

# Couplage Vernier d'un peigne de fréquences femtoseconde dans une cavité optique pour la spectroscopie moléculaire très large bande

Lucile Rutkowski

## ► To cite this version:

Lucile Rutkowski. Couplage Vernier d'un peigne de fréquences femtoseconde dans une cavité optique pour la spectroscopie moléculaire très large bande. Acoustique [physics.class-ph]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2014. Français. NNT: 2014LYO10229. tel-01128208

## HAL Id: tel-01128208 https://theses.hal.science/tel-01128208v1

Submitted on 9 Mar 2015  $\,$ 

**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.



N° d'ordre 229-2014

Année 2014

### THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON

délivrée par

## L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD LYON 1

## ECOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE ET D'ASTROPHYSIQUE

## DIPLOME DE DOCTORAT

(arrêté du 7 août 2006)

soutenue publiquement le 23 Octobre 2014

par Lucile RUTKOWSKI

Couplage Vernier d'un peigne de fréquences femtoseconde dans une cavité optique pour la spectroscopie moléculaire très large bande

Directeur de thèse : M. Jérôme MORVILLE

JURY : M. Nicolas TREPS M. Marco MARANGONI Mme Aleksandra FOLTYNOWICZ-MATYBA M. Daniele ROMANINI M. Pierre-François BREVET

## **UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1**

Président de l'Université

Vice-président du Conseil d'Administration Vice-président du Conseil des Etudes et de la Vie Universitaire Vice-président du Conseil Scientifique Directeur Général des Services

### M. François-Noël GILLY

M. le Professeur Hamda BEN HADIDM. le Professeur Philippe LALLEM. le Professeur Germain GILLETM. Alain HELLEU

## **COMPOSANTES SANTE**

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard	Directeur : M. le Professeur J. ETIENNE		
Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux	Directeur : Mme la Professeure C. BURILLON Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS		
Faculté d'Odontologie			
Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation	Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA Directeur : M. le Professeur Y. MATILLON		
Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine	Directeur : Mme. la Professeure A-M. SCHOTT		

## COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE

Faculté des Sciences et Technologies	Directeur : M. F. DE MARCHI
Département Biologie	Directeur : M. le Professeur F. FLEURY
Département Chimie Biochimie	Directeur : Mme Caroline FELIX
Département GEP	Directeur : M. Hassan HAMMOURI
Département Informatique	Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE
Département Mathématiques	Directeur : M. le Professeur Georges TOMANOV
Département Mécanique	Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID
Département Physique	Directeur : M. Jean-Claude PLENET
UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives	Directeur : M. Y.VANPOULLE
Observatoire des Sciences de l'Univers de Lyon	Directeur : M. B. GUIDERDONI
Polytech Lyon	Directeur : M. P. FOURNIER
Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique	Directeur : M. G. PIGNAULT
Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1	Directeur : M. le Professeur C. VITON
Ecole Supérieure du Professorat et de l'Education	Directeur : M. le Professeur A. MOUGNIOTTE
Institut de Science Financière et d'Assurances	Directeur : M. N. LEBOISNE

# Résumé

Les lasers femtosecondes fonctionnant dans un régime impulsionnel à modes bloqués révèlent une structure spectrale bien particulière de peigne de fréquence constitué de plus de  $10^5$  fréquences discrètes (définies au kHz), couvrant plusieurs dizaines, voire centaines, de THz et entièrement contrôlables par les paramètres de fonctionnement du laser. Bénéficiant d'une puissance moyenne considérable (>  $100 \ mW$ ), ces peignes de fréquences sont maintenant employés directement comme source d'excitation dans divers schémas de spectroscopie. Dans ce contexte, différentes approches ont été proposées pour réaliser des schémas de couplage du peigne de fréquences laser avec les multiples résonances des cavités optiques, mais avant ce travail, aucun de ces schémas n'est parvenu à exploiter l'intégralité de la gamme spectrale offerte par ce type de source, réduisant ainsi leur champ d'application.

