien l'isoler de tout champ électrique qui pourrait l'endommager.

Le photomélangeur est alimenté par un générateur de tension continue 0-20 Volt. La tension d'alimentation est mesurée précisément par voltmètre. Le faible photo-courant généré par la photodétection est mesuré par un ampèremètre de précision. Il est de l'ordre de quelques dizaines voire centaines de micro-ampères (FIG. 2.25).

Un interrupteur est placé sur le circuit d'alimentation du photomélangeur afin de maintenir un court circuit lors de sa mise hors tension.

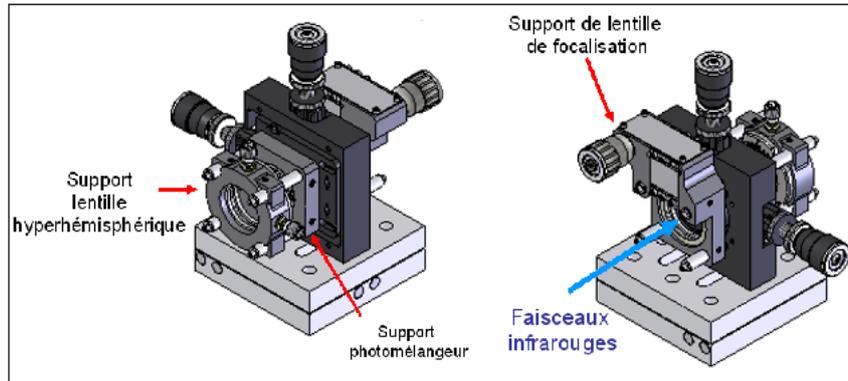


FIG. 2.24: Vue de la platine originelle sur laquelle est fixé l'élément photomélangeur

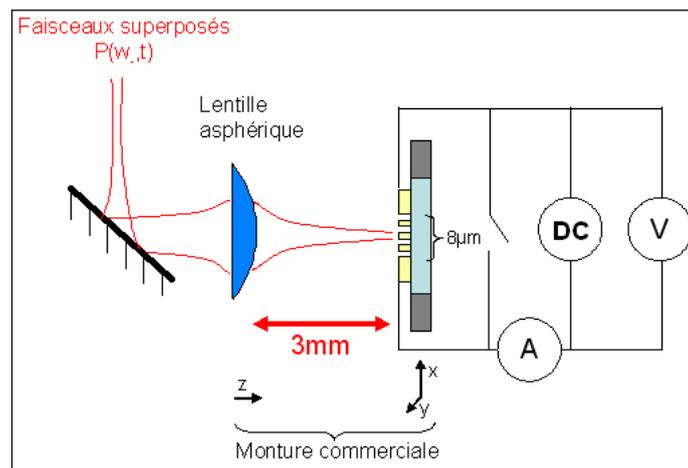


FIG. 2.25: Schéma de principe du couplage optique sur le peigne interdigité avec une lentille asphérique et alimentation de l'élément photomélangeur.

On doit alors coupler les rayonnements infrarouges sur le peigne interdigité du photomélangeur. Pour cela, les faisceaux infrarouges doublement modulés provenant des deux systèmes MAO en double passage sont spatialement superposés sur une lame séparatrice 50% / 50% comme on l'a vu au chapitre 1 et envoyés sur le photomélangeur. Pour ce couplage infrarouge avec le photomélangeur, il est important de maîtriser la taille du rayon des faisceaux infrarouges sur le peigne interdigité du photomélangeur.

Pour cela, les deux faisceaux infrarouges spatialement superposés provenant des

systèmes d'accordabilité en fréquence sont focalisés sur le peigne grâce à une lentille asphérique de focale 3.5 mm. La monture permet de déplacer de manière micrométrique cette lentille de focalisation sur l'axe z ainsi que l'élément photomélangeur en x et y. Ce système permet d'optimiser l'alignement optique sur la surface active de  $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$  du peigne en s'affranchissant des aberrations chromatiques. Les faisceaux infrarouges incidents sur la lentille après une propagation de 1.5 mètres ont un rayon de ceinture simulé de respectivement  $972\mu\text{m}$  pour DLCE1 et  $1000\mu\text{m}$  pour DLCE2 sur la lentille. Les lois de propagation d'un faisceau gaussien après une lentille permettent d'évaluer le rayon de col du spot lumineux sur le peigne à un micron.

### 2.5.3 Couplage du rayonnement Téraherzt.

#### Diagramme de rayonnement

Une fois le rayonnement Téraherzt généré dans le photomélangeur et rayonné par l'antenne dans le substrat AsGa, celui ci doit être couplé aux modes de propagation en air libre. Plusieurs phénomènes causant des pertes dans la quantité de rayonnement effectivement utilisable sont alors à circonvier.

On constate tout d'abord en regardant un diagramme de rayonnement [130] que l'antenne émet dans les deux directions hors du plan de la spirale. L'effet de l'indice du substrat AsGa implique un lobe de radiation plus important du coté diélectrique que du coté air [131, 132] (FIG. 2.26). Le rapport de puissance entre rayonnement dans le substrat et rayonnement dans l'air est de  $\varepsilon_r^{\frac{3}{2}}$  (avec  $\varepsilon_r \approx 13$  pour AsGa) [133].

La partie du rayonnement émise dans le plan d'incidence des faisceaux infrarouges est donc perdue pour la spectroscopie. On constate aussi que l'angle pour lequel le rayonnement peut s'extraire de AsGa est très faible, de l'ordre de  $30^\circ$  [134]. Une grande majorité de l'onde THz créée reste donc piégée dans le substrat par réflexion totale et est inutilisable. Une méthode facilement applicable pour s'affranchir de ce problème est l'adjonction, en contact du substrat du photomélangeur, d'une lentille sphérique en matériau d'un fort indice, comme le silicium haute résistivité ( $n_{si} = 3.41$ ) [135].

#### Lentilles hémisphériques

La lentille silicium accolée au substrat AsGa permet d'agir sur ces deux points. Elle donne tout d'abord une direction privilégiée de propagation au rayonnement THz. Cette lentille permet aussi de se libérer des contraintes de réflexion totale

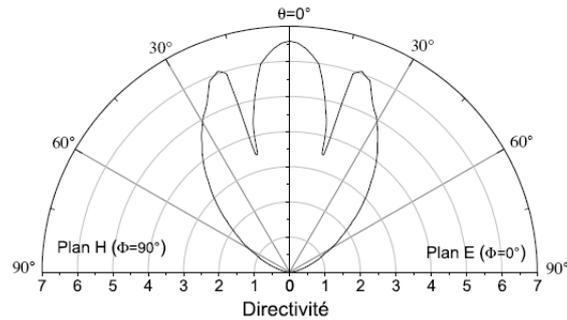


FIG. 2.26: Diagramme de rayonnement normalisé en champ lointain d'une antenne spirale placée à l'interface entre un diélectrique de type AsGa et l'air [129]. On observe ici le rayonnement émis dans l'AsGa, la faible partie du rayonnement émise du coté air est négligée.

causées par le substrat. Ceci se traduit par une augmentation d'un facteur  $n_{Si}^2$  du gain de l'antenne [136] et donc de la puissance de signal rayonnée dans la direction de la lentille. Plusieurs géométries de lentille sphériques existent, qui suivant leurs dimensions occasionnent un comportement du rayonnement Téra-hertz différent .

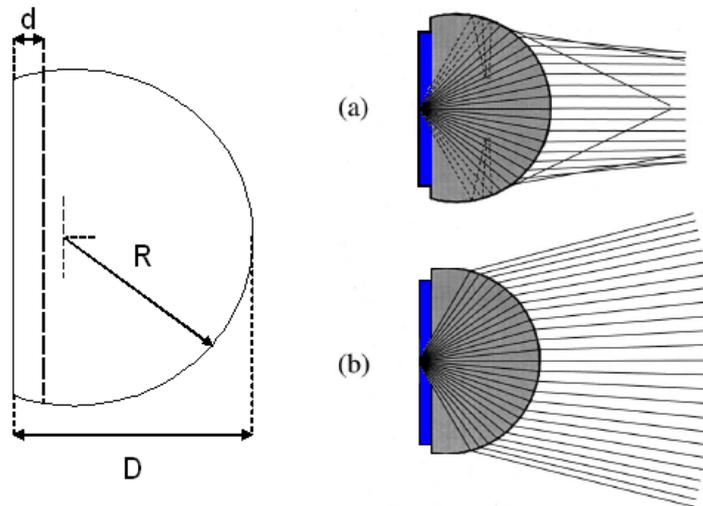


FIG. 2.27: Lentille sphérique de rayon  $R$  collée au substrat du photomélangeur de largeur  $d$ . Suivant  $D$  on obtient différents types de propagation du rayonnement Téra-hertz, en (a) Lentille de type collimatrice et en (b) Lentille de type hyperhémisphérique.

**Les lentilles collimatrices :** Cette lentille est définie par la relation [137]

$$D = R\left(\frac{n}{n-1}\right) \quad (2.32)$$

Où  $D$  (FIG. 2.27) représente la distance entre l'antenne du photomélangeur et l'extrémité de la lentille et  $n$  l'indice de la lentille. Une lentille en silicium haute résistivité est donc dite collimatrice si  $D = 1.41R$ . L'application de la loi de Descartes à ce type de lentille montre qu'elle laisse piégée une partie du rayonnement Téraherz par réflexion totale (FIG. 2.27 (a)). Le faisceau de sortie de lentille collimatrice est convergent et donc plus facilement utilisable, mais il présente des aberrations du front d'onde [137, 138] qui semblent par la suite peu compatibles avec un couplage gaussien efficace dans une cellule de spectroscopie.

**Les lentilles hyperhémisphériques :** La lentille hyperhémisphérique est un cas particulier de lentille hémisphérique. Dans le cas de cette lentille on a :

$$D = R\left(\frac{n+1}{n}\right) \quad (2.33)$$

$$D = 1.29R$$

La lentille hyperhémisphérique [137, 138] donne lieu à un faisceau THz en sortie divergent (FIG. 2.27(b)). Il est donc nécessaire de le recollimater pour l'utiliser ensuite. Cette géométrie de lentille évite d'après la loi de Descartes toute réflexion interne. L'utilisation d'une lentille silicium haute résistivité de cette nature permet donc de s'affranchir des effets d'aberrations du front d'onde en sortie de lentille ce qui occasionne un couplage Gaussien supérieur à 80 % [135, 139]. Dans le cadre de notre spectromètre nous avons opté pour ce type de géométrie qui semble plus performante. Cette lentille permet d'utiliser au mieux le rayonnement Téraherz.

### Choix expérimental.

Dans le cadre du dispositif expérimental de ce spectromètre nous disposons de lentilles de dimensions différentes ( $D = 3.22mm$ ,  $D = 4.22mm$  et  $D = 5.33mm$  pour respectivement  $R = 2,5mm$ ,  $R = 4mm$  et  $R = 4.75mm$ ). La lentille de rayon 2.55 mm accolé au substrat AsGa du photomélangeur d'épaisseur 0.5 mm donnant une configuration collimatrice a été abandonnée.

Les deux autres lentilles rentrent dans la catégorie des lentilles hémisphériques. L'étude du caractère Gaussien de l'onde générée dans cet ensemble lentille/substrat

a montré une décroissance avec l'augmentation du rapport  $(D - R)/R$  [135, 140]. Ce phénomène nous a poussé à choisir l'utilisation de la lentille de rayon  $4mm$  donnant un faisceau moins directif mais avec un meilleur couplage Gaussien.

Pour l'optimisation du couplage du rayonnement TéraHertz il est à noter le possible problème lié au support de la lentille permettant l'accolement avec le substrat et donnant la possibilité de déplacer l'hémisphère sur celui-ci en XY. Les dimensions de ce support rendent possible un effet écran sur le rayonnement émis en sortie de lentille, à l'heure actuelle difficilement contournable.

### 2.5.4 Facteurs influençant l'efficacité de génération de rayonnement TéraHertz.

Plusieurs facteurs apparaissent comme très importants dans la bonne marche du photomélangeur et dans son utilisation de manière optimum.

#### Limitations liées au photomélangeur

Le substrat AsGa sur lequel est inscrit le photomélangeur dissipe mal l'énergie thermique [141]. A 290 K son module de conductivité est de  $0.46 W.cm^{-1} K^{-1}$ . Celui de l'AsGa BT est encore plus faible à  $\sim 0.15 W.cm^{-1} K^{-1}$  [142]. Une trop grande puissance optique incidente est donc à même de le détruire par effet Joule. La puissance Joule dissipée dans le semiconducteur donnée par la formule (2.24) est un facteur limitant de la puissance de rayonnement TéraHertz généré (2.26).

Un compromis est donc à trouver entre puissance de signal incident, tension d'alimentation et puissance de signal rayonné. Les différentes expériences ont confirmé que la tension maximum utilisable dépend du type de photomélangeur utilisé (donc de  $\tau$ ) et de la puissance optique incidente. Pour évaluer la puissance Joule seuil, on considère un photomélangeur de temps de vie de porteur  $\tau_n = 320 fs$ , ayant une mobilité de porteurs de l'ordre de  $\mu = 500 cm^2 V^{-1} s^{-1}$  [125]. Expérimentalement on constate que la tension de polarisation des photomélangeurs ne doit pas dépasser 15V continu pour une puissance typique de 20 mW pour chaque faisceau infrarouge. Au delà de cette tension le photomélangeur est endommagé. Les rayons de col des faisceaux infrarouge incidents sont évalués sur le peigne interdigité à  $1\mu m$ . A partir de la formule (2.24) on peut alors évaluer la puissance Joule maximum dissipable dans le semiconducteur

$$P_{joule}^{max} = 4.5 \times 10^{-3} W$$

**Taille et polarisation des faisceaux infrarouge :**

**Taille du faisceau** Les caractéristiques des rayonnements infrarouges utilisés en photomélangé sont des facteurs importants dans l'efficacité de génération de rayonnement THz.

Dans l'expression (2.26) de la puissance de rayonnement TéraHertz généré intervient le coefficient  $m$  de recouvrement de deux faisceaux. La superposition spatiale des deux faisceaux infrarouges est donc garante d'une efficacité maximum de la génération de rayonnement par différence de fréquences. Un grand soin est apporté aux alignements optiques des faisceaux infrarouges afin de maximiser ce recouvrement.

Il est important que la taille des faisceaux focalisés sur le peigne interdigité soit compatible avec l'échelle de celui-ci. Si les faisceaux sont trop larges, la surface active  $A$  de l'expression (2.26) augmente. L'efficacité de génération du rayonnement s'en trouve diminuée (FIG. 2.28).

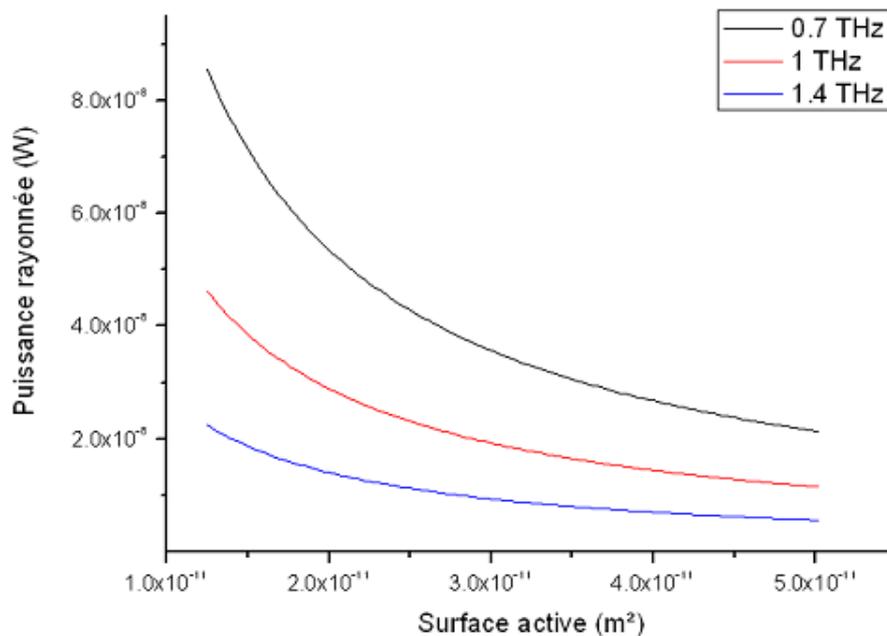


FIG. 2.28: Simulation de la puissance de rayonnement émis à 0.7 THz (noir), 1 THz (rouge) et 1.4 THz (bleu) en fonction de la surface illuminée par les faisceaux lasers superposés sur le peigne interdigité. Plus la taille du spot focalisé sur le peigne est grande, plus la puissance émise diminue.

Une possibilité pour contrôler la taille du spot de focalisation sur le peigne est bien entendu de choisir une lentille de focalisation de focale très courte, de

l'ordre de quelques mm. Les prévisions que nous avons pu faire sur la taille du faisceau à partir des données de propagation et de rayon de ceinture en sortie de diodes nous donnaient pour les faisceaux arrivant sur la lentille des tailles de l'ordre de  $1944 \mu m$  pour DLCE1 et  $2000 \mu m$  pour DLCE2. Dans le cas de notre montage on dispose d'une lentille asphérique ayant une distance focale de 3.5 mm, ce qui laisse prédire une taille de la tache de focalisation de l'ordre de deux microns (rayon de col de  $1 \mu m$ ).

Pour confirmer cette attente nous avons réalisé une cartographie du rayonnement détecté par un bolomètre InSb directement à la sortie du photomélangeur. Cette cartographie relie la tension de signal détectée pour un rayonnement émis à 267 GHz à la position du spot laser focalisé sur le peigne interdigité du photomélangeur (FIG. 2.29). La cartographie permet de visualiser la surface du peigne interdigité de  $8 \mu m \times 8 \mu m$ , seule zone où du rayonnement est émis.

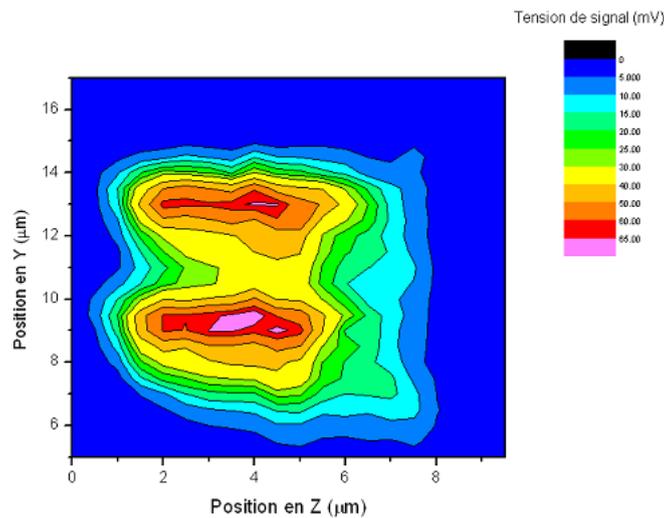


FIG. 2.29: Tension de signal détecté sur bolomètre InSb pour une génération de rayonnement à 276 GHz par photomélangement en fonction de la position du spot laser sur le peigne interdigité.

La figure nous montre donc deux maxima de rayonnement générés ce qui, rapporté aux dimensions du peigne, indique que la taille du spot laser focalisé est plus grande que  $2 \mu m$ . En effet une taille de spot de  $2 \mu m$  ou inférieure devrait permettre de voir pour chacun des bras du peigne interdigité un maximum [127].

On constate ici l'intérêt d'avoir une platine pour le photomélangeur qui permet

de faible déplacement du spot infrarouge afin d'optimiser la puissance de rayonnement générée.

**Sensibilité à la polarisation** Enfin l'aspect du peigne interdigité laisse prévoir une sensibilité de l'émission du photomélangeur à la polarisation des faisceaux lasers. Cette sensibilité a pu être constatée expérimentalement, un grand soin a donc été apporté au contrôle de la polarisation des faisceaux infrarouges. Le positionnement d'une lame d'onde sur le trajet des faisceaux infrarouges superposés a permis de définir la polarisation idéale. Les meilleurs résultats ont été enregistrés pour une polarisation de type horizontale (Polarisation de type p). La puissance générée pour un état de polarisation de la lumière verticale a été évaluée à basse fréquence (250 GHz) à 60% de celle générée par un rayonnement polarisé horizontalement. C'est donc une polarisation horizontale qui est exploitée dans notre montage expérimental.

## 2.6 Caractérisation du photomélangeur.

### 2.6.1 Comportement du système de différence de fréquences.

#### Montage expérimental.

Les photomélangeurs utilisés ont été testés pour vérifier leurs caractéristiques théoriques. Pour cela, nous avons utilisé le schéma expérimental de la figure (FIG. 2.30).

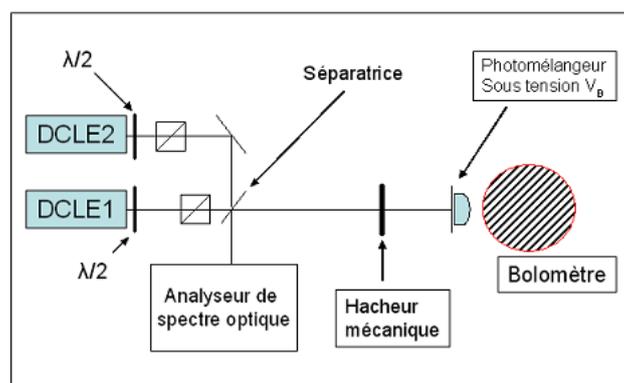


FIG. 2.30: Schéma expérimental pour les tests sur les photomélangeurs.

Les fréquences d'émissions des diodes lasers sont mesurées par un analyseur de spectre optique. Les faisceaux de diodes sont spatialement superposés et focalisés sur le photomélangeur. Le hacheur mécanique permet de moduler à 300 Hz les faisceaux infrarouges incidents sur le photomélangeur dont les puissances sont contrôlées par puissance-mètre. Le détecteur utilisé pour le rayonnement TéraHertz est de type Bolomètre InSb refroidi à 4K à hélium liquide de taux de réponse  $3.62 \text{ kV} \cdot \text{W}^{-1}$ . Les relevés de tension de signal détectée sont faits grâce à une détection synchrone à laquelle est relié le bolomètre.

### Réponse optique et électronique du photomélangeur.

La formule (2.26) régissant la puissance de rayonnement TéraHertz émise permet de visualiser les dépendances caractéristiques d'un photomélangeur. On constate des dépendances quadratiques de la puissance THz généré.

**Dépendance quadratique en courant** Le rayonnement infrarouge incident sur le peigne interdigité polarisé par une tension  $V_B$  entraîne la création de porteurs de charge dans AsGa. Ces porteurs vont faire apparaître un photocourant continu circulant dans le photomélangeur  $I_{ph}$ . La puissance rayonnée par l'antenne peut alors être exprimée en fonction de ce photocourant. A partir de l'équation (2.25), on pose  $G_0$  le terme continu de la conductance du photomélangeur qui permet d'exprimer  $I_{ph}$  en fonction de la tension de polarisation de peigne interdigité.

$$G_0 = \left[ \frac{q\mu\eta\tau_n}{rhv\sqrt{A}} \right] \quad (2.34)$$

$$I_{ph} = G_0 V_B \quad (2.35)$$

On exprime alors la puissance rayonnée par l'antenne en dessous de la puissance Joule seuil comme

$$P_{out}(\omega_d) = 2R_L I_{ph}^2 \frac{mP_1 P_2}{[1 + (\omega_d \tau_n)^2][1 + (\omega_d R_L C)^2]} \quad (2.36)$$

La puissance TéraHertz rayonnée est donc dépendante de manière quadratique au photocourant généré dans le peigne du photomélangeur. Pour vérifier cette dépendance, on fait varier de 0 à 10 Volt la polarisation d'un photomélangeur de temps de vie de porteurs  $\tau_n = 320 \text{ fs}$ , sur lequel on focalise les deux faisceaux infrarouges avec des puissances de 20 mW chacun. La puissance THz rayonnée en fonction du photocourant circulant dans le photomélangeur a été enregistrée à 266 GHz, 445 GHz et 1037 GHz (FIG. 2.31).

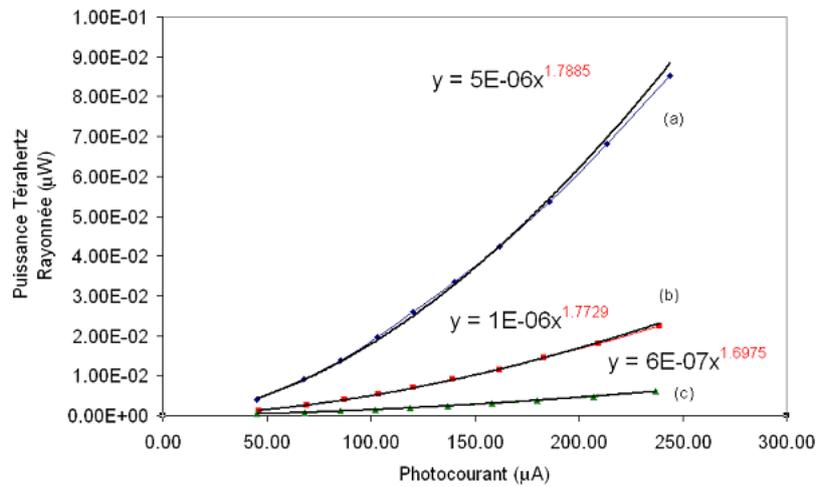


FIG. 2.31: Puissance de rayonnement émis par photomélangement à (a)266 GHz (b)445 GHz (c)1037 GHz, en fonction du photocourant circulant dans le photomélangeur.

On constate des courbes de coefficient de l'ordre de 1.7. Il y a donc un léger décalage entre le comportement théorique et expérimental du photomélangeur en fonction du photocourant circulant. La dépendance quadratique de la puissance rayonnée est atténuée par un offset de photocourant d'obscurité qui augmente avec la tension de polarisation. Ce phénomène permettrait d'expliquer ce décalage

**Dépendance quadratique en puissance optique** L'équation (2.26) prédit de même une dépendance du rayonnement généré en fonction des puissances optiques incidentes sur le photomélangeur. Cette dépendance a aussi été vérifiée en enregistrant la variation de puissance rayonnée par le photomélangeur à 266 GHz et 1037 GHz en fonction de la puissance optique incidente. On polarise un photomélangeur de temps de vie  $\tau_n = 320fs$  à 10 Volt continu et on fait varier les puissances optiques incidentes  $P_1$  et  $P_2$  en conservant pour chaque mesure  $P_1 = P_2$ .

Une dépendance quadratique nette est confirmée par les relevés du graphique (FIG. 2.32)

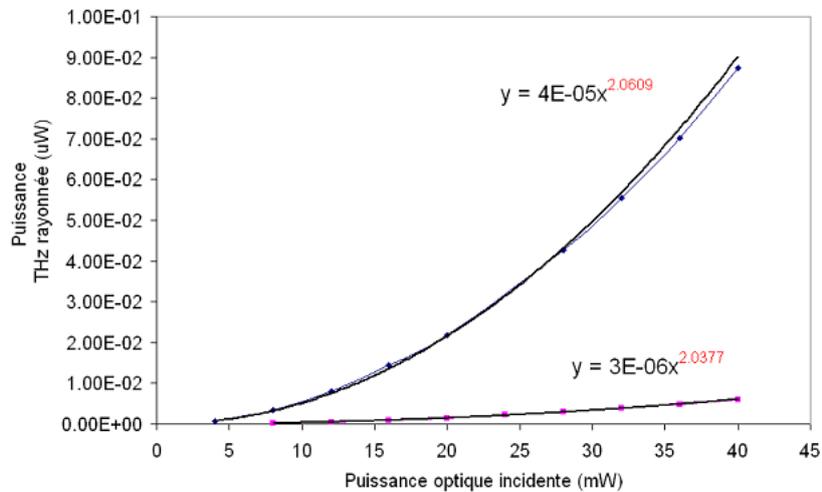


FIG. 2.32: Dépendance quadratique de la puissance rayonnée par le photomélangueur à (courbe bleue) 266 GHz et (courbe violette) 1037 GHz en fonction de la puissance optique  $P_0$  incidente

### Dépendance de la puissance du rayonnement THz émis.

Nous avons caractérisé nos photomélangeurs en terme de puissance suivant la fréquence de rayonnement. L'écart de fréquence des diodes infrarouges est tabulé (TAB. 2.2) pour obtenir une fréquence d'émission déterminée. Celui-ci est lors des relevés de puissance contrôlée par un analyseur de spectre optique.

Longueur d'onde DLCE 1	Longueur d'onde DLCE 2	$\Delta\lambda$ (nm)	Fréquence d'émission du photomélangueur $\omega_{DCLC}$
820.360 nm	821.360	1	0.445 THz
820.360 nm	822.360	2	0.889 THz
820.360 nm	823.360	3	1.332 THz
820.360 nm	824.360	4	1.774 THz
820.360 nm	825.360	5	2.215 THz

TAB. 2.2: Tabulation de quelques fréquences d'émission du photomélangueur  $\omega_{DCLC}$  en fonction de la longueur d'onde d'émission des deux diodes infrarouges sources.

Lors de ce relevé, le photomélangueur est polarisé continûment à 10V et les puissances optiques incidentes sont pour chaque différence de fréquences de 20mW

pour les deux diodes lasers. Le photomélangeur ainsi caractérisé est de temps de vie  $320\text{ fs}$ . Le comportement en fréquence du photomélangeur est reproduit sur le graphique (FIG. 2.33)

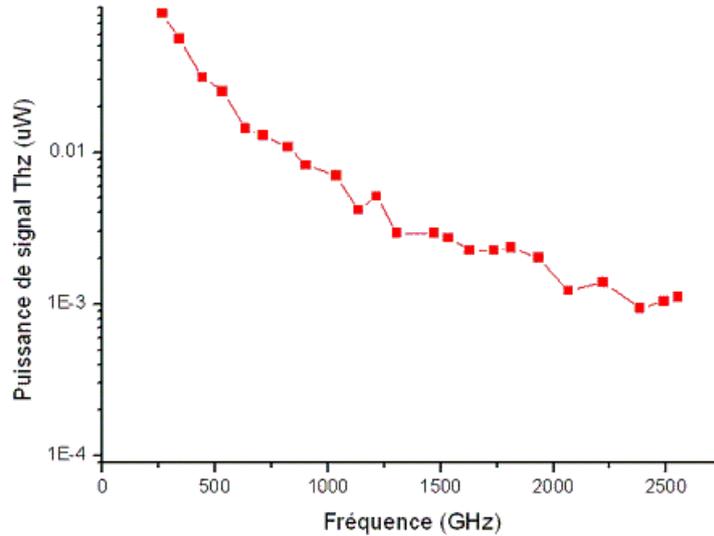


FIG. 2.33: Puissance de rayonnement TéraHertz en sortie de photomélangeur de temps de vie de porteur  $320\text{ fs}$  en fonction de la différence de fréquence des sources infrarouges.

La plage de fréquence de 100 GHz à 2.5 THz est donc couverte en émission avec un photomélangeur de temps de vie de porteur de  $320\text{ fs}$ . Partant de environ  $0.1\text{ }\mu\text{W}$  à basse fréquence la puissance de signal rayonnée décroît à une dizaine de nanoWatt à 1 THz pour finir aux alentours de  $2\text{ nW}$  à 2.5 THz.

Les mesures de puissances ont alors été comparées au comportement idéal d'un photomélangeur de caractéristiques similaires modélisé par les équations (2.26) et (2.24) [127]. Les caractéristiques du photomélangeur de temps de vie de porteur  $320\text{ fs}$ , polarisé à  $10\text{ V}$  (coefficient de réflexion de AsGa  $R = 0.32$ , largeur de photomélangeur  $r = 8\text{ }\mu\text{m}$ , mobilité des porteurs  $\mu = 500\text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ) permettent de réaliser d'après l'équation (2.26) une estimation de la puissance maximum rayonnée selon la fréquence. Pour cela on fixe

- Un taux de recouvrement moyens des faisceaux  $m = 0.75$
- Une aire active estimée  $A = 0.70 \times 10^{-11}\text{ m}^2$  correspondant à un rayon de col sur le peigne du photomélangeur de  $1.5\text{ }\mu\text{m}$
- Une résistance d'antenne  $R_L = 72\text{ }\Omega$  et une capacité du peigne interdigité  $C = 1\text{ fF}$  caractérisés lors de l'élaboration du photomélangeur [125].

Nous avons ainsi pu comparer les performances réelles et attendues d'un photomélangeur de temps de vie de porteur  $320\text{ fs}$  (FIG. 2.34).

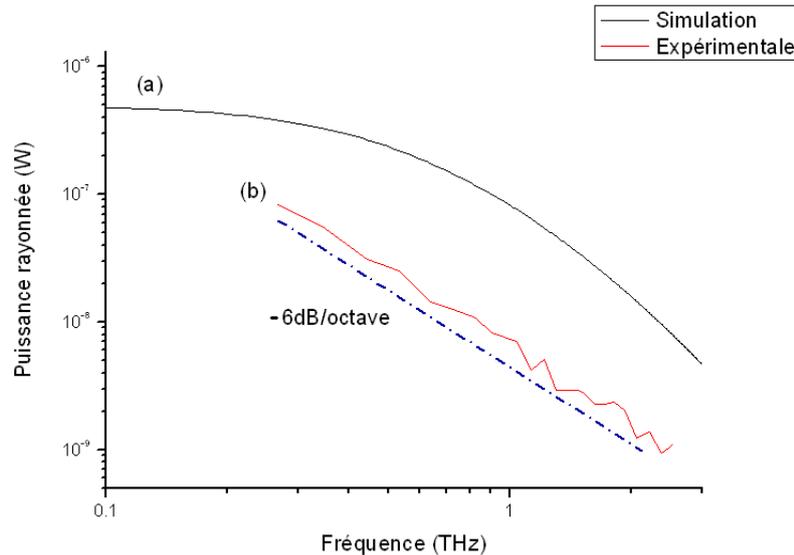


FIG. 2.34: Comparaison entre (a) le comportement idéal d'un photomélangeur de temps de vie de porteur  $\tau = 320\text{ fs}$  et (b) la puissance de rayonnement expérimentalement mesurée .

Le taux de décroissance de  $-6\text{dB/octave}$  [124] du rayonnement en fonction de la fréquence est retrouvé dans la simulation et dans l'expérience. Il peut être expliqué en regardant l'équation (2.36). En effet les deux termes qui vont jouer sur la fréquence de coupure du photomélangeur sont le temps de vie des porteurs et la constante RC de l'antenne. La fréquence de coupure de l'antenne n'étant pas encore atteinte la décroissance est uniquement due au terme de temps de vie de porteurs.

Les puissances mesurées sont inférieures aux puissances simulées. Ceci est tout d'abord explicable par la simplicité du modèle utilisé pour la simulation. En effet notre modèle ne prend pas en compte la contribution des trous où encore les effets de limitation de vitesse des porteurs de charges [129, 143] où encore les possibles effet d'ombres portées par les bras métalliques du photomélangeur [127]. Le problème du couplage optique du rayonnement infrarouge sur le peigne interdigué et de l'effective superposition des faisceaux infrarouges est une cause possible de différence, bien qu'un grand soin ait été mis dans l'optimisation de ce processus. Enfin la difficulté du couplage du rayonnement TéraHertz avec les modes de propagation dans l'air libre avec la lentille silicium haute résistivité peut aussi permettre d'expliquer les différences de puissances constatées.

Le comportement du photomélangeur est validé pour sa mise en oeuvre dans le spectromètre.

### 2.6.2 Couplage à la cellule de spectroscopie.

Une fois le photomélangeur caractérisé et mis en place il a été couplé à une cellule d'absorption de 1.5 mètre pour la spectroscopie.

Pour cela on dispose de miroirs paraboliques de rayon de focalisation 25 mm recouverts d'or afin de focaliser le rayonnement THz dans la cellule. L'évaluation du taux de collection du rayonnement généré par photomélange pour différents diamètres de lentilles hyperhémisphériques et différentes ouvertures de miroir a été réalisée dans la thèse de R. Czarny [129]. Les résultats obtenus permettent de penser que les miroirs mis en place collectent la plus grande partie du rayonnement généré par le photomélangeur pour le coupler aux modes de propagation dans la cellule (FIG. 2.35).

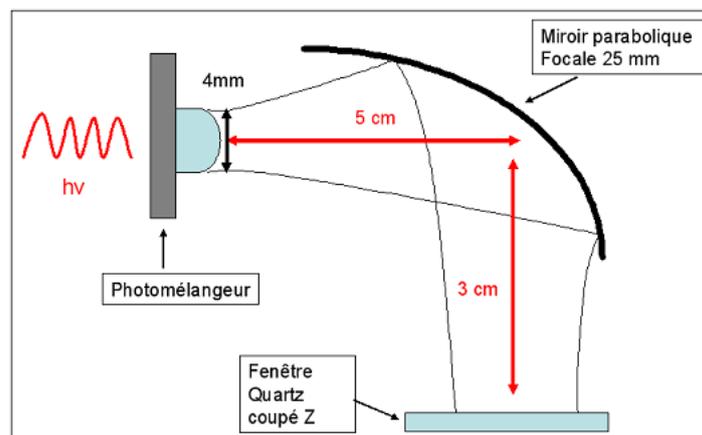


FIG. 2.35: Couplage du rayonnement Téraherz vers la cellule de spectroscopie par miroir parabolique

Dans une première approximation on peut supposer que le rayonnement THz est émis dans un mode de propagation gaussien. Ce faisceau gaussien a un rayon de col, qui se situe au niveau de la lentille hémisphérique, d'une taille correspondant au rayon de cette lentille [144]. On modélise le miroir parabolique par une lentille convergente de focale identique au rayon de focalisation. En utilisant les relations (2.1) et (3.22) où on pose

$$\omega_0 = 2 \text{ mm}$$

On estime la position et la taille du rayon de ceinture après le miroir parabolique. Le rayon de col du faisceau émis par le photomélangeur à 1 THz focalisé par le miroir se trouve à 5 cm de celui ci pour un rayon de  $200\mu m$ . Le faisceau TéraHertz est donc focalisé à l'intérieur de la cellule.

Les spécifications de la cellule utilisée sont les suivantes :

- Cellule cylindrique en métal, diamètre 5 cm, longueur 1.5 mètres.
- Fenêtre d'entrée en quartz plane coupée selon l'axe cristallographique Z d'épaisseur 1 mm et de coefficient de réflexion en amplitude 0.2 [145].
- Fenêtre de sortie en Téflon d'épaisseur 0.5mm .

La cellule joue pour le THz le rôle de guide d'onde surdimensionné (cf. [146, 147] pour une introduction à la propagation guidée d'ondes TéraHertz et au calcul par éléments finis) et les matériaux choisis des fenêtres sont choisis pour leur grande transparence au rayonnement TéraHertz. Les réflexions du rayonnement TéraHertz à l'entrée de la cellule sont donc minimisées. La cellule est maintenue sous vide à  $10^{-4}$ mbar. Le choix de géométrie d'une fenêtre en quartz plane et d'une fenêtre en Téflon légèrement concave a été réalisé afin de minimiser les interférences qui pourraient s'ajouter à la ligne de base enregistrée par le bolomètre lors d'une excursion en fréquence.

Le rayonnement est guidé dans la cellule. Il est ensuite refocalisé en sortie par un autre miroir parabolique de même caractéristique que celui d'entrée. Un détecteur bolométrique InSb refroidi à hélium liquide, de très faible NEP (de l'ordre de  $2pW/\sqrt{Hz}$ ) est placé au point focal du miroir.

### 2.6.3 Performances spectroscopiques.

#### Sensibilité ultime du spectromètre.

Dans le cas d'une cellule d'absorption simple, la loi de Beer Lambert relie la puissance de rayonnement THz arrivant sur le bolomètre  $P_t$ , à la dimension de la cellule  $L$ , au coefficient d'absorption  $\alpha$  du gaz que l'on étudie et à la puissance du signal incident sur la cellule  $P_{in}$  [148].

$$P_t = P_{in} \exp(-\alpha L) \quad (2.37)$$

Cette loi peut être approximée dans le cas d'une faible absorption par l'expression

$$P_t \approx P_{in}(1 - \alpha L) = P_{in} - \delta P_t \quad (2.38)$$

Le rapport de la puissance absorbée par le gaz  $\delta P_t$ , sur la puissance du signal incident  $P_{in}$  donne accès au terme d'absorption. La puissance incidente minimale détectable par le bolomètre équivaut à son NEP, ce qui nous permet de définir la relation (2.39) pour une fréquence donnée d'émission du photomélangeur.

$$\frac{NEP}{P_t} = \alpha L \quad (2.39)$$

La cellule actuellement mise en place sur le spectromètre est de longueur  $L = 1.5 m$ . En considérant un couplage du rayonnement émis par le photomélangeur dans la cellule de 100 % sur la totalité de la gamme accessible et une détection bolométrique on peut alors évaluer la sensibilité ultime que peut atteindre notre spectromètre (FIG. 2.36).

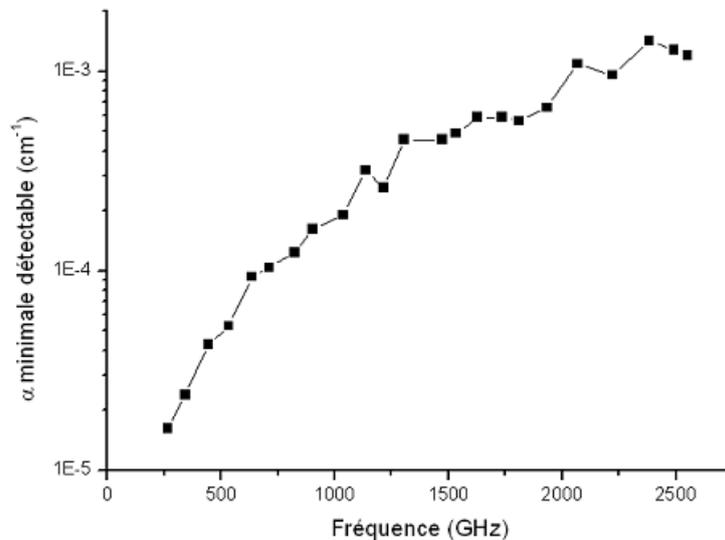


FIG. 2.36: Coefficient d'absorption minimal détectable par le spectromètre Téraherz à différence de fréquences dans le cas d'un couplage du rayonnement Téraherz dans la cellule de spectroscopie de 100%.

Typiquement un couplage du rayonnement Téraherz dans la cellule de spectroscopie réalisé avec une efficacité de l'ordre de 60% permet de détecter des raies moléculaires de coefficients d'absorption inférieurs à  $10^{-3} cm^{-1}$  jusqu'à 1.5 THz.

### Qualités spectrales.

La résolution spectrale du spectromètre Téraherz à différence de fréquences est dépendante de la pureté spectrale du rayonnement émis par le photomélangeur.

Comme nous l'avons vu précédemment dans la partie 2.5.1 le rayonnement Térahertz est émis à la fréquence  $\omega$  tel que

$$\omega = (\omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2}) \pm 2(\omega_{AOM1} \pm \omega_{AOM2})$$

$$\omega = R \times \Delta\nu_{FSR} \pm 2(\omega_{AOM1} \pm \omega_{AOM2})$$

La pureté spectrale de ce rayonnement est donc liée à la pureté spectrale des diodes lasers infrarouges. Plus celle-ci sera grande et plus le rayonnement Térahertz généré permettra une haute résolution spectrale. Une méthode de stabilisation a été mise en place afin d'affiner le plus possible le spectre d'émission de chacune des diodes, avec leur asservissement sur des résonances d'une cavité Fabry-Pérot de référence.

Les caractéristiques du rayonnement Térahertz émis par photomélangement en matière de pureté spectrale et de stabilité en fréquence dépendent alors directement de la stabilité de la cavité Fabry-Pérot d'asservissement et de la qualité de l'affinement spectrale que l'asservissement procure.

## 2.7 Conclusion.

Dans le spectromètre Térahertz mis en place lors de cette thèse le rayonnement est généré par la différence de fréquences de deux émissions infrarouges accordables. Les diodes lasers sources étant stabilisées en fréquence sur une cavité Fabry-Pérot ; l'accordabilité a été mise en place par des modulateurs acousto-optiques en double passage. Ils permettent une couverture spectrale complète sur la plage accessible au photomélangement. Le photomélangement permet de rayonner entre 0.1 et 2.5 THz avec des puissances de 0.1  $\mu W$  à basse fréquence jusqu'à quelques nanowatt à 2.5 THz. Positionné dans le spectromètre et couplé à une cellule de spectroscopie le système de génération de rayonnement doit permettre de détecter des raies d'absorption de l'ordre de quelques  $10^{-5} cm^{-1}$  à basse fréquence jusqu'à quelques  $10^{-3} cm^{-1}$  au delà de 2 THz. Les caractéristiques spectrales de ce spectromètre reposent sur la cavité Fabry-Pérot d'asservissement des diodes lasers infrarouges. Cet asservissement constitue le deuxième point important dans le bon fonctionnement du spectromètre et dans son caractère haute résolution. Nous l'aborderons en détail dans le chapitre suivant.



# Chapitre 3

## Stabilisation des sources de rayonnement

### 3.1 Introduction.

Pour mettre en place un spectromètre à haute résolution, il faut disposer d'une source de rayonnement dont on connaisse bien la fréquence d'émission et dont la pureté spectrale puisse résoudre le plus finement possible les raies d'absorption des molécules. Comme nous avons pu le voir précédemment, dans notre montage, le rayonnement TéraHertz est généré par différence de fréquences de deux sources infrarouges proches. Les caractéristiques spectrales de ces sources conditionnent donc celles du rayonnement TéraHertz émis par le photomélangeur. Un dispositif de stabilisation en fréquence de ces sources a donc été mis en place qui permettra aussi d'affiner leur spectre d'émission. Celui-ci est basé sur la technique de Pound-Drever-Hall [96] qui utilise comme référence une cavité Fabry-Pérot de haute finesse. Après avoir vu le principe de cette méthode, nous passerons en revue les aspects plus pratiques de cette stabilisation. Nous aborderons les caractéristiques de la cavité Fabry-Pérot, mais aussi celle du système électronique permettant l'asservissement des diodes. Nous verrons que cette méthode de stabilisation est un outil puissant qui nécessite la maîtrise des sources de bruit apparaissant au sein du montage expérimental pour donner sa pleine efficacité. Nous étudierons alors les performances de ce type de stabilisation appliqué à notre spectromètre.

## 3.2 Asservissement Pound-Drever-Hall.

### 3.2.1 Stabilisation d'une diode laser.

#### Généralités sur les asservissements.

Un asservissement est un système à contre-réaction qui permet de contrôler un paramètre quelconque (déplacement, température, fréquence) à partir d'une grandeur d'entrée que l'on appelle également consigne [149]. Une chaîne d'asservissement comporte ce que l'on appelle un comparateur et un contrôleur. Le comparateur fournit l'information sur l'écart entre la valeur de référence (consigne) et la valeur que l'on veut contrôler. Le contrôleur utilise l'information sur cet écart et modifie en conséquence la valeur à contrôler. Dans le cas de l'asservissement de la fréquence d'un laser, les éléments sont les suivants :

- Le comparateur va permettre de comparer la fréquence instantanée du laser avec une fréquence de référence sur laquelle on désire asservir la diode. Il convertit les écarts de fréquence en écarts en tension et permet de générer un signal d'erreur.
- Le contrôleur est constituée d'un circuit électronique (servo) qui va utiliser le signal d'erreur généré pour corriger la fréquence d'émission du laser.

L'asservissement de chacune des deux diodes lasers peut donc être résumé par le schéma d'asservissement suivant (FIG. 3.1).

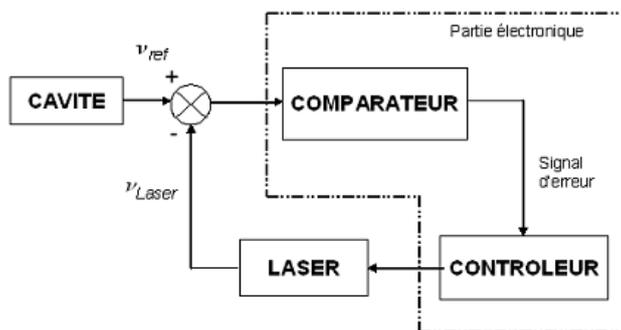


FIG. 3.1: Schéma de principe de l'asservissement des diodes lasers infrarouges, la fréquence d'émission de chaque laser  $v_{Laser}$  est comparée à la fréquence d'une référence  $v_{ref}$  pour générer un signal de correction.

**Principe de la méthode.**

Une méthode connue pour la stabilisation de lasers est d'asservir la fréquence de leur émission sur une résonance d'une cavité Fabry-Pérot de référence [150]. Cette cavité est un filtre qui ne laisse passer le rayonnement que si celui-ci est de fréquence égale à un nombre entier de fois son intervalle spectral libre (cf. annexe sur les cavités FP). On peut donc faire en sorte que la fréquence d'émission d'une diode laser  $\nu_{Laser}$  soit à chaque instant égale à la fréquence d'un des pics de résonance de la cavité  $\nu_{ref}$ .

Si la fréquence d'émission d'une diode laser est résonante avec la cavité Fabry-Pérot, cette dernière transmet la totalité du signal émis par la diode et rien n'est réfléchi. Mais si sa fréquence d'émission évolue au cours du temps, alors la cavité ne transmet plus la totalité du rayonnement émis, une partie est alors réfléchie. Un détecteur placé en transmission de la cavité verra donc, lors de cette évolution, une baisse de l'intensité du rayonnement reçu.

Dans le cadre d'un asservissement, on utilisera ce détecteur et la modification de l'intensité laser observée pour générer un signal de correction envoyé à la diode laser. Ce signal corrigera la fréquence du laser qui se repositionnera alors à résonance. Cependant utiliser un détecteur en transmission pour l'asservissement ne permet pas de savoir si la fluctuation de l'intensité observée est due à une réelle fluctuation de fréquence ou alors à une fluctuation d'intensité du laser ; la correction obtenue peut alors être mal adaptée.

La méthode de Pound-Drever-Hall (PDH) évite cet écueil, en utilisant un détecteur placé en réflexion pour corriger la fréquence du laser. Ce détecteur répond à une augmentation du signal réfléchi, indépendamment des fluctuations d'intensité laser. L'inconvénient majeur de cette méthode est que le signal réfléchi par la cavité Fabry-Pérot est symétrique par rapport à la résonance. Il est impossible de dire de manière directe de quel côté de la résonance la fréquence d'émission du laser se trouve. Pour le déterminer et ainsi corriger correctement le décalage de fréquence, il faut étudier le comportement de la phase du signal réfléchi, qui est une fonction antisymétrique par rapport à la résonance.

Il est donc nécessaire de trouver un moyen d'obtenir cette fonction pour pouvoir générer un signal d'erreur fiable. Une fois ce signal d'erreur obtenu, il est utilisé pour contrôler par retour la fréquence d'émission du laser.

### Modèle physique.

**Champs réfléchi par une cavité Fabry-Perot** Afin de mieux saisir comment fonctionne la technique d'asservissement Pound-Drever-Hall, intéressons nous tout d'abord au champ réfléchi par une cavité Fabry-Pérot de longueur  $L$  [151]. Pour simplifier notre modèle, on suppose les deux miroirs de la cavité de coefficients de réflexion en amplitude  $r_1$  et  $r_2$  identiques.

$$r_1 = r_2 = r$$

Le rayonnement incident sur cette cavité peut être exprimé à partir de son champ électrique  $E_{in}$  dépendant de la fréquence  $\omega_L$  du laser<sup>1</sup>.

$$E_{in} = E_0 e^{i(\omega_L t)} \quad (3.1)$$

Le champ réfléchi par la cavité Fabry-Pérot  $E_{ref}$  est donné par l'expression

$$E_{ref} = F(\omega_L) \cdot E_{in} \quad (3.2)$$

Où  $F(\omega_L)$  est le coefficient de réflexion de la cavité Fabry-Pérot à la fréquence  $\omega_L$  dépendant de son intervalle spectral libre  $\Delta\nu_{FSR} = c/2L$

$$F(\omega_L) = \frac{r(e^{-i\frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}} - 1)}{1 - r^2(e^{-i\frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}})} \quad (3.3)$$

L'expression (3.3) nous permet alors de remonter à l'amplitude et à la phase du signal réfléchi par la cavité Fabry-Pérot en fonction de la fréquence du laser (FIG. 3.2). On remarquera que l'amplitude est une fonction symétrique par rapport à la résonance alors que la phase est antisymétrique.

Le champ réfléchi est en fait défini comme l'interférence de deux champs distincts :

- Le champ directement réfléchi par le premier miroir de la cavité
- Le champ qui une fois rentré dans la cavité s'échappe par le premier miroir.

Lorsque le rayonnement est parfaitement résonnant avec la cavité FP, le déphasage entre les deux champs est de  $180^\circ$  et l'interférence qui en résulte donne un champ réfléchi nul. Quand le rayonnement n'est plus parfaitement résonnant

<sup>1</sup>Ici on assimilera la fréquence  $\nu_L$  à la pulsation  $\omega_L$  pour éviter de devoir écrire le facteur  $2\pi$  à chaque fois

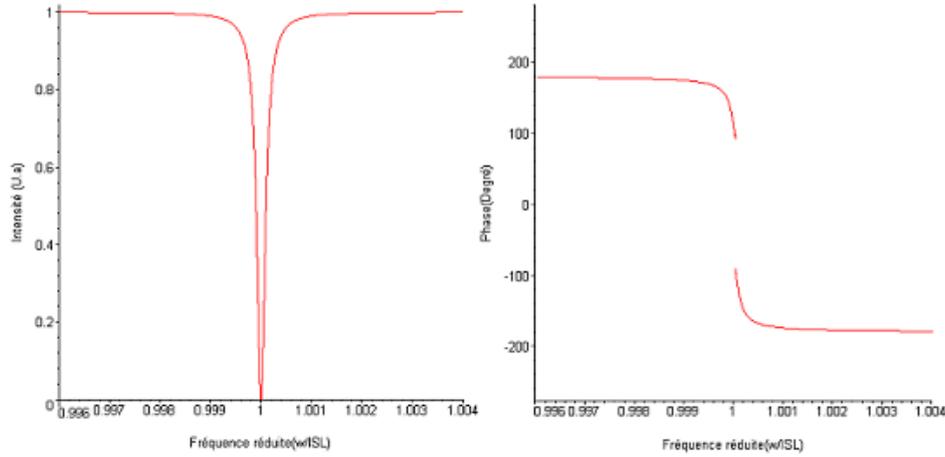


FIG. 3.2: Amplitude et phase du signal réfléchi par une cavité Fabry-Pérot en fonction de la fréquence réduite  $\omega_L/\Delta\nu_{FSR}$ .

avec la cavité, le déphasage n'est plus exactement de  $180^\circ$  ; on peut détecter une composante réfléchie dont la phase va nous permettre de dire de quel côté de la résonance la fréquence du laser se trouve. Le déphasage entre ces deux champs dépend donc de la différence de fréquence entre la fréquence d'émission de la diode laser et la fréquence de résonance de la cavité FP.