Mon travail de thèse s'est concentré sur l'étude et la mise en place d'un schéma de couplage particulier où le peigne laser et les résonances de cavités sont délibérément désaccordées de façon contrôlée à la manière d'un Vernier, faisant apparaître dans la transmission spectrale de la cavité un Moiré de fréquence dont la périodicité est inversement proportionnelle à ce désaccord. Après un premier chapitre général où un rappel de l'état de l'art est réalisé, le deuxième chapitre présente un formalisme permettant une compréhension théorique fine de ce type de couplage et identifiant deux régimes distincts de fonctionnement en filtrages dits de « haute » résolution, où la structure de peigne du laser est entièrement résolue, et de « basse » résolution où la résolution est donnée par le désaccord. Le troisième chapitre décrit la réalisation expérimentale de ce couplage, détaillant notamment la stratégie d'asservissement employée afin de stabiliser la position des résonances des cavités utilisées (une de finesse modérée F=300et une de haute finesse F=3000) par rapport au peigne laser à l'échelle du kHz. Le dernier chapitre détaille l'application de ce couplage à la spectroscopie moléculaire et présente un modèle exhaustif permettant de déduire une mesure quantitative de spectre d'absorption à travers l'enregistrement de la réduction d'intensité relative transmise par la cavité. Ce modèle montre en particulier que les effets, pourtant très faibles, de dispersion moléculaire doivent être pris en compte et induisent une différence marquée des signaux enregistrés selon le sens du désaccord entre les deux peignes. Au final les spectres mesurés de l'air ambiant, dans des temps d'acquisition autour de la seconde, exploitent l'intégralité du spectre d'émission du laser femtoseconde, soit 40 THz, avec une résolution de 2 GHz, et résolvent simultanément l'intégralité des transitions de la bande A de l'oxygène à 760 nm et de la bande  $3\nu + \delta$  de la vapeur d'eau de 790 nm à 840 nm. Le modèle complet permet un ajustement non linéaire des spectres mesurés, et peut, sur une gamme dynamique retreinte, être simplifié pour devenir linéaire, rendant le traitement des données très simple pour les faibles absorptions. La sensibilité en absorption atteint la gamme des  $10^{-9}/cm$  après moyennage sur une centaine d'acquisitions. Cette haute sensibilité, obtenue sans l'emploi de très hautes finesses, résulte d'une propriété d'immunité aux bruits de conversion fréquence-amplitude du couplage Vernier « basse > résolution et permet l'obtention d'un rapport signal sur bruit supérieur à  $10^4$ , limité par le bruit de détection. L'ensemble de ces performances conduisent à établir une figure de mérite du spectromètre de  $4 \times 10^{-11} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$ , plaçant ce résultat au troisième rang de l'état de l'art international.

# Mots Clés

Peignes de fréquences – Cavités optiques – Spectroscopie laser très large bande

## Abstract

Femtosecond mode-locked lasers are femtosecond generators of optical frequency 'combs'. Their specificity lies in their broadband output, typically of more than  $10^5$  equidistant and intrinsically narrow spectral elements, whose distinct frequencies (known to kHz precision) cover many tens or hundreds of THz. The combs can be controlled with readily adjustable laser parameters. Because they deliver a sufficient average power (>  $100 \, mW$ ), such combs are now used as direct sources for excitation spectroscopy. In this context, several approaches have been proposed to couple a laser frequency comb to the resonances of an optical cavity. However none of the approaches developed so far manages to achieve the full potential of this combination, exploiting the full spectral coverage of this kind source, and this restricts the fields of practical implementation and application.