**Génération de bandes latérales de fréquence** L'idée est donc de moduler en phase le faisceau de la diode laser, afin de créer des bandes latérales de fréquence de part et d'autre de la porteuse laser de fréquence  $\omega_L$ . Bandes latérales et porteuse ont alors des relations de phases bien définies. Sur la cavité Fabry-Pérot le champ incident est alors exprimé à partir de l'expression (3.1) par

$$E_{in} = E_0 e^{(i\omega_L t + \beta \sin(\Omega t))} \quad (3.4)$$

Où  $\Omega$  est la fréquence de modulation pour la création des bandes latérales, et  $\beta$  est la profondeur de modulation. Cette expression (3.4) peut ensuite être développée en utilisant les fonctions de Bessel  $J_n(\beta)$ .

$$E_{in} = E_0 \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} J_n(\beta) e^{(i(\omega_L + n\Omega)t)} \quad (3.5)$$

Pour simplifier l'expression on utilise un indice de modulation  $\beta$  faible ( $\beta < 2$ ), et on se limite dans le développement de Bessel aux ordres -1,0 et 1. Par ailleurs, on sait que  $J_{-1}(\beta) = -J_1(\beta)$ , ce qui réduit (3.5) pour donner finalement

$$E_{in} \simeq E_0 [J_0(\beta)e^{i\omega_L t} + J_1(\beta)e^{i(\omega_L + \Omega)t} - J_1(\beta)e^{i(\omega_L - \Omega)t}] \quad (3.6)$$

L'expression approchée du champ incident sur la cavité (3.6) montre bien l'existence d'une porteuse oscillant à la fréquence du laser  $\omega_L$  mais aussi de bandes latérales de fréquence  $\omega_L + \Omega$  et  $\omega_L - \Omega$  (FIG. 3.3).

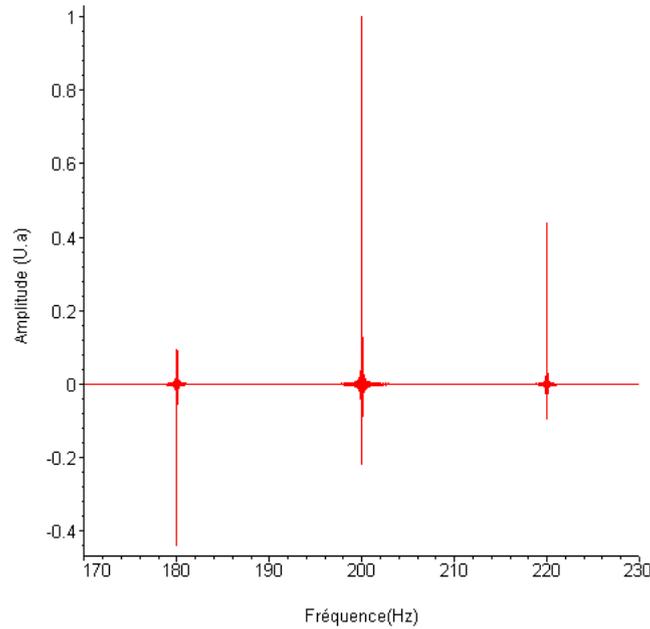


FIG. 3.3: Exemple de la génération de bandes latérales de fréquence dans le cas d'un signal de fréquence  $200\text{ Hz}$  modulé à  $20\text{ Hz}$ .

**Détection du signal réfléchi par la cavité** Porteuse et bandes latérales sont envoyées dans la cavité, qui réfléchit un champ  $E_{ref}$  que l'on obtient à partir de (3.2) et (3.6).

$$E_{ref} = E_0 [J_0(\beta)F(\omega_L)e^{i\omega_L t} + J_1(\beta)F(\omega_L + \Omega)e^{i(\omega_L + \Omega)t} - J_1(\beta)F(\omega_L - \Omega)e^{i(\omega_L - \Omega)t}] \quad (3.7)$$

Une photodiode détecte par la suite l'intensité  $I_{ref} = |E_{ref}|^2$  liée au champ réfléchi.

$$\begin{aligned}
 I_{ref} = & I_{Laser} |F(\omega_L)|^2 + I_{BL} [|F(\omega_L + \Omega)|^2 + |F(\omega_L - \Omega)|^2] \\
 & + 2\sqrt{I_{Laser} I_{BL}} \{ \text{Re} [F(\omega_L) F^*(\omega_L + \Omega) - F^*(\omega) F(\omega_L - \Omega)] \cos \Omega t \} \\
 & - 2\sqrt{I_{Laser} I_{BL}} \{ \text{Im} [F(\omega_L) F^*(\omega_L + \Omega) - F^*(\omega) F(\omega_L - \Omega)] \sin \Omega t \} \\
 & + (\text{termes en } 2\Omega)
 \end{aligned} \tag{3.8}$$

Où on pose

$$I_{Laser} = J_0^2(\beta) |E_0|^2 \tag{3.9}$$

$$I_{BL} = J_1^2(\beta) |E_0|^2 \tag{3.10}$$

les intensités respectives de la porteuse et des bandes latérales.

Le signal sur la photodiode est donc constitué d'une composante à la fréquence de la porteuse  $\omega_L$  et une autre aux fréquences de bandes latérales  $\omega_L \pm \Omega$ . Les termes en  $\Omega$  proviennent du battement entre porteuse et bandes latérales. Ils contiennent l'information de phase sur la différence entre fréquence des diodes et fréquence de résonance de la cavité FP. Les termes en  $2\Omega$ , provenant du battement des bandes latérales entre elles, sont filtrés pour élimination, de même que la composante continue.

Le signal émis par la photodiode est ensuite démodulé par mélange avec le signal modulant l'émission laser, ce qui génère un signal d'erreur.

### 3.2.2 Signal d'erreur.

#### Génération du signal d'erreur.

Pour comprendre la génération du signal d'erreur qui va permettre de corriger la fréquence d'émission des diodes, on se place dans un cas de figure où la fréquence de modulation de la porteuse laser  $\Omega$  est très grande devant  $\Delta\omega$ , la largeur à mi-hauteur d'un pic de résonance de la cavité Fabry-Pérot :

$$\Omega \gg \frac{\Delta\nu_{FSR}}{\mathcal{F}} = \Delta\omega \tag{3.11}$$

Où  $\mathcal{F}$  la finesse de la cavité se définit comme  $\mathcal{F} = \pi\sqrt{r}/(1-r)$ .

Quand la porteuse laser est proche de la fréquence de résonance de la cavité alors on peut considérer que les bandes latérales de fréquence sont totalement réfléchies par la cavité ;  $F(\omega_L \pm \Omega) \approx -1$ . Dans ces conditions l'expression

$$\begin{aligned} F(\omega_L)F^*(\omega_L + \Omega) - F^*(\omega)F(\omega_L - \Omega) &\approx -F(\omega_L) + F^*(\omega_L) \\ &= -2i\text{Im}\{F(\omega_L)\} \end{aligned} \quad (3.12)$$

est purement imaginaire. Le terme en cosinus  $\Omega t$  de l'expression (3.8) s'annule et il ne reste que celui en sinus  $\Omega t$ . Pour démoduler le signal provenant de la photodiode, on multiplie  $I_{ref}$  par un terme en sinus  $\Omega t$ . On obtient finalement un signal d'erreur  $\varepsilon_{err}$  (FIG. 3.4).

$$\begin{aligned} \varepsilon_{err} = & -2\sqrt{I_{Laser}I_{BL}}[\text{Im}[F(\omega_L)F^*(\omega_L + \Omega) \\ & - F^*(\omega)F(\omega_L - \Omega)]] \end{aligned} \quad (3.13)$$

On constate trois pics antisymétriques sur ce signal d'erreur. Les plus faibles correspondent aux fréquences des bandes latérales alors que le pic central est celui de la porteuse laser.

La stabilisation en fréquence de la porteuse laser est donc rendue possible grâce au caractère antisymétrique du signal d'erreur par rapport à la résonance de la cavité. Ce signal est par la suite envoyé dans la boucle de rétroaction qui contrôle le laser. Cette boucle va maintenir à 0 l'erreur pour asservir la porteuse laser sur la résonance de la cavité.

### Fréquence laser proche de la résonance.

Dans le cas de figure où l'on étudie le comportement du laser stabilisé sur la résonance, nous nous intéressons aux petites déviations que peut subir la fréquence laser. On postule que la cavité étalon est ici composée de miroirs de très hauts coefficients de réflexion en amplitude ( $r \approx 1$ ), ce qui nous permet d'approximer la finesse de cette cavité par l'expression

$$\mathcal{F} \approx \frac{\pi}{1-r^2} \quad (3.14)$$

Dans l'hypothèse où le laser est asservi sur la résonance de la cavité, les fluctuations de sa fréquence sont petites [102]. On peut alors approximer la formule

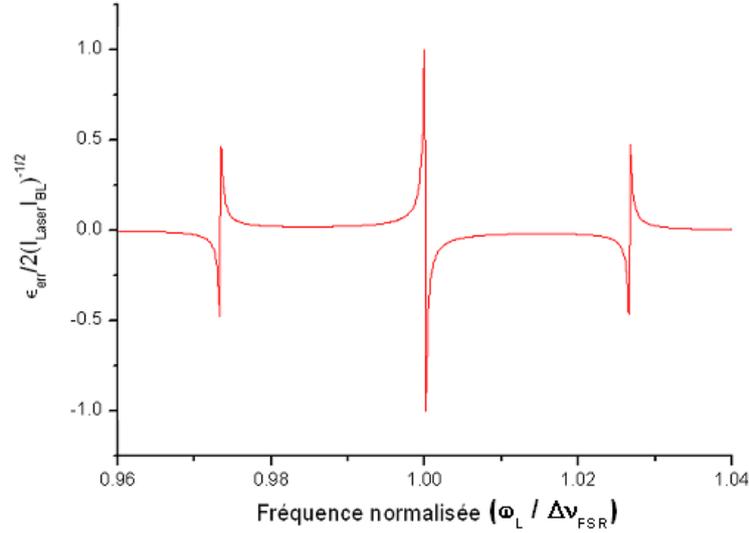


FIG. 3.4: Simulation du signal d'erreur Pound-Drever-Hall, représentant  $\varepsilon_{err}/2\sqrt{I_{Laser}I_{BL}}$  en fonction de  $\omega_L/\Delta\nu_{FSR}$ . La fréquence de modulation de la porteuse est ici de  $20\text{ MHz}$  pour une cavité Fabry-Pérot d'intervalle spectral libre  $750\text{ MHz}$  et une finesse de  $10000$ .

(3.3) par un développement en série de Taylor des exponentielles en ne conservant que les deux premiers termes

$$F(\omega_L) \approx \frac{r \left[ \left(1 - i \frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}\right) - 1 \right]}{1 - r^2 \left(1 - i \frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}\right)} \quad (3.15)$$

L'utilisation de l'expression (3.14) dans (3.15) mène à une approximation du coefficient de réflexion de la cavité pour de petites déviations de la fréquence laser par rapport à la résonance  $\delta\omega \ll \Delta\nu_{FSR}/\mathcal{F}$ .

$$F(\delta\omega) \approx i\delta\omega \frac{\mathcal{F}}{\pi\Delta\nu_{FSR}} \quad (3.16)$$

Le signal d'erreur pour de petites fluctuations de fréquence du laser se réduit en remplaçant (3.16) dans la formule (3.13) et en posant  $F(\delta\omega \pm \Omega) = -1$ .

$$\varepsilon_{err}(\delta\omega) \approx \sqrt{I_{Laser}I_{BL}} \frac{4\mathcal{F}}{\pi\Delta\nu_{FSR}} \delta\omega \quad (3.17)$$

Soit en posant

$$\delta f = \delta \omega / 2\pi \quad \text{et} \quad C \equiv \frac{8\mathcal{F} \sqrt{I_{\text{Laser}} I_{\text{BL}}}}{\Delta \nu_{\text{FSR}}} \quad (3.18)$$

On obtient

$$\varepsilon_{\text{err}}(\delta f) = C \delta f \quad (3.19)$$

On constate d'après la relation (3.19) que pour de petites fluctuations de fréquence autour de la résonance, le signal d'erreur reçu est linéaire (FIG. 3.5).

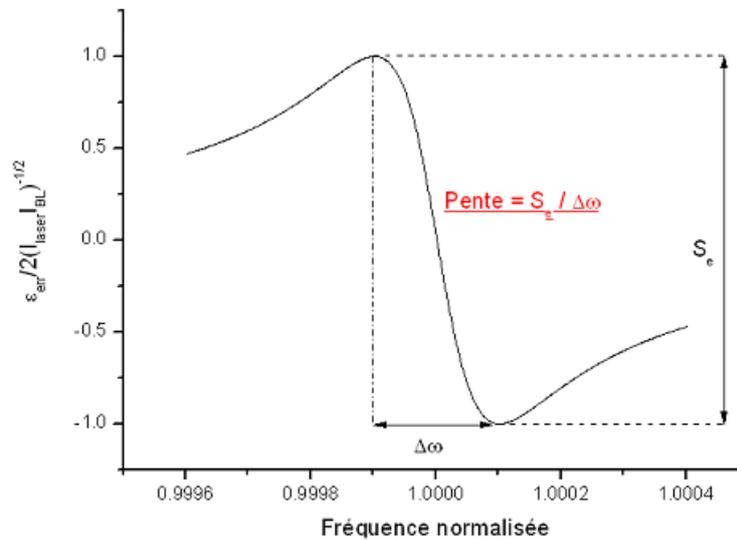


FIG. 3.5: Signal d'erreur en unités réduites. Pour de petites fluctuations de la fréquence du laser devant  $\Delta\omega$  ce signal est linéaire

La constante  $C$  est appelée discriminateur de fréquence et définit la pente du signal d'erreur. Plus cette pente est importante et plus le signal d'erreur sera sensible à une faible fluctuation de fréquence du laser. Le discriminateur de fréquence doit donc être maximisé pour avoir l'asservissement le plus sensible possible.  $C$  s'exprime en fonction de l'intensité de la porteuse laser (3.9) et de celle des bandes latérales (3.10). Pour maximiser ces puissances, il faut utiliser la bonne profondeur de modulation  $\beta$ .

Une simulation de la variation de  $C$  en fonction de la profondeur de modulation reportée dans la figure (FIG. 3.6) permet de déterminer que la valeur de  $\beta$  pour

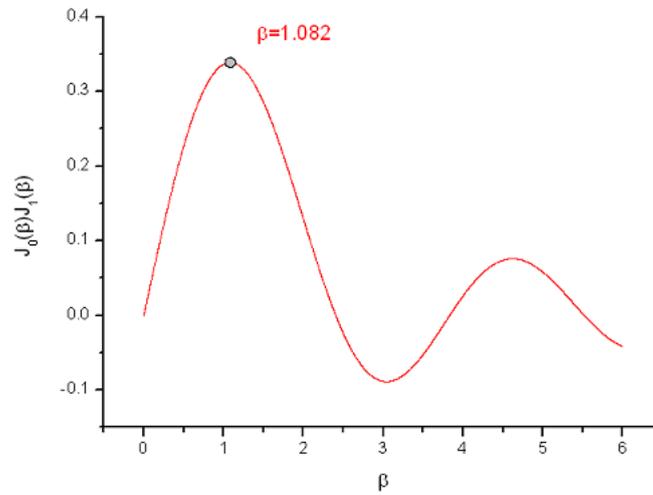


FIG. 3.6: Dépendance du produit de fonctions de Bessel en fonction de  $\beta$  la profondeur de modulation. On constate un maximum de la fonction pour  $\beta = 1.082$ .

laquelle  $C$  est maximum est  $\beta_{max} = 1.082$ . On essaiera expérimentalement de se rapprocher de cette valeur dans la mesure du possible.

### 3.3 Méthode PDH appliquée au spectromètre Téraherz.

Nous avons décidé d'utiliser cette méthode de stabilisation par technique Pound-Drever-Hall pour notre spectromètre. Pour l'adapter dans ce cadre, il faut stabiliser les deux sources de rayonnement infrarouge qui permettent de générer le rayonnement Téraherz.

#### 3.3.1 Schéma général de l'asservissement.

Pour affiner au préalable la pureté spectrale d'émission des deux diodes infrarouges, celles-ci sont placées en cavité étendue [152, 153]. Le battement lorentzien réalisé entre les deux sources, supposées de comportement identique

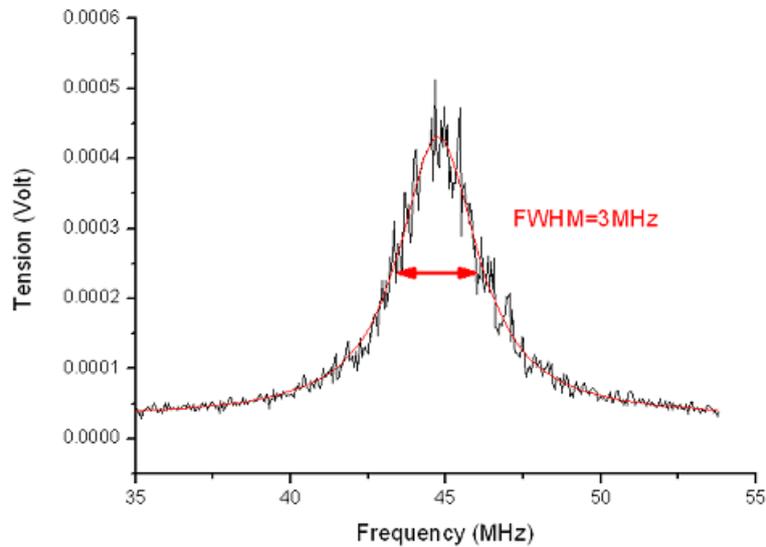


FIG. 3.7: Battement lorentzien des deux sources de rayonnement infrarouges.

(FIG. 3.7) a une largeur à mi-hauteur de  $3\text{ MHz}$ . Cela permet d'estimer la pureté d'émission des deux sources à  $1.5\text{ MHz}$  environ sur une seconde [154].

Cette pureté spectrale étant insuffisante dans le cas d'un spectromètre Téraherz haute résolution<sup>2</sup>, on applique sur chacune des diodes la méthode de stabilisation PDH. Les deux diodes lasers (nommées DCLE1 et DCLE2) sont asservies simultanément sur deux résonances différentes d'une cavité Fabry-Pérot selon le schéma (FIG. 3.8)

Dans notre montage expérimental, c'est le courant d'injection des diodes lasers qui est modulé respectivement à  $20$  et  $24\text{ MHz}$  pour DLCE1 et DLCE2 avec une profondeur de modulation  $\beta$  de l'ordre de  $0.5$  à  $0.6$  pour générer des bandes latérales de fréquences ne dépassant pas  $10\%$  en intensité de la porteuse. La modulation effectuée sur les deux diodes est réalisée grâce à deux oscillateurs à quartz (notés RF1 et RF2) dont le signal est envoyé par entrées Bias-T (de bande passante  $1\text{ GHz}$ ) sur chacune des diodes.

Porteuses et bandes latérales ainsi émises par les deux diodes sont ensuite spatialement superposées par une lame séparatrice  $50\%/50\%$ . Une partie du rayonnement est utilisée pour contrôler les fréquences d'émission des diodes lasers par  $\lambda$ damètre. L'autre partie du rayonnement est injectée dans une fibre à maintien de polarisation dont l'entrée et la sortie sont clivées à angle de Brewster. En sortie de fibre, les faisceaux superposés sont couplés à une cavité Fabry-Pérot

<sup>2</sup>cf. chapitre 1, section 1.4.1

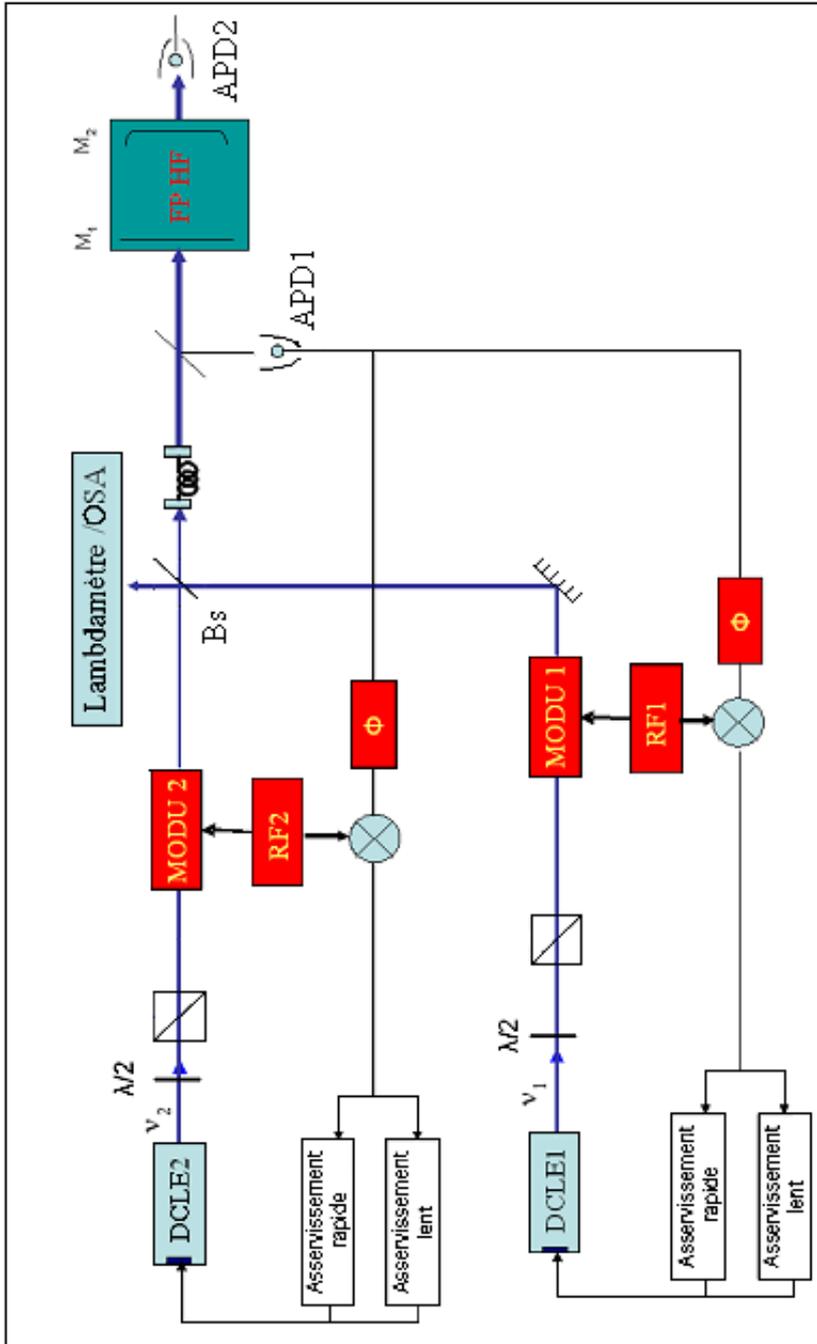


FIG. 3.8: Schéma de principe de l'asservissement PDH des deux diodes lasers (notées DCLE1 et DCLE2) servant au photo-mélange. Leur courant est modulé (MODU1 et 2) par un cristal de référence (RF1 et 2). Bs : Séparatrice 50%/50% , APD : Photodiodes avalanche.

de haute finesse par le biais d'un système optique composé de lentilles et de miroirs. Le rayonnement transmis par la cavité peut être visualisé par une photodiode placée en transmission. Une partie du signal réfléchi par cette cavité est transmis à une photodiode ultra-rapide à avalanche par le biais d'une membrane séparatrice. C'est ce signal qui sera utilisé pour l'asservissement.

### 3.3.2 Cavité Fabry-Pérot.

#### Contraintes techniques.

La cavité Fabry-Pérot étant l'élément discriminant des fluctuations de fréquences des deux diodes infrarouges, elle est l'élément clé de la stabilisation PDH.

On a vu dans l'étude du laser asservi fluctuant faiblement en fréquence autour de la résonance d'une cavité FP que le signal d'erreur est défini par la relation (3.19). La pente de ce signal  $C$  est définie par la relation (3.18), dépendante de la finesse de la cavité  $\mathcal{F}$  et de son intervalle spectral libre. Ceci implique à priori que la cavité doit être la plus longue possible et avoir les miroirs les plus réfléchissants possible, afin d'améliorer la discrimination en fréquence.

La cavité Fabry-Pérot doit aussi être très stable. Dans le chapitre précédent, nous avons vu que la fréquence du rayonnement TéraHertz généré par photomélangé s'exprime sous la forme

$$\omega = (\omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2}) \pm 2(\omega_{MAO1} \pm \omega_{MAO2}) \quad (3.20)$$

où si  $q$  est l'ordre du mode longitudinale utilisé pour la stabilisation (cf. Annexe B).

$$\omega_{DCLE1} = q \Delta \nu_{FSR} \quad \text{et} \quad \omega_{DCLE2} = (q + R) \Delta \nu_{FSR}$$

donc

$$\omega_{DCLE1} - \omega_{DCLE2} = R \times \Delta \nu_{FSR} \quad (3.21)$$

Dans notre cas l'intervalle spectral libre de la cavité est  $\Delta \nu_{FSR} = 750 \text{ MHz}$ . Pour être compatible avec l'émission par photomélangé de fréquences dans la plage TéraHertz, l'écart en fréquence des diodes infrarouges impose  $R \geq 1000$ .

Si la cavité n'est pas stable,  $\Delta \nu_{FSR}$  dérive d'une proportion  $\delta \Delta \nu_{FSR}$ , ce qui en retour fait dériver la fréquence d'émission de chaque diode laser d'une même

proportion. Le battement de fréquence des deux diodes ne dérivera lui dans un même temps que d'un facteur  $R/q$  [103, 155]. Dans notre cas, une fluctuation des fréquence d'asservissement des diodes d'un Hertz par seconde entraîne donc une fluctuation du rayonnement émis par photomélange pour  $R = 1000$  de environ  $2\text{ mHz/s}$ . Pour réaliser un spectromètre haute résolution, nous devons donc minimiser ces fluctuations (pour plus de détail cf. 3.3.5).

### Géométrie de la cavité.

A partir de ces contraintes nous avons élaboré une cavité haute finesse pour l'asservissement en fréquence des deux diodes infrarouges. Elle est composée de :

- Un miroir plan Newport de diamètre  $25.4\text{ mm}$  à haut coefficient de réflexion en amplitude (0.9996858407).
- Un miroir concave de diamètre  $25.4\text{ mm}$  et rayon de courbure  $R_1 = 1\text{ m}$ , de même coefficient de réflexion.
- Un espaceur en verre Zérodur de longueur  $L = 20\text{ cm}$ , et de diamètres extérieur / intérieur respectivement de  $50\text{ mm}$  et  $16\text{ mm}$

Les miroirs centrés à  $\pm 0.1\text{ mm}$  près sur l'espaceur sont collés à celui ci par points de colle UV. La cavité obtenue est placée dans une enceinte à vide, assurant la stabilité mécanique et thermique du système (FIG. 3.9). L'enceinte à vide est constituée d'un blindage thermique externe et de deux blindages internes d'épaisseur  $5\text{ mm}$  imbriqués. Le centrage et le contact entre les différents blindages est réalisé à l'aide de joints en Nitrile ayant un bon comportement sous vide poussé. A l'intérieur de ce système de blindage se trouve le support métallique en V de la cavité, réalisé en INVAR. La cavité repose sur ce socle également à l'aide de joints en nitrile. Le centrage de la cavité est réalisé par ce système avec une tolérance de l'ordre du millimètre.

La cavité Fabry-Pérot ainsi formée doit permettre d'obtenir théoriquement un intervalle spectral libre de  $750\text{ MHz}$  pour une finesse de 10000. La largeur théorique à mi-hauteur d'un pic de résonance  $\Delta\omega$  pour une cavité de ce type est donc de  $75\text{ kHz}$ . L'enceinte à vide complète est pompée par une pompe turbomoléculaire puis laissée à  $10^{-3}\text{ Pa}$ . Le vide est maintenu grâce à des joints cuivre en sortie de pompe et des joints en Nitrile contactés aux optiques d'entrée et de sortie de la cellule. La première utilité de ce vide est d'éviter les fluctuations de pression intracavité. Le vide empêche aussi la dégradation du barreau en verre Zérodur et des traitements de surface des miroirs. De plus, il isole la cavité de perturbations thermiques ou mécaniques dommageables à sa stabilité. La cavité est entourée d'un tapis résistif permettant un asservissement en température à

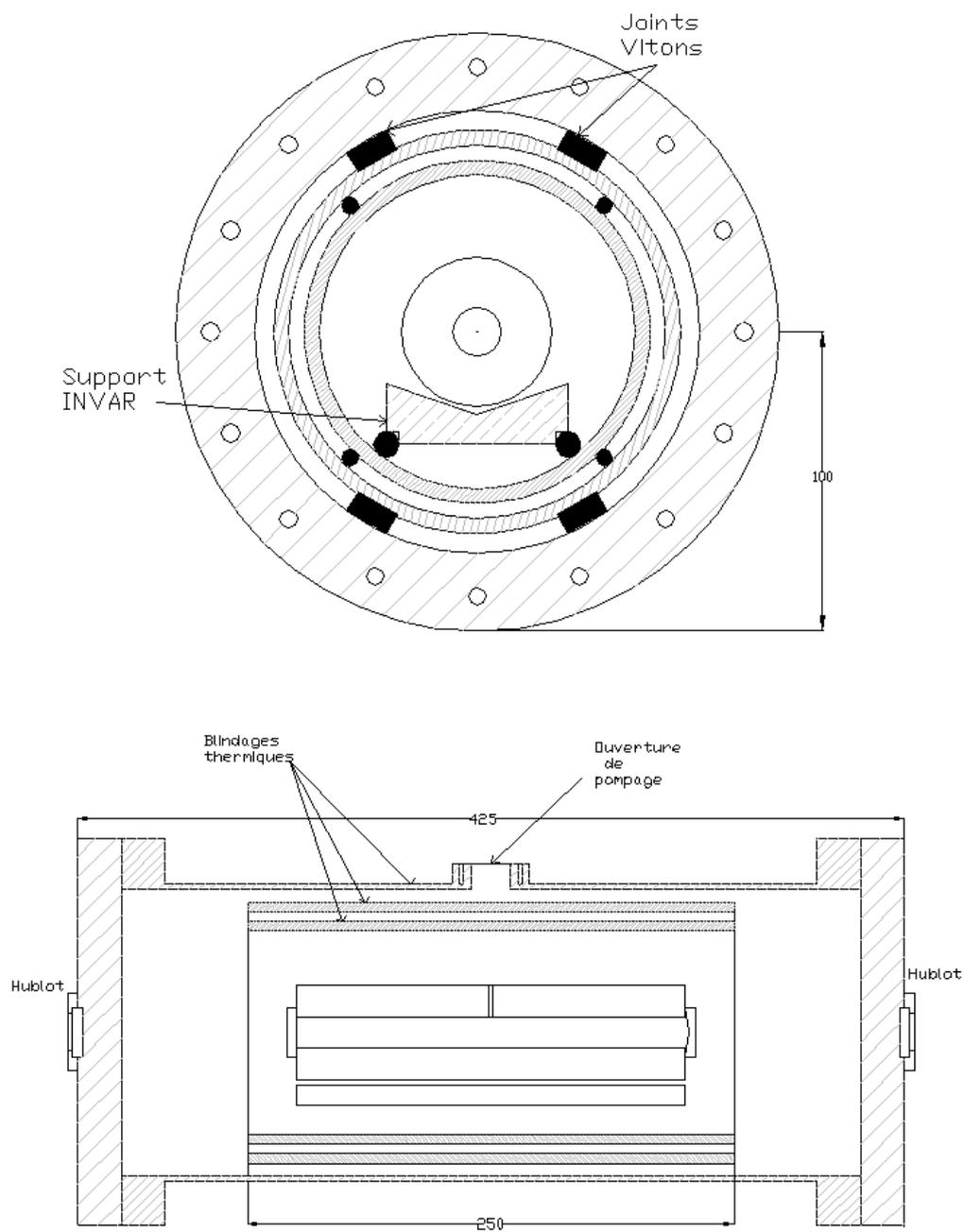


FIG. 3.9: Vue de face et coupe de profil de la cavité Fabry-Pérot de haute finesse.

30°C. Une sonde de température fixée sur la cellule externe permet de maintenir la température de consigne à la surface de la cellule avec une précision de 0.5° soit une stabilité relative en température de  $1.6 \cdot 10^{-2}$ .

### 3.3.3 Optimisation du système optique pour la stabilisation.

#### Adaptation de mode.

**Couplage dans la cavité** La stabilisation de fréquence de lasers par une méthode Pound-Drever-Hall nécessite de coupler le rayonnement des diodes à asservir dans la cavité avec la plus grande efficacité. On considère le champ dans la cavité Fabry-Pérot comme la superposition de modes d'Hermite-Gauss se propageant entre les deux miroirs [156]. Pour référencer l'émission des lasers sur une résonance de la cavité, il faut que les modes de propagation des faisceaux dans la cavité soient dominés par le mode fondamental  $TEM_{00}$ . Pour cela, il est nécessaire que les faisceaux incidents dans la cavité soient bien adaptés à sa géométrie.

Le mode de propagation gaussien d'un faisceau en air libre doit correspondre à celui imposé dans la propagation intracavité. Plus particulièrement, le rayon de courbure des faisceaux infrarouges incidents sur la cavité doit être infini au niveau du miroir plan de la cavité. Sur ce même miroir, les faisceaux doivent atteindre un minimum de rayon de col (FIG. 3.10).

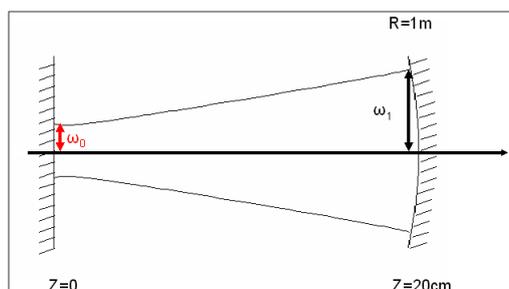


FIG. 3.10: Mode de propagation gaussien dans la cavité Fabry-Pérot plan concave. La géométrie de la cavité impose une valeur de  $\omega_0$ , le rayon du faisceau sur le miroir plan.

Nous avons vu au chapitre précédent qu'un faisceau gaussien en propagation dans l'air libre peut être décrit par les relations

$$\omega^2(z) = \omega_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right] \quad \text{et} \quad R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right] \quad (3.22)$$

La cavité impose qu'après une propagation de  $L = 20 \text{ cm}$ , le rayon de courbure d'un faisceau soit en accord avec le rayon de courbure du miroir concave,  $R(L) = R_1$ . Partant des équations (3.22) on peut exprimer la taille minimale de rayon de ceinture  $\omega_0$  que doit avoir le faisceau en entrée de cavité sur le miroir plan.

$$\omega_0^2 = \frac{\lambda}{\pi} \sqrt{(R_1 - L)L} \quad (3.23)$$

Pour un faisceau infrarouge de longueur d'onde  $820 \text{ nm}$  on retrouve

$$\omega_0 \approx 3.23 \cdot 10^{-4} \text{ m}$$

Le faisceau en sortie de la fibre à maintien de polarisation est considéré comme entièrement composé du mode fondamental de propagation gaussien. L'apparition de modes de propagation d'ordres supérieurs dans la cavité Fabry-Pérot est donc uniquement due à un mauvais alignement dans la cavité [157]. Le faisceau est traité optiquement afin que ses caractéristiques se plient aux contraintes imposées par notre cavité.

Pour cela on dispose d'un montage optique composé de deux lentilles et d'un jeu de miroirs en configuration télescope (FIG. 3.11).

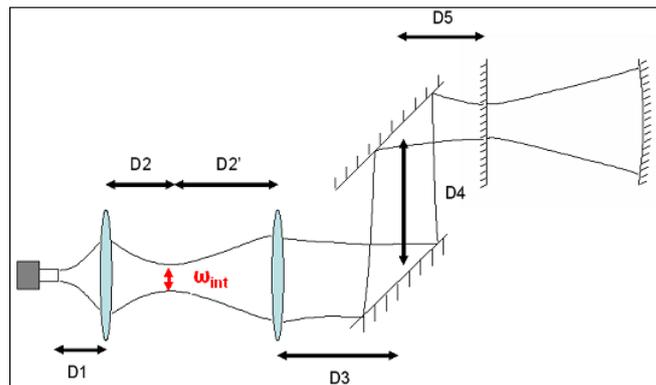


FIG. 3.11: Système d'adaptation de mode pour la cavité Fabry-Pérot. Il est composé de deux lentilles et deux miroirs en montage télescope.

**Modélisation** Une première approche est de modéliser la propagation du faisceau infrarouge en sortie de fibre en utilisant les matrices ABCD de propagation (cf. annexe A). Le système peut ici être décomposé en deux parties

- Premier système : Composé d’une propagation en espace libre  $D_1$ , d’une première lentille de focale  $f_1$ , qui donne un minimum de rayon de ceinture  $\omega_{int}$  en  $D_2$ .
- Deuxième système : Composé d’une propagation libre de distance  $D'_2$ , d’une lentille de focale  $f_2$ , puis d’une nouvelle propagation libre dans le système télescope qui doit donner un minimum de rayon de ceinture  $\omega_{fin}$  sur le miroir d’entrée de la cavité.

En utilisant les matrices de transferts correspondant aux éléments du premier système, on peut expliciter le rayon de ceinture intermédiaire  $\omega_{int}$  et la distance  $D_2$  en fonction des paramètres du montage ( $D_1$  et  $f_1$ ). On note  $\omega_0$ , le rayon de col du faisceau infrarouge de longueur d’onde  $\lambda$  en sortie de fibre à maintien de polarisation. Ce rayon de col permet de définir la longueur de Rayleigh  $z_r$

$$z_r = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda} \quad (3.24)$$

En utilisant la définition de (3.24), on exprime

$$D_2 = \frac{f_1(D_1^2 - f_1 D_1 + z_r^2)}{f_1(f_1 - 2D_1) + D_1^2 + z_r^2} \quad (3.25)$$

$$\omega_{int}(f_1, D_1, \omega_0) = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \left( \frac{f_1^2 z_r}{z_r^2 + f_1^2 - 2f_1 D_1 + D_1^2} \right)} \quad (3.26)$$

Pour décrire la deuxième partie du montage on part de la relation (3.26), qui permet de définir une nouvelle longueur de Rayleigh  $z'_r$ .

$$z'_r = \frac{\pi \omega_{int}(f_1, D_1, \omega_0)^2}{\lambda} \quad (3.27)$$

La même technique est appliquée, qui donne des résultats de forme similaire. On exprime la distance globale de la deuxième lentille de focalisation au miroir plan de la cavité

$$D_{tot} = D_3 + D_4 + D_5 \quad (3.28)$$

$$D_{tot} = \frac{f_2(D_2'^2 - f_2 D_2' + z_r'^2)}{f_2(f_2 - 2D_2') + D_2'^2 + z_r'^2} \quad (3.29)$$

La taille du rayon de ceinture sur le miroir plan de la cavité est alors définie en fonction de  $f_2$ ,  $D_2'$  et de  $z_r'$

$$\omega_{fin}(f_2, D_2', z_r') = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \left( \frac{f_2^2 z_r'}{z_r'^2 + f_2^2 - 2f_2 D_2' + D_2'^2} \right)} \quad (3.30)$$

Pour adapter le mode de propagation d'un faisceau gaussien sortant de la fibre optique dans la cavité, on utilise deux lentilles de focales  $f_1 = f_2 = 0,1 m$ . Le rayon de ceinture du faisceau infrarouge en sortie de fibre est donné commercialement,  $\omega_0 = 450 \mu m$ . A partir de la distance  $D_1 = 0.065 m$  imposée expérimentalement, on trace l'évolution de  $D_{tot}$  et  $\omega_{fin}$  en fonction de la distance  $D = D_2 + D_2'$  entre les deux lentilles (FIG. 3.12).

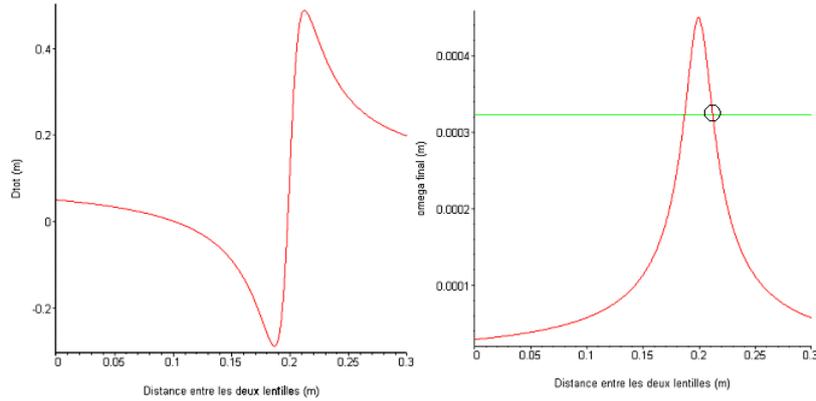


FIG. 3.12: Simulation de la distance  $D_{tot}$  et de la taille du faisceau sur le miroir plan en fonction de la distance entre les deux lentilles du télescope. Pour l'adaptation de mode dans notre cas de figure, une seule solution obtenue est physiquement acceptable.

La taille du rayon de col étant imposée par la cavité, on constate qu'une seule solution permet une bonne adaptation de mode. Pour  $D \approx 0.212 m$ , le miroir plan de la cavité étant placé à  $D_{tot} \approx 0.488 m$  de la deuxième lentille, le rayon de col du faisceau est de  $322 \mu m$ .

**Technique expérimentale** Expérimentalement, on utilise un beamscope<sup>3</sup> pour évaluer la taille des deux faisceaux en un point où sera placé le miroir plan de la cavité. Un relevé de la taille des faisceaux infrarouges au long de leur propagation en sortie de fibre est réalisé. Il permet de déterminer par la méthode vue au chapitre précédent, le rayon de ceinture des faisceaux en sortie de fibre  $\omega_0$ . Les deux lentilles de focales 0.1 mètres, positionnées sur des platines de translation XYZ sont mises en place par la suite. Le processus de réglage de la position des lentilles est réalisé de manière itérative. On translate la deuxième lentille alors que la première est laissée fixe à une distance  $D_1$  de la fibre optique à maintien de polarisation. De cette façon, on cherche à obtenir des rayons de ceinture minima de l'ordre de  $322\mu m$  à l'endroit où sera positionné le miroir plan de la cavité. On obtient de cette manière un rayon de ceinture optimum (TAB. 3.1) pour les paramètres du tableau (TAB. 3.2).

Rayon de ceinture	Taille expérimentale du rayon de ceinture ( $\mu m$ )	Taille théorique du rayon de ceinture ( $\mu m$ )
$\omega_0$	458	450
$\omega_{fin}$	356	323

TAB. 3.1: Rayons de ceintures obtenus expérimentalement pour un des faisceaux lasers (DCLE1) en utilisant les paramètres de réglages du tableau (3.2). Pour DCLE2 les paramètres obtenus sont très similaires.

Distance	Valeur approximative (m)	Distance	Valeur approximative (m)	Distance	Valeur approximative (m)
$D_1$	0.065	$D$	0.22	$D_5$	0.25
$D_2$	0.1	$D_3$	0.18	$D_{tot}$	0.49
$D'_2$	0.12	$D_4$	0.06		

TAB. 3.2: Paramètres expérimentaux pour l'adaptation des rayons de cols obtenus après mesures du faisceau à l'aide d'un beamscope.

Les résultats de l'adaptation du faisceau à la cavité de manière expérimentale sont en accord avec les valeurs simulées de  $D$ ,  $D_{tot}$  et  $\omega_{fin}$ . Le montage télescope est mis en place 18cm après la seconde lentille. Il envoie les faisceaux infrarouges des deux diodes focalisés de manière optimale sur le miroir plan de la cavité positionné à 25 cm de la dernière lentille.

<sup>3</sup>Analyseur permettant d'obtenir le profil spatial d'un faisceau laser .

**Réglage du montage télescope** Un mauvais alignement optique dans la cavité Fabry Pérót provoque l'apparition de modes de propagation transverses du rayonnement. En dehors du couplage gaussien traité précédemment ; un mauvais alignement peut être provoqué par un décalage des faisceaux incidents vis à vis du centre de la cavité ou encore une inclinaison par rapport à la normale du miroir plan [158]. Le montage de miroirs en configuration télescope permet de minimiser ces phénomènes.

Un détecteur de type photodiode à avalanche est placé en transmission de la cavité Fabry-Pérot. La fréquence d'émission d'une des diodes infrarouges est balayée, pour l'enregistrement du peigne de fréquences des modes longitudinaux et transverses de résonance de la cavité (FIG. 3.13).

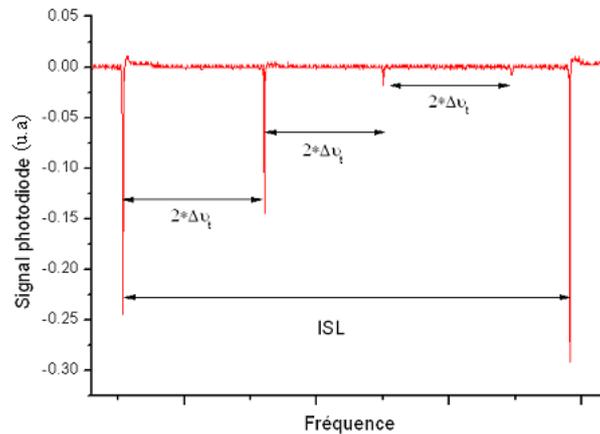


FIG. 3.13: Modes transverses et longitudinaux de la cavité Fabry-Pérot obtenus dans notre cavité lors d'un balayage en fréquence de DCLE1 sur plus d'un ISL. Les modes transverses observés tels que  $2\Delta\nu_t \approx 220\text{ MHz}$  sont liés à un mauvais couplage du faisceau dans le mode  $TEM_{00}$ .

Le réglage des miroirs en horizontal et vertical est réalisé par itération. On recherche la position des miroirs qui permet de maximiser les pics de résonance correspondants aux modes fondamentaux de propagation intracavité. Les modes transverses de la figure (3.13) sont minimisés en retour. On agit ainsi de manière à ne plus obtenir sur le relevé de balayage en fréquence, que le mode  $TEM_{00}$ . L'adaptation de mode dans la cavité est alors optimale pour nos deux faisceaux infrarouges spatialement superposés.

### 3.3.4 Rétro-contrôle électronique.

Les lasers alignés sur la cavité, le système d'asservissement PDH des deux diodes est mis en place. Pour bien comprendre le mode d'action pratique de l'asservissement, il faut tout d'abord réfléchir aux propriétés spectrales des lasers.

#### Propriétés spectrales des lasers à semi conducteurs.

Dans un laser à semi-conducteur, la phase du champ électrique émis est soumise à différents types de perturbations. Ces fluctuations de phase se traduisent par un certain spectre de la lumière émise par le laser [155, 159] (cf. annexe C pour le traitement statistique).

L'émission spontanée dans le mode laser est ainsi la principale responsable des fluctuations de phase [152]. Elle impose une limite fondamentale à la largeur de raie d'un laser appelée largeur de Schawlow-Townes  $\nu_{st}$

$$\nu_{st} \propto \frac{1}{P_0} \left( \frac{\nu_g}{l} \ln(R_1 R_2) \right)^2 \quad (3.31)$$

Où  $P_0$  est la puissance du laser,  $\nu_g$  la vitesse de groupe des photons émis,  $l$  la longueur de la cavité laser et  $R_1$  et  $R_2$  les coefficients de réflexion des miroirs de la cavité laser. La largeur limite d'émission d'un laser semi-conducteur est encore augmentée par un phénomène de couplage entre bruit d'amplitude de l'émission laser et bruit de phase [160]. La pureté spectrale limite de la diode  $\delta\nu$  est alors dépendante d'un coefficient de couplage entre bruit de phase et bruit d'amplitude  $\alpha$  tel que

$$\delta\nu = (1 + \alpha^2) \nu_{st} \quad (3.32)$$

$\alpha$  varie généralement entre 4 et 7, ce qui implique que pour une diode laser, la pureté spectrale d'émission est généralement de l'ordre de plusieurs dizaines de Mégahertz. Pour améliorer la pureté spectrale d'une diode laser, un moyen accessible est d'augmenter la longueur  $l$  de la cavité laser. C'est pour cela que nos diodes sont positionnées en cavités étendues d'une longueur  $L_{ext}$ . La largeur spectrale ainsi obtenue a été calculée pour des taux de retour différents [161, 162] dans la diode et dépend de  $L_{ext}$  ainsi que de la finesse de la diode  $\mathcal{F}_{laser}$  et de la cavité étendue  $\mathcal{F}_{DCLE}$ .

$$\frac{\delta\nu_{DCLE}}{\delta\nu} = \left( \frac{l \mathcal{F}_{laser}}{L_{ext} \mathcal{F}_{DCLE}} \right)^2$$

Cette méthode nous permet d'obtenir, comme nous l'avons vu au paragraphe (3.3.1) une pureté spectrale des diodes infrarouges de l'ordre de  $1.5\text{ MHz}$ . Une fois mises en cavité étendue, la largeur spectrale des diodes n'est plus limitée par l'émission spontanée du laser mais par le bruit technique du montage.

Divers phénomènes comme le bruit acoustique, les variations de la pression atmosphérique et de la température contribuent à ce bruit technique. Ces perturbations agissent sur l'émission de la diode laser sur différentes échelles de temps (FIG. 3.14).

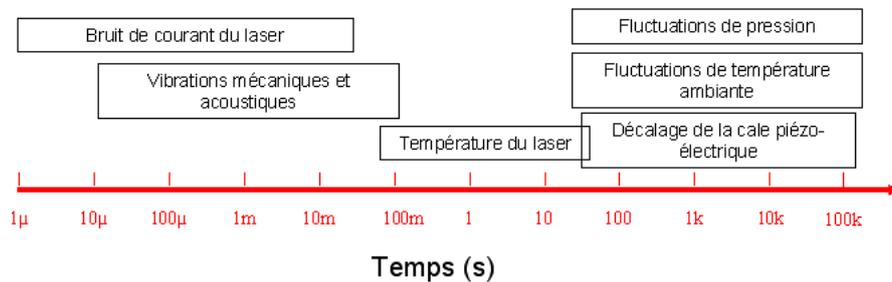


FIG. 3.14: Principales causes des fluctuations de fréquence d'une diode laser et leur échelle de temps respectives [163].

Elles se traduisent par des bruits à différentes fréquences sur la fréquence instantanée du laser. La détermination de la largeur spectrale d'émission des lasers est donc dépendante de l'échelle de temps dans laquelle elle est évaluée.

Ainsi la pureté spectrale de nos lasers est dépendante de la correction de bruits rapides (Jitter) liés au courant d'alimentation comme de bruits lents (drift) liés par exemple au décalage de la cale piézo-électrique fixée sur le réseau de la cavité étendue.

### Électronique d'asservissement Pound-Drever-Hall.

La méthode d'asservissement PDH va consister à corriger ces bruits sur la fréquence des lasers pour les asservir à résonance (correction des bruits lents) et affiner leur pureté spectrale (correction des bruits rapides).

**Détection du signal réfléchi par la cavité** Pour cela, comme on l'a vu sur le schéma (FIG. 3.8), une partie du rayonnement réfléchi par la cavité FP provenant des deux sources infrarouges modulées en courant est renvoyée vers une photodiode par un film séparateur de rapport  $R/T = 30/70\%$ . La photodiode utilisée

en détection de ce signal réfléchi est un module à avalanche ultra-rapide (PDA) Hamamatsu C5331, de 100 MHz de bande passante. Une lentille de focale 3.5 cm focalise le rayonnement sur sa surface active de 1 mm de diamètre, légèrement désalignée et inclinée par rapport à l'axe de propagation du rayonnement pour éviter un effet d'interférence. La photodiode de NEP  $0.3 \text{ pW}/\text{Hz}^{1/2}$  est polarisée par l'application d'une tension continue de 5V. L'amplification du signal qu'elle détecte avec un gain de 30, donne au module de la PDA une photosensibilité de  $-6.4 \times 10^4 \text{ V/W}$ .

Le signal détecté par la photodiode contient les informations sur le désaccord en fréquence des deux diodes par rapport à la résonance de cavité sur laquelle leur émission est asservie. La photodiode détecte en effet les battements aux fréquences de modulation des deux diodes infrarouges. Le terme de battement à 20 MHz servira à asservir DLCE1 et celui à 24 MHz permet d'asservir DLCE2.

**Circuit de démodulation** La PDA est reliée aux circuits électroniques d'asservissement des deux diodes par câbles blindés. Les boîtiers de démodulation sont intégrés au bloc d'alimentation des diodes lasers (FIG. 3.15). Ils sont similaires pour les deux diodes infrarouges et sont basés sur un schéma commercial (Toptica PDD110) quelque peu modifié.

Dans chacun des deux boîtiers le signal provenant de la photodiode avalanche (RF) est tout d'abord filtré par un filtre RC passe haut de fréquence de coupure 200 kHz afin d'éliminer le bruit basse fréquence. Le signal est ensuite amplifié une première fois par un montage proportionnel de gain 10. On peut alors ajuster sa phase de 0 à 300° grâce à un potentiomètre situé en façade du boîtier. On peut ensuite jouer sur le gain du signal par le biais d'un deuxième potentiomètre permettant au maximum un gain de 50. Ce gain est réglé pour ne pas amplifier de manière trop importante le bruit électronique (au maximum un gain de 15 pour DCLE1 et 25 pour DCLE2). Le signal amplifié et déphasé est alors envoyé sur un comparateur de phase RPD-1+ mini-circuits de haute fréquence de coupure (100 MHz).

Le signal provenant des oscillateurs à quartz (LO) est lui filtré deux fois par deux filtres RC passe-bas, ce qui permet de supprimer la seconde harmonique des fréquences de modulation à plus de 30dB<sup>4</sup>. Une partie de ce signal est envoyée sur l'entrée Bias-T de chaque diode laser pour réaliser la modulation du courant d'injection et l'autre partie est amplifiée puis envoyée sur le comparateur de phase.

Dans chaque boîtier, le comparateur de phase réalise la démodulation du signal par mélange entre le signal provenant de la branche de l'oscillateur à quartz et

<sup>4</sup>Donnée Toptica provenant du manuel des diodes DL100

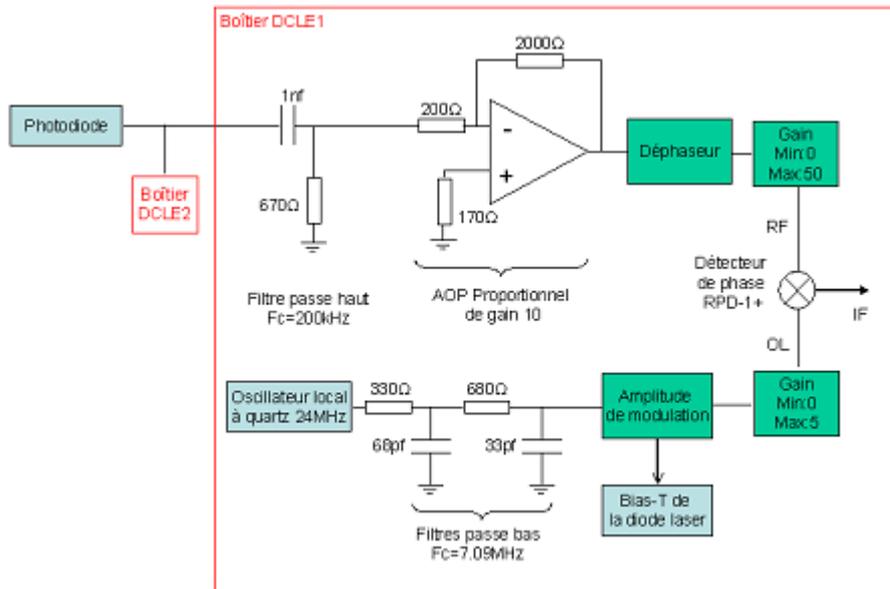


FIG. 3.15: Schéma électronique d'un des boîtiers d'asservissement pour la génération du signal d'erreur. Les boîtiers DCLE1 et DCLE2 sont identiques. En vert clair, sont indiqués les dispositifs sur lesquels on peut agir directement.

le signal provenant de la branche photodiode. Le signal RF est alors converti aux basses fréquences. On obtient à la sortie IF le signal d'erreur antisymétrique permettant l'asservissement. La phase du signal de la branche photodiode est réglée avec précision afin de maximiser ce signal de sortie IF. Le signal d'erreur généré lors de cette démodulation passe ensuite par un filtre RC passe-bas de fréquence de coupure  $4\text{MHz}$  pour supprimer la modulation haute fréquence résiduelle après mélange et un montage Ampli-OP (OP27) proportionnel de gain 1 et de bande passante  $8\text{MHz}$  adaptateur d'impédance. Ce signal d'erreur alimente ensuite deux moyens de contrôle de la fréquence d'émission mis en place sur chaque diode [104].