My PhD work has focused on the study and construction of a particular coupling scheme, named Vernier coupling. Here, the laser comb and the cavity resonances are deliberately mismatched, as are the two scales of a Vernier rule. This creates Moiré pattern in the cavity spectral transmission, with a periodicity related to the inverse of the mismatch. After a first chapter reviewing the state of the art in this area, the second chapter of this thesis details the theory behind the coupling of laser- and optical cavity modes. Two distinct regimes are identified, called "high" resolution Vernier filtering, when the laser comb structure is probed mode by mode, and "low" resolution filtering where the linewidth of one Vernier order is given by the mismatch. The third chapter describes the experimental realization of this coupling scheme. It details the locking strategy used to control the resonance position of the different cavities employed (one of moderate finesse F=300 and one of high finesse F=3000) in regards of the laser comb (kHz scale). The last chapter describes spectra recorded with this setup, focusing on weak molecular spectra in the near infrared. It also gives full details of the model required to extract quantitative absorption profiles from the spectra, the relative reduction of the cavity transmitted intensity into account. It demonstrates that the effects of molecular dispersion must be included; although very weak, they induce a strong discrepancy in the recorded spectra, depending on the sign of comb/laser mismatch. I present spectra of ambient air, recorded in acquisition times around 1 s, that cover the full bandwidth of the femtosecond laser (40 THz), at 2 GHz resolution. The A-band transitions of oxygen around 760 nm and the  $3\nu + \delta$  band transitions of the water vapor between 790 and 840 nm are fully resolved. Measured spectra can be processed with the complete model through a non-linear least-squares fitting algorithm. I show that the model simplifies to a linear expression for a restricted dynamic range, yielding a straightforward data treatment for weak absorptions. The sensitivity of the absorption measurement reaches  $10^{-9}/cm$ , averaging 100 measurements. This high sensitivity, obtained without very high finesses, comes from an immunity to the frequency-to-amplitude noise conversion of the "low" resolution filtering Vernier coupling, leading to a signal to noise ratio better than  $10^4$ , limited by the detection. These performances give the spectrometer figure of merit of  $4 \times 10^{-11} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$ , currently taking third place in rank international state of the art ranking.

# Key Words

Frequency combs - Optical cavity - Broadband laser spectroscopy

# Remerciements

Je tiens à remercier les personnes qui ont fait que cette aventure restera un très bon souvenir. Tout d'abord, je remercie Christian Bordas de m'avoir accueillie au sein du Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire au début de ma thèse. Merci à Véronique Boutou d'avoir co-encadré mon travail autour des microgouttes au début de ma thèse ainsi qu'à Amanda Ross de m'avoir accueillie dans l'équipe de Spectrométrie Moléculaire pour la seconde moitié de ma thèse.

Je remercie Nicolas Treps et Marco Marangoni d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon manuscrit de thèse ainsi qu'Aleksandra Foltynowicz, Daniele Romanini et Pierre-François Brevet d'avoir fait partie de mon jury lors de la soutenance. Toute ma reconnaissance va à Jérôme Morville qui a encadrée mon travail tout au long de ces trois années. Ta pédagogie, ton infinie curiosité et ta rigueur m'ont appris à persévérer pour enfin devenir une vraie scientifique. Bonne chance pour la suite du Vernier!

J'ai eu aussi plaisir à interagir avec les autres membres de mes deux équipes successives : merci à Estelle Salmon d'avoir partagé pas mal de matériel, et merci aux membres de l'équipe de Spectrométrie Moléculaire : Heather Harker, Patrick Crozet, Georgi Dobrev et Dennis Tokarik, pour toutes les discussions scientifiques que nous avons partagées.

Merci aux mécaniciens Jacques Maurelli et Alain Bourgey qui ont construit les pièces du montage optique, à Marc Barbaire qui a réalisé le premier moteur contrôlant la rotation de notre réseau Vernier, à Christian Clavier pour tous les coups de main et les conseils en électronique ainsi qu'à Antoine Rimboud qui a développé le programme d'acquisition en LabVIEW dans sa version finale. Merci également aux informaticiens Francisco Pinto et Sad Mezzour et au personnel administratif du labo : Françoise Champion, Véronique Chavret, Aurélie Brodas et Claude Lesage..., toujours prêts à aider et en plus avec le sourire!