**Systèmes de correction** Le signal d'erreur est envoyé simultanément vers un système de correction rapide et un de correction lente. Le montage électrique de correction rapide permet de corriger les fluctuations rapides de la phase du laser par le biais d'un transistor à effet de champ (FET) monté en parallèle de la diode laser. Ce FET agit directement sur le courant d'alimentation de la diode laser. Son action corrige le bruit à haute fréquence ou jitter de la diode laser. Ce bruit est le principal responsable de l'élargissement spectral de l'émission

laser sur une courte échelle de temps. La correction de fréquence par cet asservissement rapide permet d'affiner la pureté spectrale de la diode et de « lancer » l'asservissement.

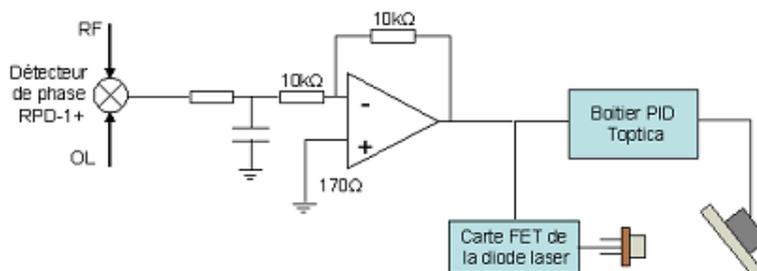


FIG. 3.16: Filtrage du signal d'erreur avant les circuits de rétroactions rapides via FET et lentes via PID

Le signal d'erreur est aussi envoyé dans un montage PID commercial (PID 110) pour l'asservissement lent. Ce montage PID agit sur le signal haute tension qui module la cale piézoélectrique placée sur le réseau de la cavité étendue de chaque diode laser avec une bande passante de l'ordre de quelques  $kHz$  (FIG. 3.16). L'asservissement lent va permettre de corriger les fluctuations de la fréquence d'émission laser liées aux bruits agissant sur une plus large échelle de temps. Ces bruits sont responsables des dérives à long terme de la fréquence laser. Cet asservissement permet donc de maintenir une calibration en fréquence de l'émission des lasers sur une large échelle de temps.

Une correction des bruits sur un large spectre de fréquence est donc effectuée grâce à la technique d'asservissement PDH bénéficiant d'une électronique de large bande passante. La correction des bruits hautes et moyennes fréquences assure un affinement spectral de l'émission laser alors que la correction des bruits basses fréquences maintient l'émission laser à résonance. La combinaison des deux modes de rétroaction appliquée sur les deux diodes infrarouges doit permettre d'assurer une bonne métrologie des fréquences infrarouge proche et donc aussi du rayonnement TéraHertz émis par photomélange.

### 3.3.5 Sources de bruit.

Les performances de cette technique PDH peuvent être dégradées par les nombreuses sources de perturbations touchant les lasers ou encore la cavité de référence. Ces perturbations peuvent impliquer une diminution de la pureté spectrale des diodes obtenue après correction. Elles peuvent aussi être à l'origine d'un décalage des fréquences d'asservissement par rapport aux résonances de la cavité

Fabry-Pérot. Les performances en matière de spectroscopie obtenues à partir de ces sources stabilisées se trouveraient alors dégradées. La dégradation de la pureté spectrale des émissions infrarouges entraîne une diminution de la résolution du spectromètre. Le décalage en fréquence d'asservissement entraîne une incertitude sur la fréquence d'émission du rayonnement TéraHertz. Des méthodes ont été mises en place afin de minimiser ces perturbations quand cela est possible.

### **Perturbations liées au milieu.**

**Fluctuations liées à la pression :** Les fluctuations de pression qui peuvent intervenir dans la cavité d'asservissement ont pour conséquence immédiate de modifier le trajet optique du rayonnement infrarouge entre les deux miroirs [164]. Elles modifient donc la longueur optique de la cavité. A température ambiante l'indice de réfraction  $n$  de la lumière est relié à la pression  $P$  (en Pa) par la relation

$$n - 1 \approx 3.10^{-9}P \quad (3.33)$$

Une fluctuation de pression de l'ordre de 10% de la pression atmosphérique entraînerait pour notre géométrie de cavité une fluctuation de fréquence de l'intervalle spectral libre (ISL) de l'ordre de plusieurs centaines de  $kHz$ . Ces fluctuations peuvent décaler la fréquence exacte d'asservissement des deux diodes. Pour réduire ces fluctuations, l'enceinte à vide est pompée jusqu'à une pression de  $10^{-3}Pa$ , ce qui permet de diminuer les variations possibles de l'ISL à quelques Hertz. Il serait par la suite judicieux de disposer d'une pompe ionique afin de diminuer encore le vide limite accessible.

**Fluctuations d'origine thermique :** Une variation de la température au sein de la cavité va entraîner une dilatation des matériaux utilisés pour sa construction [165]. Ceci aura pour conséquence une dilatation du corps de la cavité en verre d'une distance  $\delta L$  qui entraîne un déplacement en fréquence des résonances de la cavité  $\delta v_{FSR}$  tel que.

$$\frac{\delta L}{L} = \frac{\delta v_{FSR}}{\Delta v_{FSR}} \quad (3.34)$$

Une dilatation de l'ordre de  $0.1mm$  entraînerait une variation de l'intervalle spectral libre de plus de  $300kHz$ . Ce phénomène peut, là encore, décaler la fréquence exacte d'asservissement des deux diodes. Pour réduire les variations de température, la première précaution a été de disposer le corps de la cavité dans un

ensemble de plusieurs blindages en aluminium. Le blindage extérieur est stabilisé en température à  $\pm 0.5$  degrés près par un tapis résistif et joue le rôle de masse thermique. Les blindages internes limitent l'angle solide sous lequel la cavité « voit » les fluctuations thermiques provenant de l'extérieur. Pour parfaire ce système, les zones de contact entre les blindages ont été réduites au minimum. Enfin le corps de la cavité est fait en verre Zérodur de très faible coefficient de dilatation thermique (inférieur à  $0.1 \cdot 10^{-6} \text{ cm/cm.C}$ ). Ces précautions permettent d'assurer la stabilité à long terme de la longueur de la cavité [106].

Dans le cas des diodes lasers, nous avons vu que les fluctuations de température participent à l'élargissement spectral des raies d'émission. Afin de minimiser ces fluctuations, les diodes sont isolées du milieu extérieur par des boîtiers placés sur des socles en laiton stabilisés en température à  $35^\circ\text{C}$  par montage PID. Les diodes en elles mêmes sont stabilisées en température avec des modules Peltier à 2mK près. Ceci limite les dérives thermiques de fréquences.

**Perturbations d'origine mécanique :** Les vibrations de types mécanique ou acoustique peuvent déplacer le point d'asservissement en fréquence des diodes en induisant des phénomènes d'interférence [164]. La cavité FP est donc positionnée sur des joints en nitrile qui doivent absorber ces perturbations et isoler le corps de la cavité du milieu extérieur. Un grand soin a aussi été apporté dans la symétrisation du montage, qui permet de minimiser les effets des perturbations mécaniques [166].

Les vibrations peuvent aussi perturber le comportement des diodes lasers. Elles sont une cause du bruit de fréquence des diodes. Elles peuvent rendre difficile l'asservissement en fréquence en modifiant le chemin optique des faisceaux lasers dans la cavité étendue et en dégradant la stabilité mécanique du réseau de diffraction [152]. L'ensemble du montage expérimental est donc disposé sur une table pouvant être mise sur coussin d'air permettant d'atténuer les vibrations mécaniques. Les vibrations acoustiques restent à l'heure actuelle assez critiques et difficilement maîtrisables. Un moyen de minimiser leurs effets serait d'isoler par des plaques d'isolant acoustique de type Barson les diodes lasers et le montage de stabilisation.

### **Perturbations d'origine optique.**

**Influence des réflexions parasites :** Le système optique mis en place pour l'asservissement des deux diodes infrarouges est complexe. De nombreux effets d'interférence peuvent voir le jour entre les différents éléments qui le constituent, la face de sortie de la fibre à maintien de polarisation, le miroir plan de la

cavité, la photodiode. Un effet d'interférence a même été constaté, provenant de réflexions du rayonnement infrarouge sur le substrat du photomélangeur...

Ces interférences parasites entraînent un déphasage supplémentaire du signal détecté par la photodiode à avalanche [167]. Ce déphasage est traduit par un décalage en fréquence du 0 du signal d'erreur, qui décale le point d'asservissement des diodes. Le déphasage créé est difficile à prédire car il varie avec les variations de température ou encore les vibrations mécaniques et acoustiques. Afin de les minimiser, les faces d'entrée et sortie de la fibre à maintien de polarisation sont clivées à l'angle de Brewster et la surface active de la photodiode est volontairement inclinée de quelques degrés. L'utilisation d'une séparatrice à membrane pour envoyer le signal réfléchi sur la photodiode a été privilégiée par rapport à celle d'un cube séparateur qui aurait amené des interférences par réflexion sur ses faces perpendiculaires aux faisceaux.

**Modulation d'amplitude résiduelle :** Un problème important de la configuration actuelle de notre technique de stabilisation tient à la modulation du courant d'injection des deux diodes lasers. Cette modulation entraîne une modulation d'amplitude résiduelle (RAM) des faisceaux lasers, due au profil de la courbe de puissance du laser en fonction du courant d'injection [168, 169]. Cette RAM, présente sur les signaux des deux diodes, va se retrouver sur la photodiode à avalanche en réflexion de la cavité et se traduira pour les signaux d'erreurs par un décalage DC des points d'asservissement [170].

L'expression (3.20) implique que pour bien connaître la fréquence du rayonnement TéraHertz généré par photomélange, le point d'asservissement des deux diodes doit être bien connu. Or le décalage  $\delta$  lié à la RAM observé sur chaque diode est susceptible d'être différent. L'expression du rayonnement TéraHertz devient alors

$$\omega = R \times \Delta\nu_{FSR} \pm 2(\omega_{MAO1} \pm \omega_{MAO2}) \pm (\delta\omega_{DCE1} - \delta\omega_{DCE2}) \quad (3.35)$$

Ces décalages entraînent une incertitude sur la fréquence du rayonnement TéraHertz généré. Pour vérifier l'importance de ceux-ci, on peut contrôler le signal d'erreur des diodes en démodulant l'information de la photodiode à avalanche avec une détection synchrone (FIG. 3.17).

A partir de l'écart entre porteuse et bandes latérales (flèche rouge correspondant à un écart de fréquence de 24MHz sur la figure (3.17)) et du décalage en tension du 0 d'asservissement de chaque diode ramené lui aussi à un écart sur l'axe des x, on calcule par une règle de trois le décalage de la fréquence réelle de stabilisation de chaque diode par rapport au pic de résonance de la cavité sur lequel elle

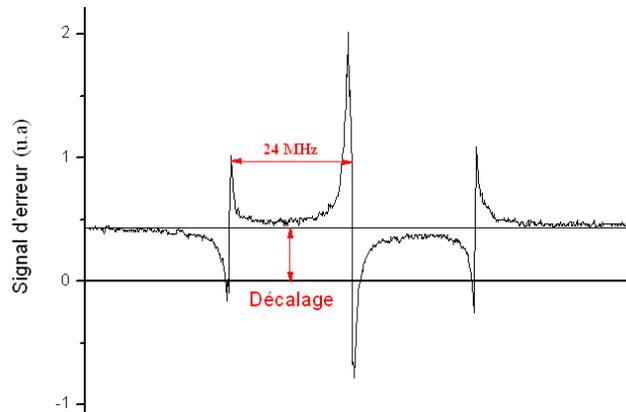


FIG. 3.17: Signal d'erreur de DCLE2 enregistré en sortie de détection synchrone à faible bande passante (constante de temps d'intégration  $100\mu s$  et sensibilité  $10mV$ ) pour une puissance de  $1\mu W$  sur la photodiode. On constate que le signal d'erreur est décalé par rapport au 0 d'asservissement.

est asservi. On peut alors estimer la contribution de ces écarts en fréquence à une déviation ( $\delta\omega_{DCLE1} - \delta\omega_{DCLE2}$ ) de la fréquence du rayonnement TéraHertz émis. Elle est typiquement de quelques dizaines de  $kHz$ .

Pour limiter les effets de cette modulation d'amplitude résiduelle, l'amplitude de modulation du courant d'injection des diodes reste faible, les bandes latérales ne devant pas dépasser 5 à 10 % de l'amplitude du pic d'émission de la porteuse. Les systèmes électroniques PID des asservissements lents permettent de réduire l'effet de la RAM en imposant un décalage aux zéros d'asservissement en rapport avec les signaux d'erreurs reçus sur chacune des diodes. La RAM pouvant varier au cours du temps, elle reste à l'heure actuelle l'une des principales limitations du spectromètre. Pour corriger ce phénomène efficacement sur les asservissements lents et rapides, il faudra mettre en place un circuit de compensation des décalages ou encore utiliser des modulateurs électro-optiques pour moduler les lasers [171, 172, 173, 174, et autres méthodes].

**Bruit d'intermodulation :** Le bruit d'intermodulation traduit le fait que, pour un laser non strictement monochromatique, du bruit aux fréquences multiples de la fréquence de modulation du courant des diodes se retrouve converti, lors de la détection du signal réfléchi par la PDA, en bruit basse fréquence. Ce bruit parasite sur le signal d'erreur ne traduit pas une fluctuation réelle de la phase du laser mais reste indiscernable. Il limite donc la correction que l'asservissement PDH peut apporter sur l'émission d'une diode. Dans le cas d'une diode laser

soumise à un bruit blanc de fréquence voisin de la fréquence de modulation, la largeur spectrale ultime que peut atteindre l'émission d'une diode laser limitée par l'intermodulation est décrite par [105]

$$\Delta\nu_{ultime} = \frac{\left(\frac{\Delta\omega}{2}\right)^2 \Delta\omega_{libre}}{4\Omega^2} \quad (3.36)$$

où  $\Delta\omega$  est la largeur du pic de la cavité Fabry-Pérot,  $\Delta\omega_{libre}$  est la largeur de raie du laser libre et  $\Omega$  est la fréquence de modulation. On remarque que la largeur de raie du laser est inversement proportionnelle au carré de la fréquence de modulation : on a donc intérêt à choisir la fréquence de modulation en courant des diodes la plus élevée possible. Dans notre cas pour chacune des diodes on a,  $\Delta\omega_{libre} = 1.5 \text{ MHz}$ ,  $\Delta\omega = 75 \text{ kHz}$  et  $\Omega_{diode1} = 20 \text{ MHz}$ ,  $\Omega_{diode2} = 24 \text{ MHz}$ , ce qui nous permet d'évaluer la pureté spectrale limite accessible pour chaque diode laser dans le cas où le bruit d'intermodulation est le bruit prépondérant.

$$\Delta\nu_{ultime\ diode1} = 1.31 \text{ Hz} \quad (3.37)$$

$$\Delta\nu_{ultime\ diode2} = 0.91 \text{ Hz} \quad (3.38)$$

Dans notre montage expérimental, le bruit d'intermodulation est très nettement négligeable par rapport à d'autres sources de bruit.

### Bruits électroniques

Une grande précaution doit enfin être prise dans l'électronique d'asservissement. En effet celle ci peut rajouter sur le signal de l'asservissement un bruit qui n'est pas caractéristique du laser mais qui sera tout de même pris en compte lors de la correction de fréquence des diodes.

Comme nous l'avons vu le caractère clé du signal d'erreur est son discriminateur de fréquence  $C$ , qui peut être défini d'après les notations de la figure (FIG. 3.18).

$$C = S_e / \Delta\omega \quad (3.39)$$

Ce signal d'erreur est soumis à un bruit d'amplitude  $\delta_{bruit}$ . Ce bruit est lié majoritairement aux fluctuations rapides de fréquence des diodes lasers que l'on cherche à corriger, mais il peut être amplifié par des bruits parasites liés à l'électronique d'asservissement et au mode de détection du signal en réflexion de la cavité [155].

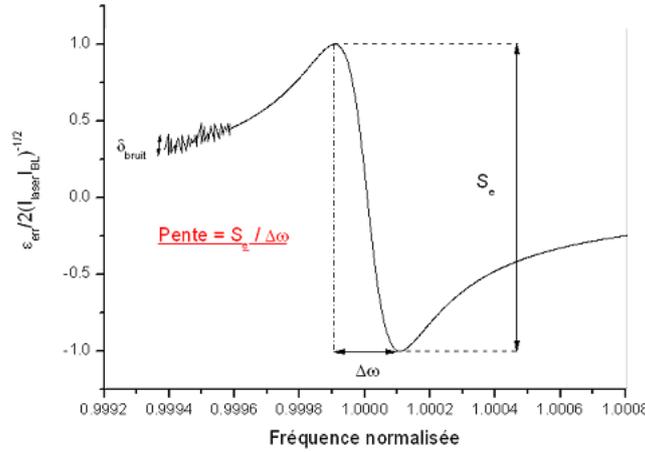


FIG. 3.18: Signal d'erreur pour une fréquence laser proche de la résonance. Celui-ci est d'amplitude  $S_e$  et soumis à un bruit  $\delta_{bruit}$

Le bruit d'amplitude sur le signal d'erreur se traduit lors de l'asservissement par un bruit de fréquence  $f_{rms}$  [175].

$$f_{rms} = \left( \frac{\delta_{bruit}}{C} \right) \quad (3.40)$$

Ce bruit de fréquence va limiter la correction que pourra apporter l'asservissement en masquant des fluctuations de fréquence du laser plus faibles que lui. Il va donc limiter l'affinement spectral des diodes lasers. Il est très important de minimiser la contribution des chaînes d'asservissement au bruit sur les signaux d'erreur.

Au niveau de la détection du signal réfléchi, la photodiode à avalanche est soumise à son bruit propre, indépendant de la puissance laser et au bruit de photon qui est le bruit de détection dominant. Ce bruit est proportionnel à la racine carrée de la puissance laser incidente sur la photodiode avalanche  $P$ . Le courant généré par le bruit de photon  $i_{Sn}$  sur la photodiode est alors

$$i_{Sn} = \sqrt{\frac{2e^2 \eta B P}{\hbar \omega}} \quad (3.41)$$

Où  $B$  est la bande passante de la détection,  $\eta$  le rendement quantique de la photodiode,  $e$  la charge de l'électron et  $\nu$  la fréquence du rayonnement. Lorsque la diode est asservie à résonance on considère que seule les bandes latérales sont réfléchies sur la photodiode avalanche, on a donc  $P = 2J_1^2(\beta)P_0$ , où  $P_0$  est la

puissance du signal laser incident sur la cavité. On peut donc définir la densité spectrale de bruit associé à cette puissance (en  $A/\sqrt{Hz}$ ) comme [156]

$$\Delta_{psn} = \sqrt{\frac{8e^2\eta J_1^2(\beta)P_0}{\hbar\omega}} \quad (3.42)$$

On peut alors à partir de l'expression du discriminateur de fréquence  $C$  (3.18) remonter à la densité spectrale de bruit de fréquence occasionné par le bruit de photon [99]

$$\Delta_{sn} = \frac{\hbar\omega\Delta_{psn}}{e\eta C} = \frac{\Delta\omega}{J_0(\beta)} \sqrt{\frac{\hbar\omega}{8\eta P_0}} \quad (3.43)$$

En considérant un cas où ce bruit de photon sur la photodiode avalanche serait le bruit limitant de nos asservissement, alors les diodes lasers pourraient atteindre une largeur spectrale d'émission ultime très faible [103] qu'on peut définir à partir du résultat de l'annexe C

$$\Delta\nu_{ultime} = \pi\Delta_{sn}^2 \quad (3.44)$$

Du bruit sur le signal d'erreur peut aussi être rajouté par un mauvais ajustement des valeurs de gains de la boucle d'asservissement, des composants électroniques mal adaptés à un circuit demandant un faible seuil de bruit ou encore des câbles trop longs, des perturbations du courant d'alimentation de l'électronique... Les câbles qui relient l'ensemble de l'électronique d'asservissement sont toujours choisis les plus courts possibles. En ce qui concerne la partie électronique d'asservissement, les valeurs de gain que l'on peut appliquer au système commercial d'asservissement sont minimisées autant que possible et les composants électroniques mis en place ont tous été choisis avec un seuil de bruit très bas.

Une évaluation de la pureté spectrale ultime qui pourrait être obtenue dans ce montage expérimental si celui-ci était seulement soumis à ce type de bruit sera réalisée dans la partie 3.4.2 de ce manuscrit.

## 3.4 Caractérisation de l'asservissement.

### 3.4.1 Caractéristiques de la cavité.

#### Couplage optique dans la cavité.

Le couplage optique dans la cavité réalisé par l'adaptation de mode et l'alignement optique a permis d'obtenir un large prépondérance des modes de propagation  $TEM_{00}$  (FIG. 3.19). On estime à partir du signal réfléchi par la cavité, le couplage du faisceau dans le mode de propagation fondamental à 50%.

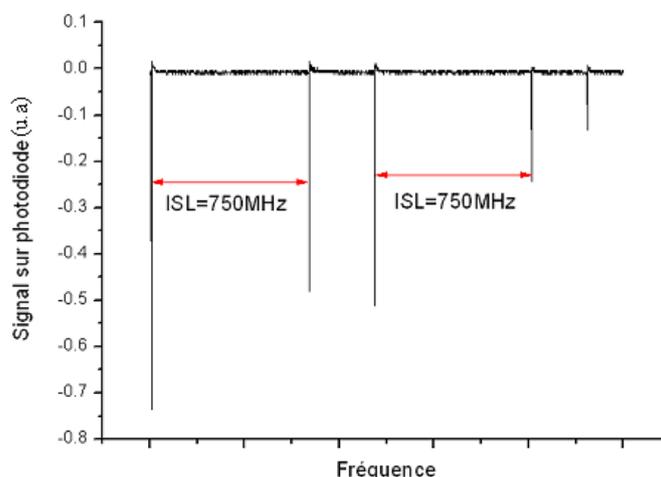


FIG. 3.19: Enregistrement du signal transmis par la cavité lors d'un balayage en fréquence aller-retour sur deux ISL d'une des diodes après optimisation du système télescope. Le mode de propagation  $TEM_{00}$  est ici largement prépondérant.

La grande sensibilité des photodiodes placées en transmission et réflexion de la cavité alliée à ce bon couplage intracavité permet de n'utiliser que des puissances optiques incidentes très faibles sur la cavité. Typiquement on a en sortie de fibre à maintien de polarisation des puissances optiques pour chacune des diodes de  $50 \mu W$  ce qui en entrée de cavité donne des puissances de l'ordre de  $30 \mu W$ . Le signal en réflexion sur la photodiode à avalanche est de l'ordre de  $5 \mu W$ .

#### Mesure de la finesse par temps de décroissance du champ.

Une fois ce couplage intracavité optimisé on peut mesurer la finesse de la cavité. La détermination directe de cette grandeur par une méthode dite « graphique » en

mesurant le rapport entre la largeur d'un pic de résonance et un ISL ne peut être appliquée ici. En effet la largeur de la raie laser est beaucoup plus importante que celle de la résonance de la cavité. Lorsqu'on balaye la fréquence d'émission de la diode laser, la largeur du pic de résonance obtenu est liée à la largeur de la raie laser d'émission et non à la vraie largeur à mi-hauteur de la résonance de la cavité. De plus des déformations du pic de résonance apparaissent qui rendent les mesures non pertinentes [176, 177].

Une méthode plus rigoureuse est la mesure de la finesse par la détermination du temps de décroissance du champ intracavité. Pour cela on met en place le montage (FIG. 3.20).

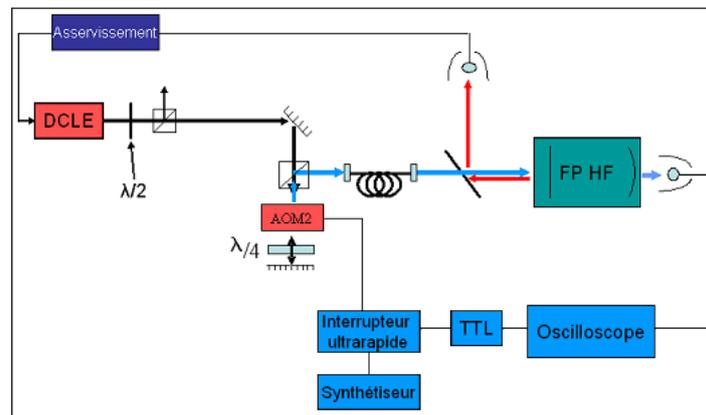


FIG. 3.20: Montage pour la détermination de la finesse de la cavité

Lorsque la fréquence du laser est asservie à la fréquence de résonance de la cavité, le champ à l'intérieur de la cavité est maximum  $E_{max}(t)$ . On observe alors sur le signal en réflexion un niveau bas correspondant au fait que la quasi-totalité de l'onde incidente est transmise par le miroir d'entrée de la cavité. On observe simultanément en transmission de la cavité un niveau haut. Si on coupe brutalement le faisceau laser en éteignant le MAO par le biais de l'interrupteur ultra rapide (de fréquence de commutation allant jusqu'à 5 GHz), on observe alors en transmission de la cavité une décroissance du signal vers le seuil de la tension d'obscurité de la photodiode. Cette décroissance, dans le cas où l'on peut négliger le temps de coupure du faisceau par rapport au temps de décroissance du champ intracavité, peut être décrite par une courbe exponentielle [177].

$$E(t) = E_{max}(t) \exp\left(-\frac{t}{T_d}\right)$$

Le temps caractéristique de décroissance  $T_d$  peut être directement relié aux paramètres de la cavité tels que sa longueur  $L$  et sa finesse  $\mathcal{F}$  [178, 179].

$$T_d \approx \frac{\mathcal{F}L}{c\pi}$$

On peut donc en déterminant ce temps de décroissance accéder à la finesse de notre cavité (FIG. 3.21).

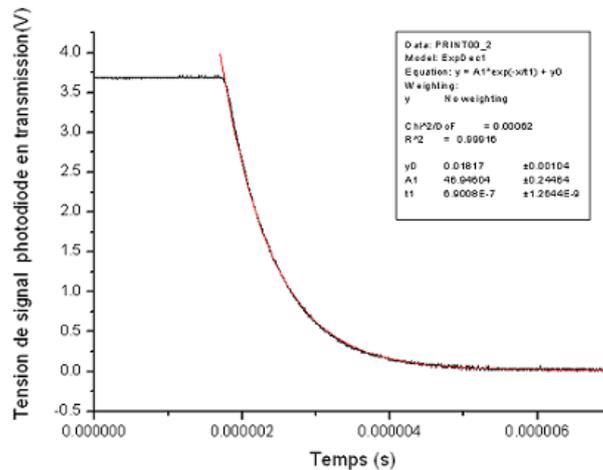


FIG. 3.21: Décroissance exponentielle du champ intracavité après coupure de l'émission laser.

Le temps de décroissance caractéristique obtenu est de l'ordre de  $0.686\mu s$  sur 25 acquisitions, ce qui permet d'évaluer la finesse de notre cavité connaissant à priori sa longueur  $L = 0.2m$ .

$$\mathcal{F} = 3230 \pm 43$$

A partir de cette valeur on peut définir la valeur expérimentale de la largeur à mi-hauteur d'un pic de résonance de la cavité qui est ici de  $234kHz$ .

On observe un écart entre la finesse prédite à partir des coefficients de réflexion des miroirs et celle déterminée expérimentalement. En effet on a vu que la prévision de la finesse maximum accessible avec nos miroirs était de l'ordre de 10000. L'écart de la finesse observée avec celle prédite peut être lié à des défauts lors du collage des miroirs ou encore à une contamination de ceux-ci lors de leur mise en place.

### Fonction de transfert et fréquence de coupure de la cavité.

La cavité ne réagit pas instantanément à une perturbation du champ incident [107, 177]. Sa réponse à une perturbation de fréquence  $\nu$  est décrite par une fonction de réponse appelée fonction de transfert [180, 181]. Dans le cadre de la stabilisation Pound-Drever-Hall nous nous intéressons à la fonction de transfert de la cavité en réflexion. Cette fonction de transfert sera un des facteurs limitant de la rapidité avec laquelle le système d'asservissement pourra corriger les fluctuations de fréquence du laser. Son calcul est réalisé plus en détail en annexe B.

La cavité agit sur le rayonnement comme un filtre passe bas [182] dont on peut déterminer la fréquence de coupure à partir de la mesure de finesse réalisée précédemment par la formule

$$f_{\text{coupure}} = \frac{\Delta\nu_{FSR}}{2 * \mathcal{F}} \quad (3.45)$$

La cavité doit donc répondre à une perturbation du rayonnement incident comme un filtre passe bas de fréquence de coupure de  $117 \text{ kHz}$ . La cavité jouera donc le rôle de comparateur de phase pour les fluctuations haute fréquence du laser et de discriminateur de fréquence pour les fluctuations de fréquence plus faible [150]. L'expression complète de la fonction de transfert d'une cavité pour une perturbation de fréquence  $\Omega$  est donnée en détail par [175]. En utilisant la formule (3.3) et en considérant que la fréquence d'émission laser  $\omega_L$  est asservie à résonance et ne fait l'objet que de faibles perturbations, on a alors

$$H(\Omega) = \frac{F(\omega_L)F^*(\omega_L + \Omega) - F^*(\omega)F(\omega_L - \Omega)}{\Omega} \quad (3.46)$$

En exprimant le module et l'argument de cette fonction de transfert on peut avoir accès au gain et surtout à la phase de la cavité en fonction de la fréquence de perturbation du champ incident (FIG. B.3). Ces fonctions correspondent bien à un filtre passe bas. Le comportement du résonateur en réflexion est celui d'un filtre passe-bas du second ordre introduisant pour le cas de fluctuations hautes fréquences un déphasage total de  $-\pi/2$ .

### 3.4.2 Performances de l'asservissement.

#### Génération du signal d'erreur.

La cavité caractérisée a permis de mettre en place la stabilisation PDH et tout d'abord de générer un signal d'erreur. Pour cela la puissance du signal incident

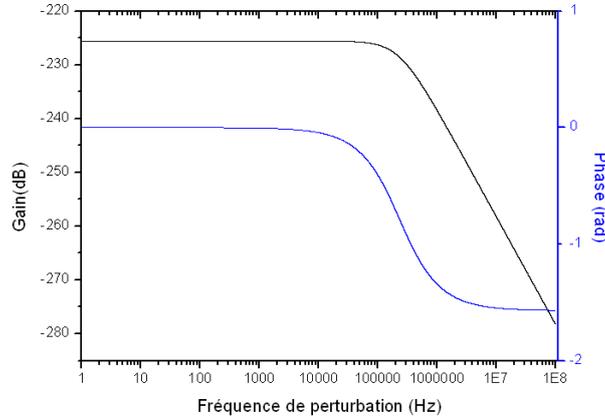


FIG. 3.22: Gain (courbe noire) et phase (courbe bleue) de la fonction de transfert de la cavité Fabry-Pérot de fréquence de coupure  $117\text{ kHz}$ . Le déphasage maximum qu'occasionne la cavité est de  $-\pi/2$ .

sur la cavité est pour chaque diode de  $30\mu\text{W}$  environ. Hors résonance le signal incident sur la photodiode en réflexion est de  $5\mu\text{W}$  environ pour chaque diode. On module le courant de chaque diode de façon à générer des bandes latérales de fréquence d'intensité de 5 à 10 % de celle de la porteuse ( $\beta$  compris entre 0.5 et 0.6). Si on balaie en fréquence l'émission de chaque diode sur un peu plus de  $40\text{ MHz}$  lorsque la diode émet non loin d'une résonance de la cavité on peut alors enregistrer le signal réfléchi par la cavité. Celui-ci comporte bien pour chaque diode une porteuse et des bandes latérales (FIG. 3.23).

La photodiode placée en transmission de la cavité nous donne pour chaque diode laser un profil de signal similaire. Ce signal démodulé par mélange avec la fréquence de référence permet de générer un signal d'erreur observé en boucle ouverte <sup>5</sup> sur le graphique (FIG. 3.24). Le bruit d'amplitude observé sur ce signal est alors seulement lié au bruit de la chaîne d'asservissement (bruit de photon, bruit électronique).

Ces signaux d'erreur obtenus pour les deux diodes lasers affichent des rapports signal sur bruit  $S_e/\delta_{\text{bruit}}$  de l'ordre de 30 : 1. A partir de ce rapport et connaissant la finesse et l'ISL de la cavité FP d'asservissement on peut alors évaluer d'après les formules (3.39) et (3.40) le bruit de fréquence  $f$  lié au bruit de la chaîne de contrôle qui limite l'asservissement des diodes lasers.

$$\Delta\omega = \frac{\Delta\nu_{FSR}}{\mathcal{F}}$$

<sup>5</sup>La correction n'est pas renvoyée sur la diode laser

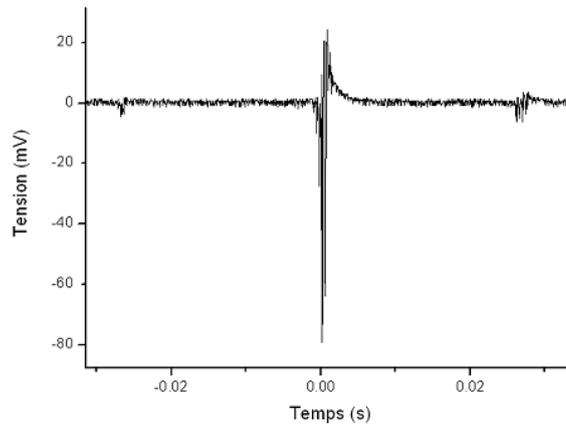


FIG. 3.23: Signal reçu par la photodiode en transmission de la cavité Fabry-Pérot lorsqu'on balaie la fréquence d'émission de la diode DCLE1 modulée en courant, par le biais de la cale piézoélectrique.

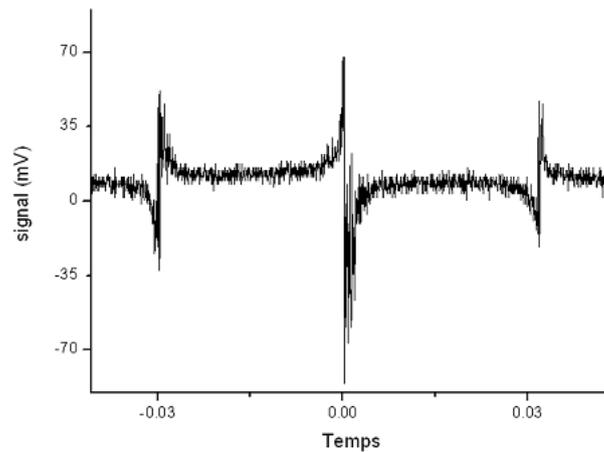


FIG. 3.24: Signal d'erreur boucle ouverte de la diode DCLE1 obtenu après démodulation à 20 MHz en sortie du boîtier Toptica.

$$f = \frac{\Delta v_{FSR}}{\mathcal{F}} \times \frac{\delta_{bruit}}{S_e} \quad (3.47)$$

En appliquant les valeurs déterminées dans le cadre de notre asservissement à l'équation (3.47), on peut déduire que ce bruit de fréquence limite est de l'ordre de 8 kHz. Les fluctuations de fréquence inférieure à 8 kHz ne pourront donc

pas être corrigées de manière efficiente par notre asservissement. On peut alors évaluer la largeur ultime accessible par ce type d'asservissement avec une bande passante  $B$  de bruit sur le signal d'erreur [155] par la formule

$$\nu_{ultime} = \frac{\pi f^2}{B} \quad (3.48)$$

Ainsi si les signaux d'erreurs sur les deux diodes n'étaient soumis qu'au bruit de la chaîne de détection sur une bande passante de 700 kHz alors la largeur ultime que pourrait atteindre chacune de nos émissions laser est de environ 300Hz. On verra par la suite que le bruit apporté par les chaînes de détection est en fait négligeable par rapport au bruit de fréquence sur les lasers.

Le signal d'erreur généré par chaque boucle d'asservissement est envoyé dans les deux branches de correction de la fréquence de chaque diode laser : on dit alors qu'on referme les boucles d'asservissement.

### **Bande passante d'asservissement.**

Une fois les boucles d'asservissement refermées nous nous sommes intéressés au comportement de celles-ci en terme de rapidité de la correction du bruit de phase des diodes lasers. Dans un asservissement, plus on augmente le gain dans la boucle de rétroaction et plus le bruit sera corrigé, il faut aussi que la bande passante de l'asservissement soit la plus large possible. A la limite de la bande passante de l'asservissement, la phase du signal de correction se retrouve à  $180^\circ$  de la phase du signal à corriger. La correction devient « positive ». La limite de bande passante des asservissements est donc caractérisée par une remontée du bruit du signal. Si le gain en limite de bande passante est trop important ( $\text{Gain} \geq 1$ ) il peut entraîner une oscillation de l'asservissement. La valeur de gain dans la bande passante d'asservissement est donc limitée.

Phase et gain des boucles de rétroaction sont définies à partir des fonctions de transfert des éléments qui la composent, la cavité, les diodes lasers et l'électronique d'asservissement.

Nous avons déjà vu précédemment les caractéristiques liées à la cavité Fabry-Pérot seule qui occasionne au maximum à l'asservissement un déphasage de  $\pi/2$ . Elle agira comme un discriminateur de fréquence pour les perturbations lentes devant  $T_d$  et comme un comparateur de phase pour les perturbations rapides [159, 155]. La cavité n'est donc pas un facteur limitant dans la bande passante de l'asservissement.

Afin de caractériser la bande passante de la boucle complète, on peut ensuite étudier avec un analyseur de spectre la densité spectrale de bruit du signal d'erreur en sortie de l'asservissement (FIG. 3.25).

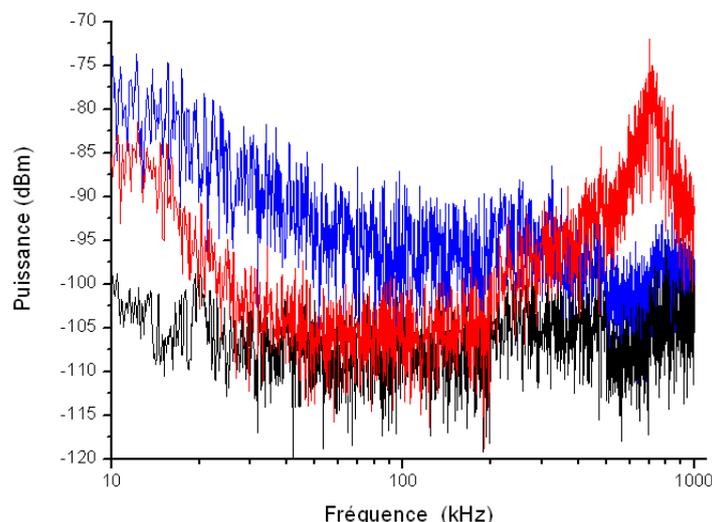


FIG. 3.25: Spectre de bruit du signal d'erreur de la diode DCLE1 à la sortie du boîtier d'asservissement : diode hors résonance (courbe noire) diode à résonance boucle ouverte (courbe bleue), diode à résonance de la boucle fermée (courbe rouge).

La mesure du bruit du signal d'erreur diode hors résonance (courbe noire) nous donne le bruit sur le signal d'erreur qui provient de l'électronique de l'asservissement. On constate que ce bruit est pratiquement tout le temps négligeable par rapport au bruit sur le signal d'erreur lorsque le laser est à résonance (courbe bleue). On peut en conclure que le bruit sur le signal d'erreur lorsque le laser est asservi provient essentiellement du bruit de fréquence du laser. La comparaison entre le spectre de bruit de la diode à résonance non asservie et asservie (courbe rouge) nous permet de visualiser la correction qui est apportée à la diode par l'intermédiaire de la diminution du bruit basse fréquence du signal d'erreur. Le spectre du signal d'erreur obtenu lorsque la diode est asservie à résonance nous permet de bien visualiser la remontée de bruit liée au déphasage de  $180^\circ$  du signal de correction avec celui à corriger. On peut donc estimer à partir de ce relevé la bande passante de la chaîne d'asservissement complète à  $700\text{ kHz}$ . Celle-ci est semblable sur les asservissements des deux diodes.

De nombreux essais expérimentaux ont été menés sur l'électronique d'asservissement et sur les différents gains que l'on peut appliquer afin d'éviter l'oscillation des asservissements de chacune des diodes. L'étude attentive de la bande

passante de notre système électronique semble indiquer que le facteur limitant dans la boucle d'asservissement peut être attribué au temps de réaction de la correction par FET. Cependant le circuit FET ayant été modifié sans indication par le constructeur, sa fonction de transfert n'a pas encore été déterminée.

### Asservissement des diodes.

On constate que le signal détecté en transmission de la cavité lorsque la fréquence de la diode laser DCLE1 est balayée sur plus de 40 MHz se modifie une fois la boucle d'asservissement fermée. Lorsque la fréquence de la diode laser devient résonnante avec la cavité on constate qu'elle est corrigée pour rester au sommet de la résonance (FIG. 3.26).

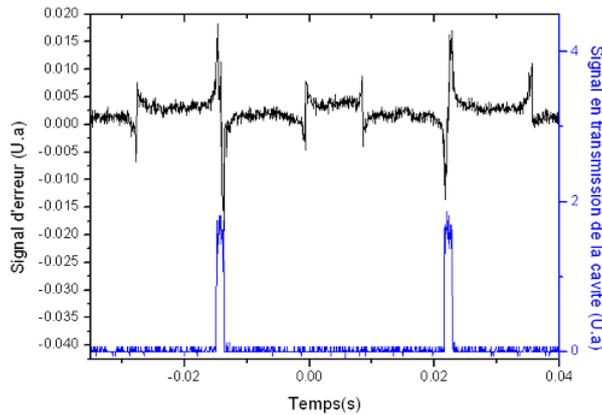


FIG. 3.26: Signal d'erreur (courbe noire) boucle fermée et signal détecté par la photodiode en transmission de la cavité (courbe bleue) au cours d'un balayage aller / retour de la fréquence d'émission de la diode DLCE1 sur un peu plus de 40 MHz avec la cale piézoélectrique.

Cette correction s'exprime par un plateau d'intensité lorsque la fréquence d'émission de la diode balaye la largeur du pic de résonance de la cavité. La correction apportée par l'asservissement est mieux visible si on diminue la plage de balayage en fréquence (FIG. 3.27). Sur cette dernière figure on peut voir sur la pente du signal d'erreur  $S_e$  un bruit d'amplitude  $\delta_{blaser}$  qui traduit le bruit de fréquence du laser asservi  $f_{rms}$ . En appliquant alors la formule (3.47) on peut remonter à la valeur de  $f_{rms}$ . En utilisant les résultats obtenus dans l'annexe 3, il est possible d'obtenir un ordre de grandeur de la largeur des émissions lasers lorsque les diodes sont asservies. Pour cela on considère que le bruit de fréquence instantanée des diodes est un processus gaussien et que le signal d'erreur

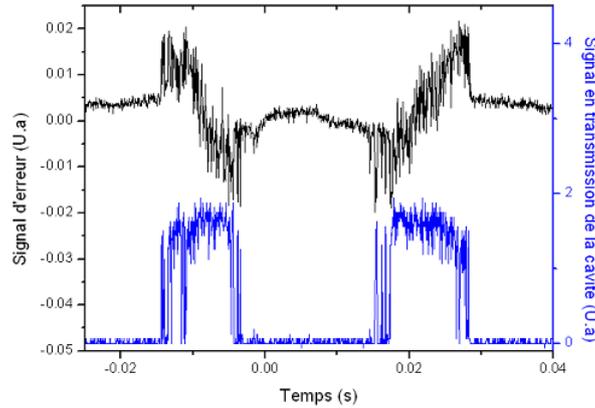


FIG. 3.27: Signal d'erreur (courbe noire) boucle fermée et signal en transmission de la cavité (courbe bleue) au cours d'un balayage aller et retour de la fréquence d'émission de la diode DLCE1 de faible amplitude.

est établi sur une bande passante de bruit  $B$  [155] dans le cas limite où un bruit blanc de fréquence est le bruit dominant. La largeur à mi-hauteur de l'émission de la diode laser  $\Delta\nu$  est alors

$$\Delta\nu = \frac{\pi f_{rms}^2}{B} \quad (3.49)$$

A partir du graphique (3.27) on évalue alors  $f_{rms}$  à environ  $82\text{ kHz}$ . Ainsi, si on considère que le signal d'erreur sur la diode est soumis à un bruit blanc détecté sur la bande passante de  $700\text{ kHz}$  de l'asservissement, alors la largeur que pourra atteindre l'émission laser est de l'ordre de  $30\text{ kHz}$ . Le même calcul sur le signal d'erreur de la diode DCLE2 nous amène à une valeur similaire.

Si on coupe le balayage alors que la diode laser est à résonance, elle est asservie en fréquence sur celle-ci. Le procédé est appliqué sur chaque diode. Les asservissements rapides de chacune permettent d'obtenir le plateau en corrigeant les fluctuations rapides de fréquence du laser et ce sont les boucles d'asservissements lentes qui leurs permettent de rester à résonance sur une large échelle de temps.

### Largeur spectrale d'émission laser.

Pour sonder la largeur spectrale des diodes lasers asservies nous avons enregistré sur un détecteur de bande passante  $1.5\text{ GHz}$  le battement des deux diodes

asservies sur deux résonances de cavité FP adjacentes (Écart de fréquence entre les diodes de  $750\text{ MHz}$ ). Ce battement est enregistré avec des puissances provenant des deux diodes similaires et dans les conditions usuelles d'asservissement : faible profondeur de modulation du courant et puissance optique sur la PDA de quelques  $\mu\text{W}$  pour chaque diode. Il a tout d'abord été permis de déterminer avec plus de précision la définition de l'intervalle spectral libre de notre cavité. En effet nous nous sommes rendu compte que la fréquence centrale du battement des deux diodes stabilisées à résonance enregistré sur plus de 50 acquisitions était en moyenne de  $749,104\text{ MHz}$  et non de exactement  $750\text{ MHz}$ .

Il a permis de visualiser aussi l'affinement spectral qui a lieu sur chacune des diodes. Pour cela on convient que le comportement des deux diodes lasers est identique et donc que la largeur spectrale du battement de ces deux diodes est l'exacte convolution de la largeur spectrale de chacune des diodes prise séparément. A l'heure actuelle la largeur spectrale de battement des deux diodes infrarouges est en moyenne de l'ordre de  $70\text{ kHz}$  sur  $50\text{ ms}$  (FIG. 3.28). Les pics de part et d'autres du battement traduisent la limite de la bande passante des asservissements des deux diodes et le couplage entre bruit de phase et bruit d'amplitude lors de la correction. On constate qu'il n'y a pas d'oscillation des asservissements.

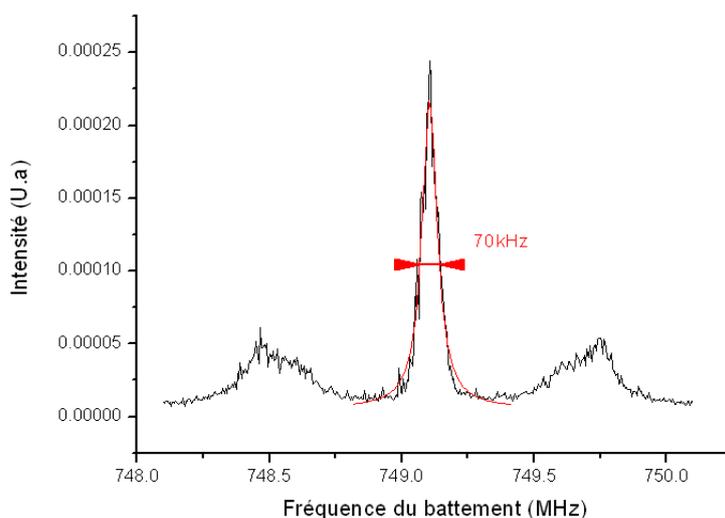


FIG. 3.28: Battement de fréquence des deux diodes stabilisées sur deux résonances adjacentes de la cavité FP de référence enregistré dans une bande passante de  $10\text{ kHz}$  sur  $50\text{ ms}$ .

Sachant que le profil d'émission des diodes est un profil lorentzien on peut alors déduire du battement de nos deux source (FIG. 3.28) leur pureté spectrale en

divisant celle du battement lorentzien des deux sources par deux [155]. Chaque diode stabilisée par la technique PDH a donc une pureté spectrale de l'ordre de  $35\text{ kHz}$  sur  $50\text{ ms}$ .

Les précautions prises pour réduire les facteurs de bruit inhérents à la mise en place de la cavité Fabry-Pérot associées à sa bande passante de correction nous permettent d'affirmer que le bruit relatif à notre cavité de référence contribue de façon négligeable à la largeur du battement des diodes lasers. Cette notion est très importante car dans un asservissement limité par le bruit de la référence, d'après ce que nous avons vu au paragraphe (3.3.2), le bruit de fréquence sur le battement devrait augmenter avec l'augmentation du nombre de mode qui séparent les deux diodes asservies. A partir de cette constatation on peut alors penser que la pureté spectrale du battement des diodes lasers obtenue est transmise au rayonnement TéraHertz qui sera généré par le photomélangeur. On pourra par la suite contrôler celle-ci en réalisant un battement sur une diode Schottky du rayonnement généré par photomélange avec synthétiseur couplé à un multiplieur actif dont on connaît la pureté spectrale. Une autre méthode pour caractériser nos asservissements sera d'évaluer la variance d'Allan du battement de fréquence de nos deux diodes sur une large échelle de temps de façon à pouvoir définir quel type de bruit perturbe nos lasers sur différentes échelles de temps [183]. Pour que celle-ci soit vraiment pertinente et puisse nous indiquer le type de bruit auquel est soumis l'expérience lors de l'utilisation des asservissements pour la spectroscopie, il nous faut pouvoir maintenir asservies nos deux diodes sur une longue échelle de temps.

### **Stabilité temporelle de l'asservissement.**

Nous nous sommes aussi intéressés à la stabilité temporelle des asservissements. Deux aspects sont particulièrement importants à observer. On a voulu premièrement, étudier la robustesse de l'asservissement en matière de maintien à résonance des deux diodes lasers sur une longue échelle de temps. Deuxièmement on a caractérisé la dérive temporelle de la fréquence de battement des deux diodes lasers lorsque celles-ci sont asservies.

La robustesse de notre asservissement est importante car il faut que les diodes infrarouges restent à résonance pendant au moins la durée d'une excursion en fréquence pour les mesures de spectroscopie. Pour visualiser cela nous avons enregistré le signal en transmission de la cavité pour voir la durée de son maintien sur le plateau d'intensité.

On constate l'importance de l'influence de l'isolation de la pièce dans laquelle est mise en oeuvre le montage. En effet il suffit d'un claquement de porte dans

une salle extérieure pour que l'asservissement soit perturbé quelques secondes (FIG. 3.29).

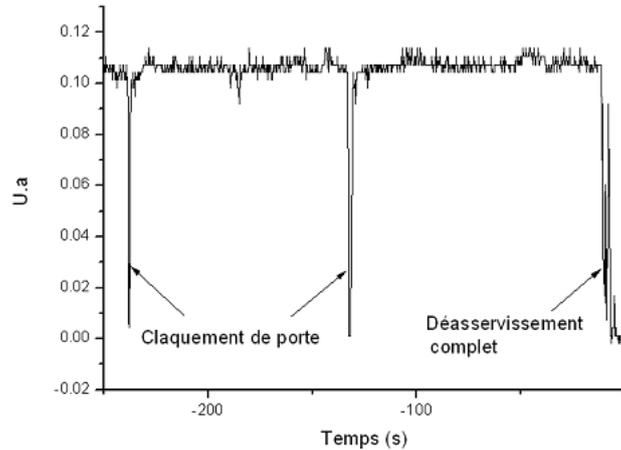


FIG. 3.29: Signal en transmission de la cavité Fabry-Pérot obtenu alors que la diode DCLE1 est asservie sur une résonance de la cavité Fabry-Pérot. L'asservissement est perturbé par des vibrations extérieures à la salle (claquement d'une porte proche).

Typiquement l'asservissement à résonance des deux diodes lasers peut être maintenu aisément sans dé-asservissement sur une plage de temps de l'ordre de 5 minutes. A l'heure actuelle la robustesse de asservissement permet de réaliser des accumulations sur des temps de l'ordre de quelques minutes. Ces performances pourront être améliorées par des développements des circuits électroniques d'asservissement, plus particulièrement celui d'asservissement lent. Une amélioration des performances pourrait aussi être obtenue en plaçant les diodes et la cavité de stabilisation dans des boîtes isolées des vibrations par de l'isolant acoustique.

Si la fréquence centrale du battement des deux sources infrarouge proche asservies sur deux résonances espacées d'un entier  $R$  fluctue, cette fluctuation va se retrouver sur le rayonnement TéraHertz par photomélange. La précision avec laquelle sera évaluée la fréquence centrale d'une raie d'absorption d'une molécule s'en trouvera diminuée, de même que la résolution spectrale. Pour évaluer les fluctuations de fréquence nous avons observé l'écart type de la fréquence centrale de battement lorsque les diodes sont asservies sur deux résonance adjacentes de la cavité Fabry-Pérot. On constate sur 25 acquisitions un écart type de la valeur moyenne de  $30\text{ kHz}$ . Le battement peut donc dériver sur une plage spectrale de  $60\text{ kHz}$  alors que les deux diodes lasers sont toujours asservies à

résonance lorsque  $R = 1$ . Une évaluation plus précise des fluctuations de fréquence du rayonnement TéraHertz généré par différence de fréquence de nos deux sources stabilisées pourrait être obtenue en observant les fluctuations du battement entre le rayonnement TéraHertz et un signal provenant d'une source de type synthétiseur multiplié par multiplicateur actif sur une diode Schottky planaire dont nous disposons au laboratoire [184].

### 3.4.3 Perspectives d'amélioration de l'asservissement.

Les pistes d'amélioration des performances de cet asservissement sont multiples mais demandent du temps pour être mises en oeuvre.

**Amélioration de la stabilisation passive** Tous d'abord un gain d'efficacité est possible en disposant d'une cavité de plus grande finesse. Ceci nécessite un grand soin dans les choix techniques (collage ou adhésion moléculaire ; miroir commerciaux ou faits sur mesure) et demande une mise en place longue (alignement optique). L'ensemble de notre montage d'asservissements et plus particulièrement les diodes lasers se sont montrées très sensible aux perturbations mécanique, thermique et acoustique qui peuvent avoir lieu dans la pièce où se situe le montage expérimental, un effort d'isolation devra être tenté dans le but de les minimiser encore. Pour cela, il serait judicieux d'isoler totalement les boîtiers des diodes laser par une boîte recouverte d'une couche d'isolant de type barson. La cavité Fabry-Pérot pourrait, elle aussi être isolé du montage par le même type de boîte, voire même un montage d'isolation mécanique plus poussé [106].

**Amélioration de la technique de modulation** Une meilleure compensation des décalages des points d'asservissement des diodes liés à une modulation d'amplitude résiduelle pourrait être obtenue en générant les bandes latérales par le biais de modulateurs électro-optiques [185] et non plus par une modulation du courant d'injection. Un système de compensation électronique des décalages pourrait aussi être mis en oeuvre à l'image de celui mis en place par Schoof et al. [104].