Ces trois années seront inoubliables aussi grâce à mes co-bureaux successifs : merci à Jérémy, Denis, Thomas et Anna qui ont ouvert la voie, merci à Tatjana avec qui j'ai partagé les joies de la rédaction, et enfin merci et bon courage à Emeric qui ne va tarder à les connaître aussi! Merci à vous tous pour votre bonne humeur, votre disponibilité, votre écoute, les verres partagés... Bonne continuation à l'équipe du café qui crée une atmosphère de travail très agréable et qui permet d'échanger avec plein de gens.

Un gros merci aux amis de la promo qui ont suivi les mêmes tribulations : Anne-Laure, Céline, Julien et Xuan.

Je remercie mes parents et ma sœur et leur sourire durant ce long travail. Merci à Lucie et David ainsi qu'à Maud et Yannis pour toute la bonne humeur apportée depuis la première année de fac.

Enfin, un immense merci à Sylvain pour ton indéfectible soutien pendant cette aventure, et j'espère en vivre encore bien d'autres à tes côtés.

# Table des matières

R	ésum	ıé		v	ii
A	Abstract		ix		
R	emer	cieme	nts	2	xi
Ta	Table des matières     xiii				
	Introduction 1				
1	Peig	gnes de	e fréquences et cavités optiques		6
	1.1	Comp	osants du système		6
		1.1.1	Oscillateur femtoseconde		$\overline{7}$
			1.1.1.1 Génération d'un peigne de fréquences		$\overline{7}$
			1.1.1.2 Formalisme temporel et fréquentiel du train d'im	pulsions	8
			1.1.1.3 Oscillateurs existants et gammes spectrales acces	ssibles 1	10
			1 1 1 4 Cas particulier de l'oscillateur $Ti:Sa$ utilisé	1	11
		112	Cavité passive	1	14
		1.1.2	1121 Aspect spatial modes gaussiens	1	15
			1122 Accord de mode spatial	1	18
			1123 Aspect spectral : fonction de transfert	1	18
			1124 Temps de ring down	•••••	21
			1125 Binging et vitesse adiabatique	····	23
	12	Cavité	é réelle - altération des résonances de la cavité	···· 2	20
	1.2 Cavité l'éché - altération des résonances de la cavité		20		
	1.2.1 Dispersion intracavite - Formalisme		· · · · · 2	27	
			1.2.1.2 Conséquences des différents ordres de dispersion	2	- 1
			spectre de résonances	i sui ic	27
		122	Sources de dispersion spectralement lente		31
		1.2.2	1221 Dispersion des miroirs		, 1 31
			1.2.2.2 Dispersion de l'air - coefficients de Sellmeier		32
		123	Espèces absorbantes intracavité		33
		1.2.0	12.3.1 Profil d'absorption		34
			1 2.3.2 Temps de ring-down		35
			1 2 3 3 Fonction de transfert		36
	1.3	Coupl	age peigne de fréquences-cavité et état de l'art		10
	1.3.1 Passage en résonance de la cavité			10	
		1.0.1	1311 Point magique		10
			rour rour masique	••••	-0