**Amélioration de la stabilisation active** La partie électronique de l'asservissement semble être celle où le plus d'améliorations peuvent être bénéfiques. Ainsi, une meilleure pureté spectrale des diodes peut être obtenue en augmentant la bande passante de l'asservissement des deux diodes. Dans ce but, le seul

élément n'ayant pas été revu par nos soins reste la carte contenant l'alimentation et la correction FET de la diode (commerciale) qui semble être l'élément limitant de l'asservissement à une bande passante de  $700\text{kHz}$ . La modifier ou même en obtenir un plan complet nécessite d'agir directement sur les diodes et donc de stopper complètement le montage expérimental (temps de réalignement). La minimisation de la dérive en fréquence et l'augmentation de la robustesse des asservissements pourraient être obtenue en retouchant le montage PID commercial jouant sur la cale piézoélectrique de chaque diode qui reste peu efficient à l'heure actuelle. Une évolution vers un montage dédié a notre spectromètre permettant une amplification du signal d'erreur à traiter peut aussi sembler pertinente. Durant cette thèse des problèmes de bruit parasite liés au réseau électrique du laboratoire ont durement pénalisés nos efforts pour améliorer l'asservissement. Une solution serait de pouvoir isoler complètement le montage par onduleur et de bénéficier d'une bonne mise à la terre de la table optique.

### 3.5 Conclusion.

Nous avons vu dans ce chapitre le principe de l'asservissement en fréquence d'une diode laser par la méthode de Pound-Drever-Hall, ainsi que l'atout en matière d'affinement spectral d'émission que celle ci peut apporter. Les deux diodes infrarouges de notre spectromètre sont stabilisées sur les résonances d'une cavité d'une finesse évaluée à 3230 par cette méthode. On constate alors un affinement spectral de leur émission passant chacune de  $1.5\text{MHz}$  à  $35\text{kHz}$  environ. Le rayonnement Téraherz émis par le battement de ces diodes bénéficie donc d'une pureté spectrale de l'ordre de  $70\text{kHz}$ . Des variations du battement de fréquence des deux diodes sur  $60\text{kHz}$  ont été remarquées, qui sont elles aussi transmises aux rayonnement Téraherz et vont influencer sur la résolution spectrale de notre spectromètre. La précision de notre montage est pour le moment handicapée par une contribution allant jusqu'à  $25\text{kHz}$  du décalage en fréquence des asservissements des diodes lié à la RAM. Des améliorations de ces asservissements sont donc encore possibles majoritairement par le biais de l'évolution de l'électronique quasi-commerciale utilisée ici vers un montage spécialement dédié à ce spectromètre. Une stabilité à plus long terme (plusieurs heures) avec une pureté spectrale sur une seconde de l'ordre d'une dizaine de  $\text{kHz}$  semble un objectif accessible. Afin de quantifier les performances de la technique de stabilisation du montage actuel nous avons alors décidé de réaliser des mesures de spectroscopie sur une molécule bien connue.



# Chapitre 4

## Applications du spectromètre

### 4.1 Introduction.

Le montage expérimental mis en place au cours de cette thèse doit pouvoir répondre aux attentes d'une étude spectroscopique. La plage spectrale accessible avec un photomélangeur dans les conditions de l'étude d'une espèce moléculaire doit ainsi être testée. Nous devons aussi apprécier les performances apportées par la stabilisation Pound-Drever-Hall des deux diodes infrarouges en terme de résolution spectrale et de précision de pointé sur les fréquences des raies d'absorption. Pour cela, nous avons tout d'abord testé le spectromètre en étudiant une partie du spectre du chlorométhane, molécule désormais bien connue sur la gamme spectrale millimétrique et submillimétrique. Après avoir vu comment se présente le spectre rotationnel de cette molécule, nous verrons les différents types d'acquisitions qui ont été réalisées. Ces spectres nous ont permis d'obtenir une première idée des performances actuelles de notre montage expérimental. Une fois son fonctionnement validé pour la spectroscopie nous avons utilisé le spectromètre pour réaliser une étude exploratoire de l'élargissement collisionnel de plusieurs raies de l'eau par  $O_2$  et  $N_2$ .

### 4.2 Étude sur le Chlorométhane.

Le chlorométhane de formule chimique  $CH_3Cl$ , aussi appelé chlorure de méthyle, est un haloalcane. Il est produit naturellement en grande quantité par l'action du rayonnement solaire sur les océans et par la combustion de la biomasse [186]. Industriellement, il est synthétisé par réaction du méthane avec du chlore gazeux. Le chlorométhane a longtemps été utilisé comme réfrigérant connu sous

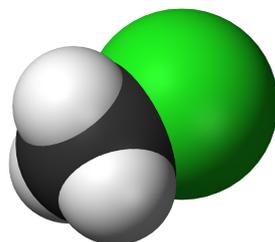


FIG. 4.1: Structure du Chlorométhane

le nom de fréon. Son utilisation est aujourd'hui abandonnée de par sa toxicité. Le chlorométhane est le plus abondant haloalcane de l'atmosphère terrestre [187] et est considéré comme la seule source naturelle d'atomes de chlore dans la stratosphère, atomes qui participent à la destruction de la couche d'ozone [188]. Il est aussi fortement soupçonné d'être l'un des contributeurs à l'effet de serre [189].

$CH_3Cl$  est une toupie symétrique allongée de symétrie  $C_{3v}$  (FIG. 4.1). Celle-ci et ses isotopomères ont été largement étudiés au laboratoire PhLAM ces vingt dernières années [190, 191, 192, 193, 194, 195, et références citées dans ces articles]. Sa stabilité, son fort moment dipolaire de 1.89 Debye [195] et la bonne connaissance de son spectre rotationnel en font un candidat intéressant pour un premier test des performances de notre spectromètre.

#### 4.2.1 Spectre rotationnel de $CH_3^{35}Cl$ .

**Positions des raies d'absorption** On considère le spectre de rotation pure de  $CH_3^{35}Cl$ . Si on regarde le spectre d'absorption de la molécule, la fréquence  $\nu_0$  d'une transition rotationnelle  $\Delta J = +1$ ,  $\Delta K = 0$  dans un même état de vibration peut alors être exprimée par [192]

$$\begin{aligned} \nu_0(J, K) = & 2B(J+1) - 4D_J(J+1)^3 - 2D_{JK}(J+1)K^2 + H_J(J+1)^3 \\ & \times [(J+2)^3 - J^3] + H_{JK}(J+1)^3K^2 + 2H_{KJ}(J+1)K^4 \quad (4.1) \end{aligned}$$

Avec  $B$  la constante de rotation et  $D_J$ ,  $D_{JK}$ ,  $H_J$ ,  $H_{JK}$ ,  $H_{KJ}$  respectivement les constantes de distorsion quartiques et sextiques dont les valeurs sont rappelées dans le tableau (TAB. 4.1)

La présence d'un atome de chlore de fort moment quadripolaire entrant en interaction avec le gradient de champ électrique de la molécule entraîne une levée

Constante	Valeur	Constante	Valeur
$B / \text{MHz}$	13292.87666 (6)	$H_J / \text{Hz}$	-0.010148 (56)
$D_J / \text{kHz}$	18.09599 (39)	$H_{JK} / \text{Hz}$	0.3299 (49)
$D_{JK} / \text{kHz}$	198.7990 (148)	$H_{KJ} / \text{Hz}$	9.373 (147)

TAB. 4.1: Tableau des constantes moléculaires pour  $\text{CH}_3^{35}\text{Cl}$  dans l'état de vibration fondamentale [192]

de dégénérescence des niveaux d'énergie qui donne lieu à une structure hyperfine [196]. Le moment angulaire total de la molécule  $F$  peut alors être défini connaissant le spin  $I = 3/2$  de l'atome de chlore.

$$F = |J - I| .. |J + I|$$

$$F = J - 3/2, J - 1/2, J + 1/2, J + 3/2$$

L'énergie quadrupolaire  $E_Q(I, J, F)$  qui en résulte, peut être écrite en fonction de  $Y(I, J, F)$  la fonction de Casimir. On définit tout d'abord

$$C = F(F + 1) - J(J + 1) - I(I + 1)$$

et

$$Y(I, J, F) = \frac{\frac{3}{4}C(C + 1) - I(I + 1)J(J + 1)}{2I(2J - 1)(2J + 3)(2I - 1)} \quad (4.2)$$

alors

$$E_Q(I, J, F) = -eqQ \left( \frac{3K^2}{J(J + 1)} - 1 \right) Y(I, J, F) \quad (4.3)$$

Où  $eqQ$  est la constante de couplage quadrupolaire ( $-74.75(11) \text{ MHz}$  [191]). Les fréquences de transition de  $\text{CH}_3^{35}\text{Cl}$  s'en trouvent donc modifiées et s'expriment alors à partir de (4.1) et (4.3)

$$\nu(J, K) = \nu_0(J, K) - [E_Q(I, J + 1, F') - E_Q(I, J, F)] \quad (4.4)$$

Où  $F' = F, F \pm 1$ . Chaque raie d'absorption est donc divisée en plusieurs raies hyperfines distinctes et ce pour chaque valeur du nombre quantique  $K$ . Le calcul des intensités relatives de chaque composante nous indique que les quatre raies correspondant à  $\Delta F = +1$  sont dans ce cas de figure les plus intenses [197, 198].

**Largeur des raies d'absorption** Lors de l'enregistrement de spectres submillimétriques, la largeur des raies d'absorption d'une molécule est liée principalement à leur largeur Doppler et à un élargissement par pression. Dans le cas de  $CH_3^{35}Cl$  l'élargissement par effet Doppler définit une largeur à mi-hauteur  $2\Delta\nu_d$  en fonction de la température (ici l'ambiante  $T = 297K$ ), de la masse moléculaire du composé ( $M = 50.9$  g/mol pour le chlorométhane) et de la fréquence de transition  $\nu(J, K)$

$$2\Delta\nu_d = 7.15 \cdot 10^{-7} \left( \frac{T}{M} \right)^{1/2} \nu(J, K) \quad Hz \quad (4.5)$$

L'élargissement collisionnel est lui dépendant des nombres quantique  $J$  [199] et  $K$  [200] et varie linéairement avec la pression  $P$  de gaz actif dans le milieu. Le coefficient d'auto-élargissement d'une raie du chlorure de méthyle est de l'ordre de  $20 MHz/mbar$ . On constate que pour une pression de gaz fixée vers  $2 \cdot 10^{-2} mbar$  plus la fréquence augmente et plus le terme d'élargissement Doppler est important par rapport à celui de l'élargissement par pression (pour  $CH_3^{35}Cl$  à  $1 THz$ ,  $\Delta\nu_d \approx 1.7 MHz$  et  $\Delta\nu_l \approx 0.52 MHz$ ). Lors de nos mesures les raies d'absorption à basses fréquences seront donc modélisées par une lorentzienne et à fréquence plus élevée par un profil de Voigt, convolution entre une lorentzienne et une gaussienne.

**Intensité des raies d'absorption** Le maximum d'intensité approximatif à température ambiante  $T$  des raies d'absorption peut être retrouvé facilement en s'intéressant aux transitions de type  $K = 0$  et en suivant la démarche de Gordy [201]. La fréquence du maximum d'intensité peut être calculée par la formule (4.6)

$$\nu_{\alpha_{max}} = 2B + 11(BT)^{1/2} \quad (4.6)$$

Avec les paramètres du tableau (4.1) on trouve donc un maximum d'intensité des raies d'absorption de  $CH_3^{35}Cl$  aux alentours de  $700 GHz$ .

#### 4.2.2 Caractérisation du spectromètre par la spectroscopie de $CH_3^{35}Cl$ .

Des mesures ont été réalisées le long du spectre accessible avec le photomélangeur à  $256 GHz$ ,  $689 GHz$ ,  $900 GHz$  et  $1215 GHz$  pour juger des caractéristiques et capacités du spectromètre que nous avons mis en place (FIG. 4.2).

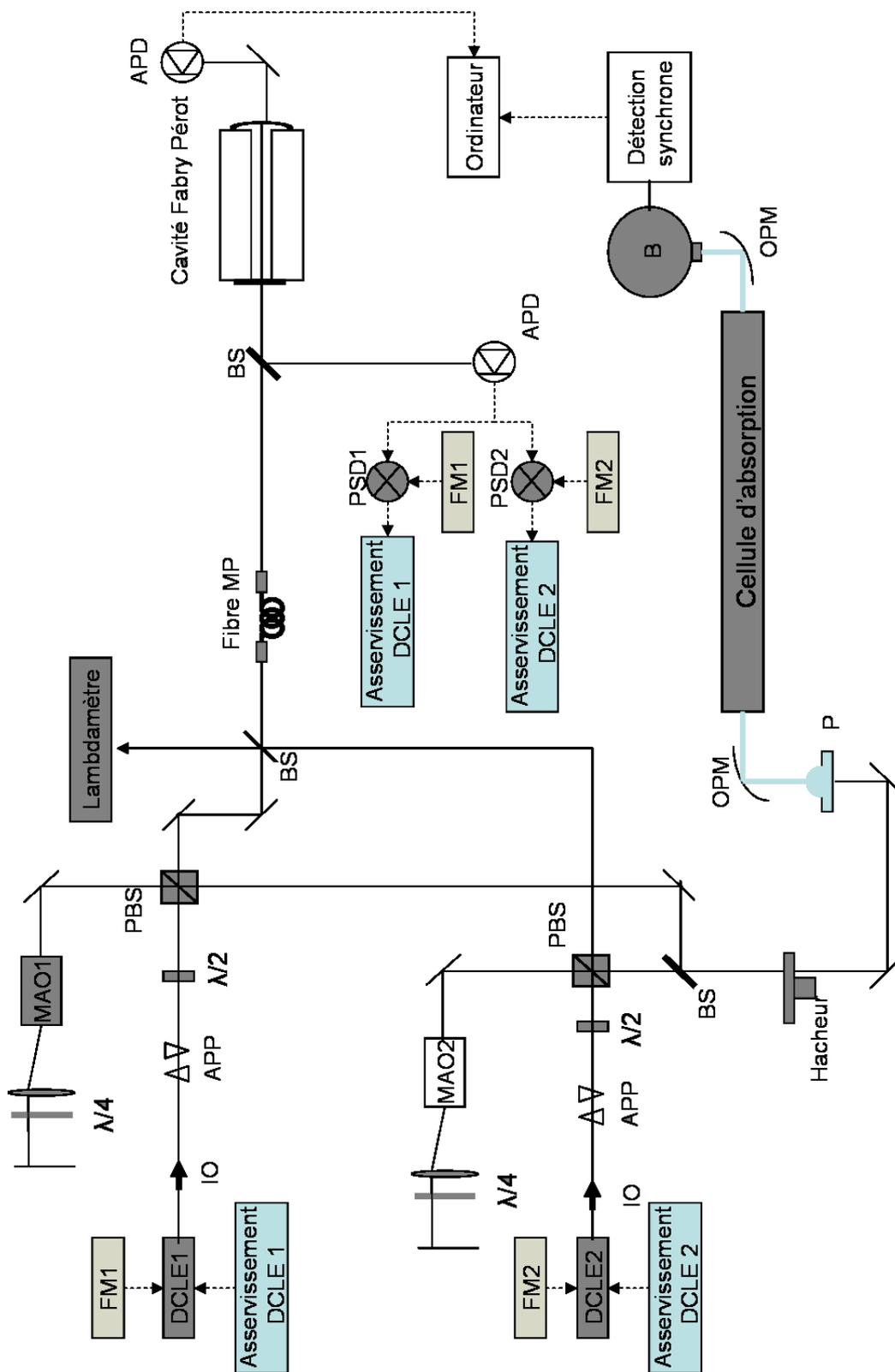


FIG. 4.2: Dispositif expérimental complet du spectromètre. Les lignes pleines et hachées représentent respectivement les signaux optiques et électroniques. IO : isolateur optique ; APP : prisme anamorphoser ; BS : séparatrice ; PBS : séparatrice polarisante ; PSD : Comparateur de phase ; APD : photodiode avalanche ; OPM : miroir parabolique hors d'axe ; B : bolomètre.

Les données des fréquences de transitions et des intensités sur lesquelles nous nous sommes basés lors de cette étude ont été calculées à partir des paramètres du tableau (4.1). Nous avons aussi utilisé celles fournies par la base de données du JPL [202]. Avec notre spectromètre les spectres ont été enregistrés suivant deux méthodes distinctes.

### **Méthodes expérimentales.**

**Spectres larges basse résolution** Pour des balayages de fréquence larges de l'ordre de quelques  $GHz$  en un spectre, les modulateurs acousto-optiques sont laissés à fréquence fixe et on utilise la modulation d'amplitude du rayonnement TéraHertz par un hacheur mécanique (cf. FIG. 4.2). Une diode est stabilisée sur une résonance de cavité Fabry-Pérot alors que l'autre diode est balayée linéairement en fréquence sur plusieurs intervalles spectraux libres de la cavité. La pureté spectrale du rayonnement TéraHertz généré de cette manière est donc de l'ordre de celle du battement des diodes non asservies. On enregistre le spectre de la molécule étudiée et le signal en transmission de la cavité Fabry-Pérot. La succession des pics de résonance de la cavité nous donne dans ce cas un étalonnage en fréquence du spectre enregistré.

**Spectres haute résolution** Pour les balayages fins (Plage spectrale accessible de  $40 MHz$  environ) on stabilise les deux diodes lasers sur une résonance de la cavité Fabry-Pérot de telle façon que leur différence de fréquences soit proche de la fréquence de transition que l'on veut observer. La pureté spectrale du rayonnement TéraHertz est alors de l'ordre de  $70 kHz$ . On balaie ensuite par le biais d'un synthétiseur piloté par GPIB la fréquence de modulation d'un des modulateurs acousto-optiques, ce qui balaie la fréquence d'émission du photomélangeur. Dans ce cas de figure, on peut opter au choix, pour une détection en modulation d'amplitude à l'aide du hacheur ou en modulation de fréquence en modulant la fréquence de l'onde acoustique du MAO. On enregistre alors par le biais d'un bolomètre et d'une détection synchrone reliée à un ordinateur le spectre de la molécule.

**Protocole de mesure** L'écart de fréquence des diodes est tout au long des mesures contrôlé par un  $\lambda$ -mètre dont la précision de mesure est de l'ordre de quelques dizaines de  $MHz$ . On peut donc suivre le balayage en fréquence d'une des diodes lors d'un balayage large et déterminer sur quelle fréquence de résonance de la cavité Fabry-Pérot est stabilisée chacune des diodes dans le cas d'un balayage fin. Les spectres ont été enregistrés en utilisant le photomélangeur dont

Ordre de grandeur	Balayage large	Balayage fin
Pressions de gaz dans la cellule	$\leq 10^{-1} mbar$	$\leq 2.10^{-2} mbar$
Nombre de points d'acquisition	500	200

TAB. 4.2: Conditions de mesures pour l'enregistrement des spectres obtenus en balayages larges et fins

le temps de vie des porteurs est de 320 fs, polarisé à 9V, sur lequel on envoie une puissance optique infrarouge provenant des deux diodes de typiquement  $2 \times 16$  mW. Les conditions de mesures pour les balayages larges et fins sont répertoriées dans le tableau suivant<sup>1</sup> (TAB.4.2). La détection est réalisée avec notre bolomètre InSb.

### Mesures basse fréquence.

A 265 GHz, les mesures ont directement été faites en utilisant le balayage fin des modulateurs acousto-optiques. Elles permettent de sonder la transition  $\nu = 0, J = 9 \rightarrow 10$  en visualisant la structure en K du spectre.

**Optimisation des paramètres de modulation** Ces mesures ont tout d'abord permis de tester les paramètres pertinents de modulation FM du MAO pour utiliser la détection du signal, en première harmonique, avec la détection synchrone. Dans ce cas, on enregistre la dérivée première du signal d'absorption (FIG. 4.3). Ce mode de détection permet dans une certaine mesure de s'affranchir de la ligne de base du rayonnement Térahertz entraînée par le système de modulation acousto-optique (cf. chapitre 2) et diminue le bruit technique en  $1/f$  [203, 204]. Il augmente donc les rapports signal à bruit obtenus lors de l'enregistrement des spectres vis à vis de ceux obtenus en modulation d'amplitude avec un hacheur mécanique d'un facteur supérieur à 2 (FIG.4.4).

Il a fallu trouver un équilibre des paramètres de profondeur et fréquence de modulation. En effet une modulation trop profonde et trop large entraîne des distorsions du signal d'absorption alors que des valeurs de paramètres trop faibles diminuent l'intensité du signal détecté [205]. Un bon compromis a été trouvé expérimentalement en modulant le MAO à 100kHz sur une profondeur de 200kHz.

**Traitement et aspect des spectres** A basse fréquence, le profil des raies d'absorption est dominé par l'élargissement collisionnel, à 265 GHz la largeur Dop-

<sup>1</sup>Les mesures à 1.2THz ont été réalisées avec une pression dans la cellule de  $5.10^{-2} mbar$ .

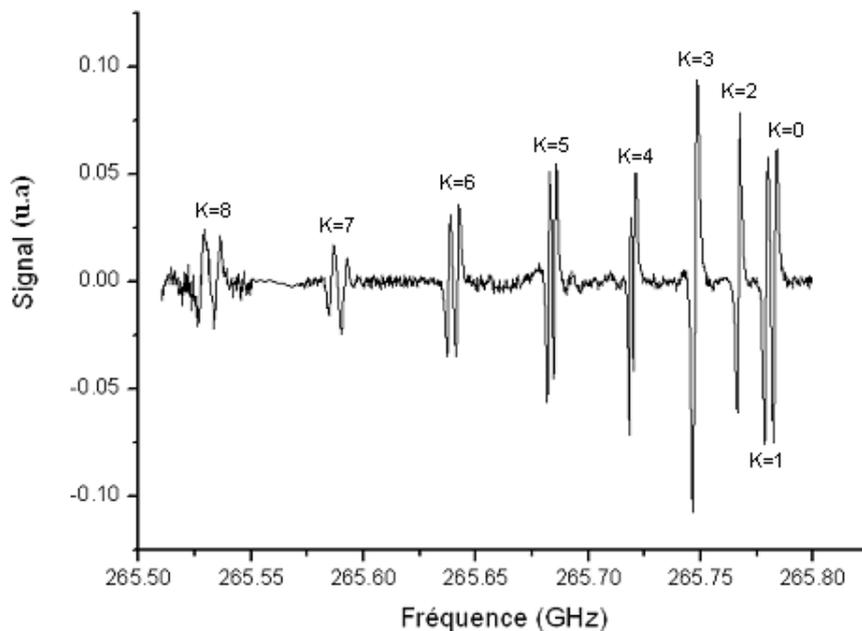


FIG. 4.3: Spectre de  $CH_3^{35}Cl$  à 265 GHz réalisé en modulation de fréquence. Chaque raie est enregistrée en balayage fin et les spectres sont ici mis bout à bout. On visualise bien la structure en  $K$  de la transition  $J = 9 \rightarrow 10$  ainsi que sa structure hyperfine.

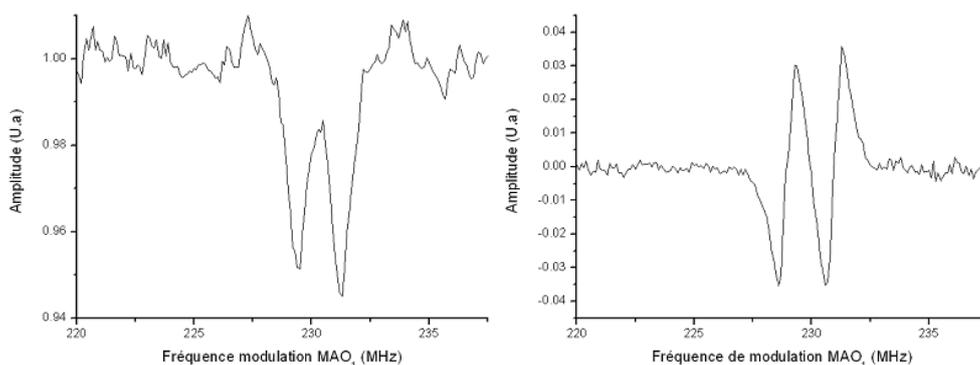


FIG. 4.4: Raie de rotation de  $CH_3^{35}Cl$ ,  $\nu = 0$ ,  $J = 9 \rightarrow 10$ ,  $K = 6$  enregistrée à une pression de 2 Pa en modulation de d'amplitude à 500Hz (à droite) et en modulation de fréquence à 100 kHz sur une profondeur de 200 kHz (à gauche). Le gain en rapport signal à bruit est ici d'environ trois entre les deux spectres.

pler d'une raie de  $CH_3^{35}Cl$  est d'environ  $460\text{ kHz}$  alors que l'élargissement dû à la pression est de l'ordre de  $750\text{ kHz}$  à  $2 \cdot 10^{-2}\text{ mbar}$ . L'ajustement des raies est donc ici réalisé par la méthode des moindres carrés en utilisant un ajustement du profil par une dérivée première de lorentzienne pour chaque raie.

La structure hyperfine de  $CH_3^{35}Cl$  est très marquée même pour des valeurs du nombre quantique  $K$  faible. Celle-ci s'étend par exemple sur  $300\text{ kHz}$  pour la raie  $K = 0$ , étendue qui augmente avec le nombre quantique  $K$ , ce qui permet de visualiser des doublets pour les raies de  $K > 3$ . Dans les cas où la structure hyperfine n'est pas résolue on observe des déformations dans les profils des raies. On le constate expérimentalement avec l'exemple de structure hyperfine de la raie  $K = 3$  de ce spectre. Les quatre composantes  $\Delta F = +1$  s'étalent sur  $1\text{ MHz}$  avec des positions relatives à  $-550,6\text{ kHz}$ ,  $-494,9\text{ kHz}$ ,  $468,6\text{ kHz}$  et  $524,4\text{ kHz}$ . Leur caractère non résolu donne expérimentalement un profil particulièrement déformé (FIG. 4.5). Ce caractère non résolu de la structure hyperfine de certaines raies augmente l'incertitude du pointé en fréquence.

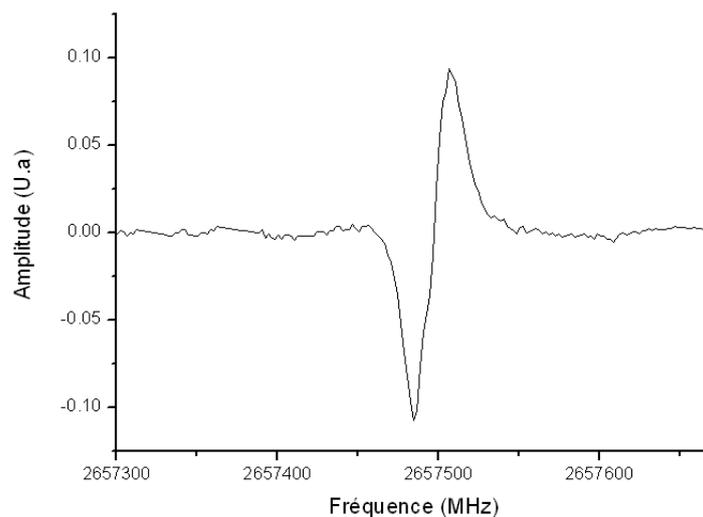


FIG. 4.5: Raie de rotation de  $CH_3^{35}Cl$ ,  $\nu = 0$ ,  $J = 9 \rightarrow 10$ ,  $K = 3$  enregistrée à une pression de  $2\text{ Pa}$  en modulation de fréquence à  $100\text{ kHz}$  sur une profondeur de  $200\text{ kHz}$ . Le profil de raie est déformé.

**Reproductibilité** Ces mesures à basse fréquence ont aussi permis de juger la reproductibilité d'une mesure en évaluant l'écart type du pointé en fréquence d'une raie d'absorption. Pour cela, alors que les diodes lasers sont stabilisées à résonance, on enregistre plusieurs fois la raie d'absorption la moins déformée,

soit  $J = 9 \rightarrow 10$ ,  $K = 0$ . Les mesures sont ensuite reportées dans le tableau (TAB. 4.3) et comparées entres elles.

Raie $J=9 \rightarrow 10$ $K=0$	Fréquence mesurée (MHz)
1	265784.8905
2	265784.8086
3	265784.9053
4	265784.8631
5	265784.8682
6	265784.8895
7	265784.8921
8	265784.7987
9	265784.8578
10	265784.8768
Moyenne	265784.8651
Ecart Type	0.035

TAB. 4.3: Reproductibilité des mesures de fréquences pour la raie d'absorption  $K = 0$  de la transition  $J = 9 \rightarrow 10$ , enregistrées avec une modulation en fréquence de  $70 \text{ kHz}$  sur une profondeur de  $70 \text{ kHz}$ .

On constate donc que les mesures sont reproductibles avec un écart type de l'ordre de  $35 \text{ kHz}$ , ce qui semble cohérent avec la valeur de la fluctuation de fréquence du battement des diodes infrarouges stabilisées à résonances obtenue au chapitre précédent. A noter qu'il sera par la suite intéressant d'observer cette reproductibilité à haute fréquence.

Enfin on peut aussi constater que les mesures dans cette partie du spectre sont réalisées avec un bon rapport signal sur bruit. Il est en moyenne de  $100 : 1$  en une seule acquisition et peut être largement amélioré en accumulant sur un plus grand nombre d'acquisitions. Le nombre des acquisitions est seulement limité par le temps de maintien asservies des deux diodes de manière simultanée.

### Mesures haute fréquence.

**Spectres large préliminaires** A plus haute fréquence, la largeur des raies est dominée par l'élargissement par effet Doppler (largeur Doppler d'environ  $1 \text{ MHz}$  à  $600 \text{ GHz}$ ). La structure en  $K$  du spectre rotationnel du chlorométhane donne des raies d'absorption éloignées les unes des autres de plusieurs dizaines de  $\text{MHz}$ . Par contre, la structure hyperfine moins marquée y rend le pointé en fréquence des raies moins critique. Pour bien visualiser ces spectres nous avons tout d'abord réalisé de larges excursions en fréquence (FIG. 4.6).

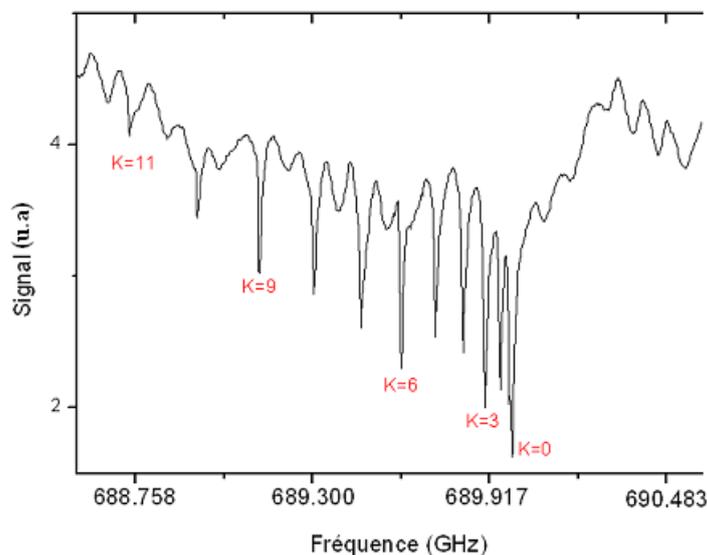


FIG. 4.6: Excursion de fréquence réalisée autour de  $689,5 \text{ GHz}$  large de  $1,9 \text{ GHz}$  avec une modulation d'amplitude à  $250 \text{ Hz}$ . On visualise la structure en  $K$  de la transition  $\nu = 0, J = 25 \rightarrow 26$ .

Nous avons aussi enregistré des spectres larges aux alentours de  $900 \text{ GHz}$  et  $1.215 \text{ THz}$ , permettant de visualiser jusqu'à la raie  $\nu = 0, J = 33 \rightarrow 34, K = 9$  vers  $900 \text{ GHz}$  (FIG. 4.7) et  $\nu = 0, J = 45 \rightarrow 46, K = 8$  vers  $1.215 \text{ THz}$  (FIG. 4.8).

On notera que le rapport signal sur bruit pour les raies de  $K$  élevés montre que les spectres ont ici seulement été limités par la plage de balayage de la diode fixée au départ, on aurait pu enregistrer les raies de nombre quantique  $K$  supérieurs. On constate sur ces spectres que les raies de  $K$  multiples de 3 sont les plus intenses en accord avec la statistique de spin. On observe sur les spectres l'apparition d'une « ligne de base » caractérisée par des oscillations de période  $100 \text{ MHz}$  environ. Celles ci sont liées à un effet étalon entre les faces d'entrée et de sortie de la cellule de spectroscopie. La cellule joue un rôle de cavité basse finesse d'intervalle spectral libre de  $100 \text{ MHz}$ . Le phénomène diminue avec l'augmentation de la fréquence du rayonnement émis par le photomélangeur.

Au moment de la rédaction de cette thèse le mode de balayage large reste encore très grossier. En effet, une spécificité du logiciel d'acquisition donne lieu lors du balayage large à une échelle d'excursion en fréquence non linéaire, de plus dans les acquisitions présentées dans ce document le nombre de points d'acquisition par raie est assez faible ce qui diminue la précision du pointé. Pour le moment, la fréquence des raies peut être estimée de cette façon à quelques  $\text{MHz}$  près

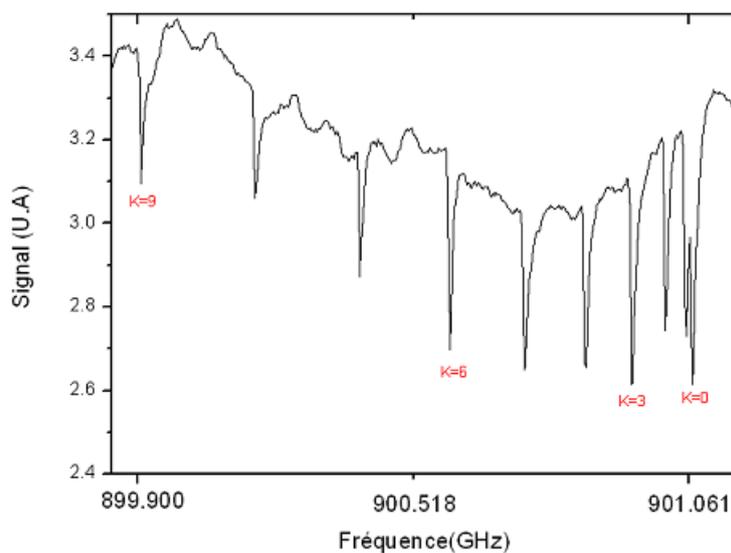


FIG. 4.7: Excursion de fréquence de  $1,9\text{ GHz}$  réalisée autour de  $900\text{ GHz}$  avec modulation d'amplitude à  $250\text{ Hz}$ . Structure en  $K$  de la raie  $\nu = 0, J = 33 \rightarrow 34$ .

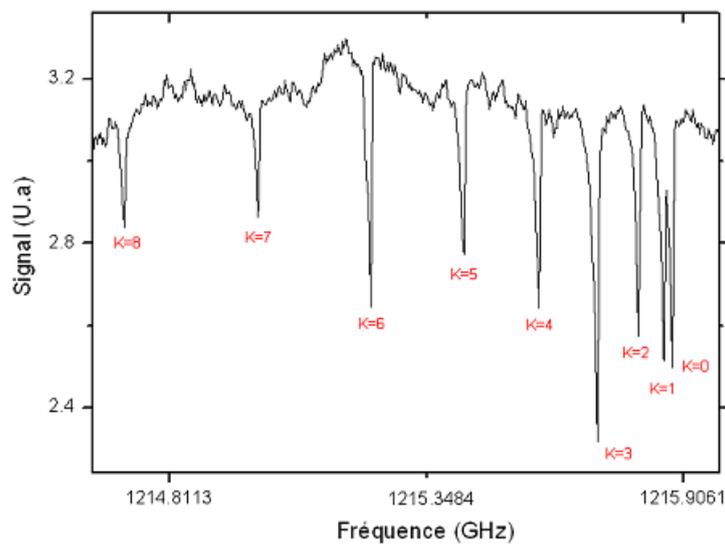


FIG. 4.8: Excursion de fréquence de  $1.7\text{ GHz}$  réalisée autour de  $1.215\text{ THz}$  avec modulation d'amplitude à  $250\text{ Hz}$ . On visualise la structure en  $K$  de la raie  $\nu = 0, J = 45 \rightarrow 46$ .

J	J'	K	Fréquence mesurée en balayage large (GHz)	Fréquence prédite JPL (GHz)	$F_{mes}-F_{JPL}$ (MHz)	Incertitude sur la fréquence du JPL (MHz)
45	46	0	1215.885253	1215.885412	-0.159	0.8449
45	46	1	1215.867121	1215.867258	-0.137	0.8445
45	46	2	1215.811308	1215.812809	-1.502	0.8435
45	46	3	1215.720092	1215.722095	-2.003	0.8422
45	46	4	1215.595666	1215.595166	0.500	0.8412
45	46	5	1215.430056	1215.432094	-2.038	0.8413
45	46	6	1215.234556	1215.232971	1.585	0.843
45	46	7	1214.999391	1214.997908	1.483	0.8474
45	46	8	1214.724519	1214.727039	-2.520	0.8549

TAB. 4.4: Fréquences des pics d'absorption de  $CH_3^{35}Cl$  de la raie  $\nu = 0, J = 45 \rightarrow 46$  déterminées à la suite d'une acquisition par balayage large et accord avec les fréquences prédites par la base de données JPL.

(TAB. 4.4) et ne sert que comme travail préparatoire aux mesures en balayage fin. La modification du programme d'acquisition et l'augmentation du nombre de points d'acquisition permettront de régler ce problème et d'obtenir une meilleure précision.

**Spectres haute résolution** A partir des estimations de ces excursions larges nous avons mesuré en balayage fin les raies d'absorption  $J = 25 \rightarrow 26, K = 4,5$  et  $6$  à  $689 GHz$ ,  $J = 33 \rightarrow 34, K = 2,3$  et  $4$  à  $900 GHz$  et  $J = 45 \rightarrow 46, K = 4,5$  à  $1,215 THz$ . Ces raies ont été mesurées soit par une détection après modulation de fréquence, soit après modulation d'amplitude. On enregistre donc soit la dérivée première du profil de la raie d'absorption soit le profil de la raie elle même (FIG. 4.9).

Comme on l'a vu, la puissance émise par le photomélangeur diminue avec l'augmentation de la fréquence du rayonnement (cf. chapitre 2 section 2.6.1). Cependant à  $1.215 THz$ , plage de fréquence de mesure où la puissance de rayonnement du photomélangeur est plus faible, le rapport signal sur bruit pour les raies détectées en balayage fin est de l'ordre de  $25 : 1$  en une acquisition pour des raies d'intensité de l'ordre de  $7 \cdot 10^{-3} cm^{-1}$ .

**Traitement des enregistrements** Les enregistrements sont traités afin de s'affranchir de la ligne de base existante. Pour cela, en modulation d'amplitude, on réalise le rapport entre le signal obtenu cellule vide et le spectre d'absorption de la raie. La détermination expérimentale des fréquences de modulation des MAO pour enregistrer les raies d'absorption de  $CH_3^{35}Cl$  à haute fréquence est

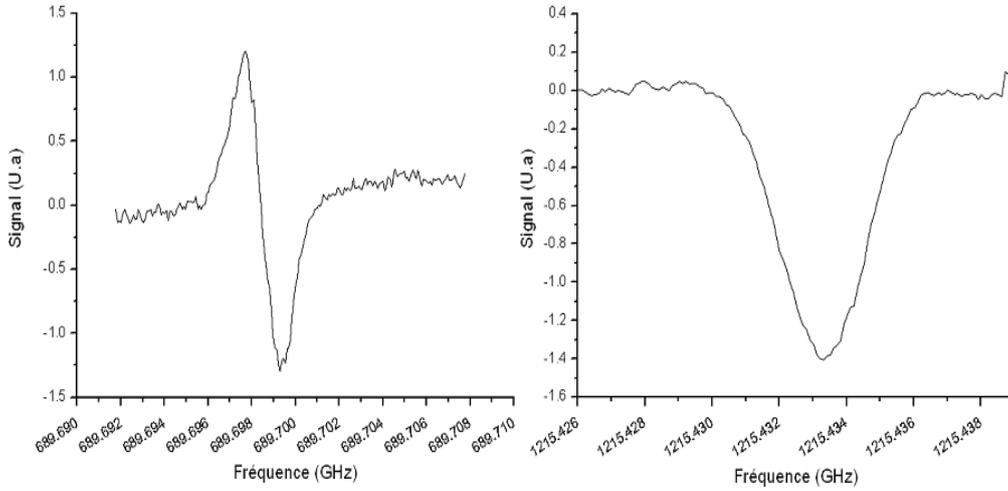


FIG. 4.9: Raies d'absorption  $J = 25 \rightarrow 26, K = 5$  à  $689 \text{ GHz}$  enregistrée à une pression de  $2 \text{ Pa}$  en modulation de fréquence (modulée à  $100 \text{ kHz}$  sur une profondeur de  $200 \text{ kHz}$ ) et  $J = 45 \rightarrow 46, K = 5$  à  $1.215 \text{ THz}$  à une pression de  $5 \text{ Pa}$  en modulation d'amplitude (à  $500 \text{ Hz}$ ) sur une acquisition.

ensuite réalisée par l'application d'une méthode des moindres carrés en utilisant un ajustement du profil des raies par un profil de Voigt dans le cas des raies d'absorptions enregistrées à haute fréquence et par un profil de Lorentz à basse fréquence. Connaissant la fréquence centrale de la raie d'absorption en terme de fréquence des MAO ainsi que les fréquences d'asservissement des diodes, on peut alors remonter à la fréquence vraie du centre de la raie d'absorption par l'application de la formule (3.35). Cependant cette opération nécessite d'avoir une bonne calibration de l'intervalle spectral libre de notre cavité d'asservissement.

### Calibration de l'intervalle spectral libre.

**Intervalle spectral libre de la cavité** A partir de ces mesures nous avons tout d'abord pu définir avec plus de précision l'intervalle spectral libre ( $\Delta\nu_{FSR}$ ) de notre cavité. En effet nous savons que la fréquence d'émission d'un photomélangeur s'exprime suivant la relation

$$\omega = R \times \Delta\nu_{FSR} \pm 2(\omega_{MAO1} \pm \omega_{MAO2}) \pm (\delta\omega_{DCLE1} - \delta\omega_{DCLE2}) \quad (4.7)$$

Pour chaque raie enregistrée,  $R$  est un entier connu, et les fréquences expérimentales de modulation des MAO au centre de la raie le sont aussi. En connaissant

les fréquences de transitions prédites de chacune des raies que nous avons enregistrées, il est alors possible de déterminer la valeur de  $\Delta\nu_{FSR}$ , qui permet de détecter les raies d'absorption aux fréquences prédites, par la relation

$$\Delta\nu_{FSR} = \frac{\omega_{Predit} \mp 2(\omega_{MAO1} \mp \omega_{MAO2}) \mp (\delta\omega_{DCLE1} - \delta\omega_{DCLE2})}{R}$$

Le terme  $(\delta\omega_{DCLE1} - \delta\omega_{DCLE2})$  de l'expression (4.7) lié au décalage du point d'asservissement des diodes est négligé dans une première approximation. Pour obtenir  $\omega_{Predit}$ , la fréquence de transition sans structure hyperfine de chaque raie est tout d'abord calculée à partir des paramètres du tableau (4.1) et de la formule (4.1). Les incertitudes  $\sigma$  sur ces fréquences calculées sont calculées suivant la loi de propagation des erreurs. A cette valeur de fréquence non perturbée est alors rajouté un terme de décalage en fréquence lié à la déviation en fréquence de chaque composante hyperfine moyenné par leurs intensités respectives. Ce calcul permet d'évaluer au mieux la contribution au décalage en fréquence de toutes les composantes hyperfines. La somme de ces deux termes donne pour chaque raie la fréquence  $\omega_{Predit}$ .

$\Delta\nu_{FSR}$  est calculé pour les transitions à haute fréquence que nous avons enregistrées expérimentalement ce qui a permis de définir une valeur de  $749.101898\text{ MHz}$  avec un écart type de  $155\text{ Hz}$  (TAB. 4.5).

J	K	J'	K'	Fréquences de transition calculées (MHz)	Décalage hyperfin (MHz)	Fréquence de modulation MAO expérimentale (MHz)	Valeur de l'entier R	Intervalle spectral libre résultant (Hz)
25	4	26	4	689791.737 (31)	-0.0007	308884390	920	749102139
25	5	26	5	689699.088 (35)	-0.0006	262646747	920	749101950
33	2	34	2	901014.011 (63)	-0.0004	296889931	1202	749101690
33	3	34	3	900946.720 (64)	-0.0003	263060324	1202	749101996
33	4	34	4	900852.566 (66)	-0.0003	216008961	1202	749101954
45	4	46	4	1215596.189 (171)	-0.0001	276554670	1622	749101775
45	5	46	5	1215433.057 (177)	-0.0001	194980522	1622	749101785

TAB. 4.5: Détermination de l'intervalle spectral libre de la cavité (*ISL*) lié aux paramètres expérimentaux déterminés pour plusieurs raies d'absorption de  $\text{CH}_3^{35}\text{Cl}$ . Les incertitudes  $\sigma$  entre parenthèse portent sur le dernier chiffre.

Cette valeur est en accord avec la valeur approximative de  $749,104\text{ MHz}$  obtenue par le biais du battement de fréquence des deux diodes lasers au chapitre

précédent. Sa précision est cependant dépendante de manière très large de la précision avec laquelle les fréquences d'absorption du chlorométhane sont connues mais aussi du décalage à l'origine de la fréquence d'asservissement des diodes ( $\delta\omega_{DCE1} - \delta\omega_{DCE2}$ ) pour le moment difficile à évaluer en temps réel lors des expériences. La valeur de l'intervalle spectral libre ainsi déterminée a été utilisée par la suite pour déterminer les fréquences des raies d'absorption enregistrées avec notre spectromètre.

Une calibration plus « absolue » de l'intervalle spectral libre de la cavité pourra être réalisée de manière ultérieure. Les molécules types pour mener à bien ces mesures sont des molécules ne présentant pas de structure hyperfine comme OCS [206], CO [207, 88], ou dont le spectre est mieux connu pour les fréquences supérieures à 1 THz que celui de  $CH_3Cl$  comme  $HCN$ . La calibration tirera avantage d'un grand nombre de raies enregistrées.

**Application de l'ISL au pointé de fréquence** La fréquence des raies d'absorption mesurées expérimentalement est comparée aux fréquences calculées et avec celle provenant de la base de donnée JPL (TAB. 4.6) pondérées par un terme lié à la structure hyperfine (cf. méthode au dessus). Dans le cas des mesures réalisées à 265 GHz, on observe des doublets pour  $K > 3$ . La détermination de la fréquence calculée est réalisée de la même manière que précédemment mais dans le cas des  $K > 3$ , le décalage hyperfin calculé est alors défini en ne prenant en compte pour chaque raies du doublet que les contributions des deux composantes hyperfines correspondantes. A plus haute fréquence la structure hyperfine n'est pas résolue et le calcul de la fréquence prédite n'est pas modifié.

Pour voir si nos mesures sont cohérentes il est important de mettre en regard les incertitudes avec lesquelles les fréquences sont données dans la base de données, celles apportées par le calcul et les écarts entre fréquences mesurées et prédites.

**Informations apportées par la calibration** Si on compare les fréquences enregistrées grâce au spectromètre avec les fréquences calculées quand la structure hyperfine perturbe peu la raie on peut voir qu'on obtient un bon accord entre mesures et fréquences théoriques. Dans le cas où la structure hyperfine est très étendue perturbant beaucoup le pointé de fréquence cet écart augmente quelque peu. Comparativement à nos mesures on constate ainsi qu'à 256 GHz pour les valeurs de K faible ( $K=0,1$ ), les écarts sont plus faibles que la centaine de kHz. Dans le cas des raies de nombre quantique K plus élevés, la structure hyperfine non résolue enregistrée explique les écarts de fréquence avec les calculs de l'ordre de la centaine de kHz.

J	K	J'	K'	Fréquence mesurée expérimentalement (MHz)	Fréquence calculée (MHz)	Décalage Hyperfin (MHz)	$\nu_{\text{mes}} - \nu_{\text{prédit}}$ (MHz)	Fréquence JPL (MHz)	Décalage hyperfin (MHz)	$\nu_{\text{mes}} - \nu_{\text{JPL}}$ (MHz)
9	0	10	0	265785.2142	265785,1431 (20)	-0.0139	0.0850	265785,1170 (26)	0.0149	0.0823
9	1	10	1	265781.2155	265781,1687 (20)	-0.0132	0.0601	265781,1446 (25)	0.0138	0.0571
9	2	10	2	265769.0525	265769,2475 (23)	-0.0111	-0.1839	265769,2292 (23)	0.0108	-0.1875
9	3	10	3	265749.6891	265749,3864 (33)	-0.0076	0.3103	265749,3778 (22)	0.0057	0.3056
9	4	10	4	265722.5408	265721,5966 (52)	0.8862	0.0581	265722,5073 (27)	-0.0099	0.0434
9	4	10	4	265720.7304	265721,5966 (52)	-0.8910	0.0249	265720,6953 (27)	-0.0035	0.0386
9	5	10	5	265687.2477	265685,8938 (79)	1.3870	-0.0331	265687,3308 (37)	-0.0296	-0.0535
9	5	10	5	265684.4372	265685,8938 (79)	-1.3809	-0.0757	265684,4996 (37)	-0.0100	-0.0524
9	6	10	6	265644.018	265642,2983 (115)	1.9992	-0.2795	265644,3780 (52)	-0.0535	-0.3065
9	6	10	6	265639.9748	265642,2983 (115)	-1.9797	-0.3438	265640,3010 (52)	-0.0180	-0.3082
9	7	10	7	265593.5151	265590,8349 (163)	2.7227	-0.0424	265593,6732 (70)	-0.0819	-0.0762
9	7	10	7	265587.7107	265590,8349 (163)	-2.6874	-0.4368	265588,1239 (70)	-0.0274	-0.3859
9	8	10	8	265534.7849	265531,5327 (226)	3.5574	-0.3052	265535,2452 (94)	-0.1146	-0.3457
9	8	10	8	265527.7075	265531,5327 (226)	-3.5039	-0.3213	265527,9972 (94)	-0.0382	-0.2514
25	4	26	4	689791.5154	689791,737 (31)	-0.0007	-0.221	689791,743 (17)	0.0008	-0.228
25	5	26	5	689699.0402	689699,088 (35)	-0.0006	-0.047	689699,104 (18)	0.0007	-0.065
25	6	26	6	689585.5088	689585,957 (42)	-0.0006	-0.448	689585,985 (21)	0.0006	-0.477
33	2	34	2	901014.2619	901014,011 (63)	-0.0004	0.251	901013,847 (129)	0.0005	0.415
33	3	34	3	900946.6027	900946,720 (64)	-0.0003	-0.117	900946,570 (128)	0.0004	0.032
33	4	34	4	900852.4999	900852,566 (66)	-0.0003	-0.066	900852,435 (128)	0.0004	0.064
45	4	46	4	1215596.3888	1215596,189 (171)	-0.0001	0.200	1215595,147 (841)	0.0002	1.242
45	5	46	5	1215433.2405	1215433,057 (177)	-0.0001	0.183	1215432,070 (841)	0.0002	1.171

TAB. 4.6: Fréquences centrales des raies d'absorption mesurées. Comparaison de ces valeurs avec les fréquences calculées et celles données par la base de donnée du JPL. Les incertitudes  $\sigma$  sont données entre parenthèses et portent sur le dernier chiffre significatif.

Dans le cas des prédictions de la base de données JPL, on constate tout d'abord que l'incertitude des fréquences augmente rapidement avec la fréquence. Celle-ci devient du même ordre de grandeur que l'écart entre mesure et prévision au delà de  $900\text{GHz}$ . Par ailleurs les écarts entre mesure et prévision même dans le cas d'une faible perturbation par la structure hyperfine restent de manière générale bien inférieurs à  $400\text{kHz}$ .

On peut donc considérer que notre spectromètre dans la limite de raies peu perturbées par l'étendue spectrale de la séparation hyperfine, donne des indications sur les fréquences qui sont en accord avec les prédictions théoriques à une centaine de  $\text{kHz}$  près. Dans le cas de raies perturbées par une structure hyperfine non résolue très large les mesures sont précises à  $300\text{kHz}$  environ.

### 4.2.3 Conclusion des essais.

Cette caractérisation du spectromètre par mesures de raies d'absorption du chlorométhane a donc permis non seulement de caractériser le spectromètre en définissant des paramètres constitutif du montage important, mais aussi d'évaluer ses performances en matière d'asservissement et de sensibilité.

Les résultats obtenus avec la molécule test nous montrent donc qu'il est possible de réaliser avec notre spectromètre des mesures en modulation d'amplitude et en modulation de fréquence sur une large gamme spectrale du rayonnement millimétrique et submillimétrique. L'enregistrement de spectres peut être réalisée sur une plage spectrale de plusieurs  $\text{GHz}$  en balayant la fréquence d'émission d'une des diodes ou alors sur une plage spectrale plus faible mais avec une meilleure résolution en stabilisant les diodes et en balayant la fréquence de modulation des MAO. Les spectres du chlorométhane que nous avons enregistrés à haute fréquence nous ont permis dans un premier temps, de calibrer de manière précise l'intervalle spectral libre de notre cavité de référence.

Une fois ce point important déterminé, nous avons pu comparer nos mesures aux fréquences de transitions théoriques calculées pour chaque raie d'absorption. Pour cela, une analyse des profils observés prenant en compte l'influence des différentes composantes hyperfines des raies a été réalisée. Les fréquences de transition de chaque raie ont été pondérées par les intensités respectives des composantes hyperfines. Nos mesures semblent être en accord avec les calculs et la base de donnée du JPL en affichant des écarts inférieurs à la centaine de  $\text{kHz}$  quand la structure hyperfine ne perturbe pas trop les spectres. A haute fréquence, on constate des écarts par rapport aux fréquences prédites du même ordre de grandeur que les incertitudes sur les prédictions.

Toutes ces mesures ont été obtenues avec de bons rapports signal sur bruit. L'intensité des raies d'absorption que nous avons mesurées s'étalent entre  $10^{-1} \text{cm}^{-1}$  et  $10^{-3} \text{cm}^{-1}$ . Le rapport signal sur bruit de 25 :1 obtenu en une acquisition à  $1.215 \text{THz}$  pour des raies d'intensité de quelques  $10^{-3} \text{cm}^{-1}$  nous permet, en tenant compte de la décroissance du signal utile à la spectroscopie, d'estimer qu'il est possible de réaliser des mesures sur des raies d'absorption d'intensité  $10^{-3} \text{cm}^{-1}$  jusqu'à  $1.5 \text{THz}$ . Cette constatation semble cohérente avec les données vues dans le chapitre sur le photomélange. Pour améliorer encore ces performances en matière de sensibilité, il faudra augmenter la puissance de rayonnement généré par le photomélangeur en augmentant les puissances optiques incidentes, améliorer le couplage dans la cellule de spectroscopie ou encore utiliser une cellule de spectroscopie multipassages pour laquelle nous avons mis au point des miroirs à grille polarisante (cf. annexe E) [208].

### 4.3 Élargissement collisionnel de raies d'absorption de l'eau.

#### 4.3.1 Une molécule d'intérêt atmosphérique.

La molécule d'eau ( $H_2O$ ), est une toupie asymétrique de symétrie  $C_{2v}$  (FIG. 4.10). C'est l'une des molécules les plus simples connue à ce jour, mais son universalité et sa complexité inattendue en font l'une des plus intéressantes à étudier.