			1.3.1.2	Balayage de la longueur de cavité
			1.3.1.3	Influence de la fréquence d'offset
			1.3.1.4	Transmission de cavité loin du point magique 45
		1.3.2	Etat de	l'art
			1.3.2.1	Coulage au point magique
			1.3.2.2	Balayage autour du point magique
			1.3.2.3	Couplage Vernier
				* 0
<b>2</b>	Cοι	ıplage	Vernier	: formalisme 54
	2.1	Batter	ment de p	peignes désaccordés 54
		2.1.1	Désacco	rd et Moiré de fréquence 55
		2.1.2	Analyse	à partir du point magique
	2.2	Filtra	ge Vernie	r Haute Résolution
		2.2.1	Désacco	rd $1/F$
			2.2.1.1	Structure spectrale
			2.2.1.2	Balayage en fréquence
			2.2.1.3	Intensité transmise
			2.2.1.4	Extinction et finesse effective
		2.2.2	Facteur	d'extinction
		2.2.3	Context	e de la spectroscopie
	2.3	Filtra	ge Vernie	r Basse Résolution
		2.3.1	Groupes	s de modes $\ldots \ldots .$
			2.3.1.1	Largeur spectrale
			2.3.1.2	Relation de finesse
			2.3.1.3	Peigne Vernier basse résolution
			2.3.1.4	Contrôle du peigne Vernier
		2.3.2	Intensit	$$ é transmise par un ordre $\ldots$
			2.3.2.1	Vitesse adiabatique de balayage
		2.3.3	Approcl	ne pour la spectroscopie
			2.3.3.1	Fonction de transfert en présence d'absorption 77
			2.3.3.2	Traitement des données en CEAS 79
	2.4	Schém	nas de dét	ection
		2.4.1	Transm	ission directe
		2.4.2	Transm	ission dispersée
			2.4.2.1	Approche et plage de validité
			2.4.2.2	Influence de la GDD intracavité
			2.4.2.3	Conclusion
3	Cοι	ıplage	Vernier	: montage expérimental 87
	3.1	Dispo	sitif	
	3.2	Cavite	és optique	90
		3.2.1	Finesse	modérée
			3.2.1.1	Dimensions
			3.2.1.2	Mesure de la finesse
		3.2.2	Haute fi	$nesse \dots \dots$
			3.2.2.1	Dimensions
			3.2.2.2	Mesure de la finesse

3.3	Détect	tion du Vernier
	3.3.1	Réseau de diffraction
	3.3.2	Photodiode à cadrans
	3.3.3	Calibration en fréquence
	3.3.4	Procédure Vernier
3.4	Asserv	rissement $\ldots \ldots \ldots$
	3.4.1	Principe
	3.4.2	Réponse des actuateurs piezoélectriques
		3.4.2.1 Montage Michelson
		3.4.2.2 Filtres Notch
	3.4.3	Dimensionnement du circuit d'asservissement
		3.4.3.1 Asservissement rapide
		3.4.3.2 Dérives lentes
	3.4.4	Performances
		3.4.4.1 Système statique
		3.4.4.2 Système dynamique
3.5	Acquis	sition du signal et traitement en temps réel
	3.5.1	Acquisition
	3.5.2	Ligne de base
	3.5.3	Linéarisation relative
3.6	Conclu	usion $\ldots \ldots 126$
Spo	atros J	Vernier et enalyse 197
4 1	Finess	e modérée 127
1.1	4 1 1	Performances 129
	1.1.1	4 1 1 1 Eléments spectraux 129
		4 1 1 2 Sensibilité de la mesure 130
		4.1.1.3 Immunité au bruit de conversion fréquence-amplitude 132
		4.1.1.4 Figure de mérite
	4.1.2	Distortions des raies
		4.1.2.1 Causes expérimentales
		4.1.2.2 Cas des raies d'absorption fortes
4.2	2 Modélisation du spectre Vernier	
	4.2.1	Modèle linéaire et convolution
	4.2.2	Modèle complet : Effets d'élargissement et de dispersion moléculaire139
	4.2.3	Signe du désaccord et frontières des modèles
4.3	Haute	finesse
	4.3.1	Mesures et validité du modèle complet
	4.3.2	Validité du modèle linéaire
		4.3.2.1 Cas positif
		4.3.2.2 Cas négatif
	4.3.3	Performances
		4.3.3.1 Eléments spectraux
		4.3.3.2 Sensibilité
		4.3.3.3 Figure de mérite
		4.3.3.4 Moyenne et franges optiques
	<ul> <li>3.3</li> <li>3.4</li> <li>3.5</li> <li>3.6</li> <li><b>Spe</b></li> <li>4.1</li> <li>4.2</li> <li>4.3</li> </ul>	3.3       Détect $3.3.1$ $3.3.2$ $3.3.3$ $3.3.4$ $3.4$ Asserv $3.4.1$ $3.4.2$ $3.4.3$ $3.4.3$ $3.4.3$ $3.4.4$ $3.5$ Acquis $3.5.1$ $3.5.2$ $3.5.3$ $3.6$ Conclu       Spectres V $4.1$ Finess $4.1$ Finess $4.1.1$ $4.1.2$ $4.2$ Modél $4.2$ Modél $4.2$ Modél $4.3$ Haute $4.3.3$ $4.3.3$