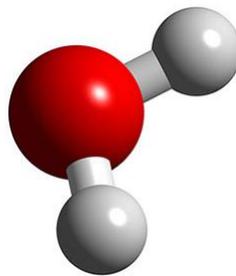
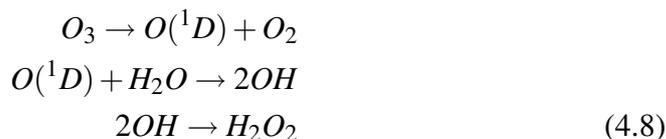


FIG. 4.10: Structure d'une molécule d'eau

L'eau est une molécule très recherchée dans le milieu interstellaire [209, 210, 211]. On a mis en évidence sa présence dans les milieux protoplanétaires [212] ou même encore dans le soleil [213]. Elle est supposée jouer un rôle important dans la chimie interstellaire en se déposant sur les grains sous forme de glace

[214, 215]. Ces grains de matière sont exposés au rayonnement UV et interagissent avec d'autres grains. La glace à leur surface piège les atomes et permet leur interaction [216]. Les grains entourés de glace semblent donc être des sites privilégiés de création de molécules complexes comme  $CO_2$  [217] ou encore  $CH_3OH$  [218].

L'importance de l'eau dans la chimie terrestre est cruciale, tout particulièrement dans l'atmosphère [219, 220]. Elle joue tout d'abord le rôle de régulateur du climat. La présence de vapeur d'eau dans la troposphère est à la source de la formation des nuages et des pluies. L'eau réagit dans la troposphère avec des polluants primaires comme  $SO_2$  pour former de l'acide sulfurique  $H_2SO_4$  responsable de pluies acides. Dans la stratosphère, l'eau prend une part active dans la chimie qui entre en jeu dans les échanges radiatifs et l'effet de serre [221]. En effet, les radicaux Hydroxyl  $OH$  obtenus par radiolyse et les peroxydes d'hydrogène  $H_2O_2$  (Formule 4.8) formés à partir de la vapeur d'eau [222] sont des espèces réactives (oxydantes) qui sont très impliquées dans la chimie atmosphérique au même titre que l'ozone.



La vapeur d'eau est actuellement observée dans l'atmosphère par plusieurs satellites comme Odin [223].

Que ce soit dans le but de réaliser des observations astrophysiques depuis le sol ou pour évaluer l'impact de la vapeur d'eau sur le climat terrestre, l'étude de la propagation du rayonnement électromagnétique à travers l'atmosphère est importante [224, 225]. La détermination de la position des raies d'absorption, de leur forme et de leur intensité permet la mise en place de fenêtres d'observations atmosphériques pertinentes pour des sondages à distance. L'évaluation des intensités et des formes de raies permet aussi de nettoyer les spectres observés, ce qui facilite leur interprétation. L'identification progressive des raies et leur attribution à des molécules déjà connues permet d'identifier d'autres raies liées à de nouvelles espèces moléculaires. Ces données contribuent aussi à résoudre des problèmes de modélisation du spectre d'absorption de l'atmosphère qui reste mal compris à l'heure actuelle, comme par exemple le rôle du continuum d'absorption de l'eau et les effets lointains d'ailes des raies [226].

Dans ce but, le spectre millimétrique et submillimétrique de l'eau et celui de ses isotopomères est étudié en laboratoire dans l'état fondamental et dans des états de vibration excités [227, 228, 229, 230, et références citées dans ces articles].

**Élargissement collisionnel de raies de l'eau** Les paramètres de l'élargissement des raies d'absorption de l'eau par  $O_2$  et  $N_2$ , principaux constituants de l'air, sont aussi étudiés de manière extensive. Plusieurs études ont été réalisées dans la plage submillimétrique par des équipes utilisant des techniques expérimentales différentes. Dick et al. [231] ont étudié la dépendance en température de l'élargissement collisionnel de la raie ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) avec un spectromètre à multiplicateur actif. Seta et al. [232] utilisent un spectromètre TéraHertz résolu en temps alors que Markov et al. [233], dont les mesures ont été reprises par Golubiatnikov et al. [234], font usage d'un spectromètre utilisant l'effet photo-acoustique. Les valeurs d'élargissement collisionnel obtenues par ces équipes affichent des écarts allant jusqu'à plus de 20%. Dans un premier test de faisabilité d'observation des profils de raies avec le spectromètre TéraHertz, nous avons étudié les raies d'absorption de l'eau ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) à 556 GHz, ( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ ) à 752 GHz, ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ ) à 1296 GHz et ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ ) à 1322 GHz. Les raies de l'eau pure ont tout d'abord été pointées en fréquence (TAB. 4.7) et montrent un bon accord avec les fréquences prédites dans la base de donnée JPL [202] en tenant compte des écarts types estimés.

Transition	Fréquence JPL (MHz)	Fréquence de pointé expérimental (MHz)	$v_{mes} - v_{JPL}$ (MHz)
( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ )	556936.002(50)	556935.910(100)	-0.092
( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ )	752033.227(100)	752033.167(100)	-0.057
( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ )	1296411.033(300)	1296410.741(100)	-0.291
( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ )	1322064.803(300)	1322064.962(100)	0.158

TAB. 4.7: Fréquences de pointé des raies de l'eau pure et comparaison avec les prévisions de la base de donnée du JPL.

Une étude exploratoire des paramètres d'élargissement a ensuite été lancée dont on présentera les premiers résultats. On verra que nous avons été confronté à un problème d'intensité des raies qu'il nous a fallu résoudre avant de commencer l'étude proprement dite.

### 4.3.2 Principe des mesures.

#### Protocole expérimental.

Le spectromètre TéraHertz est utilisé dans la même configuration que précédemment (FIG. 4.2) à l'exception du photomélangeur qui a été remplacé. Celui utilisé ici a un de temps de vie de porteur de 540 fs et émet plus de puissance dans la

partie basse du spectre que celui de  $320\text{fs}$  utilisé précédemment (cf.2.21). Pour contenir la vapeur d'eau, une cellule d'absorption en inox de 1.5 mètres de longueur est mise sous vide à l'aide d'une pompe turbomoléculaire. La pression à l'intérieure de la cellule est mesurée par le biais d'une jauge Baratron MKS de gamme  $10^{-4}\text{Torr} - 1\text{Torr}$ . L'étude a été réalisée à température ambiante  $297 \pm 1\text{K}$  stabilisée par le climatiseur du local.

On utilise pour cette étude un échantillon d'eau distillée et des bouteilles de gaz  $N_2$  et  $O_2$  de grande pureté (pour  $N_2$  supérieure à 99.9999% et pour  $O_2$  supérieure à 99.995%). Les gaz perturbateurs,  $N_2$  et  $O_2$  sont introduits dans la cellule par une vanne micrométrique qui permet de contrôler avec précision la pression de gaz désirée.

Avant chaque série de mesures, on réalise une première acquisition avec la cellule vide. Celle-ci permet de déterminer la puissance de rayonnement transmise  $S_0(\nu)$  en l'absence de gaz. On introduit ensuite un excès de vapeur d'eau par rapport à la pression d'eau pure à laquelle on désire travailler. Une partie de cette vapeur d'eau est adsorbée par les parois de la cellule. On attend ensuite 20 minutes pour que la pression s'homogénéise et on pompe le trop plein afin de ne laisser qu'une pression de vapeur de l'ordre de  $15 \cdot 10^{-3}\text{Torr}$ . Une acquisition est réalisée sans gaz perturbateur quand la pression d'eau est bien stabilisée. Des acquisitions avec différentes pressions de gaz perturbateurs sont ensuite enregistrées sur la gamme accessible avec la jauge Baratron. Chaque spectre  $S(\nu)$  est réalisé en balayant une plage spectrale de  $42\text{MHz}$  et enregistré après moyennage sur deux ou quatre acquisitions soit environ une à deux minutes pour un spectre de 400 points.

### Forme théorique des raies : Traitement des spectres

Les mesures sont réalisées en modulation d'amplitude à  $500\text{Hz}$  avec un hacheur mécanique. La modulation d'amplitude permet grâce à une détection synchrone d'accéder directement à la forme vraie des raies d'absorption étudiées. Ce profil est modélisé par la loi de Beer-Lambert [235]

$$S(\nu) = S_0(\nu) \exp[-\alpha(\nu) \cdot L] \quad (4.9)$$

où  $L$  représente la longueur de la cellule et  $\alpha(\nu)$  le coefficient d'absorption de la molécule à la fréquence  $\nu$ . Le signal enregistré pour chaque raie d'absorption divisé par celui obtenu à vide devrait donner accès au terme en exponentielle de l'expression (4.9) appelé transmittance de la raie  $T(\nu)$ .

$$T(\nu) = \frac{S(\nu)}{S_0(\nu)} = \exp[-\alpha(\nu).L] \quad (4.10)$$

dans lequel  $\alpha(\nu)$  est dépendant de la constante  $S_{AB}$  exprimée en  $MHz/Torr/cm$ , appelée aire de la raie et de la pression de gaz actif introduit dans la cellule  $P_{H_2O}$  [236, 237] :

$$\alpha(\nu) = S_{AB}.P_{H_2O}.f(\nu) \quad (4.11)$$

La fonction  $f(\nu)$  est la forme de raie normalisée telle que

$$\int f(\nu)d\nu = 1 \quad (4.12)$$

Ainsi  $f(\nu)$  est une grandeur homogène à l'inverse d'une fréquence.

Dans cette étude la forme de  $f(\nu)$  est un profil de Voigt. Cette fonction est la convolution d'une fonction gaussienne caractérisant l'élargissement Doppler de la raie et d'une lorentzienne liée à l'élargissement par pression dû aux collisions moléculaires.

### 4.3.3 Mise en oeuvre du protocole : Intensité de la raie à 1322GHz

Avant de mener à bien l'étude sur l'élargissement induit par collision avec  $O_2$  et  $N_2$ , on réalise une brève étude sur l'auto-élargissement de la raie ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ ) à 1322 GHz. Pour cela, des pressions croissantes de vapeur d'eau sont introduites dans la cellule. Après chaque introduction d'eau, on attend 20 minutes pour que la pression se stabilise, puis on enregistre les spectres (exemple FIG. 4.11). La courbe gaussienne  $S_0(\nu)$  obtenue cellule vide traduit l'évolution de la puissance du rayonnement TéraHertz généré par photomélangé lié à l'efficacité de la modulation acousto-optique du faisceau de la diode DCLE1 (cf. chapitre 2, section 2.3.2). Le réglage du modulateur acousto-optique est réalisé de manière à « centrer » la raie d'absorption considérée par rapport à la gaussienne de puissance de rayonnement générée.

A partir des relevés de  $S(\nu)$  et  $S_0(\nu)$  (FIG. 4.11) et en utilisant la relation (4.10) on obtient les relevés de transmittance (FIG. 4.12).

On constate tout d'abord un bruit important dans les ailes des spectres qui sera commenté en détail plus loin (cf. section 4.3.4). Pour les plus hautes pressions de

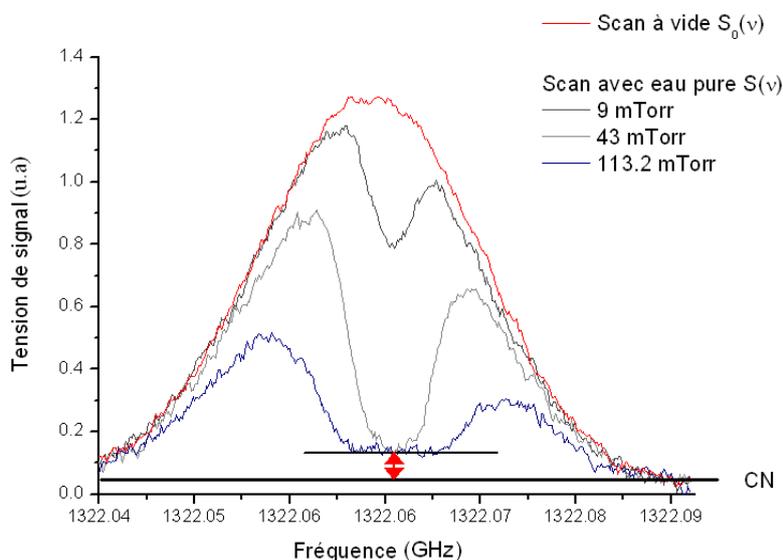


FIG. 4.11: Spectres bruts de la raie ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ ) à  $1322 \text{ GHz}$  et à  $297 \text{ K}$  obtenus en sortie de détection synchrone pour différentes pressions d'eau pure. Le seuil noté CN indique le 0 de puissance générée par le photomélangeur. Le décalage CN est lié au rayonnement de corps noir détecté par le bolomètre.

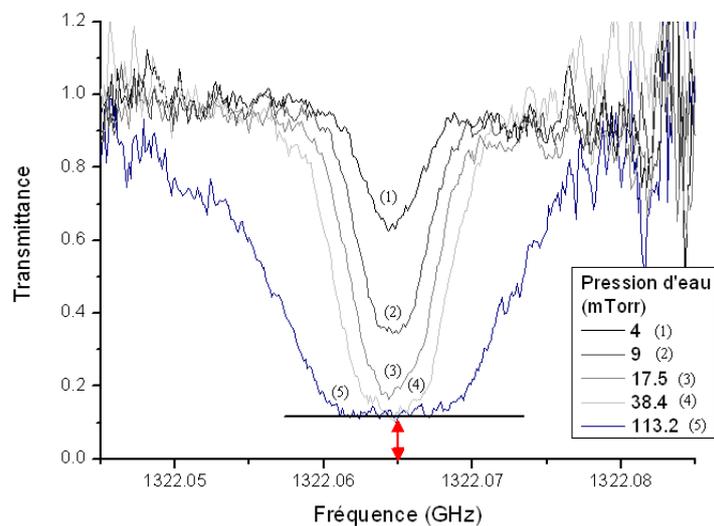


FIG. 4.12: Raie de la vapeur d'eau à  $1322 \text{ GHz}$  à  $297 \text{ K}$  en fonction de la pression d'eau introduite dans la cellule.

vapeur d'eau, la raie est saturée et présente un fond plat, l'intégralité du rayonnement à la fréquence centrale de la raie étant absorbée. Cependant la transmittance ne paraît pas nulle. Le décalage par rapport au 0 de transmittance, figuré par une double flèche sur la figure (4.12) est évalué à 13%.

### Interprétation du décalage.

Une première interprétation possible du décalage du 0 est celle d'une contribution du rayonnement de corps noir.

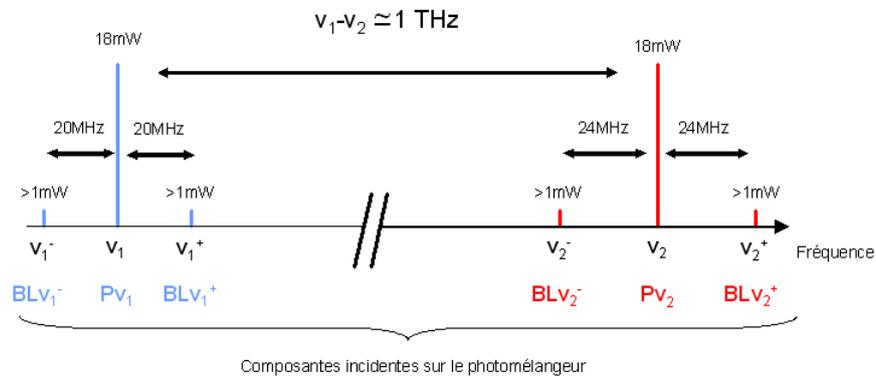
Le bolomètre est sensible au rayonnement de corps noir de la pièce dans laquelle il se trouve. Ainsi, même si aucun rayonnement n'est généré par le photomélangeur comme c'est le cas dans les ailes des spectres de la figure (4.11) le signal détectée par le bolomètre n'est pas exactement nul. Le 0 de transmittance des acquisitions est donc modifié par ce rayonnement de corps noir.

Cette implication du rayonnement de corps noir sur le décalage du 0 a été rejetée. En effet, comme on le voit sur la figure (4.11) le seuil de signal détecté par le bolomètre lié au corps noir CN, matérialisé par une droite noire, est bien inférieur au décalage du 0 que subit effectivement la raie lorsqu'on introduit une pression de 113.2 *mTorr* d'eau pure dans la cellule. Si le décalage du 0 était dû au corps noir, alors on aurait sur les ailes des spectres un décalage similaire à celui observé au centre de la raie, ce qui n'est pas le cas ici. Le décalage de transmittance de la raie a donc une autre origine.

Une explication possible de ce décalage est lié à la méthode de stabilisation.

Pour asservir les deux diodes sur les résonances de la cavité Fabry-Pérot, on module leur courant d'injection respectivement à 20 *MHz* et 24 *MHz* (FIG. 4.13). Cette modulation crée des bandes latérales de fréquences ( $BLV_1-$ ,  $BLV_1+$ ,  $BLV_2-$  et  $BLV_2+$ ) de part et d'autre des porteuses ( $PV_1$  et  $PV_2$ ) dont l'intensité est de l'ordre de 5% de celle des porteuses. Lorsqu'on superpose les rayonnements des deux diodes pour le photomélangement, on superpose spatialement leurs porteuses, mais aussi leurs bandes latérales qui vont éclairer également le photomélangeur.

Le photomélangeur réalise la différence de fréquences des faisceaux incidents. Il génère donc en majeure partie du rayonnement à la fréquence différence des deux porteuses,  $PV_1$  et  $PV_2$ , qui sont les composantes spectrales les plus intenses. Cependant, il peut aussi générer du rayonnement en faisant la différence de fréquence entre les bandes latérales de faible intensité d'une diode et la porteuse de l'autre diode (par exemple entre la porteuse laser de la diode1,  $PV_1$ , et la bande latérale « plus » de la diode 2,  $BLV_2+$ ).



Lors du photomélange battements possibles entre:

- |   |                                   |   |
|---|-----------------------------------|---|
| <p><math>Pv_2</math> (18mW) et <math>Pv_1</math> (18mW)</p> <p><math>BLv_1^- (&gt;1mW)</math> et <math>Pv_2</math> (18mW)</p> <p><math>BLv_1^+ (&gt;1mW)</math> et <math>Pv_2</math> (18mW)</p> <p><math>BLv_2^- (&gt;1mW)</math> et <math>Pv_1</math> (18mW)</p> <p><math>BLv_2^+ (&gt;1mW)</math> et <math>Pv_1</math> (18mW)</p> | <p>—————&gt;</p> <p>—————&gt;</p> | <p>Signal intense à la fréquence <math>v_1 - v_2</math> qui contribue au spectre</p> <p>Composantes faibles aux fréquences <math>v_y - v_x^\pm</math> qui ne sont pas résonantes avec la raie étudiée</p> |
|---|-----------------------------------|---|

FIG. 4.13: Le photomélangeur détecte les porteuses des diodes 1 et 2 ainsi que leurs bandes latérales. Du rayonnement peut être généré par battement entre porteuse d'une diode et bandes latérales de l'autre.

Le rayonnement incident détecté par le bolomètre comporte plusieurs composantes :

- Une composante très intense issue de la réponse du photomélangeur au battement des porteuses
- Des composantes faibles, issues des battements entre porteuses et bandes latérales.

Les composantes de signal liées aux bandes latérales ne contribuent pas au spectre que l'on enregistre car elles sont non résonantes avec la raie étudiée. Elles sont néanmoins détectées par le bolomètre. Lorsque l'épaisseur optique de la raie est très grande devant l'unité, la totalité du rayonnement lié au battement entre les porteuses est absorbé mais pas celui lié aux battements entre une porteuse et les bandes latérales, ce qui conduit à un décalage du 0 de transmittance.

Avec le programme de simulation des puissances de rayonnement généré par photomélange (chapitre 2), on peut évaluer la puissance de chacune des composantes dans des conditions usuelles. En sommant les puissances des contributions porteuse/bandes latérales, on atteint 10% environ de la puissance obtenue par le battement des deux porteuses. Ces 10% de rayonnement « parasite » expliquent donc l'allure de nos spectres.

**Une nouvelle définition de  $T(\nu)$ .**

Ce décalage du 0 de transmittance modifie le profil (4.9). Le signal que l'on enregistre lors des acquisitions à vide noté  $S_0(\nu)$  peut alors être exprimé en fonction de l'intensité du rayonnement généré par les deux porteuses  $I_{porteuse}(\nu)$  augmenté d'une proportion  $p$  liée au signal généré par les bandes latérales, définissant le décalage du 0 de transmission.

$$S_0(\nu) = I_{porteuse}(\nu)[1 + p] \quad (4.13)$$

Le signal enregistré par le bolomètre en présence de gaz  $S(\nu)$  peut aussi être exprimé en fonction du profil d'intensité de la raie  $I(\nu)$  et des paramètres précédents.

$$I(\nu) = T(\nu) \cdot I_{porteuse}(\nu) \quad (4.14)$$

$$S(\nu) = I(\nu) + p I_{porteuse}(\nu) \quad (4.15)$$

A partir de l'expression du rapport de  $S(\nu)$  par  $S_0(\nu)$ , qu'on appelle pseudo-transmittance, on peut donc remonter à la vraie forme de la transmittance  $T(\nu)$ .

$$\frac{S(\nu)}{S_0(\nu)} = \frac{T(\nu) + p}{1 + p} = \frac{\exp[-\alpha(\nu) \cdot L] + p}{1 + p} \quad (4.16)$$

ou bien

$$T(\nu) = \frac{S(\nu)}{S_0(\nu)}(1 + p) - p \quad (4.17)$$

Par la suite pour éviter la propagation des erreurs, chaque profil enregistré sera analysé en utilisant la relation (4.16). Compte tenu de l'équation (4.11) on aura :

$$\frac{S(\nu)}{S_0(\nu)} = \frac{\exp[-S_{AB} \cdot P_{H_2O} \cdot L \cdot f(\nu)] + p}{1 + p} \quad (4.18)$$

où le terme  $L$  désignant la longueur de la cellule d'absorption est connu a priori.

Dans ce travail,  $f(\nu)$  est un profil de Voigt, dont la contribution gaussienne a une demi largeur à mi-hauteur  $\Delta\nu_d$  (exprimée en Hertz) laissée fixe lors de la régression, car liée à la contribution de l'effet Doppler à la largeur de la raie étudiée. Elle découle de la relation

$$\Delta v_d = \frac{v_0}{c} \left( \frac{2 \ln 2 \cdot RT}{M} \right)^{1/2} \quad (4.19)$$

Où  $R$  est la constante des gaz parfaits et  $c$  la vitesse de la lumière. A partir de (4.19) on obtient la relation (4.20) vue précédemment

$$\Delta v_d = \frac{7.15 \cdot 10^{-7}}{2} \left( \frac{T}{M} \right)^{1/2} v_0 \quad (4.20)$$

Avec  $M = 18 \text{ g/mol}$  et  $T = 297\text{K}$ .

La largeur Doppler de chacune des raies est répertoriée dans le tableau suivant (TAB. 4.8).

Transition	Fréquence (MHz)	Demi-Largeur Doppler $\Delta v_d$ (MHz)
(1 <sub>10</sub> ← 1 <sub>01</sub> )	556935.910	0.807
(2 <sub>11</sub> ← 2 <sub>02</sub> )	752033.167	1.090
(8 <sub>27</sub> ← 7 <sub>34</sub> )	1296410.741	1.892
(6 <sub>25</sub> ← 5 <sub>32</sub> )	1322064.962	1.929

TAB. 4.8: Demi-largeur à mi-hauteur de la composante Doppler utilisée lors des ajustements par profil de Voigt pour chaque fréquence de transition mesurée à 297K.

La comparaison du profil expérimental avec le profil théorique de Voigt est réalisée par la méthode des moindres carrés. Son résultat permet de définir la fréquence centrale de chaque raie  $\nu_0$ , la surface des pics d'absorption  $A$ , définie comme

$$A = S_{AB} \cdot P_{H_2O} \cdot L \quad (4.21)$$

ainsi que leur demi largeur collisionnelle  $\Delta \nu_l$  (partie lorentzienne du profil).

### Mesure de l'amplitude de la raie.

Afin de vérifier la pertinence de l'utilisation du profil (4.18) pour les ajustements de l'étude par gaz perturbateur, on a analysé l'évolution de l'amplitude de la raie de l'eau ajustée pour différentes valeurs du paramètre  $p$ . On a vu par la relation

(4.21) que l'amplitude  $A$  de la raie étudiée est proportionnelle à la pression du gaz absorbant. Le profil (4.18) sera donc validé si l'amplitude que l'on obtient après ajustement pour les acquisitions réalisées à  $1322\text{ GHz}$  évolue linéairement avec la pression d'eau introduite. On vérifiera que la valeur de  $p$  choisie tient compte des observations expérimentales et conduit à un résultat cohérent avec la valeur du paramètre  $S_{AB}$  défini dans la base de donnée HITRAN [238, 239].

Lors de cette procédure, la demi-largeur gaussienne de  $f(\nu)$ , la fonction de Voigt, est fixée par la formule (4.20). La demi-largeur lorentzienne de  $f(\nu)$ , notée  $\Delta\nu_l$ , est obtenue par le biais du coefficient d'auto-élargissement  $\gamma^{H_2O}$  de la raie de l'eau à  $1322\text{ GHz}$  et dépend de la pression de vapeur d'eau introduite  $P_{H_2O}$ .

$$\Delta\nu_l = \gamma^{H_2O} \cdot P_{H_2O} \quad (4.22)$$

Pour la raie considérée la valeur de  $\gamma^{H_2O}$  n'est pas ajustée à cause de l'insuffisance du rapport signal sur bruit qui introduit une corrélation avec  $A$ . Sa valeur est ici fixée à celle donnée par HITRAN [240],  $\gamma^{H_2O} = 17\text{ MHz/Torr}$ .

On observe l'évolution de la valeur  $A$  déterminée par ajustement pour chaque pression de vapeur d'eau introduite, et ce, en fonction du paramètre  $p$ . On obtient approximativement des évolutions linéaires de  $A$  (FIG. 4.14).

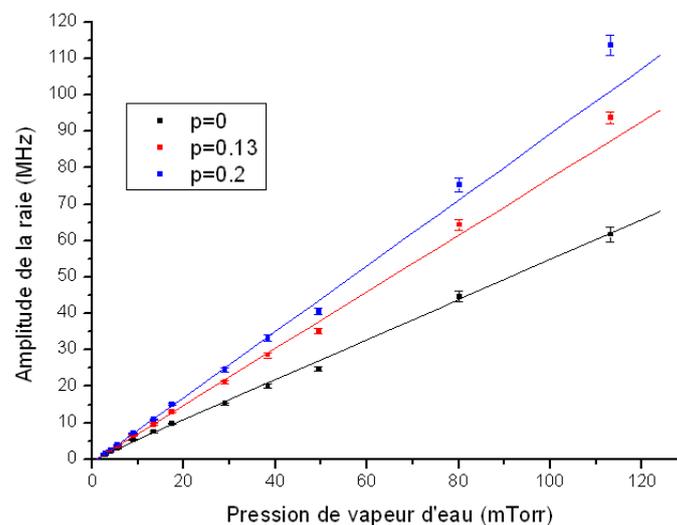


FIG. 4.14: Évolution de l'amplitude  $A$  de la raie de l'eau pure à  $1322\text{ GHz}$  en fonction de la pression introduite pour différentes valeurs du paramètre  $p$ .

A partir de ces courbes (FIG. 4.14) on peut remonter à la constante  $S_{AB}$  expérimentalement obtenue pour la raie considérée connaissant la longueur de la cellule  $L = 1.5m$ . L'évaluation de  $S_{AB}$  a été réalisée à partir des ajustements avec  $p = 0$ ,  $p = 0.13$  et  $p = 0.2$  qui donnent des valeurs de respectivement  $3.64(9) \text{ MHz/Torr/cm}$ ,  $5.19(10) \text{ MHz/Torr/cm}$  et  $6.04(14) \text{ MHz/Torr/cm}$ . Ces valeurs sont comparées à celle de la base de données HITRAN de  $5.57(11) \text{ MHz/Torr/cm}$ . Bien que  $p = 0$  donne une meilleure linéarité de l'évolution de  $A$ , on a conservé la valeur expérimentale de  $p = 0.13$  déduite de la figure (FIG. 4.12) et qui semble en meilleur accord avec les caractéristiques des signaux étudiés.

### Conclusion.

L'évaluation de l'intensité de la raie de l'eau pure à  $1322 \text{ GHz}$  avec le protocole expérimental de départ a montré un décalage du zéro de transmittance que l'on a relié à la manière dont sont stabilisées les diodes lasers. Ce décalage a nécessité de redéfinir l'expression donnant la transmittance  $T(\nu)$  en fonction du rapport  $S(\nu)/S_0(\nu)$  (4.18), appelé pseudo-transmittance, auquel on a accès expérimentalement et d'un paramètre  $p$  définissant le décalage de la transmittance. L'ajustement des spectres expérimentaux par la relation (4.18) a été validé par la comparaison de l'amplitude de la raie de l'eau pure à  $1322 \text{ GHz}$  obtenue expérimentalement avec celle de la base de données HITRAN et une valeur optimum du paramètre  $p$  a été déterminée de l'ordre de 13%. On considère que les paramètres d'asservissement utilisés dans l'étude de chaque raie sont sensiblement les mêmes. Ainsi les profils obtenus lors des expériences d'élargissement par gaz perturbateurs seront ajustés en utilisant la relation définissant la pseudo-transmittance dans laquelle  $p$  sera conservé constant à 13%.

### 4.3.4 Application aux mesures d'élargissement collisionnel.

#### Mesures d'élargissement par $N_2$ et $O_2$ des raies de l'eau.

Le protocole expérimental est appliqué à l'étude de l'élargissement collisionnel des raies d'absorption ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ), ( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ ), ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ ) et ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ ) respectivement pointées dans le tableau (4.7). Le tableau (TAB. 4.9) retranscrit les conditions expérimentales imposées aux fréquences des diodes lasers et au modulateur acousto-optique de la diode DCLE1 pour réaliser les mesures sur chacune de ces raies.

On rappelle (cf. section 2.5.1 équation 2.31) que la fréquence du rayonnement généré par photomélange lors de ces mesures est telle que

$$\omega_{THz} = (\nu_1 - \nu_2) + 2\omega_{MAO} \quad (4.23)$$

On notera encore le caractère gaussien de  $S_0(\nu)$  (cf. section 2.3.2) déjà observé lors des mesures à  $1322 \text{ GHz}$  (FIG. 4.11). Il est lié à la bande passante de la modulation acousto-optique sans modification de l'angle d'incidence du rayonnement infrarouge de DCLE1 dans le MAO [115]. Les largeurs à mi-hauteur de  $S_0(\nu)$  données dans la dernière colonne du tableau (TAB. 4.9) traduisent donc la plage spectrale dans laquelle l'efficacité de génération du rayonnement par photomélange est la plus importante autour de la fréquence centrale de modulation acousto-optique utilisée. On constate que plus  $\omega_{MAO}$  augmente plus la plage spectrale utile du spectromètre diminue.

Pointé de fréquence de la raie (MHz)	Fréquence du battement des diodes $\nu_1 - \nu_2$ (MHz)	Fréquence centrale de la plage de balayage du MAO de DCLE1 (MHz)	Largeur à mi-hauteur de $S_0(\nu)$ (MHz)
556935.910	556582.661	$\approx 177$	30
752033.167	751349.137	$\approx 342$	16
1296410.741	1295946.169	$\approx 232$	26
1322064.962	1321415.632	$\approx 325$	18

TAB. 4.9: Conditions de modulation utilisées lors des mesures d'élargissement collisionnel.

Lors de l'enregistrement des spectres, nous avons été confronté à des problèmes techniques qui ont rendu plus difficile notre étude. On exposera certains de ceux-ci à travers les études à  $556 \text{ GHz}$  et  $752 \text{ GHz}$ .

**Mesures à 556 GHz** La position de la raie ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) à  $556 \text{ GHz}$  associée à un problème d'ordre matériel a imposé une fréquence de modulation du MAO de la diode DCLE1 en dehors de sa gamme d'utilisation usuelle. Cette contrainte a entraînée une diminution du rayonnement généré par photomélange, qui par conséquent a réduit les rapports signal à bruit de nos enregistrements. Les acquisitions de la raie perturbée par des pressions d'azote croissantes divisées par le signal de référence  $S_0(\nu)$  (FIG. 4.15(a)) donnent les spectres de pseudo-transmittance de la figure (FIG. 4.15(b)).

On constate qu'avec l'augmentation de la pression de gaz perturbateur, la raie d'absorption s'élargit et que son intensité décroît. En effet, lors de l'introduction d'un gaz étranger, le nombre de molécules d'eau « actives » dans la cellule reste

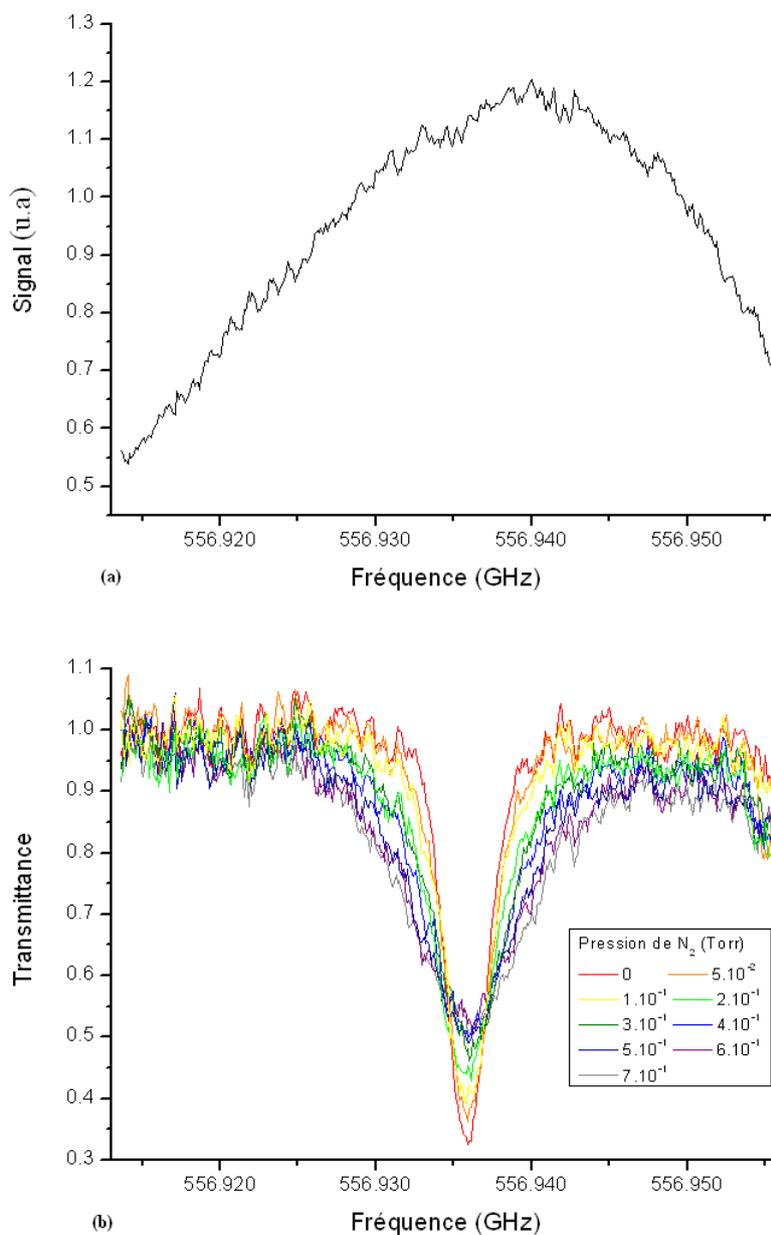


FIG. 4.15: (a) Signal d'émission à vide  $S_0(\nu)$  enregistrée en modulation d'amplitude à 556 GHz traduisant l'efficacité de génération du rayonnement Téra-hertz liée à l'efficacité de la modulation acousto-optique du faisceau de la diode DCLE1. (b) Profils de pseudo-transmittance de la raie d'absorption de l'eau ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) à 556 GHz en fonction de la pression de gaz  $N_2$  introduit dans la cellule enregistrés à 297K avec  $P_{H_2O} \text{ initiale} \approx 15 \cdot 10^{-3} \text{ Torr}$ .

fixe. Ce nombre de molécules conditionnant la surface de la raie, lorsque celle-ci s'élargit, l'intensité diminue pour que la raie garde la même surface [226].

Dans le cas où le gaz perturbateur introduit est  $O_2$ , on constate le même phénomène d'élargissement qu'avec  $N_2$ .

**Mesures à 752 GHz** Le même type de mesures est réalisé à 752 GHz. Là encore, on a dû utiliser le MAO en dehors de sa gamme de modulation usuelle ce qui entraîne des effets similaires à ceux rencontrés à 556 GHz au niveau du rapport signal à bruit. Cependant, le phénomène semble plus problématique à cette fréquence.

En effet, l'enregistrement du signal de référence réalisé cellule vide (FIG. 4.16(a)) met en évidence une diminution de la bande passante de l'efficacité du MAO par rapport à celle obtenue à 556 GHz (cf. TAB. 4.9, dernière colonne). Ce phénomène est lié à la plus grande fréquence de modulation utilisée ici (cf. chapitre 2). Sur les ailes des spectres, les valeurs de tension mesurées en sortie de détection synchrone pour la ligne de base et les spectres sont très petites. Lorsqu'on fait leur rapport, il en découle des fluctuations du signal de transmittance qui peuvent être importantes, comme on peut le voir sur la figure (FIG. 4.16) qui représente la pseudo-transmittance de la raie d'absorption en fonction de la pression de gaz  $N_2$  introduit. Ces fluctuations dégradent la précision des ajustements en masquant artificiellement les ailes des raies.

Afin de limiter les incertitudes liées aux ailes de chaque acquisition, les 40 premiers points et les 60 derniers ne sont pas pris en compte dans les procédures d'ajustement.

#### **Procédure d'ajustement.**

Pour confirmer les observations préliminaires, chaque profil enregistré est ensuite analysé par comparaison avec un profil obéissant à la relation (4.18) dans lequel la largeur de la contribution Doppler est fixée à celle indiquée par le tableau (4.8).

La figure (FIG. 4.17) illustre l'ajustement de la raie de l'eau à 556 GHz perturbée par 0.1 Torr de  $N_2$  avec une équation de ce type ainsi que le résidu obtenu. Le résidu de cet ajustement et ceux obtenus lors des ajustements pour les raies à plus haute fréquence ont permis de confirmer que le profil utilisé ici est pertinent et que, compte tenu des performances actuelles du spectromètre, un profil plus élaboré tel que celui de Galatry ou de Voigt dépendant des vitesses [226] n'est pas nécessaire.

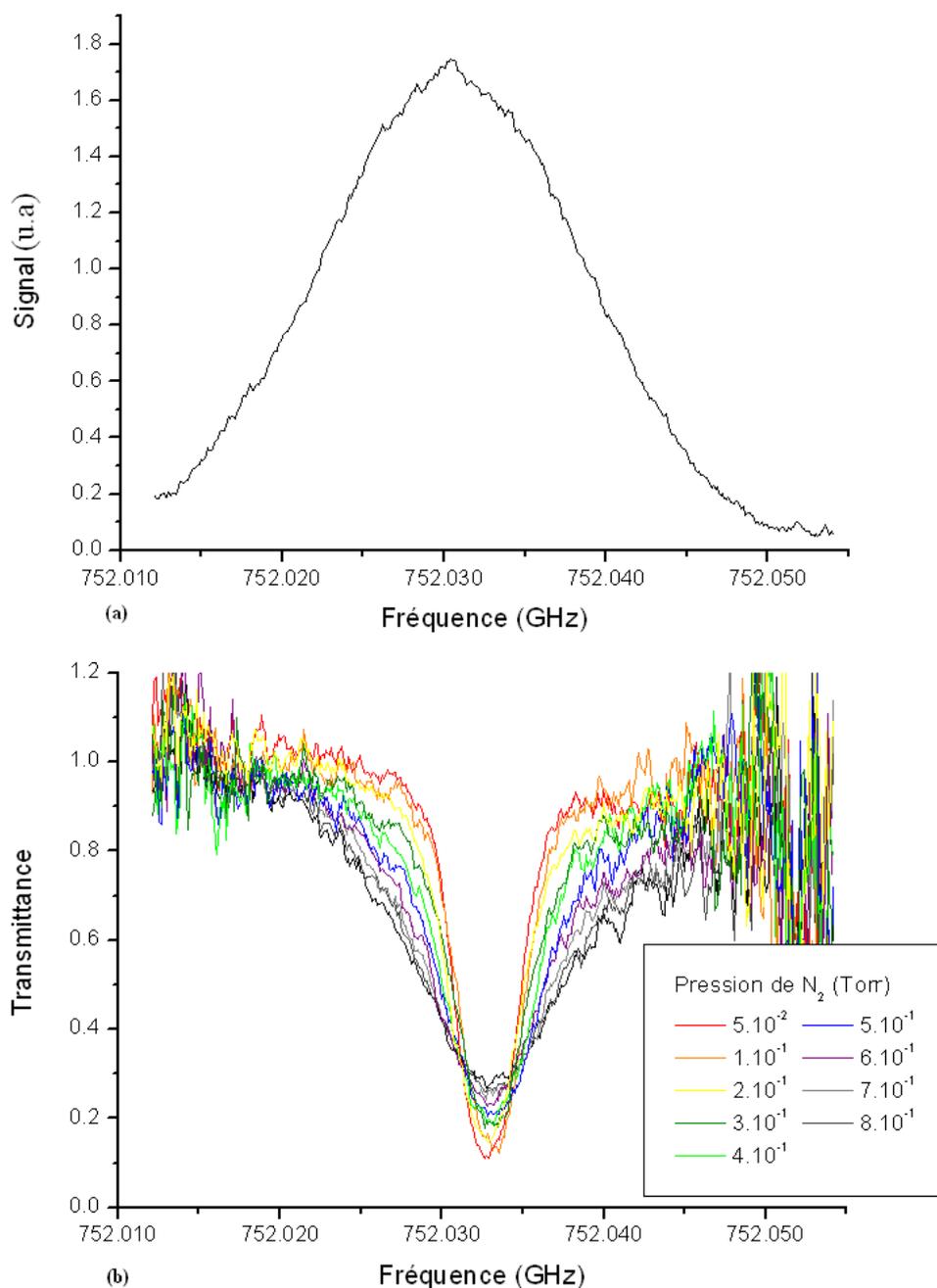


FIG. 4.16: (a) Signal d'émission à vide  $S_0(v)$  enregistree en modulation d'amplitude à 752 GHz. (b) Profils de pseudo-transmittance de la raie d'absorption de l'eau ( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ ) à 752 GHz en fonction de la pression de gaz  $N_2$  introduit dans la cellule enregistrés à 297K avec  $P_{H_2O}$  initiale  $\approx 15 \cdot 10^{-3}$  Torr.

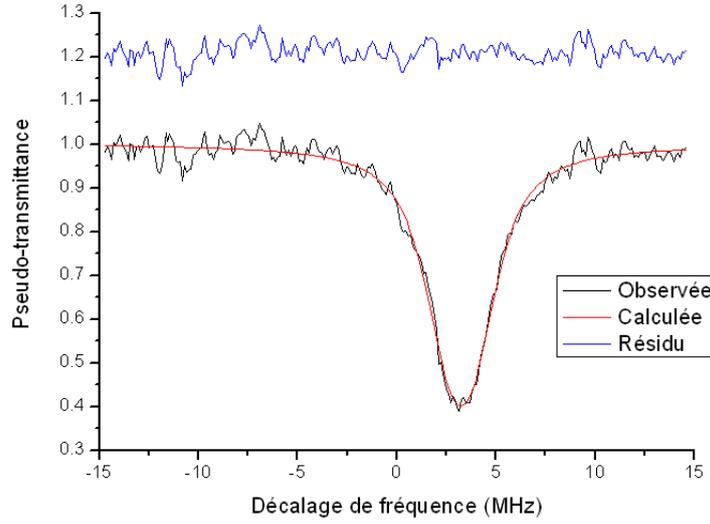


FIG. 4.17: Transmittance de la raie d'absorption de l'eau ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) à  $556 \text{ GHz}$  perturbée par  $0.1 \text{ Torr}$  de  $N_2$  et résidu de son ajustement par un profil de Voigt.

On en déduit la demi-largeur à mi-hauteur de la composante lorentzienne  $\Delta\nu_l$  pour la pression de gaz perturbateur introduite. Celle ci est modélisée en fonction du gaz perturbateur par la formule

$$\Delta\nu_l = \gamma^{H_2O} P_{H_2O} + \gamma^{Gaz} P_{Gaz} \quad (4.24)$$

Où  $\gamma^{H_2O}$  et  $\gamma^{Gaz}$  sont respectivement les coefficients d'auto-élargissement et d'élargissement par le gaz perturbateur de la vapeur d'eau et où  $P_{H_2O}$  et  $P_{Gaz}$  sont les pressions partielles de vapeur d'eau et de gaz perturbateur introduites dans la cellule. Comme  $P_{H_2O}$  est fixée lors des expériences par la quantité de vapeur d'eau introduite initialement,  $\Delta\nu_l$  ne doit varier qu'avec l'augmentation de  $P_{Gaz}$ .

Expérimentalement on constate que  $\Delta\nu_l$  évolue linéairement avec la pression de gaz perturbateur. L'évolution linéaire de la demi-largeur collisionnelle des raies de l'eau est ainsi mise en évidence pour les quatre fréquences d'absorption comme on peut le voir sur les graphiques suivants (FIG. 4.18, 4.19 et 4.20). L'ordonnée à l'origine de chaque courbe est lié à la pression de vapeur d'eau introduite initialement (composantes  $\gamma^{H_2O} P_{H_2O}$  de l'expression 4.24). Elle prend aussi en compte l'élargissement dû à une éventuelle fonction d'appareil du spectromètre. Elle n'a pas d'influence sur l'élargissement car ici on observe l'évolution de la largeur collisionnel en fonction de la pression de gaz perturbateur introduit.

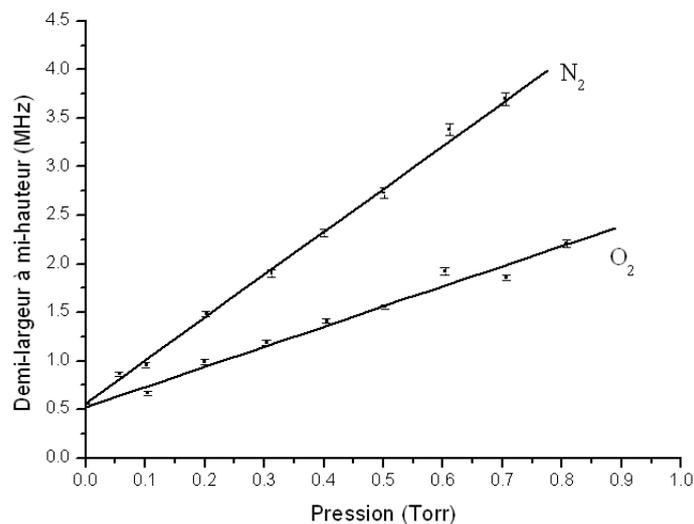


FIG. 4.18: Demi-largeur à mi-hauteur de la raie de la vapeur d'eau à  $556\text{ GHz}$  en fonction de la pression de gaz  $N_2$  et  $O_2$  introduite dans la cellule à  $297\text{K}$  et  $P_{H_2O} \approx 15 \cdot 10^{-3}\text{ Torr}$ . On trouve  $\gamma^{N_2} = 4.25(7)\text{ MHz/Torr}$   $\gamma^{O_2} = 2.10(7)\text{ MHz/Torr}$

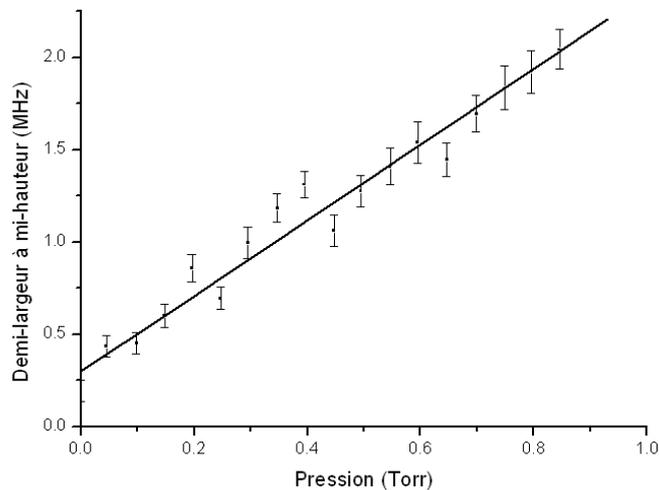


FIG. 4.19: Demi-largeur à mi-hauteur de la raie de la vapeur d'eau à  $1296\text{ GHz}$  en fonction de la pression de  $O_2$ . On trouve  $\gamma^{O_2} = 2.05(10)\text{ MHz/Torr}$

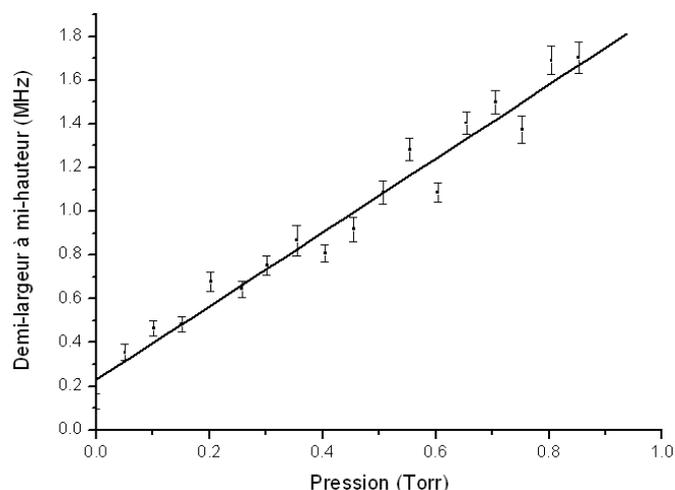


FIG. 4.20: Demi-largeur à mi-hauteur de la raie de la vapeur d'eau à 1322 GHz en fonction de la pression de  $O_2$ . On trouve  $\gamma^{O_2} = 1.70(8) \text{ MHz/Torr}$

Le coefficient d'élargissement par gaz perturbateur  $\gamma^{Gaz}$  est alors déterminé pour chaque raie. Pour cela, à partir des droites, une régression linéaire utilisant la méthode des moindres carrés est effectuée. La pente de la droite ainsi définie permet d'accéder à la valeur de  $\gamma^{Gaz}$ .

### Problème des incertitudes.

Les incertitudes de nos mesures peuvent avoir plusieurs origines connues mais restent difficile à maîtriser. Il peut y avoir une incertitude sur la détermination des pressions de vapeur d'eau et de gaz perturbateur introduit, cependant l'utilisation d'une jauge à capacitance nous permet d'obtenir des précisions de lecture de l'ordre de un pourcent. Le contrôle de la quantité d'eau adsorbée sur les parois de la cellule en inox est plus délicat. Si une partie de l'eau adsorbée sur les parois de la cellule est relâchée au cours de l'expérience alors  $P_{H_2O}$  augmente. Sur le temps d'enregistrement de chaque raie, une augmentation de la pression partielle d'eau est difficilement discernable.

L'observation de l'évolution des amplitudes des raies en fonction de la pression montre une variation d'environ 25% sur une série de mesure (FIG. 4.21). Si on considère que cette évolution est uniquement lié à une désorption de vapeur d'eau alors la contribution de l'auto-élargissement à la largeur de raie augmente elle aussi de 25%. Une évaluation rapide de cette contribution peut être obtenue en estimant l'évolution de la pression d'eau au cours d'une série de mesures que

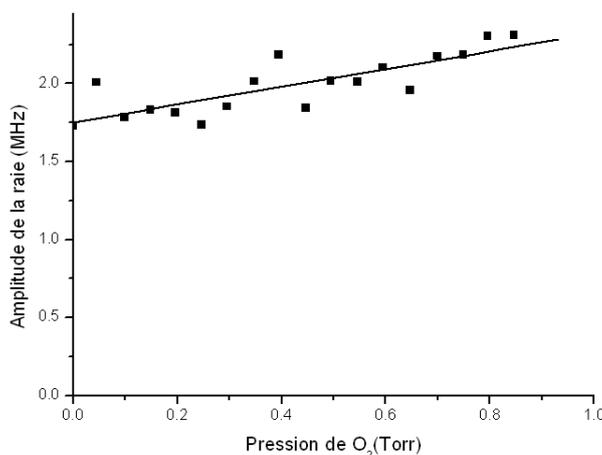


FIG. 4.21: Évolution de l'amplitude de la raie de l'eau à  $1296\text{ GHz}$  en fonction de la pression de  $O_2$  introduite. Si cette évolution est attribuable à une désorption d'eau dans la cellule alors  $P_{H_2O}$  passe de  $15.10^{-3}\text{ Torr}$  à  $18,8.10^{-3}\text{ Torr}$  au cours de l'expérience.

l'on relie au coefficient d'auto-élargissement de la raie considéré pour obtenir l'évolution du premier terme de l'expression (4.24) comme l'ont fait Hoshina et al. [241]. Par exemple, à  $1296\text{ GHz}$  lors des enregistrements avec  $O_2$ ,  $P_{H_2O}$  passerait ainsi de  $15.10^{-3}\text{ Torr}$  à  $18,8.10^{-3}\text{ Torr}$  ce qui, compte tenue du coefficient d'élargissement dû à  $H_2O$  à cette fréquence ( $\gamma^{H_2O} = 15\text{ MHz/Torr}$ ), donnerait une contribution supplémentaire à l'élargissement liée à l'eau de l'ordre de  $0.06\text{ MHz/Torr}$ , plus faible que l'incertitude de  $0.1\text{ MHz/Torr}$  obtenue pour la valeur de  $\gamma^{O_2}$  (cf. FIG. 4.19). Dans ce travail, de manière générale, les modifications des coefficients d'élargissement collisionnels liées à l'eau pour chacune des raies sont comprises dans les écarts types des mesures. Pour s'affranchir de ce problème lié au contrôle de la pression d'eau dans la cellule de spectroscopie on pourrait utiliser une cellule en verre ou encore une cellule dans laquelle aura été déposé une couche d'un revêtement de type silane ou téflon qui semblent avoir un meilleur comportement vis à vis de la vapeur d'eau.

Une autre cause d'incertitude est liée au traitement des données brutes. Ainsi, de larges fluctuations de la pseudo-transmittance sont présentes sur les ailes des spectres. Ce phénomène est d'autant plus important que la bande passante de génération du rayonnement est faible. Ces fluctuations augmentent les incertitudes sur les demi-largeurs déterminées. Des mesures ultérieures sur d'autres raies de l'eau tireraient avantage de l'extension de l'excursion de fréquence accessible par modulation acousto-optique sur un spectre. Une solution serait de disposer

de platines de rotation motorisées pour les MAO ou d'une troisième diode asservie en phase sur une diode infrarouge stabilisée Pound-Drever-Hall (cf.2.3.2).

### **Comparatif des mesures d'autres équipes**

L'observation des résultats obtenus de manière récentes par les autres équipes qui se sont penchées sur les problèmes d'élargissement collisionnel de l'eau peut porter à questionnement. En effet on peut constater des écarts conséquent entre les valeurs de coefficients d'élargissement obtenus par ces équipes. A ce stade nous avons jugé nécessaire de décrire plus précisément les conditions dans lesquelles ont été réalisées les mesures de chaque équipes et les incertitudes qui leurs sont associées quand celles-ci sont discutées.

**Spectroscopie à détecteur Radioacoustiques** Des mesures à basses pressions (jusqu'à quelques Torr de gaz de gaz perturbateur) utilisant un spectromètre à détecteur radioacoustique ont été réalisées par Markov et al. [233] sur la raie ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ) en 1995. Elles ont été reprise par Golubiatnikov et al [234] en 2008. Celles-ci bénéficient d'une très bonne résolution spectrale lié à une source BWO stabilisé en fréquence par un synthétiseur référencé sur un étalon de fréquence rubidium. Les causes d'incertitudes majeurs attribuées à ce spectromètre sont le bruit acoustique sur le détecteur et des effet d'ondes stationnaire dans la cellule

Les caractéristiques spectrale de la source ont permis à Golubiatnikov de réaliser des mesures de déplacement de fréquence de la raie d'absorption dont les valeurs à  $1\sigma$  semblent recouper les valeurs calculées par Gamache et al.[242, 243].

Les 20% d'écarts des deux valeurs d'élargissement collisionnel publiées, difficilement explicable pour un même banc expérimental, ont été attribués à la technique de modulation de fréquence appliquée en 1995. Cependant, le manque de description du protocole expérimental ne permet pas d'attribution précise à la cause de ces écarts. La contribution aux coefficients d'élargissement collisionnel obtenues liée à une possible désorption d'eau dans la cellule n'est pas évaluée dans ces deux publications et considérée comme négligeable sur le temps de mesure.

**Spectroscopie résolue en temps** Les mesures publiées dans l'article de Seta et al. [232] et Hoshina et al. [241] ont été réalisées à forte pression de gaz (plusieurs dizaines de Torr de gaz perturbateur) grâce à un spectromètre impulsional. Ce type de technique qui permet d'obtenir un spectre très large entre 0.1 et  $3THz$  de l'échantillon en une acquisition souffre d'une résolution de l'ordre

du GHz. L'étude de déplacement en fréquence des raies d'absorption sondées semble donc difficilement réalisable.

La précision des coefficients d'élargissement collisionnel obtenus avec ce montage expérimentale est discutée dans l'article de Hoshina et al.. Elle est influencée par des erreurs systématiques liées aux fluctuations de stabilité de l'intensité du signal TéraHertz qui perturbe l'obtention des spectres par transformée de Fourier ainsi que d'une évolution de la pression d'eau au cours de l'expérience. Cette évolution donne lieu à une contribution de la pression d'eau à l'évolution de la largeur collisionnelle des raies d'absorption donc l'influence a été évaluée à 1% de la valeur d'élargissement collisionnel obtenue pour chaque raie.

A ces mesures d'élargissement collisionnel, il nous faut ajouter celles réalisées par Dick et al. [231] sur un spectromètre à multiplicateurs actifs optimisé pour les mesures basses températures qui souffrent elles aussi d'un effet de désorption de l'eau dans la cellule et de problèmes d'ajustement de température.

L'ensemble de ces travaux publiés récemment sont donc entravés par des effets d'erreurs systématiques donc les auteurs ont tenté une évaluations qui semble comprise dans les barres d'écarts types liées aux procédures d'ajustement elles même. L'évaluation de l'impact de ces erreurs systématiques ne permet toutefois pas d'expliquer entièrement les écarts des valeurs obtenues entre équipes sans pouvoir évaluer de façon adéquate les effets de variations de pression d'eau lors des expériences, ce qui semblent être le dénominateur commun à tous ces montages expérimentaux. On notera que les incertitudes renseignées dans ce manuscrit concernant nos résultats et ceux des autres équipes ne portent que sur la précision des ajustements.

### Déplacement de fréquence des raies de l'eau induite par $N_2$ et $O_2$ .

Les raies d'absorption de l'eau observée font donc l'objet d'un élargissement collisionnel lié au gaz perturbateur introduit. L'introduction de gaz perturbateur entraîne aussi un déplacement en fréquence des raies. Ce déplacement évolue linéairement avec les pressions partielles de gaz introduit selon une formule analogue à (4.24). On obtient donc une relation donnant la variation  $\Delta\nu_0$  de la fréquence centrale de la raie étudiée en fonction de la pression d'eau initialement introduite et de celle du gaz perturbateur

$$\Delta\nu_0 = \delta^{H_2O} P_{H_2O} + \delta^{Gaz} P_{Gaz} \quad (4.25)$$

Où  $\delta^{H_2O}$  et  $\delta^{Gaz}$  sont respectivement les coefficients de déplacement de la fréquence liés à l'eau et au gaz perturbateur. En considérant que le premier terme

de l'expression (4.25) ne varie pas au cours de l'expérience alors le décalage en fréquence de la raie n'est dû qu'à la pression de gaz perturbateur. Une évolution du pointé de fréquence est constaté expérimentalement lorsque l'on regarde les fréquences centrales des raies obtenues lors des ajustements (FIG. 4.22) en fonction de la pression de gaz introduite.

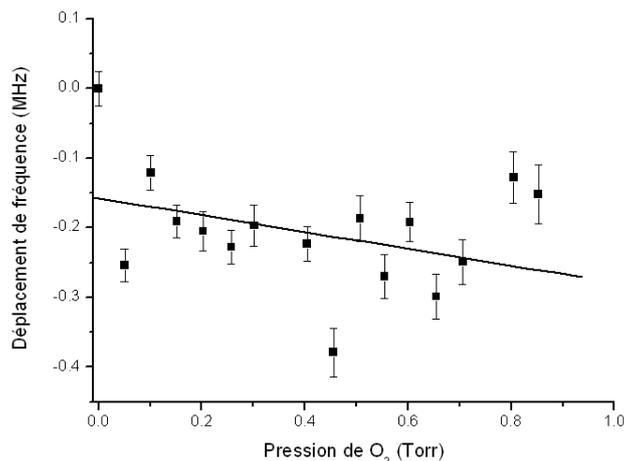


FIG. 4.22: Déplacement en fréquence du pointé de la raie à  $1322\text{ GHz}$  en fonction de la pression de  $O_2$  introduite par rapport au pointé de fréquence de la raie en eau pure. La dispersion des pointés est importante mais on peut observer une décroissance de la fréquence centrale de la raie.

A partir de cette évolution on peut alors par un ajustement linéaire, accéder au coefficient  $\delta^{Gaz}$  pour chaque raie étudiée.  $\delta^{Gaz}$  s'exprime en  $MHz/Torr$ . Sa détermination est tout comme pour le coefficient d'élargissement collisionnel sujet au problème d'incertitude sur la pression d'eau dans la cellule au cours de l'enregistrement des spectres. Ce coefficient de déplacement de la fréquence centrale de la raie en fonction de la pression est faible par rapport au coefficient d'élargissement collisionnel, les précisions relatives de ces coefficients sont donc très faibles.

## Résultats

Les données obtenues à chaque fréquence de transition ont tout d'abord permis de visualiser les tendances de déviation de la fréquence centrale des raies en fonction de la pression de gaz perturbateur  $\delta^{Gaz}$  (TAB. 4.10).

Fréquence de la raie	$\delta^{N_2}$ (MHz/Torr)	$\delta^{O_2}$ (MHz/Torr)	Référence	Date de publication
556 GHz	0.26(9)	0.17(9)	Ce travail	
(1 <sub>10</sub> ← 1 <sub>01</sub> )	0.280(20)	0.135(10)	Golubiatnikov et al.[234]	2008
	0.401(71)	0.179(12)	Dick et al [231]	2008
	0.330(4)	0.170(3)	Markov et al.[233]	1995
752 GHz (2 <sub>11</sub> ← 2 <sub>02</sub> )	0.23(10)	-	Ce travail	
1296 GHz (8 <sub>27</sub> ← 7 <sub>34</sub> )	0.15(10)	-0.11(9)	Ce travail	
1322 GHz (6 <sub>25</sub> ← 5 <sub>32</sub> )	-	-0.12(9)	Ce travail	

TAB. 4.10: Déviation en fréquence des raies observées en fonction de la pression de gaz perturbateur introduit. Les incertitudes entre parenthèses portent sur le dernier chiffre de chaque valeur.

Elles permettent aussi d'accéder aux paramètres d'élargissement par pression de la demi-largeur à mi-hauteur de la raie en fonction du gaz perturbateur (TAB. 4.11) ainsi qu'à leur incertitude.

### Discussion sur les résultats.

Les incertitudes de pointé des fréquences centrales des raies de l'eau par pression de gaz perturbateur associées à l'incertitude expérimentale sur la fréquence des raies enregistrées ne nous permettent pas de déterminer des coefficients  $\delta^{Gaz}$  vraiment pertinents. Cependant ces observations exploratoire permettent tout de même d'indiquer une tendance de l'évolution de la fréquence centrale des raies en fonction de la pression de gaz perturbateur introduit, tendance confirmée par les résultats d'autres équipes. Les écarts observés entre les valeurs obtenues par ces différentes équipes montrent bien la difficulté de l'évaluation de ce coefficient de déplacement en fréquence, les valeurs de  $\delta^{Gaz}$  étant environ vingt fois plus faibles que les coefficients d'élargissements collisionnel [226].

On peut constater en comparant les valeurs des coefficients d'élargissement pour  $N_2$  et  $O_2$  à chaque fréquence que le coefficient obtenu pour  $O_2$  est quasiment

Fréquence de la raie	Élargissement (MHz/Torr) pour $N_2$	Élargissement (MHz/Torr) pour $O_2$	Référence	Date de publication
556 GHz ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ )	4.25(7)	2.10(7)	Ce travail	2008
	4.60(40)	2.58(17)	Dick et al. [231]	
	4.477(36)	2.261(44)	Hoshina et al.[241]	
	4.590(20)	2.470(10)	Golubiatnikov et al.[234]	
	5.40(6)	3.10(6)	Markov et al.[233]	1995
752 GHz ( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ )	4.15(5)	-	Ce travail	2008
	4.450(48)	2.136(64)	Hoshina et al.[241]	
	4.16(18)	-	Gasster et al.[244]	
1296 GHz ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ )	3.07(17)	2.05(10)	Ce travail	
1322 GHz ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ )	-	1.70(8)	Ce travail	2008
	3.759(146)	1.682(117)	Hoshina et al.[241]	

TAB. 4.11: Tableau des élargissements collisionnels des raies d'absorption de  $H_2O$ . Les incertitudes entre parenthèses portent sur le dernier chiffre de chaque valeur.

deux fois plus faible que celui obtenu pour  $N_2$ . Le phénomène d'élargissement collisionnel entre  $H_2O$  et ces deux gaz étant dû aux interactions électriques entre les partenaires de collisions (interaction dipôle-quadrupôle et quadrupôle-quadrupôle) [236, 245] cette constatation est cohérente avec la valeur de moment quadrupolaire de  $N_2$  environ trois fois plus grande que celle de  $O_2$  [246]. Cela confirme que les interactions longues distances  $H_2O - N_2$  sont plus fortes que les interactions  $H_2O - O_2$ . On constate aussi une décroissance de la valeur des coefficients d'élargissement collisionnels avec l'augmentation du nombre quantique  $J$ . Le moment dipolaire de l'eau étant une fonction du nombre quantique rotationnel, les interactions entre la vapeur d'eau et le gaz perturbateur doivent donc être plus faible pour des états plus excités [241]. Notre étude confirme donc cette tendance.

De manière générale, aux basses fréquences, les mesures obtenues dans nos manipulations exploratoires semblent en accord à mieux que 10 % près avec celles obtenues par les autres équipes. A 1322 GHz, le coefficient d'élargissement par  $O_2$  semble en bon accord avec celui de Hoshina et al. [241]. A 1296 GHz, aucune donnée n'a encore été publiée à notre connaissance, les paramètres obtenus ici sont donc originaux.

#### Paramètres d'élargissement pour l'air.

A partir des coefficients d'élargissement évalués pour  $N_2$  et  $O_2$  et en considérant que l'air est composé de 79% d'azote et 21% d'oxygène, on peut alors faire une estimation de l'élargissement par pression de la largeur des raies de l'eau dans le cas de l'air [247]. Pour cela on utilise la formule simple

$$\gamma^{air} = 0.21\gamma^{O_2} + 0.79\gamma^{N_2} \quad (4.26)$$

Le même type de formule peut être appliqué pour évaluer le déplacement de fréquence des raies

$$\delta^{air} = 0.21\delta^{O_2} + 0.79\delta^{N_2} \quad (4.27)$$

Ce qui nous amène aux valeurs de  $\gamma^{air}$  et  $\delta^{air}$  du tableau (TAB. 4.12).

Dans le cas de l'élargissement et du déplacement des raies de l'eau par l'air, une comparaison peut être réalisée avec les valeurs mesurées, mais aussi avec celles reportées dans la base de données HITRAN [240]. On constate que les valeurs obtenues ici sont en accord à moins de 10% près des valeurs de la base de données et des mesures.

Fréquence de la raie	Élargissement $\gamma^{air}$ (MHz/Torr)	Déplacement $\delta^{air}$ (MHz/Torr)	Référence	Date de publication
556 GHz ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ )	3.80(7)	0.24(9)	Ce travail	
	4.012(37)		Hoshina et al.[241]	2008
	4.145(18)	0.249(18)	Golubiatnikov et al.[234]	2008
	4.18(36)	0.354(59)	Dick et al [231]	2008
	4.19	0.173	HITRAN[240]	2008
	4.92(6)	0.296(3)	Markov et al.[233]	1995
1296 GHz ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ )	2.99(16)	0.09(10)	Ce travail	
	3.29	-0.05	HITRAN[240]	2008

TAB. 4.12: Élargissements collisionnels de raies d'absorption de  $H_2O$  par l'air. Les incertitudes entre parenthèse portent sur le dernier chiffre de chaque valeur.

Dans le cas des mesures réalisées à 1296 GHz, on constate ici que le coefficient obtenu pour l'air de 2.99 est à 10% de celui donné par la base HITRAN, seule référence à ce jour.

### 4.3.5 Conclusion de l'étude.

La molécule d'eau est un sujet d'étude très vivant actuellement. Plusieurs équipes sont engagées dans la détermination des paramètres d'élargissement collisionnel de raies de l'eau dans la plage de fréquence TéraHertz. Les écarts importants d'évaluation de ces paramètres d'élargissement montrent bien la difficulté de réaliser des observations fiables sur la molécule d'eau [247, 248]. C'est encore dans l'optique de tester le spectromètre pour des expériences de largeur de raie que nous avons tenté de réaliser une étude de l'élargissement par l'air des raies ( $1_{10} \leftarrow 1_{01}$ ), ( $2_{11} \leftarrow 2_{02}$ ), ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ ) et ( $6_{25} \leftarrow 5_{32}$ ) avec des succès divers.

Lors de cette étude, le spectromètre a été pénalisé par des handicaps liés notamment à sa bande passante lors d'un balayage fin et à une cellule en métal qui adsorbe l'eau. Ces handicaps ont augmenté les difficultés expérimentales et ont conduit à une augmentation des incertitudes sur la détermination des paramètres

d'élargissement. L'augmentation de la plage de modulation acousto-optique afin d'élargir l'intervalle de fréquence exploré est d'ores et déjà envisagée par l'utilisation de platines de rotation automatisées (chapitre 2). La cellule en métal devra lors d'études ultérieures sur l'eau être remplacée par une cellule en verre qui adsorbe moins l'eau [247]. Dans le cas du traitement des données, une autre procédure d'ajustement basée sur la modélisation de la courbe gaussienne de génération de rayonnement et un ajustement global de toutes les raies enregistrées pourra être aussi utilisé. Ceci permettra de s'affranchir des problèmes de fluctuations de la ligne de base qui nous ont pénalisés ici. Cette étude préliminaire aura permis de pointer les différents problèmes relatifs à des mesures de largeur de raie qui pourront être corrigés lors d'études ultérieures.

Malgré cela des résultats encourageant ont été obtenus. Les valeurs des paramètres d'élargissement collisionnel déterminés dans ces conditions se sont montrées en accord à 10% près avec celles obtenues dans d'autres équipes disposant de montages expérimentaux dédiés. La première évaluation expérimentale du coefficient d'élargissement par l'air de la raie de l'eau ( $8_{27} \leftarrow 7_{34}$ ) à  $1296 \text{ GHz}$  a été réalisée. Il a été possible de réaliser des mesures à plus haute fréquence que lors de la calibration du spectromètre avec  $\text{CH}_3\text{Cl}$ , ce qui confirme les attentes sur le spectromètre en matière de sensibilité. Le spectromètre a aussi confirmé ses capacités de pointage de fréquence en montrant d'une part un bon accord avec les fréquences de transition prédites par la base de données JPL pour les raies de l'eau pure et d'autre part en permettant de donner une tendance sur les déplacements en fréquence induits par la pression. Le spectromètre s'est ainsi montré comme un outil prometteur pour la détermination des coefficients d'élargissements collisionnel.

# Conclusion

Dans ce manuscrit, nous avons vu que le projet de cette thèse au laboratoire PhLAM s'inscrit dans un élan récent créé par les multiples potentialités du rayonnement infrarouge lointain. Ce rayonnement apporte tout particulièrement un nouveau champ d'investigations pour des études astrophysiques et atmosphériques avec le développement de satellites d'observations, soutenues par un travail d'amont en laboratoire sur de nombreuses espèces moléculaires. C'est dans le but de contribuer à ce travail que nous avons mis en place un spectromètre TéraHertz basé sur la génération de rayonnement par le biais d'un photomélangeur AsGa réalisant la différence de fréquences de deux rayonnements infrarouges. Ce spectromètre s'appuie sur deux diodes lasers stabilisées par une méthode Pound-Drever-Hall dont les rayonnements sont ensuite accordés en fréquence pour la spectroscopie par un système de modulateurs acousto-optiques en double passage. Ce système assure une puissance des faisceaux superposés sur le photomélangeur de  $2 \times 20 \text{ mW}$  environ. Le photomélangeur polarisé continuellement génère alors du rayonnement à la fréquence différence des fréquences deux sources. Il peut émettre de cette manière sur une large gamme de fréquences de  $100 \text{ GHz}$  à plus de  $2.5 \text{ THz}$  avec des puissances variant suivant la fréquence d'émission de  $0.1 \mu\text{W}$  à quelques nanoWatt. A l'heure actuelle, le rayonnement TéraHertz couplé avec une efficacité de 60% dans une cellule de spectroscopie nous permet d'estimer possible la mesure de raies d'intensité de l'ordre de  $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  jusqu'à  $1.5 \text{ THz}$  avec ce type de dispositif.

La technique de stabilisation Pound-Drever-Hall a été mise en place avec la conception d'une cavité haute finesse évaluée à 3200 et d'intervalle spectrale libre de l'ordre de  $750 \text{ MHz}$ . La fréquence d'émission de chacune des diodes servant au photomélange est asservie sur une résonance de cette cavité en utilisant le signal réfléchi par celle-ci détecté par une photodiode avalanche. Cette photodiode associée à un système électronique de rétro-contrôle permet non seulement de maintenir une fréquence d'émission des diodes fixe mais aussi d'améliorer leur pureté spectrale. Actuellement cette technique d'asservissement permet d'affiner d'un facteur 40 la pureté spectrale de chaque diode permettant

d'obtenir un battement entre les deux sources de  $70\text{kHz}$ . Du fait de la contribution négligeable du bruit lié à la cavité à la pureté spectrale du battement, on peut considérer que la pureté spectrale obtenue lors de la réalisation de ce battement est transférée au rayonnement TéraHertz émis par photomélangement lorsque les diodes sont toutes deux asservies.

Le spectromètre a été caractérisé par la mesure de raies moléculaires du chlorométhane dont le spectre submillimétrique est bien connu. Les raies d'absorption de cette molécule ont dans un premier temps permis de fixer avec précision la valeur de l'intervalle spectral libre de notre cavité d'asservissement. Sa bonne connaissance est importante dans la détermination de la fréquence centrale des raies moléculaires enregistrées. Différents modes d'enregistrement des spectres ont été testés. Des spectres larges bandes enregistrés sur quelques  $\text{GHz}$  permettent de donner un premier ordre d'idée sur le positionnement des raies d'absorption de la molécule à étudier. Des excursions en fréquence plus étroites avec les deux diodes asservies sont ensuite effectuées pour obtenir des spectres haute résolution. On enregistre alors directement la forme des raies par le biais d'une modulation d'amplitude ou encore leur dérivée première en modulation de fréquence. Les spectres enregistrés durant cette campagne de mesure nous assurent une bonne reproductibilité des pointés de fréquence avec une précision, pour des raies bien isolées sans structure hyperfine, évaluée à  $100\text{kHz}$ . Le montage expérimental remplit bien ici les quatre critères d'accordabilité, de sensibilité, de métrologie et de facilité de mise en oeuvre fixés au départ du projet.

Le spectromètre a été utilisé pour une étude exploratoire de détermination du paramètre d'élargissement collisionnel par l'air de raies de la vapeur d'eau aux fréquences TéraHertz. Cette caractéristique a été étudiée de manière récente par plusieurs équipes et sa détermination porte à questionnement du fait des difficultés techniques des expériences sur l'eau et de la variété des dispositifs expérimentaux avec lesquels ont été réalisées les mesures. Les raies d'absorptions sur lesquelles nous nous sommes penchés sont pointées à des fréquences de  $556\text{GHz}$ ,  $752\text{GHz}$ ,  $1296\text{GHz}$  et  $1322\text{GHz}$ . Notre étude a tout d'abord permis de cerner des améliorations à apporter au montage pour réaliser des études de largeur de raie dans des conditions optimales. Les résultats préliminaires obtenus montrent, dans le cas où des données sont disponibles, un accord à 10% avec les valeurs déterminées par d'autres équipes disposant de montages expérimentaux dédiés.

Quoi que déjà très intéressantes, les performances de ce spectromètre peuvent être améliorées comme nous l'avons vu dans ce travail principalement par une meilleure adaptation du système d'asservissement laser. L'augmentation de la bande passante d'asservissement permettrait d'améliorer encore la pureté spectrale du rayonnement TéraHertz et donc la résolution du spectromètre, mais aussi

sa précision de pointé. L'amélioration du montage PID permettant l'asservissement lent via la cale piézo-électrique permettra quant à elle d'augmenter la stabilité temporelle des asservissements permettant des acquisitions plus longues et donc une augmentation du rapport signal sur bruit de nos spectres. Dans le cadre d'études d'élargissement collisionnel ultérieures, l'augmentation de la plage spectrale accessible en une acquisition est aussi visée. Des améliorations sont aussi en cours de mise en oeuvre pour accroître la sensibilité de notre montage avec la conception de miroirs pour réaliser une cellule d'absorption multipassage. Ces améliorations seront réalisées de concert avec l'utilisation du spectromètre dans l'étude de molécules d'intérêt astrophysique et atmosphérique en complément des informations obtenues par spectroscopie millimétrique et micro-onde réalisées au laboratoire.



## **ANNEXES**



# Annexe A

## Rappels sur les faisceaux gaussiens

### Propagation d'un faisceau gaussien.

On considère une onde de vecteur d'onde  $\vec{k}$  et de longueur d'onde  $\lambda$  se propageant dans le vide suivant l'axe  $z$  telle que

$$\vec{E} = \vec{E}_0(x, y, z) e^{-jkz} \quad (\text{A.1})$$

En respectant les approximations d'une propagation paraxiale et d'une enveloppe  $f(x, y, z)$  de l'onde lentement variable [151], cette onde vérifie l'équation de propagation

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} = -\frac{j}{2k} \left( \frac{\partial^2 E_0}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_0}{\partial x^2} \right) \quad (\text{A.2})$$

Cette équation est appelée équation parabolique paraxiale.

### Mode de propagation fondamental

Pour modéliser un faisceau laser on cherche des solutions de l'équation (A.2) qui soient de symétrie cylindrique. On se place donc dans un système de coordonnées cylindriques en notant  $r = \sqrt{(x^2 + y^2)}$ . L'équation d'onde devient alors

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial E_0}{\partial r} \right) = 2jk \frac{\partial E_0}{\partial z} \quad (\text{A.3})$$

Parmi les solutions qui vérifient cette équation d'onde on peut trouver des modes de propagation de type Gaussien [108] de la forme

$$E_0(r, z) = A(z) \exp\left(-j \frac{kr^2}{2R(z)}\right) \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right) \quad (\text{A.4})$$

Où  $A(z)$  est l'amplitude complexe du champ suivant  $z$ ,  $R(z)$  et  $\omega(z)$  respectivement appelés rayon de courbure du faisceau et extension transverse du faisceau sont des fonctions réelles. On peut alors définir une fonction complexe  $Q(z)$  telle que

$$\frac{1}{Q(z)} = \frac{1}{R(z)} - \frac{2j}{k\omega^2(z)} \quad (\text{A.5})$$

ce qui permet de réduire la formule (A.4) à

$$E_0(r, z) = A(z) \exp\left[-j \frac{kr^2}{2Q(z)}\right] \quad (\text{A.6})$$

En remplaçant (A.6) dans (A.3) on aboutit à un système d'équations

$$\frac{dQ(z)}{dz} = 1 \quad (\text{A.7})$$

$$\frac{dA(z)}{dz} = \frac{-A(z)}{Q(z)} \quad (\text{A.8})$$

L'intégration de la première équation permet de définir

$$Q(z) = z + iz_r \quad (\text{A.9})$$

Où  $z_r$  est appelée longueur de Rayleigh. En remplaçant (A.9) dans (A.5) on peut déterminer une relation permettant d'accéder pour une valeur de  $z$  donnée à son extension transverse et au rayon de courbure du faisceau.

$$\omega(z) = \sqrt{\frac{z_r \lambda}{\pi} \left(1 + \frac{z^2}{z_r^2}\right)} \quad (\text{A.10})$$

$$R(z) = z \left(1 + \frac{z_r^2}{z^2}\right) \quad (\text{A.11})$$

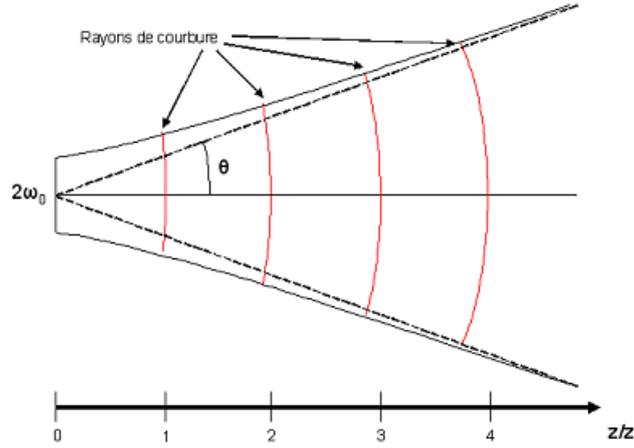


FIG. A.1: Profil en coupe d'un faisceau Gaussien lors de sa propagation

En  $z = 0$ , le rayon de courbure du faisceau est nul et son extension transverse est minimale : elle est aussi appelée rayon de col, noté  $\omega_0 = \sqrt{\frac{z_r \lambda}{\pi}}$ . On constate aussi qu'après une propagation du faisceau sur une distance  $z_r$ , l'extension spatiale du faisceau a augmenté d'un facteur  $\sqrt{2}$ . La longueur de Rayleigh  $z_r$  est donc une mesure de la divergence du faisceau. L'angle de divergence  $\theta$  d'un faisceau Gaussien est ainsi déterminé par la formule

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi \omega_0} \quad (\text{A.12})$$

Le faisceau laser peut donc entièrement être défini à partir de son rayon de col et de la fréquence à laquelle il se propage.

L'intégration de l'équation (A.8) nous donne

$$A(z) = \frac{\omega_0}{\omega(z)} e^{j \arctan(z/z_r)} \quad (\text{A.13})$$

Le champ électrique est finalement exprimé par

$$E_0(r, z) = \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right) e^{-j\Phi(r, z)} \quad (\text{A.14})$$

Où  $\Phi(r, z)$  est la phase totale du champ électrique définie comme

$$\Phi(r, z) = \frac{kr^2}{2R(z)} - \arctan\left(\frac{z}{z_r}\right) + kz \quad (\text{A.15})$$

### Modes d'ordre supérieur.

L'équation de propagation admet d'autres solutions que la précédente, ainsi la formule (A.6) peut être généralisée

$$E_0(r, z) = A(z) \exp\left(-j \frac{kr^2}{2Q(z)}\right) B_y\left(-\frac{\sqrt{2}y}{\omega(z)}\right) B_x\left(-\frac{\sqrt{2}x}{\omega(z)}\right) \quad (\text{A.16})$$

Où  $B_x$  et  $B_y$  sont des fonctions de  $x$  et  $y$  obéissant toutes deux à des équations différentielles du type

$$\frac{d^2 B_x}{dx^2} - 2x \frac{dB_x}{dx} + 2m B_x = 0 \quad (\text{A.17})$$

$$\frac{d^2 B_y}{dy^2} - 2y \frac{dB_y}{dy} + 2n B_y = 0 \quad (\text{A.18})$$

dont les solutions sont les polynômes d'Hermite  $H_m$  et  $H_n$ , où  $m$  et  $n$  sont des entiers. Le champ électrique s'écrit alors sous la forme générale

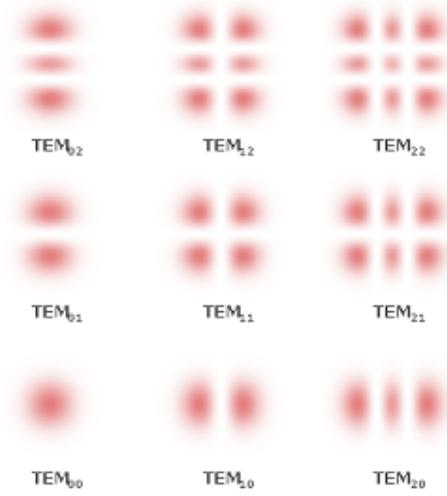
$$E_{mn} = \frac{\omega_0}{\omega(z)} H_m\left(-\frac{\sqrt{2}x}{\omega(z)}\right) H_n\left(-\frac{\sqrt{2}y}{\omega(z)}\right) \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right) e^{-j\Phi_{mn}(r, z)} \quad (\text{A.19})$$

avec

$$\Phi_{mn}(r, z) = \frac{kr^2}{2R(z)} - (1 + m + n) \arctan\left(\frac{z}{z_r}\right) + kz \quad (\text{A.20})$$

Ces modes de propagation sont appelés modes  $TEM_{mn}$ . Le mode  $TEM_{00}$  étant le mode d'ordre fondamental que nous avons vu dans la partie précédente. Plus les ordres des polynômes d'Hermite sont élevés et plus il y a de zéros d'intensité dans le profil transverse du faisceau laser.

Dans le cadre de notre spectromètre le seul mode que l'on désire conserver est le mode fondamental  $TEM_{00}$ .

FIG. A.2: Profil transverse de différents modes  $TEM_{mn}$ 

## Matrice ABCD.

Un rayon lumineux au sens de l'optique géométrique peut être modélisé par un vecteur  $\mathbf{r}(\mathbf{z})$  dépendant de sa position  $r(z)$  et de sa pente  $\tan \theta = \frac{dr}{dz}$  [156]

$$\mathbf{r}(\mathbf{z}) = \begin{pmatrix} r(z) \\ \frac{dr}{dz} \end{pmatrix} \quad (\text{A.21})$$

Dans l'approximation paraxiale ( $\tan \theta \approx \theta$ ) ce vecteur peut se réduire à l'expression

$$\mathbf{r}(\mathbf{z}) = \begin{pmatrix} r(z) \\ \theta \end{pmatrix} \quad (\text{A.22})$$

**Exemple d'une propagation libre.** Si le rayon lumineux précédent se propage en air libre entre deux plans de coordonnées  $z_1$  et  $z_2$  espacés d'une distance  $L$ , on peut noter

$$\mathbf{r}(\mathbf{z}_1) = \begin{pmatrix} r(z_1) \\ \theta_1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.23})$$

$$\mathbf{r}(\mathbf{z}_2) = \begin{pmatrix} r(z_2) \\ \theta_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.24})$$

Nature du milieu de propagation	Matrice ABCD de modélisation
Propagation libre d'une distance $L$ dans le vide	$\begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$
Propagation à travers une lentille de focale $f$	$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f & 1 \end{pmatrix}$
Réflexion sur un miroir	$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$

TAB. A.1: Matrice ABCD de quelques systèmes optiques [249]

Où les coordonnées du vecteur  $\mathbf{r}(z_2)$  peuvent être définies par

$$\begin{cases} r(z_2) = r(z_1) + L\theta_1 \\ \theta_2 = \theta_1 \end{cases}$$

On peut donc définir une matrice ABCD

$$\mathbf{r}(z_2) = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \mathbf{r}(z_1) \quad (\text{A.25})$$

pour une propagation libre telle que

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.26})$$

De manière générale chaque partie de la propagation d'un rayon lumineux peut ainsi être modélisée par une matrice ABCD de propagation. Cette méthode appliquée aux faisceaux gaussiens donne pour une propagation entre  $z_1$  et  $z_2$  (de rayon de courbure complexe respectif  $Q(z_1)$  et  $Q(z_2)$ ) la relation

$$Q(z_2) = \frac{AQ(z_1) + B}{CQ(z_1) + D} \quad (\text{A.27})$$

A partir du rayon de courbure complexe d'origine d'un faisceau gaussien on peut donc en déduire les caractéristiques de ce même faisceau après propagation en faisant le produit des matrices des éléments optiques traversés par le faisceau lumineux.

# Annexe B

## Cavité résonante

### Interféromètre de Fabry Pérot.

On considère une cavité composée de deux miroirs  $M_1$  et  $M_2$ , de même coefficient de réflexion en amplitude de champ  $r$ , espacés d'une distance  $L$ . Un champ  $E_i$  modélisé par une onde plane est envoyé sur le premier miroir de cette cavité. Le champ va se comporter suivant le schéma de principe [151] (FIG. B.1).

Le rayonnement transmis par la cavité aura une amplitude correspondant à la somme des amplitudes des ondes ayant fait différents nombres d'aller-retour à l'intérieur de la cavité :

$$E_t = E_i t^2 [1 + r^2 e^{-i\Phi} + (r^2 e^{-i\Phi})^2 + \dots] e^{-i\Phi/2} \quad (\text{B.1})$$

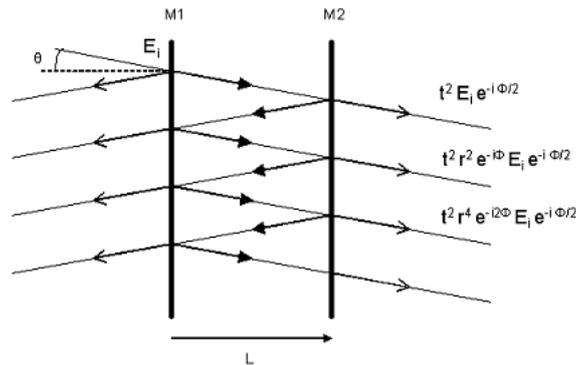


FIG. B.1: Réflexion et transmission successives d'une onde plane dans une cavité Fabry Pérot.

$\Phi$  est défini comme le déphasage que subit l'onde après un aller-retour dans la cavité, si l'onde est en incidence normale

$$\Phi = \frac{2L\omega}{c} = \frac{4\pi Lv}{c} \quad (\text{B.2})$$

avec  $\nu$  la fréquence de l'onde et  $c$  la vitesse de la lumière.

La formule du champ transmis (B.1) peut s'exprimer comme

$$E_t = \frac{E_i t^2}{1 - r^2 e^{-i\Phi}} e^{-i\Phi/2} \quad (\text{B.3})$$

Si on pose  $T = t^2$  et  $R = r^2$ , alors on peut évaluer l'intensité du champ transmis

$$I_t = E_t E_t^* = \frac{E_i E_i^*}{1 + \left(\frac{2\sqrt{R}}{1-R}\right)^2 \sin^2\left(\frac{\pi\nu}{c/2L}\right)} \quad (\text{B.4})$$

Ce champ transmis présente des maxima pour les fréquences de résonance de la cavité Fabry-Pérot  $\nu_m$  telles que

$$\nu_m = m \Delta\nu_{FSR} \quad (\text{B.5})$$

Où  $m$  est un entier et  $\Delta\nu_{FSR}$  est appelé intervalle spectral libre de la cavité, dépendant de la longueur de la cavité  $L$

$$\Delta\nu_{FSR} = \frac{c}{2L} \quad (\text{B.6})$$

Un interféromètre de Fabry Pérot est donc un filtre sélectif en fréquence, il ne transmettra correctement que le rayonnement résonant avec la cavité dont les longueurs d'ondes sont des multiples de l'intervalle spectral libre.

La largeur à mi-hauteur de chaque pic de résonance  $\Delta\nu$  est définie à partir des mêmes grandeurs

$$\Delta\nu = 2 \frac{\Delta\nu_{FSR}}{\pi} \arcsin\left(\frac{1-R}{2\sqrt{R}}\right) \quad (\text{B.7})$$

A partir de (B.6) et (B.7) on peut définir une grandeur appelée finesse de la cavité  $\mathcal{F}$

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta\nu_{FSR}}{\Delta\nu} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \quad (\text{B.8})$$

Plus la finesse d'une cavité est élevée et plus les pics de résonance de cette cavité seront étroits par rapport à l'intervalle spectral libre. Une cavité sera donc un filtre d'autant plus sélectif en fréquence que sa finesse sera élevée.

## Modes de propagation intracavité

Un faisceau laser incident sur la cavité peut être décrit comme une superposition de modes de Hermite-Gauss (notés  $TEM_{qmn}$ ). Les conditions de résonance liées à la cavité Fabry Pérot ainsi que les rayons de courbure des miroirs utilisés ( $R_{c1}$  et  $R_{c2}$ ), imposent des fréquences propres de propagation du rayonnement laser intracavité qui prennent la forme

$$\nu_{qmn} = \Delta\nu_{FSR} \left[ q + \frac{1}{\pi}(m+n+1) \arccos(\pm \sqrt{\left(1 - \frac{L}{R_{c1}}\right) \left(1 - \frac{L}{R_{c2}}\right)} \right] \quad (\text{B.9})$$

Où  $q$ , l'indice « longitudinal »,  $m$  et  $n$  les ordres « transverses » du mode de propagation, sont des entiers [249]. Ces fréquences propres définissent des modes propres de propagation du rayonnement dans la cavité. Dans le cadre de notre spectromètre seul le mode propre ( $TEM_{q00}$ ) fondamental de propagation est à conserver. Les modes d'ordres supérieurs sont éliminés grâce à une bonne adaptation de mode dans la cavité du faisceau laser se propageant en air libre.

Une cavité dans laquelle peuvent se propager plusieurs modes de Hermite Gauss permet d'observer en transmission le signal de la figure (FIG. B.2) lorsque la fréquence du laser est balayée.

Après adaptation de mode il ne reste que les modes  $TEM_{q00}$

## Fonction de transfert d'une cavité FP

Une cavité Fabry Pérot ne réagit pas instantanément à une perturbation de la phase du champ incident [107]. La réponse de la cavité à une perturbation de fréquence  $\nu$  est décrite par une fonction de réponse appelée fonction de transfert [180, 181]. On peut donc définir pour cette cavité une fonction de transfert en transmission et une en réflexion.

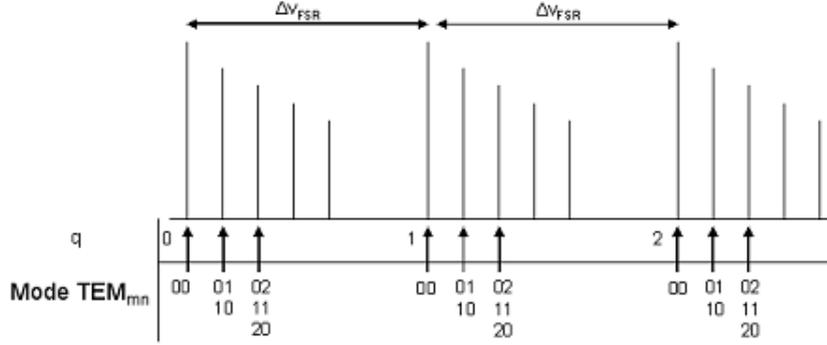


FIG. B.2: Signal observé en transmission d'une cavité Fabry Péro dans laquelle se propagent des modes d'Hermite Gauss d'ordres différents

Dans le cadre de la stabilisation Pound-Drever-Hall on s'intéresse à la fonction de transfert de la cavité en réflexion. Cette fonction de transfert sera un des facteurs limitant de la rapidité avec laquelle le système d'asservissement pourra corriger les fluctuations de fréquence des lasers.

On prend tout d'abord comme convention que si le faisceau lumineux se réfléchit sur la surface réfléchissante des miroirs (coté revêtement), alors  $r$  est pris positif ; dans le cas contraire (coté silice),  $r$  est négatif. A partir de la figure (FIG. B.1) on peut définir une expression temporelle du champ réfléchi par une cavité à partir d'un champ incident  $E_i(t) = E_0 \exp i(\omega_L t + \varphi(t))$  comme

$$E_r(t) = r \left[ -\delta(t) + t^2 \sum_{n=0}^{\infty} r^{2n} \delta(t - (n+1)\tau) \right] E_i(t) = R(t)E_i(t)$$

où  $\tau = 2L/c$  définit le temps d'un aller retour du faisceau dans la cavité et  $\delta$  est la fonction de Dirac. En reprenant brièvement les calculs développés dans la thèse de Y.Bidel [175] basés sur les travaux de Fergusson et al. [250] concernant les fluctuations d'intensité transmise et réfléchie par une cavité Fabry-Pérot, on peut alors exprimer l'intensité réfléchie par la cavité comme

$$I_r(t) = \overline{E(t)}E(t) = E_0^2 \int \int R(t') \overline{R(t'')} e^{-i\omega_L t'} e^{i\omega_L t''} e^{i(\varphi(t-t') - \varphi(t-t''))} dt' dt'' \quad (\text{B.10})$$

On se place dans le cas de figure où les fluctuations de l'intensité sont lentes devant le temps de vie d'un photon dans la cavité et où notre laser de fréquence

d'émission moyenne  $\omega_L$  a une largeur spectrale très petite devant la largeur à mi-hauteur d'une résonance de la cavité, ce qui nous permet de simplifier l'expression précédente qui laisse apparaître un terme correspondant à l'intensité transmise pour une onde monochromatique, et un autre lié aux fluctuations de l'intensité  $\delta I_r(t)$ , qui est le terme qui nous intéresse.

$$\delta I_r(t) = iE_0^2 (\overline{\tilde{R}(\omega_L)}) \int R(t') e^{-i\omega_L t'} \varphi(t-t') dt' - \tilde{R}(\omega_L) \int \overline{R(t'')} e^{i\omega_L t''} \varphi(t-t'') dt'' \quad (\text{B.11})$$

Où la fonction  $\tilde{R}(\omega_L)$  est définie comme la transformée de Fourier de  $R(t)$ .

$$\tilde{R}(\omega_L) = \frac{r(e^{-i\frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}} - 1)}{1 - r^2(e^{-i\frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}})} \quad (\text{B.12})$$

La transformée de Fourier de la formule (B.11) nous amène alors à une expression dépendante de  $\Omega$ , la fréquence de fluctuation de la fréquence du laser.

$$\delta I_r(\Omega) = iE_0^2 \left[ \overline{\tilde{R}(\omega_L)} \tilde{R}(\omega_L + \Omega) - \tilde{R}(\omega_L) \overline{\tilde{R}(\omega_L - \Omega)} \right] \tilde{\varphi}(\Omega) \quad (\text{B.13})$$

$\tilde{\varphi}(\Omega)$  est exprimée en fonction de la fréquence instantanée du laser<sup>1</sup>  $\omega(\Omega)$

$$\tilde{\varphi}(\Omega) = -i \frac{1}{\Omega} \omega(\Omega) \quad (\text{B.14})$$

D'où

$$\delta I_r(\Omega) = H_r(\Omega) \omega(\Omega) \quad (\text{B.15})$$

$H_r(\Omega)$  est la fonction de transfert reliant la fréquence instantanée du laser à l'intensité de rayonnement réfléchi. C'est la fonction de transfert de la cavité au sens « électronique » du terme. A partir de son expression et de la fréquence de la fluctuation  $\Omega$  on peut retrouver les courbes de gain et de phase caractérisant la cavité.

$$\text{Gain}(\Omega) = \text{module} \left( \frac{E_0^2 \left[ \overline{\tilde{R}(\omega_L)} \tilde{R}(\omega_L + \Omega) - \tilde{R}(\omega_L) \overline{\tilde{R}(\omega_L - \Omega)} \right]}{\Omega} \right) \quad (\text{B.16})$$

<sup>1</sup>La fréquence instantanée d'un laser est reliée à sa phase par la relation  $\omega(t) = \frac{d\varphi(t)}{dt}$

$$Phase(\Omega) = \text{argument} \left( \frac{E_0^2 \left[ \overline{\tilde{R}(\omega_L)} \tilde{R}(\omega_L + \Omega) - \tilde{R}(\omega_L) \overline{\tilde{R}(\omega_L - \Omega)} \right]}{\Omega} \right) \quad (\text{B.17})$$

La fonction de transfert de la cavité en transmission est obtenue de manière identique en remplaçant  $\tilde{R}(\omega_L)$  par la fonction  $\tilde{T}(\omega_L)$  définie par

$$\tilde{T}(\omega_L) = \frac{t^2 (e^{-i \frac{\omega_L}{2\Delta\nu_{FSR}}})}{1 - r^2 (e^{-i \frac{\omega_L}{\Delta\nu_{FSR}}})} \quad (\text{B.18})$$

On constate si on considère les fonctions de transfert en réflexion et en transmission que la cavité est plus sensible aux fluctuations du laser en haute fréquence en réflexion (FIG. B.3). On constate aussi en observant la phase de la fonction de transfert de la cavité en réflexion (FIG. B.4) que le déphasage maximum que l'on puisse obtenir est de  $\frac{\pi}{2}$  ce qui veut dire que la cavité seule, dans le cas où la fréquence moyenne du laser est proche du pic de la résonance, ne peut amener le système d'asservissement à une oscillation<sup>2</sup>. Ce n'est pas le cas en transmission où le déphasage maximum est, pour les grandes fréquences de fluctuation, de  $\pi$ . Un asservissement sur le signal réfléchi par une cavité est donc très avantageux.

---

<sup>2</sup>Il y aura oscillation du système d'asservissement si la phase globale du signal de correction obtenue à la sortie du circuit d'asservissement a tournée d'un facteur  $\pi$  par rapport à celle du signal à corriger.

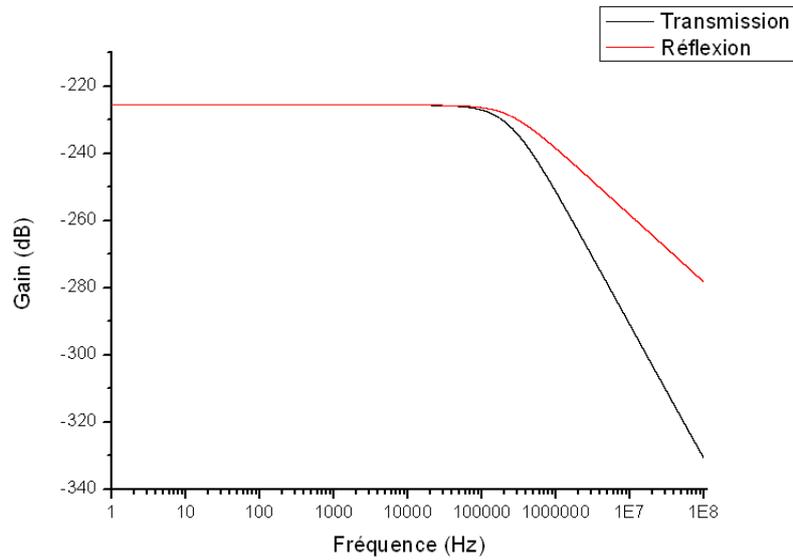


FIG. B.3: Gain de la fonction de transfert en transmission (courbe noire) et en réflexion (courbe rouge) de la cavité Fabry Péro de fréquence de coupure  $117\text{kHz}$ .

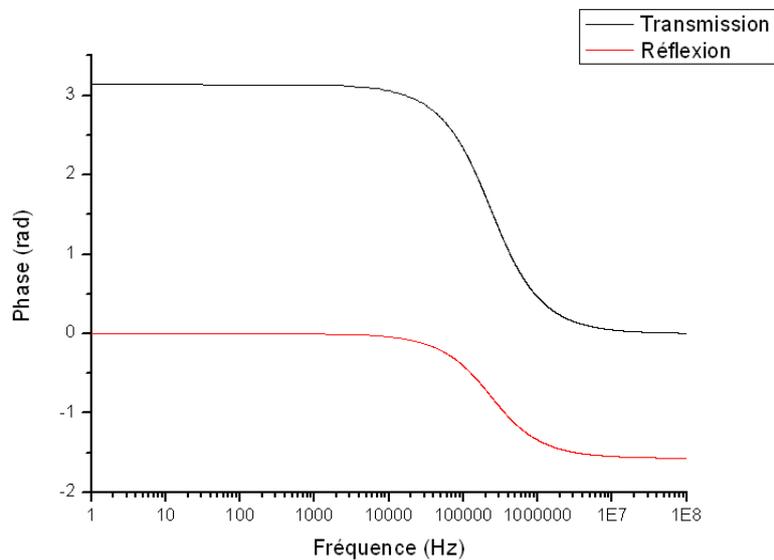


FIG. B.4: Phase de la fonction de transfert en transmission (courbe noire) et en réflexion (courbe rouge) de la cavité Fabry Péro de fréquence de coupure  $117\text{kHz}$ .



## Annexe C

# Description statistique de l'émission laser.

### Modélisation du champ électrique d'un laser.

Soit un champ électrique dont on néglige le bruit d'amplitude tel que

$$E(t) = E_0 \exp[i(\omega_0 t + \varphi(t))] \quad (\text{C.1})$$

Où  $\omega_0$  représente la pulsation moyenne du laser et  $\varphi(t)$  est une fonction du temps représentant le bruit de phase du laser. On peut alors définir la fréquence instantanée  $\nu(t)$  du laser

$$\nu(t) = \frac{\omega_0}{2\pi} + \frac{1}{2\pi} \frac{d\varphi(t)}{dt} = \nu_0 + f(t) \quad (\text{C.2})$$

Où  $\nu_0$  est donc la fréquence moyenne du laser et  $f(t)$  est le bruit de fréquence auquel il est soumis.

A partir de cette expression, on peut alors exprimer la forme de la raie d'émission du laser liée au champ (C.1). Elle est calculée à partir de la densité spectrale de puissance du champ  $S_E(\Omega)$ . Cette densité spectrale s'obtient à partir de la fonction d'auto-corrélation du champ  $C_E(\tau)$  [155]

$$C_E(\tau) = \langle E(t+\tau)E^*(t) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T E(t+\tau)E^*(t) dt \quad (\text{C.3})$$

d'après le théorème de Wiener-Khintchine,  $S_E(\Omega)$  est alors défini par

$$S_E(\Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} C_E(\tau) \exp(-i\Omega\tau) d\tau \quad (\text{C.4})$$

La relation (C.3) pour le champ électrique (C.1) peut dans ce cadre être exprimée en fonction de l'excursion de phase notée  $\Delta_\varphi(t, \tau)$ . On a

$$C_E(\tau) = E_0^2 \exp(i\omega_0\tau) \langle \exp(i\Delta_\varphi(t, \tau)) \rangle \quad (\text{C.5})$$

Où

$$\Delta_\varphi(t, \tau) = \varphi(t + \tau) - \varphi(t) \quad (\text{C.6})$$

$$= \int_t^{t+\tau} \dot{\varphi}(t') dt' \quad (\text{C.7})$$

On suppose tout d'abord que l'excursion de phase  $\Delta_\varphi(t, \tau)$  est une variable aléatoire stationnaire dont la densité de probabilité reflète un processus Gaussien [106] (modèle à diffusion de phase [251]). En développant le terme exponentiel de la relation (C.5) en série puis en appliquant le théorème des moments d'un processus gaussien [252] on obtient la relation

$$\langle \exp(i\Delta_\varphi(t, \tau)) \rangle = \exp\left(-\frac{1}{2} \langle [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]^2 \rangle\right) \quad (\text{C.8})$$

où  $\langle [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]^2 \rangle$  représente la variance de l'excursion de phase pendant la durée  $\tau$ . En remarquant que l'équation (C.7) qui définit l'excursion de phase est linéaire, on peut alors appliquer la théorie des systèmes linéaires [253] et écrire [254]

$$\langle [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]^2 \rangle = \tau^2 \int_{-\infty}^{\infty} S_\varphi(\nu) \text{sinc}^2(\pi\nu\tau) d\nu \quad (\text{C.9})$$

En remplaçant (C.8) et (C.9) dans (C.5), la densité spectrale de bruit du champ électrique devient alors

$$S_E(\Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E_0^2 \exp(i(\omega_0 - \Omega)\tau) \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \tau^2 \int_{-\infty}^{\infty} S_{\dot{\varphi}}(\nu) \text{sinc}^2(\pi\nu\tau) d\nu \right) \right] d\tau \quad (\text{C.10})$$

Dans ce calcul de la forme de raie de l'émission laser, on considère le cas où la fréquence instantanée du laser est soumise à un bruit blanc de fréquence<sup>1</sup>. Le bruit blanc a la particularité d'avoir une densité spectrale  $S(\nu)$  constante dans la bande passante de détection  $B$  [175]. C'est le type de bruit que l'on obtient lorsqu'on réalise un asservissement de la fréquence d'un laser sur une référence idéale, dans le cas où le bruit de photon est le bruit dominant dans le montage expérimental. On peut alors définir la densité spectrale de puissance du bruit de fréquence  $S_{\dot{\varphi}}(\nu)$  [255]

$$S_{\dot{\varphi}}(\nu) \begin{cases} \frac{2\pi^2 f_{rms}^2}{B} & \text{si } |\nu| \leq B \\ 0 & \text{si } |\nu| \geq B \end{cases} \quad (\text{C.13})$$

Tel que l'intégrale de  $S_{\dot{\varphi}}(\nu)$

$$\int S_{\dot{\varphi}}(\nu) d\nu = 4\pi^2 f_{rms}^2 \quad (\text{C.14})$$

<sup>1</sup>Il est à noter que notre raisonnement diffère de celui présenté par d'autres auteurs (cf. [155, 252, 159]) qui supposent que la phase aléatoire  $\varphi(t)$  est une phase stationnaire. Sous cette hypothèse le spectre du laser peut s'exprimer en fonction de la densité de bruit de phase  $S_{\varphi}(\nu)$  par

$$S_E(\Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E_0^2 \exp(i(\omega_0 - \Omega)\tau) \exp \left[ -2 \int_{-\infty}^{\infty} S_{\varphi}(\nu) \text{sin}^2(\pi\nu\tau) d\nu \right] d\tau \quad (\text{C.11})$$

résultat qui est formellement identique à celui de l'équation (C.10) si on tient compte de la relation

$$S_{\dot{\varphi}}(\nu) = 4\pi^2 \nu^2 S_{\varphi}(\nu) \quad (\text{C.12})$$

En réalité, l'hypothèse de la stationnarité des fluctuations de la phase est généralement fautive : en effet la stationnarité des fluctuations de fréquence  $\dot{\varphi}(t)$  obtenue dans notre cas par le système de stabilisation en fréquence n'implique pas la stationnarité de la phase, qui est de fait une variable aléatoire diffusante, c'est l'excursion de phase  $\Delta_{\varphi}(t, \tau)$  qui est un processus stationnaire. On trouvera une discussion approfondie de ces problèmes dans les articles de Rutman [251, et références citées dans cet article]. Notre modèle est donc plus satisfaisant, car il permet de décrire de façon rigoureuse le cas général pour lequel seule la fréquence est stationnaire tandis que la phase reste diffusante. A l'aide de la relation (C.12), il englobe le cas très particulier d'un système pour lequel la phase serait effectivement stationnaire.

Ici  $f_{rms}$  décrit la fluctuation moyenne en fréquence découlant du bruit.