	4.4 Conclusion	158
	Conclusions et perspectives	161
	Annexes	168
$\mathbf{A}$	Calculs autour de l'accord de modes	168
	A.1 Mode de cavité	169
	A.2 Accord de mode	170
	A.3 Modes transverses d'ordres supérieurs	172
В	Mesure de la GDD intracavité	176
	B.1 Aspects théoriques	177
	B.2 Dispositif expérimental	178
	B.3 Résultats	181

## Bibliographie

184

# Introduction

Au tournant de ce siècle, le fonctionnement à modes bloqués des lasers impulsionnels a révelé une structure spectrale correspondant à une règle parfaite de fréquences optiques, l'échelle étant donnée par le taux de répétition de l'oscillateur et son origine par un subtil effet d'indice optique au sein du laser. Ces règles sont maintenant couramment appelées peignes de fréquences optiques. Ces deux grandeurs, échelle et origine, appartiennent au domaine des radiofréquences dans lequel la seconde est actuellement définie et sont entièrement contrôlables par les paramètres de fonctionnement du laser. Cette caractéristique a permis une stabilisation extrême des peignes, où la précision de l'échelle peut atteindre  $10^{-19}$  [1], celle des graduations  $10^{-15}$  [2] et leur étendue spectrale pouvant couvrir plusieurs centaines de THz [3]. Toute fréquence optique devient alors mesurable par comparaison avec cette règle, référencée de façon absolue. Dans l'espace temporel, la périodicité parfaite des impulsions offre une base de temps inégalable. Ces propriétés ont révolutionné le domaine de la métrologie du temps et des fréquences, révolution reconnue par l'attibution en 2005 du prix Nobel à T. W. Hänsch, du Max Planck Institut [4], à Garching (Allemagne), et à J. L. Hall du JILA [5], sous laboratoire du NIST, à Boulder (Etats-Unis). Leur impact sur le domaine de la spectroscopie d'atomes [6] ou de molécules [7] s'est immédiatement révélé puisqu'elles ont permis d'atteindre une calibration exceptionnelle des spectres mesurés. En toute logique, ces peignes sont passés du traitement de l'expérience à sa commande, en devenant la source lumineuse d'excitation des atomes ou des molécules dans divers schémas de Direct Frequency Comb Spectroscopy [8] exploitant soit les processus d'absorption linéaire [9], soit le couplage de la cohérence des impulsions avec la cohérence des états du système sondé [10, 11], ou encore en utilisant une somme spécifique de dents du peigne comme source d'absorption multiphotonique [12].