L'expression de l'intégrale de la formule (C.10) n'admet pas de solution analytique simple mais on peut cependant l'évaluer pour deux valeurs limites de  $\tau$  qui correspondent aux limites réversibles et irréversible de la théorie de la diffusion [253, 255].

$$Si \quad \tau \ll \frac{1}{B} \quad \langle [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]^2 \rangle \approx 4\pi^2 f_{rms}^2 \tau^2 \quad (C.15)$$

$$Si \quad \tau \gg \frac{1}{B} \quad \langle [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]^2 \rangle \approx \frac{2\pi^2 f_{rms}^2}{B} |\tau| \quad (C.16)$$

Dans le cas qui nous intéresse présentement on considère que le bruit auquel sont soumises les diodes lasers est un bruit blanc tel que  $f_{rms} \ll B$  (Cas de notre montage expérimental). Dans ce cas, on se trouve dans les limites irréversible et l'équation (C.16) s'applique [255]. L'expression (C.10) se réduit dans ce cas de figure à faire la transformée de Fourier d'une exponentielle ce qui donne [252]

$$S_E(\Omega) = \frac{E_0^2}{\pi} \frac{\frac{\pi^2 f_{rms}^2}{B}}{(\omega_0 - \Omega)^2 + \left(\frac{\pi^2 f_{rms}^2}{B}\right)^2} \quad (C.17)$$

La densité spectrale de puissance du laser est alors une lorentzienne. La raie d'émission laser observée sur un analyseur de spectre dans ce cas de figure sera une lorentzienne centrée sur  $\omega_0$  de pleine largeur à mi-hauteur  $\Delta\nu$

$$\Delta\nu = \frac{\pi f_{rms}^2}{B} \quad (C.18)$$

Cette expression s'applique strictement dans le cas où la diode laser est asservie en fréquence dans un montage expérimental dominé par le bruit de photon. Ce cas particulier pourra être utilisé pour évaluer la pureté spectrale ultime des diodes infrarouges obtenue dans notre montage expérimental.

## Annexe D

### Photos du montage expérimental

Prises de vues des différentes parties du spectromètre mises en place au cours de cette thèse.

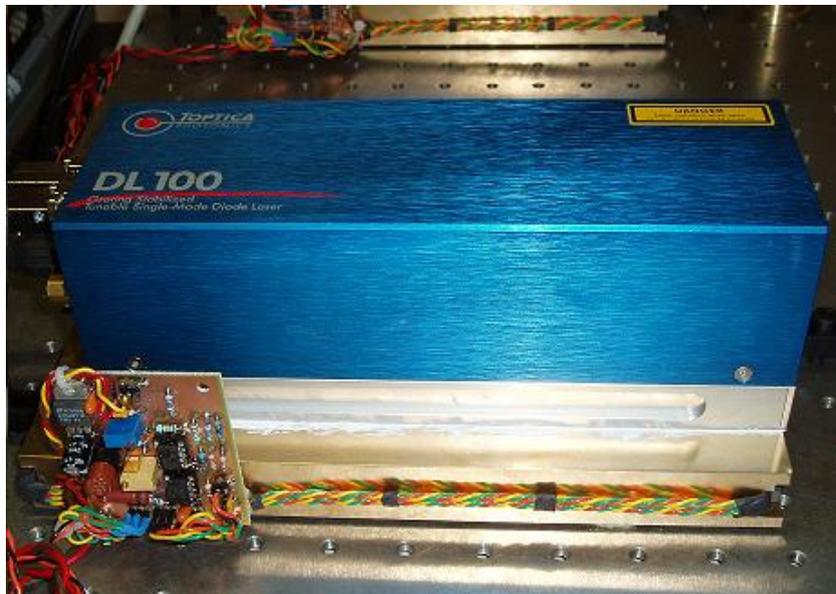


FIG. D.1: Diode laser et son socle d'asservissement en température jouant le rôle de masse thermique.



FIG. D.2: Montage modulateur acousto-optique en double passage mis en place pour l'une des diodes.

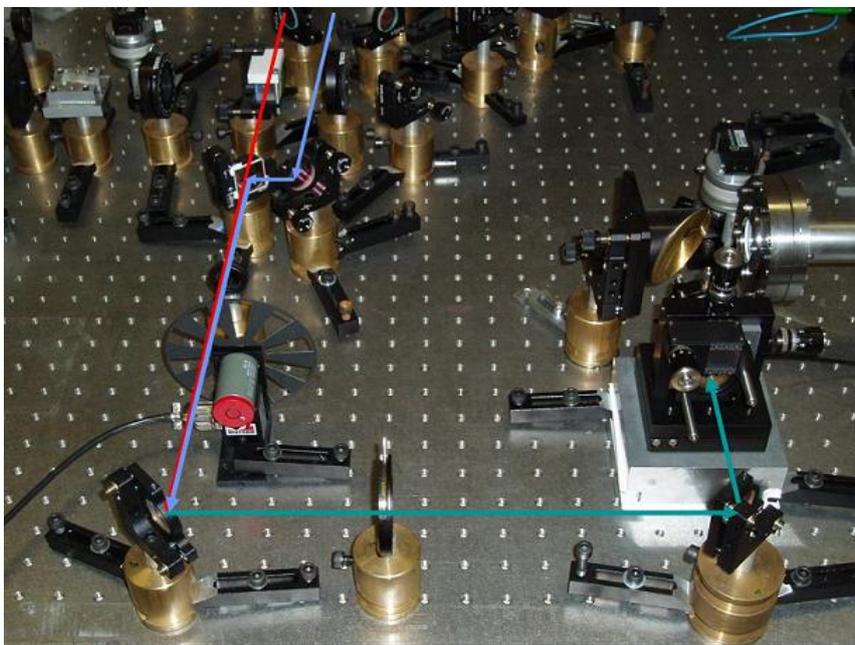


FIG. D.3: Superposition des faisceaux lasers pour focalisation sur le photomélangeur

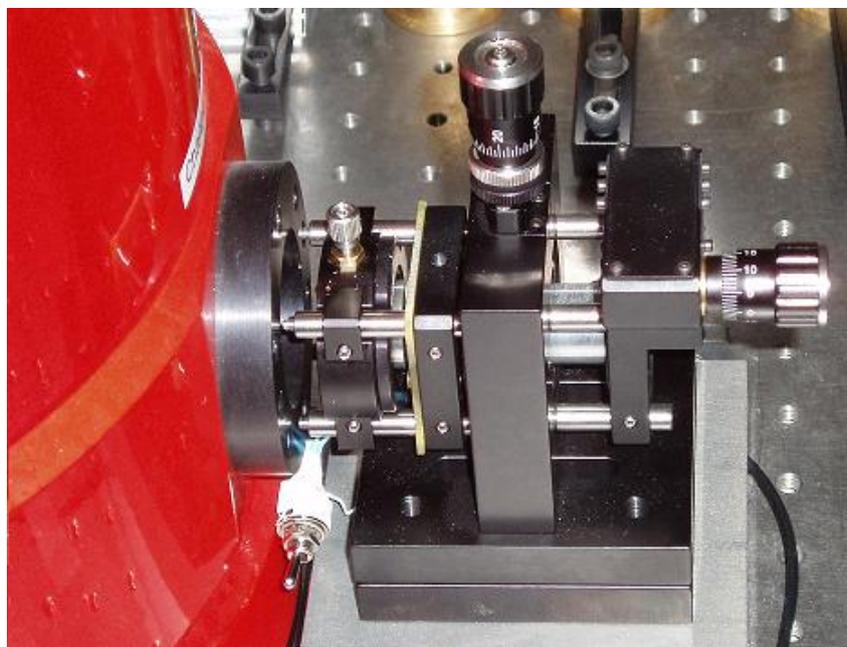


FIG. D.4: Photomélangeur mis en place sur sa monture commerciale thorlabs

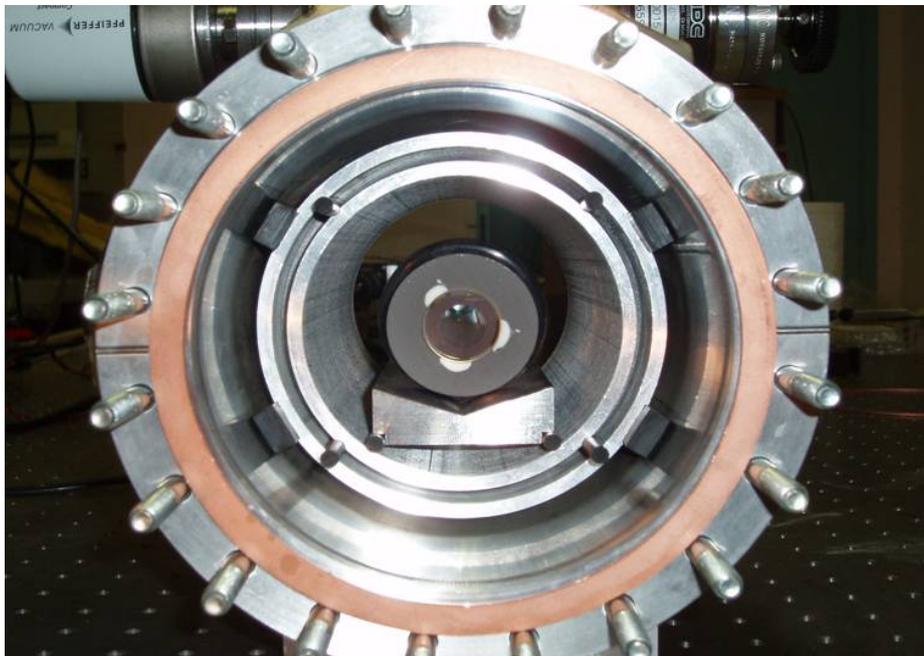


FIG. D.5: Cavité de stabilisation dans le montage d'isolation mécanique et thermique avant mise en place

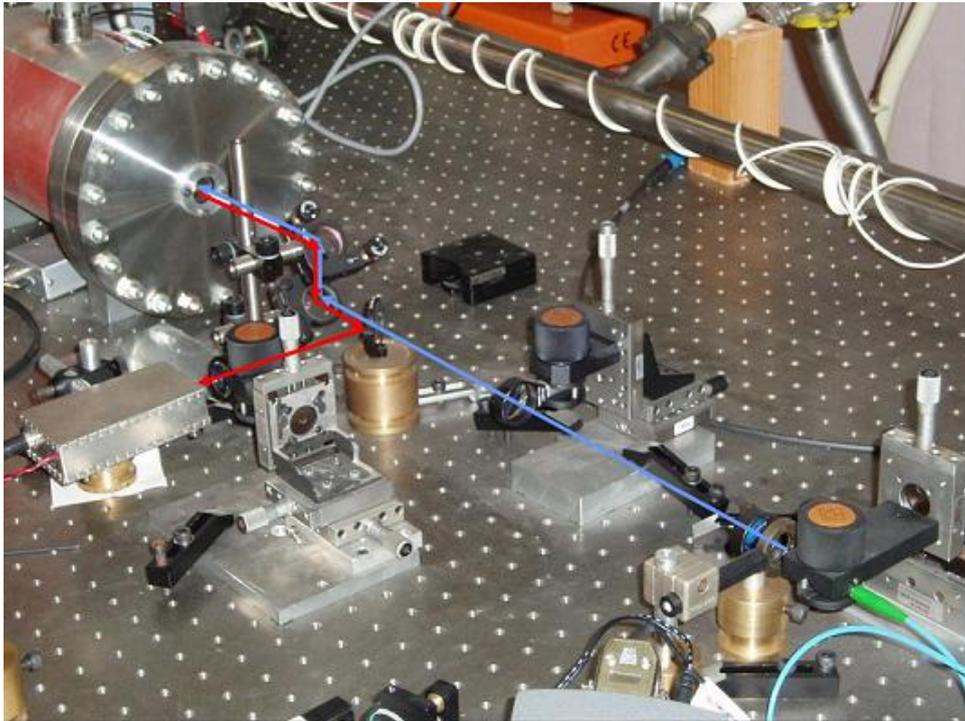


FIG. D.6: Montage optique d'asservissement Pound-Drever-Hall dans laquelle une partie du signal incident (en bleu) de chaque diode sur la cavité est réfléchi (en rouge) vers une photodiode avalanche pour réaliser leur asservissement.



# Annexe E

## Vers un spectromètre multipassage.

La puissance de rayonnement TéraHertz générée par photomélange est faible par rapport à celle générée par d'autres techniques moins accordables. Il en résulte une certaine restriction sur la sensibilité ultime d'un spectromètre basé sur cette technique. Afin de pallier ce problème l'idée d'un couplage entre une cellule d'absorption pour la spectroscopie et une cavité rendue résonante avec le rayonnement TéraHertz incident semble intéressante [148, 256].

### Intérêt du couplage d'une cavité avec une cellule de spectroscopie.

Ce système permettrait d'augmenter le temps d'interaction entre le gaz à étudier et le rayonnement TéraHertz résonant qui effectue plusieurs allers-retours dans la cavité/cellule.

Dans le cas d'une cavité simple sur laquelle on envoie un rayonnement résonant, le rapport de la puissance transmise par la cavité  $P_t$  sur la puissance incidente s'exprime en fonction des coefficients de transmission  $T$  et d'absorption  $A$  des miroirs [257].

$$\frac{P_t}{P_{in}} = \left( \frac{T}{T+A} \right)^2 \quad (\text{E.1})$$

Dans le cas d'un gaz absorbant le rayonnement avec un coefficient  $\alpha$  introduit dans une cellule d'absorption simple de longueur  $d$ , le rapport de puissance absorbée par le gaz  $\delta P_t$ , sur la puissance du signal incident  $P_{in}$  donne d'après la loi de Beer-Lambert pour de faibles absorptions .

$$\frac{\delta P_t}{P_{in}} = -\alpha d \quad (\text{E.2})$$

Si le gaz est maintenant placé dans une cellule munie d'une cavité, le rapport de la puissance transmise  $P'_t$  sur la puissance incidente  $P_{in}$  dans la cellule devient

$$\frac{P'_t}{P_{in}} = \left( \frac{T}{T+A+\alpha d} \right)^2 \approx \left( \frac{T}{T+A} \right)^2 \left( 1 - \frac{2\alpha d}{(T+A)} \right) \quad (\text{E.3})$$

$$\frac{P'_t}{P_{in}} = \frac{P_t}{P_{in}} \left( 1 - \frac{2\alpha d}{(T+A)} \right) \quad (\text{E.4})$$

Le rapport (E.2) s'exprime alors

$$\frac{\delta P_t}{P_{in}} = \left( -\frac{2\alpha d}{(T+A)} \right) \quad (\text{E.5})$$

Si on définit la finesse de la cavité comme étant

$$F = \frac{\pi}{(T+A)} \quad (\text{E.6})$$

$$\frac{\delta P_t}{P_{in}} = \frac{2\mathcal{F}}{\pi} \alpha d \quad (\text{E.7})$$

Une cavité mise en place dans une cellule de spectroscopie permettrait donc d'augmenter la sensibilité du spectromètre d'un facteur  $2\mathcal{F}/\pi$ . Plus la finesse de la cavité sera importante, plus le contraste entre signal incident et signal reçu sera grand. Il sera alors possible de détecter des raies d'absorption de coefficients d'absorption plus faibles que celles détectées par une cellule simple.

### Procédé de fabrication

La création de miroirs réfléchissants dans la gamme spectrale TéraHertz est un procédé délicat réalisé en salle blanche. Il faut choisir le matériau qui permettra de réaliser les miroirs ayant un comportement occasionnant le moins de pertes. Pour cela, on part d'un substrat silicium à haute résistivité (typiquement  $20k\Omega$ ) débarrassé de ses impuretés par le procédé « Float Zone » [258] qui garantit un très faible coefficient d'absorption dans le domaine TéraHertz ( $\alpha \approx 0.02\text{cm}^{-1}$ ). Sur ce substrat est déposé une grille d'or. Les miroirs pour le rayonnement TéraHertz ainsi formés se comportent comme des grilles polarisantes [259, 260].

Le dépôt de la couche d'or est réalisé par un procédé de lithographie optique suivie d'un process lift-off. Un masque optique est tout d'abord réalisé par dépôt de résine sur une plaque de quartz (résinage). Celle-ci est ensuite attaquée,

suivant un schéma de la grille par un faisceau d'électrons. La résine des zones attaquées est dissoute, on métallise ensuite le masque au chrome. La plaque de quartz est enfin rincée avec de l'acétone qui dissout les zones où la résine est restée. Il n'y a alors plus de surface métallisée sur la plaque, que les zones du négatif de la grille. Le masque de nos miroirs a été mis en forme de façon à avoir des traits d'or de 10 microns chacun espacés de 20 microns. Pour fabriquer le miroir en lui-même, on utilise quasiment le même procédé. On réalise un film de résine sur le substrat de silicium. Le masque sur quartz est placé au dessus du substrat silicium et on expose l'ensemble aux UV. La résine exposée dans les zones où le chrome du masque ne la protège pas est modifiée et ensuite dissoute à l'acétone. On procède alors à la métallisation du substrat silicium par le dépôt d'une couche de 100Å de nickel suivi par un dépôt d'or de 100nm (l'or se fixant mal à un substrat diélectrique). Rincé à l'acétone le substrat fait disparaître les zones encore recouvertes de résine en ne laissant que le positif de la grille.

### Caractérisation des miroirs.

Nous avons caractérisé les propriétés de polarisation des miroirs créés par ce procédé. Pour cela on utilise les raies d'émission polarisées linéairement du laser moléculaire du spectromètre TéraHertz à bande latérale dont dispose le PhLAM. On enregistre la transmission du signal TéraHertz en fonction de l'orientation du miroir (FIG. E.1). Le miroir qui se comporte comme une grille doit réfléchir le rayonnement polarisé perpendiculairement à ses fils [261, 262].

On peut observer lors de nos mesures un fort taux d'extinction du rayonnement à un angle de 180° qui est associé à un coefficient de réflexion de l'ordre de 0.97. Lorsque les grilles du miroir sont parallèles à la polarisation du rayonnement on constate que la transmission n'est pas de 100% ; ceci est dû à l'effet de réflexion lié au passage d'un milieu  $n_{air} = 1$  vers un milieu silicium  $n_{Si} = 3.41$ . Un traitement anti-reflet pourra améliorer ce problème. Le miroir se comporte différemment si le rayonnement TéraHertz est en incidence métal ou silicium. On constate ainsi un déphasage de 14° environ entre les maxima d'intensité sur les deux configurations. Une cause de ce phénomène peut être les effets d'étalon du substrat silicium utilisé. Cette caractérisation des miroirs est réalisée à plusieurs fréquences d'émission du laser ce qui nous permet de voir l'évolution de leur coefficient de réflexion en amplitude (TAB. E.1).

Deux miroirs identiques sont mis en place pour construire une cavité Fabry-Pérot qui préfigure le montage sur notre cellule (FIG. E.2). Les miroirs sont placés sur une monture composée de deux bras. L'un des bras est fixe (A), l'autre relié à un moteur pas-à-pas qui permet de modifier la longueur de la cavité (B). Un des

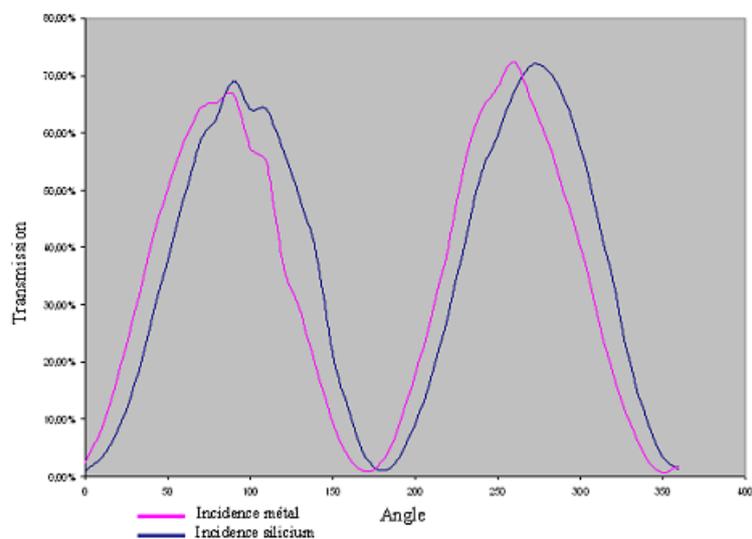


FIG. E.1: Transmission du signal à  $889\text{GHz}$  à travers le miroir polarisant en fonction de l'angle de rotation du miroir.

Fréquence d'émission du laser (GHz)	Coefficient de réflexion	Coefficient de transmission
634	0.99	0.01
889	0.97	0.03
1267	0.96	0.04
1626	0.95	0.05
1838	0.95	0.05
2522	0.94	0.06

TAB. E.1: Coefficients de transmission et réflexion des miroirs en fonction de la fréquence d'émission du laser moléculaire

miroirs est fixé sur une cale piézoélectrique modulée qui permet de balayer les pics de résonance de la cavité. Les deux miroirs sont espacés de 5cm environ.

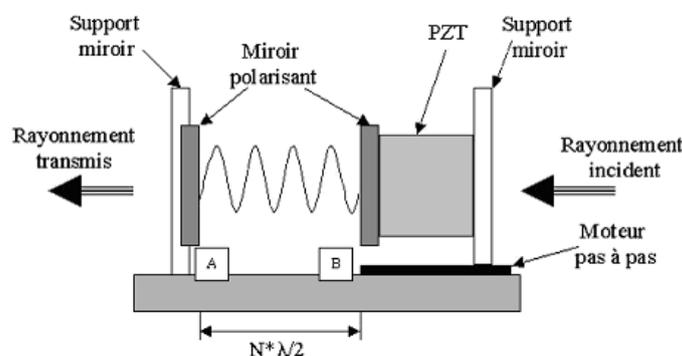


FIG. E.2: Schéma de la cavité Fabry Péroth mise en place avec deux miroirs polarisants.

On s'intéresse alors au signal transmis par la cavité lors du balayage du moteur pas à pas, et on réalise une détection en première harmonique de ce signal avec une détection synchrone grâce à la modulation de la cale piézoélectrique (FIG. E.3).

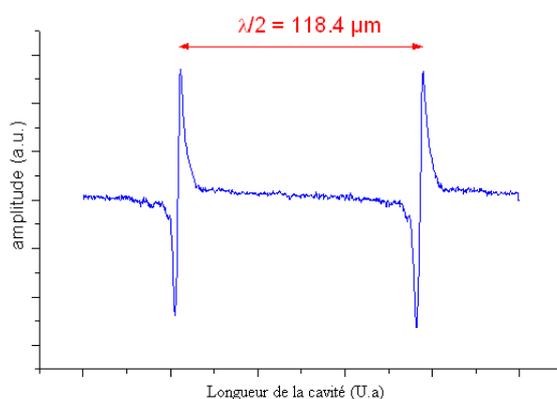


FIG. E.3: Signal en transmission de la cavité Fabry Péroth pour un rayonnement TéraHertz émis à 1267GHz.

En faisant le rapport entre la distance séparant deux résonances et la largeur d'un pic de résonance on peut alors déterminer pour une fréquence d'émission du laser moléculaire donnée la finesse de la cavité formée par les deux miroirs. Des mesures similaires ont été réalisées à plusieurs fréquences entre 634GHz

et  $2522\text{GHz}$  qui nous donnent les valeurs de finesse du tableau (TAB. E.2). On peut alors évaluer le gain en sensibilité apporté à un spectromètre dont la cellule bénéficie d'une cavité de cette même finesse.

Fréquence de l'émission laser (GHz)	634	761	889	1267	1626	1838	2522
Finesse mesurée expérimentalement	161	78	52	35	31	16	16
Augmentation de la sensibilité correspondante	102	50	33	22	20	10	10

TAB. E.2: Finesse de la cavité TéraHertz en fonction de la fréquence d'émission du laser moléculaire

Même à haute fréquence, zone où la finesse de notre cavité diminue, on constate son utilité potentielle dans le cadre d'un spectromètre à cellule multipassage avec une augmentation de la sensibilité du système d'un facteur 10 environ à  $2.5\text{THz}$  [208]. Ce travail n'est cependant qu'un travail préparatoire car il faudra pour l'appliquer au spectromètre TéraHertz par photomélangement réaliser l'alignement d'une cavité à miroirs polarisants de 1.5 mètres de longueur.

# Optoelectronic difference-frequency synthesiser: terahertz-waves for high-resolution spectroscopy

L. Aballea and L.F. Constantin<sup>a</sup>

Laboratoire Phlam, UMR 8523 CNRS, 59655 Villeneuve d'Ascq, France

Received: 31 August 2008 / Received in final form: 4 November 2008 / Accepted: 18 November 2008  
Published online: 25 December 2008 – © EDP Sciences

**Abstract.** We demonstrate a simple approach for a difference-frequency synthesiser within the terahertz domain. Two near-infrared CW diode lasers are frequency-locked to the resonances of a high finesse Fabry-Perot cavity using the Pound-Drever-Hall technique. Two acousto-optic modulators driven by RF synthesizers frequency-shift each diode laser and provide continuous tuning, modulation and switching capabilities for the difference-frequency. Terahertz-waves generated by heterodyne mixing in an ultrahigh-bandwidth photodetector are used to interrogate the rotational transitions in the ground state of the methyl-chloride.

**PACS.** 42.62.Eh Metrological applications; optical frequency synthesizers for precision spectroscopy – 33.80.-b Photon interactions with molecules – 85.60.-q Optoelectronic devices – 07.57.-c Infrared, submillimeter wave, microwave and radiowave instruments and equipment

## 1 Introduction

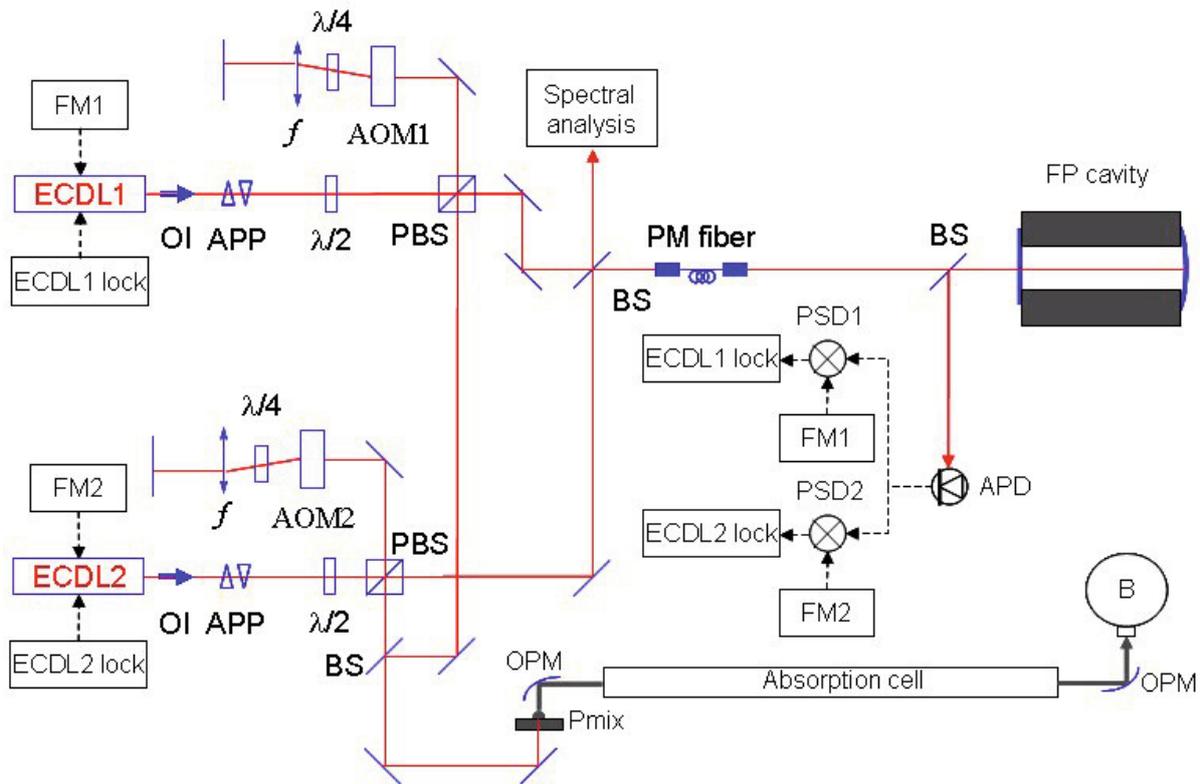
Actually there is an increasing interest in developing coherent sources operating at terahertz frequencies (0.1–10 THz) in order to bridge the electromagnetic gap between electronics and optics [1]. Despite the recent progress with terahertz quantum cascade lasers [2], a compact source that guarantees broad frequency tuning and high spectral quality is a challenging technological issue. The well-established way for broadband THz generation is the frequency down-conversion of two detuned lasers in a photonic material. Different optical setups have been proposed using non-linear crystals and high-power lasers [3,4], but they are oversized. A promising monolithically integrated THz semiconductor source is an infrared dual-wavelength quantum cascade laser with giant second-order nonlinear susceptibility [5]. An alternative way is the difference-frequency generation from two CW near-infrared lasers heterodyned in a biased photoconductor coupled to an antenna [6]. This device has been recently used in high resolution molecular spectroscopy [7] or imaging [8].

We report some preliminary results on infrared to THz frequency synthesis using this device. Different molecular rotational lines provide a dense grid of THz frequency references with an accuracy of a few kHz and allow the cal-

ibration of the difference-frequency over a broad spectral domain. Recently, a frequency standard was proposed at 1.82 THz using a three-photon process in  $\text{Ca}^+$  [9] with an expected precision at  $10^{-11}$  level. A fixed-frequency reference signal can be thus obtained by down-conversion from the optical domain [10]. Alternatively, one can use the frequency grid provided by the spectrum of a femtosecond laser that has the repetition rate locked to an optical frequency standard. Phase-locking each laser source used for THz difference-frequency generation to different lines of an optical frequency comb [11] allows to transfer the metrological features of the optical frequency standard to the THz domain. Here, the resonances of an optical cavity are used as references for the frequency stabilisation of the lasers with a Pound-Drever-Hall setup [12] and the measurement of molecular lines provides the frequency calibration in the THz range. The difference-frequency is well-controlled by frequency-shifting the lasers with acousto-optic modulators.

Laser frequency stabilisation on an optical cavity with the Pound-Drever-Hall technique has the advantage to provide a servo loop that is not limited by the response time of the cavity. This is achieved through the phase-modulation of the laser field at a frequency greater than the cavity linewidth. The error signal is recovered by subsequent phase-sensitive demodulation of the heterodyne beat between the field reflected by the input mirror of the cavity and the leakage of the cavity-stored field. The error

<sup>a</sup> e-mail: fconstan@lsh.univ-lille1.fr



**Fig. 1.** (Color online) Experimental setup. Solid and dashed lines represent respectively optical and electrical signals. AOM acousto-optical modulator,  $\lambda/4$  and  $\lambda/2$  waveplates, FP Fabry-Perot, P mix photomixer, B bolometer, OPM off-axis parabolic mirror. Refer to the text for details.

signal measures phase fluctuations of the laser at high frequency comparing to the cavity field that serves as phase reference. The performances of a well-designed servo loop will be dictated by the accuracy of the modulation technique and of the laser's phase-correcting transducer.

## 2 Experimental setup

The experimental setup is shown in Figure 1. Two extended-cavity diode lasers (ECDL) in the Littrow configuration are emitting around 820 nm with an optical power of 80 mW. The free-running ECDL emission linewidth is 1.5 MHz full width at half maximum (FWHM) at an integration time of 1 s. The laser cavity is driven with a PZT transducer that allows tuning the laser radiation without mode-hops over up to 30 GHz. Each laser beam is coupled to a two-stage optical isolator (OI) and an anamorphic prism pair (APP) that ensure linear polarisation and similar spatial shape for the laser beams. A half-waveplate and a polarising beamsplitter (PBS) allow redirecting an adjustable amount of laser power from each ECDL to the optical cavity and to the difference-frequency mixer. The diode laser beams are spatially overlapped on a beamsplitter plate (BS). One of the emerging beams allows frequency analysis of the heterodyne beat between the diode lasers on a photodiode

with a spectrum analyser. Alternatively, their optical frequency can be measured using a wavelengthmeter. The other emerging beam is injected in an AFC-connectorised polarisation-maintaining (PM) optical fiber. Laser beam exiting the optical fiber is collimated with an aspheric lens and mode-matched with a telescope to the TEM<sub>00</sub> mode of the Fabry-Perot cavity. The total incident power from each diode laser is 6  $\mu$ W and  $\sim 48\%$  is coupled to the cavity's mode.

The design of the optical cavity aims to suppress its free spectral range (FSR) jitter and drift through an efficient damping of the acoustic noise and the thermal isolation. The cavity consists in a plane and a concave mirror (radius of curvature 1 m) bonded on a 20 cm long ultra-low expansion glass (ULE) cylinder. The cavity lies along the axis of a cylindrical vacuum chamber that is maintained at a pressure less than  $10^{-5}$  Pa and temperature-stabilised at 320 K. The ULE spacer rests on a V-shaped invar plate placed inside two concentric cylindrical aluminium shields. All these elements are isolated each from another and from the vacuum chamber with Viton joints. The optical performances of the cavity are characterised through its finesse and transmission coefficient. The measurement of the exponential decay of the field stored in the cavity yields a cavity linewidth of 234 kHz FWHM

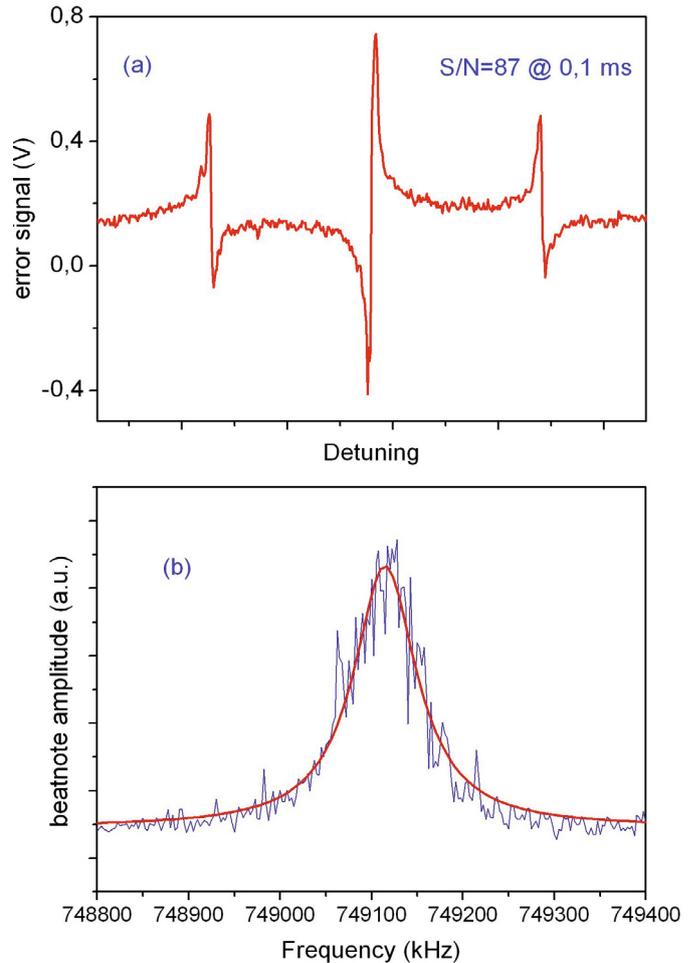
and a finesse of 3200. Direct power measurements provide a transmission coefficient of  $\sim 36\%$ .

Local oscillators at  $FM_1 = 20$  MHz (respectively at  $FM_2 = 24$  MHz) provide a signal that is capacitively coupled to ECDL1 (respectively ECDL2) driving current to generate optical sidebands that are about 10% of the optical carrier. The light reflected from the cavity is redirected by a beamsplitter to an avalanche photodiode detector (APD). The laser field reflected from the in-coupling mirror of the cavity and the field leaking from the cavity produce beatnote signals at  $FM_1$  and  $FM_2$  that are used in the feedback branches for ECDL1 and ECDL2. The beatnote signal is high-pass filtered, amplified and demodulated with a phase-sensitive detector (PSD). An adjustable phase delay circuit for the beatnote signal allows choosing the suitable quadrature component. The demodulated signal is low-pass filtered (3 dB point at 8 MHz) to suppress the frequency of the local oscillator and its harmonics and serves as error signal for the feedback loop. The error signal is resistively-coupled to the gate of a field-effect transistor (FET) which is mounted in parallel with the diode laser [13]. Consequently, a part of the laser injection current is bypassed through the FET, providing a mechanism for the control of the laser frequency from dc up to a few MHz.

Figure 2a shows the demodulated error signal as the grating of ECDL1 is tuned. The error signal is recorded for visualisation purpose at low bandwidth with an averaging time constant of 0.1 ms and displays a S/N ratio normalised at 8700 to 1 s. The closed servo loop has a bandwidth limited at 700 kHz that is attributed to the response delay of the FET-diode laser system. The servo loop response is dictated by the cavity bandwidth that acts as low pass filter to the laser frequency variations with a corner frequency at  $1/2 \times 234$  kHz. We checked that the in-loop error signal noise is well above the fundamental shot noise limit (at  $1 \mu\text{W}$  power incident from each laser on the APD). The stabilisation system operates thus in a gain-limited regime and the in-loop error signal variations estimate well the locked laser noise.

Figure 2b shows the beatnote between the diode lasers locked on adjacent modes of the cavity. It has a Lorentzian shape with a linewidth of 84 kHz FWHM. The noise from the reference cavity has a negligible contribution to the measured linewidth. This point is important because when the servo loop is operated in a reference-limited regime, the frequency noise of the beatnote is expected to increase with the number of modes between the locked ECLDs. Thus, the measured linewidth may be still valid for the radiation generated by the heterodyne mixing in the THz regime.

The phase modulation of the diode laser is associated with a strong residual amplitude modulation (RAM). That contributes to a spurious offset and an asymmetry of the error signal which are visible in Figure 2a and lead to a frequency shift between the locked laser and the resonance



**Fig. 2.** (Color online) (a) Pound-Drever-Hall error signal. Integration time 0.1 ms/point, sweep time 52 ms. (b) Beatnote between the diode lasers locked on adjacent cavity modes. RBW 10 kHz, recording time 1 s.

of the cavity. We estimate that each of these systematic frequency shifts have a contribution no more than 25 kHz.

An important figure of merit of the frequency lock is the reproducibility. 22 measurements of the beatnote between the diode lasers locked on two adjacent modes of the cavity have been carried out during one day. We derive a mean FSR value of 749 104 kHz with a standard deviation of 35 kHz.

The diode lasers are frequency-shifted with acousto-optic modulators (AOM) driven by radiofrequency synthesizers in a double-pass scheme. The optical setup provides a stable angular deviation of the frequency-shifted light [14] that guarantee the alignment required in difference-frequency generation. Laser beam separated through the polarizing beamsplitter cube is deflected by the AOM in the first-diffraction order to a quarter-wave plate which is associated downstream with a cat's-eye retro-reflector. It relies on a planar mirror located in the focal plane of a 10 cm focal-length plan-convex lens and

the laser beam incidence on the AOM is at the focal point of the lens. Light reflected back by the cat's-eye pass through the waveplate, is frequency-shifted again by the AOM, overlaps the incoming laser beam and is transmitted through the polarising beamsplitter cube.

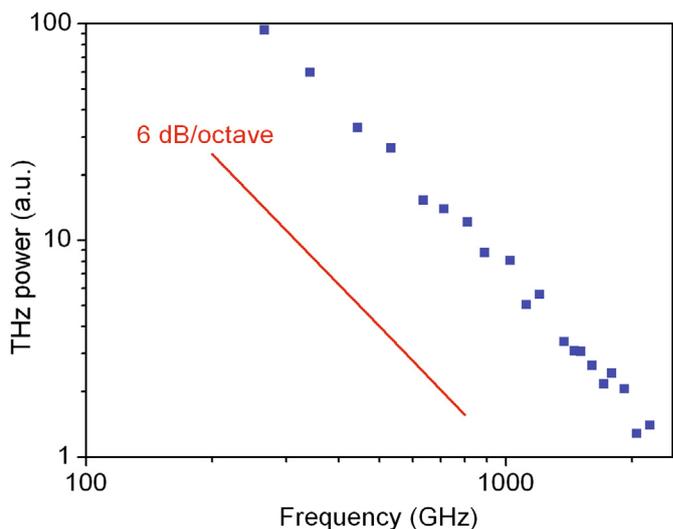
At a given radiofrequency shift, the AOM is oriented such that the incoming laser beam is incident at the Bragg angle. The laser beam profile is Gaussian with a diameter  $\sim 1.5$  mm full width (FW) at  $1/e^2$  and a divergence  $\sim 1.1$  mrad FW at  $1/e^2$ . The  $\text{TeO}_2$  modulator is driven at a RF power of 27 dBm. The maximum diffraction efficiency in the double-pass scheme is 35%. A broad change of the radiofrequency shift requires rotating the AOM to keep the Bragg angle incidence, while the cat's eye configuration ensures normal incidence of the laser beam on the planar mirror. The diffraction efficiency drops at 50% from its maximum value when the radiofrequency is varied in the range 180–360 MHz that defines the overall AOM tuning bandwidth. If the orientation of the AOM is kept fixed, the cat's-eye configuration significantly improves the tuning bandwidth: e.g. around  $f_{AOM} = 275$  MHz the tuning bandwidth is 12 MHz FWHM with a cat's-eye reflector, comparing to 2.3 MHz FWHM with a simple planar mirror retro-reflector. This AOM bandwidth guarantees frequency filtering of the laser sidebands generated for frequency stabilisation.

The setup allows synthesising a heterodyne difference-frequency:

$$f_{THz} = (f_1 + 2f_{AOM1} + \delta f_1) - (f_2 - 2f_{AOM2} + \delta f_2) \\ = nFSR + (\delta f_1 - \delta f_2) + (2f_{AOM1} + 2f_{AOM2})$$

by applying to the stabilised diode lasers (tuned at  $f_1 > f_2$ ) frequency shifts  $f_{AOM1,2}$  with AOMs working in their + or – first-diffraction order. Slight frequency shifts of the lock point of each diode laser from the corresponding reference are accounted through  $\delta f_{1,2}$  terms. The integer  $n$  is determined by measuring the difference-frequency with a lambdameter with 50 MHz accuracy. The demonstrated single-AOM tuning bandwidth between  $\sim FSR/4$  and  $\sim FSR/2$  allows a twofold tuning bandwidth for  $f_{THz}$ . Therefore, one can fine-tune  $f_{THz}$  over one FSR with both AOMs. A computer-based mechanism for re-locking a diode laser over consecutive cavity modes would be required for a broader tuning.

CW THz radiation is generated by optically heterodyning the AOM-shifted diode laser beams on a photomixer [6]. This device is a photodetector with sub-picosecond response time made from a  $2 \mu\text{m}$  GaAs epitaxial layer grown at low temperature on a dielectric substrate. A photoconductive area is defined by a pattern of electrodes that drive a gold spiral antenna. The laser beams are spatially overlapped on a beamsplitter and focused on the electrodes with an aspheric lens. The combined optical power is equally distributed between each laser beam. The photodetector is biased and the ac-photocurrent flowing through the antenna gener-



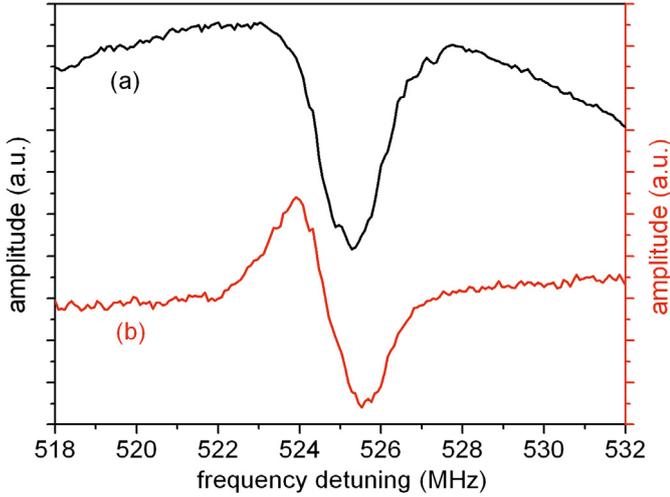
**Fig. 3.** (Color online) Frequency response of one photomixer biased at 10 V under a combined optical power of 40 mW; dc-photocurrent  $250 \mu\text{A}$ .

ates THz radiation in the substrate. A hyperhemispherical high-resistivity silicon lens mounted in contact with the substrate underneath the antenna extract to free-space the THz radiation which is directed to a liquid-helium cooled InSb bolometer. Figure 3 shows the typical frequency dependence of the emitted power from one photomixer. The model from [6] predicts that the frequency response of the photomixer has a roll-off with two time constants dictated by the lifetime of the photogenerated carriers and the  $R_A C$  factor of the antenna. The recorded response displays a roll-off at  $-6$  dB/octave up to 2 THz which is attributed to the carriers lifetime. A corner frequency in the response at  $1/(2\pi R_A C)$  should lie beyond this frequency range.

The THz beam coming out from the silicon lens is collimated with an off-axis parabolic mirror and coupled to a circular metallic waveguide cell (1.5 m long, 3 cm diameter). The emerging beam from the cell is focused with an off-axis parabolic mirror on the bolometer. Sub- $\mu\text{W}$  power is detected for a difference frequency in the 0.1–2 THz range when the photomixer is biased typically at 10 V and with a combined optical power up to 26 mW.

### 3 Comparison with molecular reference lines

As a demonstration for the difference-frequency synthesis within the THz domain, we performed high-resolution gas-phase linear absorption spectroscopy on several rotational transitions of the  $^{12}\text{CH}_3^{35}\text{Cl}$  methyl-chloride isotopomer. For the sake of simplicity, molecular lines are recorded by shifting only ECDL1 frequency with AOM1, while the mixing is performed with radiation from the ECDL2 (AOM2 off). Different modulation techniques are associated for the low-noise detection of the molecular lines. Amplitude modulation (AM) is performed with a



**Fig. 4.** (Color online) Spectrum of ( $v = 0, J : 25 \rightarrow 26, K = 5$ )  $\text{CH}_3\text{Cl}$  rotation line recorded with (a) amplitude modulation, (b) frequency modulation at 100 kHz and depth of 200 kHz. Frequency detuning is  $2f_{\text{AOM1}}$ . Pressure 2 Pa, acquisition time 200 ms/point.

mechanical chopper on the laser beam prior its focusing on the photomixer and the absorption signal is detected with a lock-in amplifier. In this case the absorption line is superposed on a slowly-varying Gaussian-like spectral profile determined by the frequency dependence of the double-pass AOM modulation efficiency. Subtraction of this background signal from the experimental data brings the real molecular absorption lineshape. Alternatively, frequency modulation (FM) of  $f_{\text{THz}}$  is performed using the FM capability of the RF synthesiser that drives the AOM and the molecular line is detected at  $1-f$  with a lock-in amplifier. This approach has the advantage to shrink the baseline of the absorption spectrum and to diminish the  $1/f$  technical noise.

Figure 4a, 4b show AM- and FM-recorded spectrum of the transition  $|v = 0, J = 25, K = 5\rangle \rightarrow |v = 0, J' = 26, K' = 5\rangle$ , where  $v$  is the vibrational state and  $J, K$  the usual angular momentum quantum numbers. This line is a unresolved quadruplet of four main hyperfine components spanning 0.19 MHz with relative positions  $-95.01$  kHz,  $-67.21$  kHz,  $64.71$  kHz,  $92.52$  kHz and relative intensities 0.245, 0.255, 0.236, 0.265 calculated using the electric-quadrupole coupling constant from [15]. After baseline subtraction, the AM-recorded spectrum was fitted with a Voigt profile.

The main contribution to the recorded linewidth is the Doppler broadening which is 1.2 MHz FWHM. The additional width is due to pressure broadening which is estimated at 0.7 MHz FWHM using the pressure broadening coefficient from [16]. The FM-recorded spectrum exhibits clearly the baseline reduction.

**Table 1.** Rotational, centrifugal distortion and electric quadrupole coupling constants for the vibrational ground state of  $^{12}\text{CH}_3^{35}\text{Cl}$ , from [15].  $1\sigma$  uncertainties on the last digits quoted in parentheses.

Parameter	Value (MHz)
$B$	13 292.87666(6)
$D_J (\times 10^3)$	18.09599(39)
$D_{JK} (\times 10^3)$	198.7990(148)
$H_J (\times 10^6)$	-0.010148(56)
$H_{JK} (\times 10^6)$	0.3299(49)
$H_{KJ} (\times 10^6)$	9.373(147)
$eQq$	-74.7514(11)

The frequency of a pure rotational transition is calculated following the formula:

$$\begin{aligned} \nu_{\text{THz}}(J, K) = & 2B(J+1) - 4D_J(J+1)^3 \\ & - 2D_{JK}(J+1)K^2 \\ & + H_J(J+1)^3((J+2)^3 - J^3) \\ & + 4H_{JK}(J+1)^3K^2 + 2H_{KJ}(J+1)K^4 \end{aligned}$$

where  $B$  is the rotational constant and  $D_J, D_{JK}, H_J, H_{JK}, H_{KJ}$  are the centrifugal distortion constants listed in Table 1.

We simply estimate the  $1\sigma$  uncertainty for the predicted frequency as the quadratic sum of the  $1\sigma$  error contribution for each rotational constant term. An intensity-averaged frequency shift of the hyperfine structure components is added to the rotational frequency. The least-squares fit of the spectrum with the Voigt profile yields the AOM frequency shift for each rotational line. Table 2 shows the predicted and the observed frequencies for the measured lines. We derive a mean value of the FSR at 749 103.2 kHz with a standard deviation of 0.67 kHz (relative uncertainty  $9 \times 10^{-7}$ ). Unfortunately, the calibration of the difference-frequency is strongly affected by the systematic frequency shifts of the locked laser. They should be responsible for the significant value observed (626(14) kHz) of the zero-frequency intercept in the linear regression of  $\nu_{\text{THz}} + \delta\nu_{\text{HF}} - 2f_{\text{AOM1}}$  against  $n$ . An electronic compensation of the offset of the error signal, as done in [17], in the servo loop of the diode lasers would improve the difference-frequency accuracy.

## 4 Conclusion

Broadband synthesis of CW THz radiation is demonstrated from the difference-frequency of two infrared diode lasers locked with the Pound-Drever-Hall technique on an optical cavity. The achieved spectral purity is an order of magnitude better than in previous photomixing experiments [7] and is comparable with that obtained at short timescales for the free-running THz QCL [2]. The setup

**Table 2.** Methyl-chloride lines for the FSR frequency calibration.  $1\sigma$  uncertainties on the last digits quoted in parentheses.

Quantum numbers				Calculated frequency	Hyperfine shift	$n$	Measured frequency (mod FSR)	Calibration
$J$	$K$	$J'$	$K'$	$\nu_{THz}$ (MHz)	$\delta\nu_{HF}$ (MHz)		$2f_{AOM1}$ (MHz)	FSR (MHz)
9	0	10	0	265 785.561(3)	-0.014	354	602.743	749 104.046
9	1	10	1	265 781.587(2)	-0.013	354	599.051	749 103.244
9	2	10	2	265 769.666(2)	-0.011	354	587.150	749 103.184
9	3	10	3	265 749.805(2)	-0.008	354	567.002	749 103.983
25	4	26	4	689 792.105(31)	-0.001	920	525.289	749 102.555
25	5	26	5	689 699.456(35)	-0.001	920	617.756	749 102.357

allows a resolution three orders of magnitude better than that achieved with femtosecond-laser based Fourier-limited terahertz frequency-comb spectroscopy [18]. The measurement of some molecular references pointed out the instrumental errors due to the modulation technique. Improvement of the frequency accuracy and the spectral purity would be achieved through a cautious implementation of the modulation technique and a refined servo loop with high gain at low frequency and wide bandwidth which should operate on a transducer that avoids FM to AM coupling in diode laser. In addition, the proposed AOM-driven difference-frequency generation scheme provides full control of the THz radiation by using RF synthesizers. A difference-frequency setup with the lasers referenced to a stabilised optical comb would facilitate the access and the control of the radiation from dc to hundreds of THz for precision molecular spectroscopy.

D. Bacquet contributed significantly for the set up of the Fabry-Perot cavity. We acknowledge K. Blary for providing GaAs photomixers. LFC appreciated fruitful discussions with A. Amy and with Robert James Butcher.

This work was supported by the French Ministry of Research and Education, the *Nord-Pas de Calais* borough and the CNRS.

## References

1. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **362**, 1815 (2004)
2. A. Barkan et al., Opt. Lett. **29**, 575 (2004)
3. A.K. Kawase et al., J. Phys. D **35**, R1 (2002)
4. T. Tanabe et al., J. Phys. D **36**, 953957 (2003)
5. M.A. Belkin et al., Nat. Photon. **1**, 288 (2007)
6. E.R. Brown et al., Appl. Phys. Lett. **66**, 285 (1995)
7. Pin Chen et al., J. Mol. Spectrosc. **236**, 116 (2006)
8. I.S. Gregory et al., Electron. Lett. **40**, 143 (2004)
9. C. Champenois et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 013001 (2007)
10. J.C. Bergquist, H.U. Daniel, Opt. Commun. **48**, 327 (1984)
11. Q. Quraishi et al., Opt. Lett. **30**, 3231 (2005)
12. R.W.P. Drever et al., Appl. Phys. B **31**, 97 (1983)
13. For an example, see *Toptica Photonics DL100 Diode Laser System manual*, Part 4, Chap. 4.2 (2002), p.18
14. E.A. Donley et al., Rev. Sci. Instrum. **76**, 063112 (2005)
15. J. Demaison et al., J. Mol. Spectrosc. **166**, 147 (1994)
16. H. Harde et al., J. Opt. Soc. Am. B **11**, 1018 (1994)
17. V. Bernard et al., Metrologia **34**, 313 (1997)
18. T. Yasui et al., Appl. Phys. Lett. **88**, 241104 (2006)

# Bibliographie

- [1] E. J. Nichols and J. D. Tear, "Joining the infrared and electric wave spectra," *Astrophys. J.* **61**, 17 :37 (1925).
- [2] B. Ferguson and X. C. Zhang, "Materials for terahertz science and technology," *Nat. Mater.* **1**, 26 :31 (2002).
- [3] F. D. Lucia, "Terahertz spectroscopy and applications," *IEEE Int. Freq. Control Symp.* **1**, 1 :8 (2006).
- [4] D. Mittlemann, *Sensing With Terahertz Radiation* (Springer, 2003).
- [5] W. L. Chan, J. Deibel, and D. Mittleman, "Imaging with terahertz radiation," *Rep. Prog. Phys.* **70**, 1325 :1379 (2007).
- [6] M. van Exter and D. Grischkowsky, "Carrier dynamics of electrons and holes in moderately doped silicon," *Phys. Rev. B* **41**, 12140 :12149 (1990).
- [7] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira, and D. Zimdars, "THz imaging and sensing for security applications : Explosives, weapons, and drugs," *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S266 :S280 (2005).
- [8] R. Appleby and H. B. Wallace, "Standoff detection of weapons and contraband in the 100 GHz to 1 THz region," *IEEE T. Antenn. Propag.* **55**, 2944 :2956 (2007).
- [9] K. Humphreys, J. P. Loughran, M. Gradziel, W. Lanigan, T. Ward, J. A. Murphy, and C. O'Sullivan, "Medical applications of terahertz imaging : A review of current technology and potential applications in biomedical engineering," *Proc. of 26th Annual Int. Conf. of the Engineering in Med. and Bio. Soc.* **2**, 1302 :1305 (2004).
- [10] E. Pickwell and V. P. Wallace, "Biomedical applications of terahertz technology," *J. Phys. D : Appl. Phys.* **39**, R301 :310 (2006).

- [11] T. Kleine-Ostmann, K. Pierz, G. Hein, P. Dawson, and M. Koch, "Audio signal transmission over THz communication channel using semiconductor modulator," *Elec. Lett.* **40**, 124 :126 (2004).
- [12] T.-A. Liu, G.-R. Lin, Y.-C. Chang, and C.-L. Pan, "Wireless audio and burst communication link with directly modulated THz photoconductive antenna," *Opt. Express* **30**, 10416 :10423 (2005).
- [13] M. J. Fitch and R. Osiander, "Terahertz waves for communications and sensing," *Johns hopkins APL Technical Digest* **25**, 348 :355 (2004).
- [14] K. Wang and D. M. Mittleman, "Metal wires for terahertz wave guiding," *Nature* **439**, 376 :379 (2004).
- [15] B. Bowden, J. A. Harrington, and O. Mitrofanov, "Silver/polystyrene-coated hollow glass waveguides for the transmission of terahertz radiation," *Opt. Lett.* **32**, 2945 :2947 (2007).
- [16] S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, S. Barbieri, A. D. Rossi, H. E. Beere, and D. A. Ritchie, "Terahertz transfer onto a telecom optical carrier," *Nature Photonics* **1**, 411 :415 (2007).
- [17] S. G. Carter, V. Ciulin, M. S. Sherwin, M. Hanson, A. Huntington, L. A. Coldren, and A. C. Gossard, "Terahertz electro-optic wavelength conversion in GaAs quantum wells : Improved efficiency and room-temperature operation," *Appl. Phys. Lett.* **84**, 840 :842 (2004).
- [18] P. H. Siegel, "Terahertz technology," *IEEE T. Microw. Theory.* **50**, 910 :928 (2002).
- [19] P. H. Siegel, "THz instruments for space," *IEEE T. Antenn. Propag.* **55**, 2944 :2956 (2007).
- [20] H. L. Nordh, "The odin orbital observatory," *A&A* **402**, L21 :L25 (2003).
- [21] P. Ricaud, D. Alexandre, B. Barreta, E. L. Flochmoën, E. Motte, G. Berthet, F. Lefèvre, and D. Murtagh, "Measurements of mid-stratospheric formaldehyde from the odin/smr instrument," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **107**, 91 :104 (2007).
- [22] N. Biver, D. Bockelée-Morvan, J. Crovisier, A. Lecacheux, U. Frisk, A. Hjalmarson, M. Olberg, H.-G. Florén, A. Sandqvist, and S. Kwok, "Submillimetre observations of comets with odin : 2001-2005," *Planetary and Space Science* **55**, 1058 :1068 (2007).
- [23] J. W. Waters, "The UARS and EOS microwave limb sounder (MLS) experiments," *J. Atmos. Sci.* **56**, 194 :218 (1999).

- [24] J. W. Waters, "The earth observing system microwave limb sounder (EOS MLS) on the aura satellite," *IEEE T. Geosci. Remote.* **44**, 1075 :1092 (2006).
- [25] T. de Graauw et al., "The herschel-heterodyne instrument for the far-infrared (HIFI)," in "Proc. SPIE, Conf. on Astronomical Telescopes and Instrumentation," (2006).
- [26] J. M. Lamarre, "The planck high frequency instrument, a 3rd generation cmb experiment, and a full sky submillimeter survey," *New Astron.Rev.* **47**, 1017 :1024 (2007).
- [27] E. E. Becklin, "Stratospheric observatory for infrared astronomy (SO-FIA)," *Adv. Space Res.* **36**, 1087 :1090 (2005).
- [28] R. Güsten, L. A. Nyman, P. Schilke, K. Menten, C. Cesarsky, and R. Booth, "The atacama pathfinder experiment (APEX) : A new submillimeter facility for southern skies," *A&A* **454**, L13 :L16 (2006).
- [29] S. D. Rijcke, P. Buyle, J. Cannon, F. Walter, A. Lundgren, D. Michielsen, and H. Dejonghe, "APEX CO(3-2) observations of NGC 6822," *A&A* **454**, L111 :L114 (2006).
- [30] F. L. Schöier, J. K. Jørgensen, K. M. Pontoppidan, and A. A. Lundgren, "Low-mass star formation in R coronae australis : Observations of organic molecules with the APEX telescope," *A&A* **454**, L67 :L70 (2006).
- [31] T. G. Philipps and J. J. Keene, "Submillimeter astronomy," *Proc. of the IEEE* **80**, 1662 :1678 (1992).
- [32] S. P. Belov, M. Y. Tretyakov, I. N. Kozin, E. Klisch, G. Winnewisser, W. J. Lafferty, and J.-M. Flaud, "High frequency transitions in the rotational spectrum of  $SO_2$ ," *J. Mol. Spec.* **191**, 17 :27 (1998).
- [33] H. S. P. Müller, F. Schlöder, J. Stutzki, and G. Winnewisser, "The cologne database for molecular spectroscopy, CDMS : A useful tool for astronomers and spectroscopists," *J. Mol. Struct.* **742**, 215 :227 (2005).
- [34] H. M. Pickett, R. L. Poynter, E. A. Cohen, M. L. Delitsky, J. C. Pearson, and H. S. P. Muller, "Submillimeter, millimeter, and microwave spectral line catalog," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **60**, 883 :890 (1998).
- [35] H. Eisele, "Second-harmonic power extraction from InP gunn devices with more than 1 mW in the 260-320 GHz frequency range," *Elec. Lett.* **34**, 2412 :2413 (1998).
- [36] H. Eisele and G. I. Haddad, "Two terminals millimeter wave sources," *IEEE T. Microw. Theory.* **46**, 739 :745 (1998).

- [37] G. Winnewisser, A. F. Krupnov, M. Y. Tretyakov, M. Liedtke, F. Lewen, A. H. Saleck, R. Schieder, A. P. Shkaev, and S. V. Volokhov, "Precision broadband spectroscopy in the terahertz region," *J. Mol. Spec.* **165**, 294 :300 (1994).
- [38] M. Philipp, U. U. Graf, A. Wagner-Gentner, D. Rabanus, and F. Lewen, "Compact 1.9 THz BWO local-oscillator for the GREAT heterodyne receiver," *Inf. Phys. Tech.* **51**, 54 :59 (2007).
- [39] G. Winnewisser, "Spectroscopy in the terahertz region," *Vib. Spec.* **8**, 241 :253 (2005).
- [40] M. Bogey, H. Bolvin, M. Cordonnier, C. Demuynck, J. L. Destombes, and A. G. Csaszar, "Millimeter and submillimeter-wave spectroscopy of dibridged  $Si_2H_2$  isotopomers : Experimental and theoretical structure," *J. Chem. Phys.* **100**, 8614 :8624 (1994).
- [41] J. Kaminski, "Current applications using the ucsb free electron laser," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **296**, 784 :786 (1990).
- [42] A. van der Meer, "The IR user facility FELIX / FELICE annual report 2007," (2007).
- [43] G. P. Gallerano and S. Biedron, "Overview of terahertz radiation sources," in "Proc. of the 2004 FEL conf.", (2004), p. 216 :221.
- [44] A. Abo-Bakr, J. Feikes, K. Holldack, U. Schade, G. Wustefeld, and H. W. Hubers, "Coherent THz synchrotron radiation at bessy 2," in "IEEE Tenth Inter. Conf. on Terahertz Elec. Proc.", (2002), p. 147 :149.
- [45] G. L. Carr, M. C. Martin, W. R. McKinney, K. Jordan, G. R. Neil, and G. P. Williams, "High-power terahertz radiation from relativistic electrons," *Nature* **420**, 153 :156 (2002).
- [46] P. Roy, J.-B. Brubach, M. Rouzières, O. Pirali, F. K. Tchana, and L. Manceron, "Ailes : La ligne infrarouge et thz sur rayonnement synchrotron soleil," *REE* **3**, 23 :30 (2008).
- [47] T. Hori and N. Hiromot, "Characteristics of a far-infrared molecular laser optically pumped by a high-power  $CO_2$  laser," *Int. J. Infrared Millim. Waves* **13**, 483 :496 (1992).
- [48] W. Chen, "Techniques d'hétérodynage dans l'infrarouge lointain. Quelques applications en spectroscopie de rotation," Ph.D. thesis, Université de Sciences et Technologie de Lille 1 (1991).

- [49] W. Lin, J. X. Han, L. K. Takahashi, H. A. Harker, F. N. Keutsch, and R. J. Saykally, "Terahertz vibration rotation-tunneling spectroscopy of the water tetramer  $-d_8$  :combined analysis of vibrational bands at 4.13 and 2.03 THz," J. Chem. Phys. **128**, 094302 :10 (2008).
- [50] G. A. Blake, K. B. Laughlin, R. C. Cohen, K. L. Busarow, D. H. Gwo, C. A. Schmutienmaer, D. W. Steiert, and R. J. Saykally, "The berkeley tunable far infrared laser spectrometers," Rev. Sci. Instr. **62**, 1701 :1716 (1991).
- [51] J. P. Bekooy, P. Verhoeve, W. L. Meerts, and A. Dymanus, "Submillimeter spectroscopy on OH<sup>+</sup> : The rotational transition at 1 THz," J. Chem. Phys. **82**, 3868 :3869 (1985).
- [52] N. Pugliano and R. J. Saykally, "Measurement of the  $\nu_8$  intermolecular vibration of  $(D_2O)_2$  by tunable far infrared laser spectroscopy," J. Chem. Phys. **92**, 1832 :1839 (1992).
- [53] L. Margulès, J. Cosléou, R. Bocquet, J. Demaison, H. Bürger, and E. B. Mkadmi, "Analysis of rotational and rovibrational spectra of  $SiDF_3$  in the ground and  $\nu_4 = 1$  excited states," J. Mol. Spec. **198**, 1 :9 (1999).
- [54] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Quantum cascade laser," Science **264**, 553 :556 (1994).
- [55] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Ross, "Terahertz semiconductor-heterostructure laser," Nature **417**, 156 :159 (2002).
- [56] B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, and J. L. Reno, "Resonant-phonon terahertz quantum-cascade laser operating at 2.1 THz ( $\lambda=141 \mu m$ )," Elec. Lett. **40**, 431 :433 (2004).
- [57] S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, E. H. Linfield, D. A. Ritchie and, S. Withington, G. Scalari, L. Ajili, and J. Faist., "Heterodyne mixing of two far-infrared quantum cascade lasers by use of a point-contact schottky diode," Opt. Lett. **29**, 1632 :1634 (2004).
- [58] H.-W. Hübers, S. G. Pavlov, H. Richter, A. D. Semenov, L. Mahler, A. Tredicucci, H. E. Beere, and D. A. Ritchie, "High-resolution gas phase spectroscopy with a distributed feedback terahertz quantum cascade laser," Appl. Phys. Lett. **89**, 061115 (2006).
- [59] G. Gagliardi, S. Viciani, M. Inguscio, P. D. Natale, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Generation of tunable far-infrared radiation with a quantum cascade laser," Opt. Lett. **27**, 521 :523 (2002).

- [60] G. Cazzoli and L. Dore, "Observation of crossing resonances in the hyperfine structure of the  $J = 1 \leftarrow 0$  transition of  $DC^{15}N$ ," *J. Mol. Spec.* **143**, 231 :236 (1990).
- [61] J. Ward, E. Schlecht, G. Chattopadhyay, A. Maestrini, J. Gill, F. Maiwald, H. Javadi, and I. Mehdi, "Capability of THz sources based on schottky diode frequency multiplier chains," *IEEE MTT-S Int. Microwave Symp.* **3**, 1587 :1590 (2004).
- [62] G. Chattopadhyay, E. Schlecht, J. Gill, S. Martin, A. Maestrini, D. Pukala, F. Maiwald, and I. Mehdi, "A broadband 800 GHz schottky balanced doubler," *IEEE Microw. Wirel. Co.* **12**, 117 :118 (2002).
- [63] F. Maiwald, S. Martin, J. Bruston, A. Maestrini, T. Crawford, and P. H. Siegel, "2.7 THz waveguide tripler using monolithic membrane diodes," *Proc. of the IEEE* **3**, 1637 :1640 (2001).
- [64] B. J. Drouin, F. W. Maiwald, and J. C. Pearson, "Application of cascaded frequency multiplication to molecular spectroscopy," *Rev. Sci. Instr.* **76**, 093113 (2005).
- [65] C. P. Endres, F. Lewen, T. F. Giesen, S. Schlemmer, D. G. Paveliev, Y. I. Koschurinov, V. M. Ustinov, and A. E. Zhucov, "Application of superlattice multipliers for high-resolution terahertz spectroscopy," *Rev. Sci. Instr.* **78**, 043106 (2007).
- [66] D. G. Paveliev, Y. I. Koschurinov, F. Lewen, C. Endres, A. M. Baryshev, V. M. Ustinov, and A. E. Zhukov, "Frequency dependence of the harmonic radiation power emitted by a GaAs/AlAs superlattice diode in the terahertz frequency range," in "Int. Conf. on Inf. and Milli. Waves & 13th Int. Conf. Terahertz Electronics," (2005), p. 140 :141.
- [67] D. H. Auston and M. C. Nuss, "Electro-optic generation and detection of femtosecond electrical transients," *IEEE J. Quantum. Electron.* **24**, 184 :187 (1988).
- [68] P. Y. Han, M. Tani, F. Pan, and X. C. Zhang, "Use of the organic crystal DAST for terahertz beam application," *Opt. Lett.* **25**, 675 :677 (2000).
- [69] T. Bartel, K. Reimann, M. Woerner, and T. Elsaesser, "Generation of THz transients with high electric-field amplitudes," in "Proc. of the Conf. on Lasers & Electro-Optics," (2005).
- [70] J. T. Darrow, X. C. Zhang, D. H. Auston, and J. D. Morse, "Saturation properties of large-aperture photoconducting antennas," *IEEE J. Quantum. Electron.* **29**, 1607 :1616 (1992).

- [71] P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss, "Subpicosecond photoconducting dipole antennas," *IEEE J. of quant. elec.* **24**, 255 :260 (1988).
- [72] B. I. Greene, J. F. Federici, D. R. Dykaar, R. R. Jones, and P. H. Bucksbaum, "Interferometric characterization of 160 fs far-infrared light pulses," *Appl. Phys. Lett.* **59**, 893 :895 (1991).
- [73] C. A. Schmuttenmaer, "Exploring dynamics in the far-infrared with terahertz spectroscopy," *Chem. Rev.* **104**, 1759 :1779 (2004).
- [74] M. A. Khazan, "Time domain terahertz spectroscopy and its application to the study of high *t<sub>c</sub>* superconductor thin films," Ph.D. thesis, Université de Hambourg (2002).
- [75] K. M. Evenson, D. A. Jennings, and F. R. Petersen, "Tunable far-infrared spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.* **44**, 576 :578 (1984).
- [76] F. Matsushima, H. Odashima, T. Iwasaki, S. Tsunekawa, and K. Takagi, "Frequency measurement of pure rotational transitions of  $H_2O$  from 0.5 to 5 THz," *J. Mol. Struct.* **352/353**, 371 :378 (1995).
- [77] V. Appollonov, R. Bocquet, A. Boscheron, A. I. Gribenyukov, V. V. Korotkova, C. Rouyer, A. G. Suzdal'tsev, and Y. A. Shakir, "Far infrared generation by  $CO_2$  lasers frequencies subtraction in a  $ZnGeP_2$  crystal," *Int. J. Infrared Millim. Waves* **17**, 1465 :1472 (1996).
- [78] S. Y. Tochitsky, C. Sung, S. E. Trubnick, C. Joshi, and K. L. Vodopyanov, "High-power tunable, 0.5-3 THz radiation source based on nonlinear difference frequency mixing of  $CO_2$  laser lines," *J. Opt. Soc. Am. B* **24**, 2509 :2516 (2007).
- [79] J. E. Schaar, K. L. Vodopyanov, and M. M. Fejer, "Intracavity terahertz-wave generation in a synchronously pumped optical parametric oscillator using quasi-phase-matched GaAs," *Opt. Lett.* **32**, 284 :1286 (2007).
- [80] J. Shikata, K. Kawase, K. Karino, T. Taniuchi, and H. Ito, "Tunable terahertz-wave parametric oscillators using  $LiNbO_3$  and  $MgO : LiNbO_3$  crystals," *IEEE T. Microw. Theory.* **48**, 653 :661 (2000).
- [81] E. R. Brown, K. A. McIntosh, F. W. Smith, M. J. Manfra, and C. L. Dennis, "Measurements of optical-heterodyne conversion in low-temperature-grown GaAs," *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1206 :1208 (1993).
- [82] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting, and X. C. Zhang, "A direct comparison between terahertz time-domain spectroscopy and far-infrared fourier transform spectroscopy," *J. Appl. Phys.* **89**, 2357 :2359 (2001).

- [83] O. Pirali and M. Vervloet, "Far-infrared fourier transform emission spectroscopy in the gas phase," *Chem. Phys. Lett.* **423**, 376 :381 (2006).
- [84] E. R. Brown, K. A. McIntosh, F. W. Smith, K. B. Nichols, M. J. Manfra, C. L. Dennis, and J. P. Mailia, "Milliwatt output levels and superquadratic bias dependence in a low-temperature-grown GaAs photomixer," *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3311 :3313 (1994).
- [85] S. Verghese, K. A. McIntosh, and E. R. Brown, "Highly tunable fiber-coupled photomixers with coherent terahertz output power," *IEEE T. Microw. Theory.* **45**, 1301 :1309 (1997).
- [86] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis, "Photomixing up to 3.8 THz in low-temperature-grown GaAs," *Appl. Phys. Lett.* **66**, 285 :287 (1995).
- [87] Q. Quraishi, M. Griebel, T. Kleine-Ostmann, and R. Bratschitsch, "Generation of phase-locked and tunable continuous-wave radiation in the terahertz regime," *Opt. Lett.* **30**, 3231 :3233 (2005).
- [88] P. Chen, J. C. Pearson, H. M. Pickett, S. Matsuura, and G. A. Blake, "Measurements of  $^{14}\text{NH}_3$  in the  $\nu_2 = 1$  state by a solid-state, photomixing, THz spectrometer, and a simultaneous analysis of the microwave, terahertz, and infrared transitions between the ground and  $\nu_2$  inversion-rotation levels," *J. Mol. Spec.* **236**, 116 :126 (2006).
- [89] A. S. Pine, R. D. Suenram, E. R. Brown, and K. A. McIntosh, "A terahertz photomixing spectrometer : Application to  $\text{SO}_2$  self broadening," *J. Mol. Spec.* **175**, 37 :47 (1995).
- [90] S. Matsuura, M. Tani, H. Abe, K. Sakai, H. Ozeki, and S. Saito, "High-resolution terahertz spectroscopy by a compact radiation source based on photomixing with diode lasers in a photoconductive antenna," *J. Mol. Spec.* **187**, 97 :101 (1998).
- [91] C. Baker, I. S. Gregory, M. J. Evans, and W. R. Tribe, "All-optoelectronic terahertz system using low temperature-grown InGaAs photomixers," *Opt. Express* **13**, 9639 :9644 (2005).
- [92] N. Chimot, J. Mangeney, P. Crozat, J. Lourtioz, K. Blary, J. Lampin, G. Mouret, D. Bigourd, and E. Fertein, "Photomixing at  $1.55 \mu\text{m}$  in ion-irradiated  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  on  $\text{InP}$ ," *Opt. Express* **14**, 1856 :1861 (2006).
- [93] J. Mangeney, A. Merigault, N. Zerounian, P. Crozat, K. Blary, and J. F. Lampin, "Continuous wave terahertz generation up to 2 THz by photomixing on ion-irradiated  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  at  $1.55 \mu\text{m}$  wavelengths," *Applied Physics Letters* **91**, 241102 (2007).

- [94] E. R. Brown, D. C. Driscoll, and A. C. Gossard, "State-of-the-art in 1.55  $\mu\text{m}$  ultrafast InGaAs photoconductors, and the use of signal-processing techniques to extract the photocarrier lifetime," *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S199 :S204 (2005).
- [95] H. Ito, F. Nakajima, T. Furuta, and T. Ishibashi, "Continuous THz-wave generation using antenna-integrated uni-travelling-carrier photodiodes," *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S191 :S198 (2006).
- [96] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward, "Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator," *Appl. Phys. B : Lasers Opt.* **31**, 97 :105 (1983).
- [97] E. Black, "Notes on the pound-drever-hall technique," Tech. rep., Technical note of the LIGO Project (1998).
- [98] R. V. Pound, "Frequency stabilization of microwave oscillators," *Proc. of the IRE* **35**, 1405 :1415 (1947).
- [99] T. Day, E. K. Gustafson, and R. L. Byer, "Sub-hertz relative frequency stabilization of two-diode laser-pumped Nd : YAG lasers locked to a fabry-perot interferometer," *IEEE J. Quantum. Electron.* **28**, 1106 :1117 (1992).
- [100] B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, and J. C. Bergquist, "Visible lasers with subhertz linewidths," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799 :3802 (1999).
- [101] H. Stoehr, F. Mensing, J. Helmcke, and U. Sterr, "Diode laser with 1 Hz linewidth," *Opt. Lett.* **31**, 736 :738 (2006).
- [102] E. M. Lally, "A narrow linewidth laser at 1550 nm using the pound-drever-hall stabilization technique," Ph.D. thesis, Université de Technologie de Virginie (2006).
- [103] C. Salomon, D. Hils, and J. L. Hall, "Laser stabilization at the millihertz level," *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 1576 :1587 (1988).
- [104] A. Schoof, J. Grünert, S. Ritter, and A. Hemmerich, "Reducing the linewidth of a diode laser below 30 Hz by stabilization to a reference cavity with a finesse above  $10^5$ ," *Opt. Lett.* **26**, 1562 :1564 (2001).
- [105] M. Bahoura and A. Clairon, "Ultimate linewidth reduction of a semiconductor or laser frequency stabilized to a Fabry-Perot interferometer," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **50**, 1414 :1420 (2003).
- [106] M. Zhu and J. L. Hall, "Short and long term stability of optical oscillators," in "Proc. IEEE Freq. Control symposium," (1992).

- [107] E. Bava, G. Galzerano, and C. Svelto, "Amplitude and frequency noise sensitivities of optical frequency discriminators based on fabry-perot interferometers and the frequency modulation technique," *Rev. Sci. Instr.* **77**, 123106 (2006).
- [108] J. Alda, *Laser And Gaussian Beam Propagation And Transformation* (Elsevier, 2003), chap. 03, p. 999 :1013.
- [109] L. Brillouin, "Diffusion de la lumière et des rayons X par un corps transparent homogène," *Ann. Phys.* **17**, 88 :122 (1922).
- [110] P. Debye and F. W. Sears, "On the scattering of light by supersonic waves," *Proc. Natl. Acad. Sci.* **18**, 409 :414 (1932).
- [111] A. Korpel, "Acousto-optics : A review of fundamentals," *Proc. of the IEEE* **69**, 48 :53 (1981).
- [112] W. R. Klein and B. D. Cook, "Unified approach to ultrasonic light diffraction," *IEEE T. Son. Ultrason.* **14**, 123 :134 (1967).
- [113] E. A. Donley, T. P. Heavner, F. Levi, M. O. Tataw, and S. R. Jefferts, "Double-pass acousto-optic modulator system," *Rev. Sci. Instr.* **76**, 063112 (2005).
- [114] J. J. Snyder, "Paraxial ray analysis of a cat's eye retroreflector," *Appl. Opt.* **14**, 1825 :1828 (1975).
- [115] G. Spirou, I. Yavin, M. Weel, T. Mikaelian, A. Vorozcovs, A. Andreyuk, A. K. P. R. Battle, and R. C. Swanson, "A high-speed modulated retroreflector for lasers," *IEEE Aero. Conf. Proc.* **3**, 3-1481 :3-1486 (2002).
- [116] S. Matsuura, P. Chen, G. A. Blake, J. C. Pearson, and H. M. Pickett, "A tunable cavity-locked diode laser source for terahertz photomixing," *IEEE T. Microw. Theory.* **48**, 380 :387 (2000).
- [117] J. S. Blakemore, "Semiconducting and other major properties of gallium arsenide," *J. Appl. Phys.* **53**, R123 :R181 (1982).
- [118] W. C. Lee, T. M. Hsu, J. I. Chyi, G. S. Lee, W. H. Li, and K. C. Lee, "Characterization of low temperature GaAs grown by molecular beam epitaxy," *Appl. Surf. Sci.* **92**, 66 :69 (1996).
- [119] A. Krotkus, K. Bertulis, and R. Adomavicius, "Low temperature MBE grown GaAs for terahertz radiation applications," in "Gallium Arsenide applications symposium," (2004).

- [120] S. Gupta and J. F. Whitaker, "Ultrafast carrier dynamics in 111-V semiconductors grown by molecular-beam epitaxy at very low substrate temperatures," *IEEE J. Quantum. Electron.* **38**, 2464 :2472 (1992).
- [121] S. Y. Chou and M. Y. Liu, "Nanoscale terahertz metal-semiconductor-metal photodetectors," *IEEE J. Quantum. Electron.* **28**, 2358 :2368 (1992).
- [122] V. H. Rumsey, *Frequency Independent Antennas* (Academic Press, 1966).
- [123] B. Cheo, V. Rumsey, and W. Welch, "A solution to the frequency-independent antenna problem," *IRE Trans. Ant. Prop.* **9**, 527 :534 (1961).
- [124] K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahon, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz, "Terahertz photomixing with diode lasers in low-temperature-grown GaAs," *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3844 :3846 (1995).
- [125] E. Peytavit, "Génération et propagation aux fréquences térahertz," Ph.D. thesis, Université de Sciences et Technologie de Lille1 (2002).
- [126] E. R. Brown, F. W. Smith, and K. A. McIntosh, "Coherent millimeter-wave generation by heterodyne conversion in low-temperature-grown GaAs photoconductors," *J. Appl. Phys.* **73**, 1480 :1484 (1993).
- [127] I. S. Gregory, C. Baker, W. R. Tribe, I. V. Bradley, M. J. Evans, E. H. Linfield, A. G. Davies, and M. Missous, "Optimization of photomixers and antennas for continuous-wave terahertz emission," *IEEE J. Quantum. Electron.* **41**, 717 :728 (2005).
- [128] D. Sakeedia, "Modeling and design of photoconductive and superconductive terahertz photomixer sources," Ph.D. thesis, Université de Waterloo (2005).
- [129] R. Czarny, "Etude et réalisation d'une source térahertz accordable de grande pureté spectrale," Ph.D. thesis, Université de Sciences et Technologie de Lille (2007).
- [130] J. D. Dyson, "The equiangular spiral antenna," *IRE Trans. Ant. Prop.* **AP 7**, 181 :189 (1959).
- [131] W. Lukosz and R. E. Kunz, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. i. total radiated power," *J. Opt. Soc. Am. B* **67**, 1607 :1615 (1977).
- [132] D. Rutledge, "Substrate-lens coupled antennas for millimeter and submillimeter waves," *IEEE Ant. and Prop. Soc. Newsletter* **27**, 6 :8 (1985).

- [133] C. R. Brewitt-Taylor, D. J. Gunton, and H. D. Rees, "Planar antennas on a dielectric surface," *Elec. Lett.* **17**, 729 :731 (1981).
- [134] D. Rutledge and M. S. Muha, "Imaging antenna arrays," *IEEE T. Antenn. Propag.* **AP 30**, 535 :540 (1982).
- [135] D. F. Filipovic, S. S. Gearhart, and G. M. Rebeiz, "Double-slot antennas on extended hemispherical and elliptical silicon dielectric lenses," *IEEE T. Microw. Theory.* **41**, 1738 :1749 (1993).
- [136] G. M. Rebeiz, "Millimeter-wave and terahertz integrated circuit antennas," *Proc. of the IEEE* **80**, 1748 :1770 (1992).
- [137] J. V. Rudd and D. M. . Mittleman, "Influence of substrate-lens design in terahertz time-domain spectroscopy," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 319 :329 (2002).
- [138] M. T. Reiten and R. A. Cheville, "Effect of spherical aberration and surface waves on propagation of lens-coupled terahertz pulses," *Opt. Lett.* **30**, 673 :675 (2005).
- [139] M. T. Reiten, S. A. Harmon, and R. A. Cheville, "Terahertz beam propagation measured through three-dimensional amplitude profile determination," *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 2215 :2225 (2003).
- [140] D. F. Filipovic, G. P. Gauthier, S. Raman, and G. M. Rebeiz, "Off-axis properties of silicon and quartz dielectric lens antennas," *IEEE T. Antenn. Propag.* **45**, 760 :766 (1997).
- [141] S. Verghese, K. A. McIntosh, and E. R. Brown, "Optical and terahertz power limits in the low-temperature-grown GaAs photomixers," *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2743 :2745 (1997).
- [142] M. Tani, O. Morikawa, S. Matsuura, and M. Hangyo, "Generation of terahertz radiation by photomixing with dual- and multiple-mode lasers," *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S151 :S163 (2005).
- [143] Z.-M. Li, K. Dzurko, A. Delage, and S. McAlister, "A self-consistent two-dimensional model of quantum-well semiconductor lasers : optimization of a grin-sch sqw laser structure," *IEEE J. Quantum. Electron.* **28**, 792 :803 (1992).
- [144] P. U. Jepsen and S. R. Keiding, "Radiation patterns from lens-coupled terahertz antennas," *Opt. Lett.* **20**, 807 :809 (1995).
- [145] J. B. Heaney, K. P. Stewart, and G. Hass, "Transmittance and reflectance of crystalline quartz and high and low-water content fused silica from 2  $\mu\text{m}$  to 1 mm," *Appl. Opt.* **22**, 4069 :4072 (1983).

- [146] G. Gallot, S. P. Jamison, R. W. McGowan, and D. Grischkowsky, "Terahertz waveguides," *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 851–863 (2000).
- [147] J. A. Deibel, K. Wang, M. D. Escarra, and D. Mittleman, "Enhanced coupling of terahertz radiation to cylindrical wire waveguides," *Opt. Express* **14**, 279–290 (2006).
- [148] J. Ye and T. W. Lynn, "Applications of optical cavities in modern atomic, molecular, and optical physics," *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **49**, 1 :83 (2003).
- [149] P. Ferrari, *Systèmes Linéaires-Automatique, Cours d'Automatisme, Deug STPI2, Université De Haute Savoie*.
- [150] E. D. Black, "An introduction to pound-drever-hall laser frequency stabilisation," *Am. J. Phys.* **69**, 79 :87 (2001).
- [151] D. Dangoisse, D. Hennequin, and V. Zehnlé, *Les Lasers* (Dunod, 2004).
- [152] M. de Labachellerie, C. Latrasse, P. Kemssu, and P. Cerez, "The frequency control of laser diodes," *J. Phys. 3* **2**, 1557 :1589 (1992).
- [153] L. Ricci, M. Weidemuller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. Kijinig, and T. W. Hansch, "A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics," *Opt. Commun.* **117**, 541 :549 (1995).
- [154] A. Aspect, *Optique quantique 1 : Lasers tome 2 Majeure de physique*, Ecole polytechnique (2005).
- [155] C. Chardonnet, *Laser Monofréquence Et Stabilisation* (EDP science, 2002), chap. Les lasers et leurs applications scientifiques et medicales, p. 189 :217.
- [156] A. Yariv, *Quantum Electronics* (Wiley, 1989).
- [157] H. Kogelnik, "Coupling and conversion coefficients for optical modes," *Proc. of the Symposium on Quasi-Optics* **14**, 335 :347 (1964).
- [158] D. Z. Anderson, "Alignment of resonant optical cavities," *Appl. Opt.* **23**, 2944 :2949 (1984).
- [159] M. Zhu and J. L. Hall, "Stabilization of optical phase/frequency of a laser system : application to a commercial dye laser with an external stabilizer," *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 802 :816 (1993).
- [160] C. H. Henry, "Theory of the linewidth of semiconductor lasers," *IEEE J. Quantum. Electron.* **18**, 259 :264 (1982).

- [161] E. Patzak, A. Sugimura, S. Saito, T. Mukai, and H. Olesent, "Semiconductor laser linewidth in optical feedback configuration," *Elec. Lett.* **19**, 1026 :1027 (1983).
- [162] M. Ohtsu and S. Kotajima, "Linewidth reduction of a semi-conductor laser by electrical feedback," *IEEE J. Quantum. Electron.* **21**, 1905 :1912 (1985).
- [163] R. Neuhaus, "Diode laser locking and linewidth narrowing," Tech. rep., document Toptica photonics. (2006).
- [164] J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Laser Stabilization To A Single Ion* (North Holland, 1994), chap. *Frontiers in Laser Spectroscopy*, p. 357 :376.
- [165] J. Alnis, A. Matveev, N. Kolachevsky, T. Udem, and T. W. Hansch, "Sub-Hertz linewidth diode lasers by stabilization to vibrationally and thermally compensated ultralow-expansion glass Fabry-Perot cavities," *Phys. Rev. A* **77**, 053809 (2008).
- [166] T. Nazarova, F. Riehle, and U. Sterr, "Vibration insensitive reference cavity for an ultra-narrow-linewidth laser," *Appl. Phys. B : Lasers Opt.* **83**, 531 :536 (2006).
- [167] A. Quessada-Vial, "Développement d'une horloge optique à atome de strontium piégés : Réalisation d'un laser ultrastable et stabilité en fréquence," Ph.D. thesis, Université de Paris VI (2005).
- [168] P. Werle, "Laser excess noise and interferometric effects in frequency-modulated diode laser spectrometers," *Appl. Phys. B : Lasers Opt.* **60**, 499 :506 (1995).
- [169] X. Zhu and D. T. Cassidy, "Modulation spectroscopy with a semiconductor diode laser by injection-current modulation," *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 1945 :1950 (1997).
- [170] R. Fox, C. W. Oates, and L. W. Hollberg, "Stabilizing diode laser to high finesse cavities," in "Experimental Methods in the Physical Sciences," , vol. 40 (Elsevier, 2002), p. 1 :46.
- [171] N. C. Wong and J. L. Hall, "Servo control of amplitude modulation in frequency-modulation spectroscopy : Demonstration of shot-noise-limited detection," *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1527 :1533 (1985).
- [172] H. Muller, S. Herrmann, T. Schuldt, M. Scholz, E. Kovalchuk, and A. Peters, "Offset compensation by use of amplitude-modulated sidebands in optical frequency standards," *Opt. Lett.* **28**, 2186 :2188 (2003).

- [173] E. A. Whittaker, M. Gehrtz, and G. C. Bjorklund, "Residual amplitude modulation in laser electro-optic phase modulation," *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1320 :1326 (1985).
- [174] S. A. Webster, M. Oxborrow, and P. Gill, "Subhertz-linewidth Nd :YAG laser," *Opt. Lett.* **29**, 1497 :1499 (2004).
- [175] Y. Bidel, "Piégeage et refroidissement laser du strontium : Etude de l'effet des interférences en diffusion multiple," Ph.D. thesis, Université de Nice-Sophia Antipolis (2002).
- [176] M. J. Lawrence, B. Willke, M. E. Husman, E. K. Gustafson, and R. L. Byer, "Dynamic response of a Fabry-Perot interferometer," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 523 :532 (1999).
- [177] N. Falletto, "Etude, conception et réalisation d'une cavité Fabry-Pérot pour le polarimètre compton de TJNAF," Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier de Grenoble (1999).
- [178] H. Rohde, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler, and R. Blatt, "Optical decay from a Fabry-Perot cavity faster than the decay time," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 1425 :1429 (2002).
- [179] A. M. D. Riva, G. Zavattini, S. Marigo, C. Rizzo, G. Ruoso, G. Carugno, R. Onofrio, S. Carusotto, M. Papa, F. Perrone, E. Polacco, G. Cantatore, F. D. Valle, P. Micossi, E. Milotti, P. Pace, and E. Zavattini, "Very high q frequency-locked Fabry-Perot cavity," *Rev. Sci. Instr.* **67**, 2680 :2684 (1996).
- [180] M. Houssin, M. Jardino, and M. Desaintfusien, "Comparison of the calculated transient responses of a fabry-perot used in reflection and in transmission," *Rev. Sci. Instr.* **61**, 3348–3352 (1990).
- [181] P. Tremblay and R. Ouellet, "Frequency response of a fabry-perot interferometer used as a frequency discriminator," *IEEE T. Instrum. Meas.* **40**, 204–207 (1991).
- [182] F. Bondu, "L'interféromètre virgo : Propriétés optiques, stabilisation en fréquence du laser," .
- [183] P. Urich, "Stabilité des oscillateurs ultra-stables," in "Journées X-ENS-UPS de physique," (2007).
- [184] L. Margulès, J. Demaison, and P. Pracna, "Rotational spectrum in the  $\mu_6 = 1$  and  $\mu_3 = 1$  levels of chloroform," *J. Mol. Struct.* **795**, 157 :162 (2006).
- [185] J. L. Hall, M. S. Taubman, and J. Ye, "Laser stabilization," *OSA Handbook v14* (1999).

- [186] F. Keppler, D. B. Harper, T. Röckmann, R. M. Moore, and J. T. G. Hamilton, "New insight into the atmospheric chloromethane budget gained using stable carbon isotope ratios," *Atmos. Chem. Phys.* **5**, 2403 :2411 (2005).
- [187] J. H. Park, R. Zander, C. B. Farmer, C. P. Rinsland, J. M. Russell, III, R. H. Norton, and O. F. Raper, "Spectroscopic detection of  $CH_3Cl$  in the upper troposphere and lower stratosphere," *Geophys. Res. Lett.* **13**, 765 :768 (1986).
- [188] J. W. Elkins, R. H. Kagann, and R. L. Sams, "Infrared band strengths for methyl chloride in the regions of atmospheric interest," *J. Mol. Spec.* **105**, 480 :490 (1984).
- [189] A. S. Grossman, K. E. Grant, W. E. Blass, and D. J. Wuebbles, "Radiative forcing calculations for  $CH_3Cl$  and  $CH_3Br$ ," *J. Geophys. Res.* **102**, 13651 :13656 (1997).
- [190] F. L. Constantin, J. Demaison, L. Féjard, M. Litz, H. Bürger, and P. Pracna, "High-resolution infrared and subterahertz spectroscopy of the  $\nu_2 = 1$ ,  $\nu_5 = 1$ , and  $\nu_3 = 2$  levels of  $^{13}CH_3^{35}Cl$ ," *J. Mol. Spec.* **243**, 234 :244 (2007).
- [191] G. Wlodarczak, D. Boucher, R. Bocquet, and J. Demaison, "The microwave and submillimeter-wave spectrum of methyl chloride," *J. Mol. Spec.* **116**, 251 :255 (1986).
- [192] J. Demaison, R. Bocquet, W. D. Chen, D. Papousek, D. Boucher, and H. Bürger, "The far-infrared spectrum of methyl chloride : Determination and order of magnitude of the sextic centrifugal distortion constants in symmetrical top," *J. Mol. Spec.* **166**, 147 :157 (1994).
- [193] A. Dubrulle, D. Boucher, J. Burie, and J. Demaison, "The high resolution rotational spectrum of methyl chloride. The spin-rotation and nuclear magnetic shielding tensors," *Chem. Phys. Lett.* **45**, 559 :563 (1977).
- [194] A. Dubrulle, J. Burie, D. Boucher, F. Herlemont, and J. Demaison, "Microwave spectra of methyl chloride, methyl bromide, and methyl iodide in the  $\nu_6 = 1$  excited vibrational state," *J. Mol. Spec.* **88**, 394 :401 (1981).
- [195] G. Wlodarczak, F. Herlemont, J. Demaison, A. Fayt, and J. G. Lahaye, "Combined subdoppler laser-stark and millimeter-wave spectroscopies : Analysis of the  $\nu_6$  band of  $CH_3^{35}Cl$ ," *J. Mol. Spec.* **112**, 401 :412 (1985).
- [196] W. Gordy, J. W. Simmons, and A. G. Smith, "Microwave determination of the molecular structures and nuclear couplings of the methyl halides," *Phys. Rev.* **74**, 243 :249 (1948).

- [197] W. Gordy and R. L. Cook, *Microwave Molecular Spectra* (Wiley, 1984), chap. 9, p. 391 :449.
- [198] J. H. Carpenter and P. Seo, "The millimeter-wave spectrum of methyl chloride," *J. Mol. Spec.* **113**, 355 :361 (1985).
- [199] H. Harde, N. Katzenellenbogen, and D. Grischkowsky, "Terahertz coherent transients from methyl chloride vapor," *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1018 :1030 (1994).
- [200] J.-M. Colmont, F. Rohart, G. Wlodarczak, and J.-P. Bouanich, "K-dependence and temperature dependence of  $N_2$ - and  $O_2$ -broadening coefficients for the  $J = 14 \leftarrow 13$  transition of methyl chloride  $CH_3^{35}Cl$ ," *J. Mol. Struct.* **780/781**, 268 :276 (2006).
- [201] W. Gordy and R. L. Cook, *Microwave Molecular Spectra* (Wiley, 1984).
- [202] <http://spec.jpl.nasa.gov/home.html>, "JPL database," (2008).
- [203] E. I. Moses and C. L. Tang, "High-sensitivity laser wavelength-modulation spectroscopy," *Opt. Lett.* **1**, 115 :117 (1977).
- [204] G. C. Bjorklund, "Frequency-modulation spectroscopy : a new method for measuring weak absorptions and dispersions," *Opt. Lett.* **5**, 15 (1980).
- [205] J. M. Supplee, E. A. Whittaker, and W. Lenth, "Theoretical description of frequency modulation and wavelength modulation spectroscopy," *Appl. Opt.* **33**, 6294 :6302 (1994).
- [206] G. Y. Golubiatnikov, A. V. Lapinov, A. Guarnieri, and R. Knöchel, "Precise lamb-dip measurements of millimeter and submillimeter wave rotational transitions of  $^{16}O^{12}C^{32}S$ ," *J. Mol. Spec.* **234**, 190 :194 (2005).
- [207] T. D. Varberg and K. M. Evenson, "Laser spectroscopy of carbon monoxide : A frequency reference for the far infrared," *IEEE T. Instrum. Meas.* **42**, 412 :414 (1993).
- [208] F. L. Constantin, L. Aballea, and J. Demaison, "Terahertz frequency metrology and sensitivity issues in photomixer spectrometer," in "Proc. of the 17th ISSTT, pp.294-297," (2006).
- [209] G. Winnewisser, E. Herbst, and H. Ungerechts, *Spectroscopy of the Earth's atmosphere and interstellar medium* (academic press, 1992), chap. Spectroscopy among the stars, p. 423 :517.
- [210] K. M. Menten and G. J. Melnick, "Discovery of strong vibrationally excited water masers at 658GHz toward evolved stars," *Astrophys. J.* **450**, L67 :L70 (1995).

- [211] J. Tauber, G. Olofsson, G. Pilbratt, L. Nordh, and U. Frisk, “First observations of the water vapour line at 557 GHz from the interstellar medium,” *A&A* **308**, 913 :923 (1996).
- [212] C. Salyk, K. M. Pontoppidan, G. A. Blake, F. Lahuis, E. F. van Dishoeck, N. J. Evans, and II., “ $H_2O$  and  $OH$  gas in the terrestrial planet-forming zones of protoplanetary disks,” *Astrophys. J.* **672**, L49 :L52 (2008).
- [213] L. Wallace, P. Bernath, W. Livingston, K. Hinkle, J. Busler, B. Guo, and K. Zhang, “Water on the sun,” *Science* **268**, 1155 :1158 (1995).
- [214] E. Herbst, Q. Chang, and H. M. Cuppen, “Chemistry on interstellar grains,” *J. Phys Conf. Ser.* **6**, 18 :35 (2005).
- [215] R. Papoular, “On water ice formation in interstellar clouds,” *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **362**, 489 :497 (2005).
- [216] L. J. Allamandola, M. P. Bernstein, S. A. Sandford, and R. L. Walker, “Evolution of interstellar ices,” *Spa. Sci. Rev.* **90**, 219 :232 (1999).
- [217] V. Mennella, M. E. Palumbo, and G. A. Baratta, “Formation of  $CO$  and  $CO_2$  molecules by ion irradiation of water ice-covered hydrogenated carbon grains,” *Astrophys. J.* **615**, 1073 :1080 (2004).
- [218] H. Hidaka, N. Watanabe, T. Shiraki, A. Nagaoka, and A. Kouchi, “Hydrogenation of  $CO$  on pure solid  $CO$  and  $CO - H_2O$  mixed ice,” *Astrophys. J.* **616**, 638 :642 (2004).
- [219] A. Maurellis and J. Tennyson, “The climatic effect of water vapour,” *Phys. World* **16**, – (2003).
- [220] E. Vöhringer-Martinez, B. Hansmann, H. Hernandez, J. S. Francisco, J. Troe, and B. Abel, “Water catalysis of a radical-molecule gas phase reaction,” *Science* **315**, 497 :500 (2007).
- [221] J. Barrett, “Greenhouse molecules, their spectra and function in the atmosphere,” *E & E* **16**, 1037 :1045 (2005).
- [222] B. Carli and M. Carlotti, *Spectroscopy of the Earth’s atmosphere and interstellar medium* (academic press, 1992), chap. Far-infrared and microwave spectroscopy of the Earth’s atmosphere., p. 1 :95.
- [223] S. Lossow, “Observations of water vapour in the middle atmosphere,” Ph.D. thesis, Université de Stockholm (2008).
- [224] R. J. Hill, “Dispersion by atmospheric water vapor at frequencies less than 1THz,” *IEEE T. Antenn. Propag.* **36**, 423 :430 (1988).

- [225] V. B. Podobedov, D. F. Plusquellic, K. E. Siegrist, G. T. Fraser, Q. Ma, and R. H. Tipping, "New measurements of the water vapor continuum in the region from 0.3 to 2.7 THz," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **109**, 458 :467 (2008).
- [226] J. M. Hartmann, C. Boulet, and D. Robert, *Collisional effects on molecular spectra : laboratory experiments and models, consequences for applications* (Elsevier Science, 2008).
- [227] J. K. Messer, F. C. D. Lucia, and P. Helminger, "The pure rotational spectrum of water vapor : A millimeter, submillimeter, and far infrared analysis," *Int. J. Infrared Millim. Waves* **4**, 505 :539 (1983).
- [228] P. Chen, J. C. Pearson, H. M. Pickett, S. Matsuura, and G. A. Blake, "Submillimeter-wave measurements and analysis of the ground and  $\nu_2 = 1$  states of water," *Astrophys. J.* **128**, 371 :385 (2000).
- [229] F. Matsushima, N. Tomatsu, T. Nagai, Y. Moriwaki, and K. Takagi, "Frequency measurement of pure rotational transitions in the  $\nu_2 = 1$  state of  $H_2O$ ," *J. Mol. Spec.* **235**, 190 :195 (2006).
- [230] L. H. Coudert, O. Pirali, M. Vervloet, R. Lanquetin, and C. Camy-Peyret, "The eight first vibrational states of the water molecule : measurements and analysis," *J. Mol. Spec.* **228**, 471 :498 (2004).
- [231] M. J. Dick, B. J. Drouin, and J. C. Pearson, "A collisional cooling investigation of the pressure broadening of the  $110 \leftarrow 101$  transition of water from 17 to 200 K," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **In Press**, – (2008).
- [232] T. Seta, H. Hoshina, Y. Kasai, I. Hosako, C. Otani, S. Lobow, J. Urban, M. Ekström, P. Eriksson, and D. Murtagh, "Pressure broadening coefficients of the water vapour lines at 556.936 and 752.033GHz," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **109**, 144 :155 (2008).
- [233] V. N. Markov and A. F. Krupnov, "Measurements of the pressure shift of the  $1(10) \leftarrow 1(01)$  water line at 556GHz produced by mixtures of gases," *J. Mol. Spec.* **172**, 211 :214 (1995).
- [234] G. Y. Golubiatnikov, M. A. Koshelev, and A. F. Krupnov, "Pressure shift and broadening of  $1(10) \leftarrow 1(01)$  water vapor lines by atmosphere gases," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **109**, 1828 :1833 (2008).
- [235] J. M. Hollas, *Modern Spectroscopy, 4th Edition* (Wiley, 2003).
- [236] F. Rohart, "Spectroscopie, cours de master physique," (2008). Université des Sciences et Technologies de Lille.

- [237] A. L. Schawlow and C. H. Townes, *Microwave Spectroscopy* (Dover Publications, 1975).
- [238] L. S. Rothman, D. Jacquemart, A. Barbe, D. C. Benner, M. Birk, L. R. Brown, M. R. Carleer, C. Chackerian, Jr., K. Chance, L. H. Coudert, V. Dana, V. M. Devi, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, A. Goldman, J.-M. Hartmann, K. W. Jucks, A. G. Maki, J.-Y. Mandin, S. T. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C. P. Rinsland, M. A. H. Smith, J. Tennyson, R. N. Tolchenov, R. A. Toth, J. V. Auwera, P. Varanasi, and G. Wagner, "The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **96**, 139 :204 (2005).
- [239] I. E. Gordon, L. S. Rothman, R. R. Gamache, D. Jacquemart, C. Boone, P. F. Bernath, M. W. Shephard, J. S. Delamere, and S. A. Clough, "Current updates of the water-vapor line list in HITRAN : A new "diet" for air-broadened half-widths," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **108**, 389 :402 (2007).
- [240] <http://www.cfa.harvard.edu/hitran/>, "Hitran database," (2008).
- [241] H. Hoshina, T. Seta, T. Iwamoto, I. Hosako, C. Otani, and Y. Kasai, "Precise measurement of pressure broadening parameters for water vapor with a terahertz time-domain spectrometer," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **109**, 144 :150 (2008).
- [242] R. R. Gamache and J. Fischer, "Half-widths of  $H_2^{16}O$ ,  $H_2^{18}O$ ,  $H_2^{17}O$ ,  $HD^{16}O$ , and  $D_2^{16}O$  : II. comparison with measurement," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **78**, 305 – 318 (2003).
- [243] R. R. Gamache and J. Fischer, "Half-widths of  $H_2^{16}O$ ,  $H_2^{18}O$ ,  $H_2^{17}O$ ,  $HD^{16}O$ , and  $D_2^{16}O$  : I. comparison between isotopomers," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **78**, 289 – 304 (2003).
- [244] S. D. Gasster, C. H. Townes, D. Goorvitch, and F. P. J. Valero, "Foreign-gas collision broadening of the far-infrared spectrum of water vapor," *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 593 :601 (1988).
- [245] S. Ch'en and M. Takeo, "Broadening and shift of spectral lines due to the presence of foreign gases," *Rev. Mod. Phys.* **29**, 20 :73 (1957).
- [246] D. E. Stogryn and A. P. Stogryn, "Molecular multipole moment," *Mol. Phys.* **11**, 371 :393 (1966).
- [247] G. Cazzoli, C. Puzzarini, G. Buffa, and O. Tarrini, "Pressure broadening of water lines in the THz frequency region : Improvement and confirmation for spectroscopic database. part I." *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **109**, 2820 :2831 (2008).

- [248] G. Cazzoli, C. Puzzarini, G. Buffa, and O. Tarrini, "Pressure-broadening of water lines in the THz frequency region : Improvements and confirmations for spectroscopic databases. part II," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **In Press**, – (2008).
- [249] H. Kogelnik and T. Li, "Laser beams and resonators," *Appl. Opt.* **5**, 1550 :1567 (1966).
- [250] B. A. Ferguson and D. S. Elliott, "Laser-noise-induced intensity fluctuations in an optical interferometer," *Phys. Rev. A* **41**, 6183 :6192 (1990).
- [251] J. Rutman, "Characterization of phase and frequency instabilities in precision frequency source : Fifteen years of progress," *Proc. of the IEEE* **66**, 1048 :1075 (1978).
- [252] D. S. Elliott, R. Roy, and S. J. Smith, "Extracavity laser band-shape and bandwidth modification," *Phys. Rev. A* **26**, 12 :18 (1982).
- [253] A. Papoulis, *Probability, random variables, and stochastic processes* (McGraw Hill, 1965).
- [254] B. Picinbono and E. Boileau, "Higher-order coherence functions of optical fields and phase fluctuations," *J. Opt. Soc. Am.* **58**, 784 :789 (1968).
- [255] F. Rohart, H. Dève, and B. Macke, "Saturated absorption linewidth : Influence of the source frequency noise." *Appl. Phys. B : Lasers Opt.* **39**, 19 :27 (1986).
- [256] R. Sauleau, P. Coquet, J. Daniel, T. Matsui, and N. Hirose, "Study of fabry-perot cavities with metal mesh mirrors using equivalent circuit models. comparison with experimental results in the 60 GHz band," *Int. J. Infrared Millim. Waves* **19**, 1693–1710 (1998).
- [257] A. E. Siegman, *Lasers* (University Science Books, 1986).
- [258] W. O'Mara, R. B. Herring, and L. P. Hunt, *Handbook of Semiconductor Silicon Technology* (Noyes Publications, 1980).
- [259] R. C. Compton, L. B. Whitbourn, and R. C. McPhedran, "Strip gratings at a dielectric interface and application ofabinet's principle," *Appl. Opt.* **23**, 3236 :3242 (1984).
- [260] K. F. Renk and L. Genzel, "Interference filters and fabry-perot interferometers for the far infrared," *Appl. Opt.* **1**, 643 :648 (1962).
- [261] R. Ulrich, "Far-infrared properties of metallic mesh and its complementary structure," *Inf. Phys. Tech.* **7**, 37–50 (1967).

- [262] R. Ulrich, K. Renk, and L. Genzel, "Tunable submillimeter interferometers of the fabry-perot type," *IEEE T. Microw. Theory.* **11**, 363 :371 (1963).



## Résumé :

Cette thèse rapporte le développement d'un nouveau montage expérimental pour la spectroscopie TéraHertz basé sur une source de rayonnement réalisant la différence de fréquences, sur un substrat AsGa, de deux lasers émettant vers 820 nm pour générer du rayonnement infrarouge lointain. Ce montage s'inscrit dans le courant d'intérêt récent pour les possibilités du rayonnement TéraHertz vues dans un premier chapitre. Le second chapitre s'intéresse à la génération de rayonnement par différence de fréquences sur un élément semi-conducteur et à son utilisation pour la spectroscopie. L'obtention d'une large accordabilité du rayonnement généré de cette manière s'appuie sur un système de modulateurs acousto-optiques en double passage. Le troisième chapitre s'attache à la stabilisation des sources infrarouges par une méthode Pound-Drever-Hall utilisant une cavité de haute finesse pour obtenir un rayonnement TéraHertz généré de grande pureté spectrale. Enfin, le spectromètre mis en place a été caractérisé par des mesures du spectre du chlorure de méthyle et utilisé dans une étude exploratoire du paramètre d'élargissement collisionnel de raies de l'eau par  $N_2$ ,  $O_2$  et l'air.

**Mots clés :** Spectroscopie des radiofréquences ; Ondes décimillimétriques ; Lasers à semi-conducteurs ; Sources de rayonnement infrarouge ; Fabry-Pérot, Interféromètre de ; Stabilité en fréquence ; Spectres moléculaires ; Raies spectrales-Elargissement ; Différence de fréquence ; accordabilité spectrale

## Abstract :

This thesis reports on the construction of a new experimental set up for TeraHertz spectroscopy based on the generation of the frequency difference of two near infrared laser diodes at 820nm on a GaAs substrate device. The first chapter describes the renewal of the interest for T-rays. The second chapter treats the FIR generation by frequency difference on the GaAs semiconductor device and its uses for spectroscopy. The broad tunability of this Far Infrared radiation obtained by double-pass acousto-optic modulators setup is also seen. The third chapter discusses about stabilisation of infrared sources by the Pound-Drever-Hall method using a high finesse cavity to generate a high spectral purity of the FIR emission. Finally, the spectrometer is characterised by measurements of the rotational spectrum of methyl-chloride and used in a primary study of the broadening parameter of water lines by  $N_2$ ,  $O_2$  and air.

**Key words :** Frequency difference ; spectral tunability ; High resolution spectroscopy ; Pound-Drever-Hall stabilisation ; High finesse cavity ; Collisional broadening ; Water.