Les cavités optiques de haute finesse ont quant à elles connu leur essor en spectroscopie dix ans plus tôt avec les progrès technologiques de fabrication de miroirs diélectriques multicouches, permettant d'atteindre de hautes réflectivités tout en conservant un niveau de pertes suffisamment bas pour exploiter leur très faible transmission. C'est avec des lasers à impulsions que les premiers spectres par mesure de temps de déclin ont été obtenus [13], de résolution limitée, à ce moment, par la largeur spectrale des impulsions (non-cohérentes). Cette approche, baptisée Cavity Ring-Down Spectrosocpy (CRDS), a ensuite été développée avec des sources monofréquences à émission continue (cw-CRDS) [14] offrant une haute résolution mais également une haute sensibilité du fait de l'exploitation d'un mode de résonance de cavité unique. Différents schémas sont ensuite apparus pour tenter de résoudre au mieux la problématique de l'injection des résonances étroites par des lasers monomodes de pureté spectrale souvent inférieure. Des stratégies de verrouillage actif [15, 16] ou passif, par rétroaction optique [17], sont apparues. La maturité de ces développements a permis d'investir, outre la spectroscopie fondamentale, des champs d'application aussi variés que l'étude de la pollution atmosphérique, la climatologie, l'analyse de gaz expirés, le contrôle des procédés industriels, la sécurité avec la détection de gaz dangereux, la mesure de rapports isotopiques, l'agro-alimentaire... cette liste n'étant pas exhaustive. Dans tous les cas, les plages d'accordabilité continue des sources monomodes limitent la gamme spectrale d'étude à quelques  $cm^{-1}$ .

L'atout majeur des peignes femtosecondes est la combinaison de spectres à large bande avec la très haute pureté spectrale des dents les composant, répondant ainsi à la problématique d'injection des cavités tout en offrant une gamme spectrale potentielle plus de mille fois supérieure à celle des lasers monomodes. C'est pour la stabilisation d'un peigne optique et son référencement que le premier couplage avec une cavité a été réalisé [18], en 2000. Le premier schéma pour la spectroscopie [19] est apparu quant à lui en 2002 dans l'équipe de D. Romanini du LSP à Grenoble (France). En 2006 et 2007, les groupes pioniers du développement des peignes de fréquences (J. Ye au JILA et T. W. Hänsch au MPQ) proposent d'autres schémas [20, 21]. En 2009, ces deux mêmes groupes développent des approches aux performances améliorées. En 2011 et 2012, la sensibilité des nouvelles approches proposées atteint le bruit de photon respectivement au JILA [22] puis au LSP [23]. Enfin, au cours de mon travail de thèse, deux nouveaux résultats sont publiés, émanant d'une part de l'équipe d' A. Foltynowicz à l'Université d'Umea (Suède) [24] et d'autre part d'une collaboration entre le MPQ (C. Gohle) et l'Université A&M du Texas (Etats-Unis, H. A. Schuessler) [25]. Aucune des approches proposées ne permet l'exploitation complète de la gamme spectrale potentielle, limitée en pratique à une dizaine de pourcent du spectre du laser.

Certains de ces développements, présentés au début comme preuve de concept, permettent maintenant leur déploiement dans plusieurs domaines d'application. En climatologie, des suivis en temps réel des concentrations de IO, BrO et NO<sub>2</sub> en Antarctique [26] tentent de caractériser la physico-chimie de l'atmopshère loin des sources de pollution anthropiques. En contrôle des procédés, on retrouve des mesures de la vapeur d'eau à haute température issue de flammes de combustion [27]. En santé, des mesures simultanées du CO et CO<sub>2</sub> expirés par un patient identifient le degré de son tabagisme, et la détermination du rapport isotopique  ${}^{12}\text{CO}_2$ - ${}^{13}\text{CO}_2$  la présence d'un ulcère de l'estomac [28]. Des études plus fondamentales en spectroscopie ont également été conduites sur des molécules froides obtenues par jet supersonique [29] ou sur des molécules exotiques telle que HfF<sup>+</sup> [30].

Mon travail de thèse se situe dans le contexte du développement de techniques de spectroscopie moléculaire exploitant les peignes de fréquences et les cavités optiques. L'objectif spécifique est la mise au point d'un couplage particulier permettant de dépasser les limites actuelles en gamme spectrale sans pour autant sacrifier ni la haute résolution ni la haute sensibilité de la mesure. Le mode de couplage choisi, qui entend exploiter, pour la première fois, l'intégralité du peigne de fréquences d'un oscillateur, repose sur une approche Vernier sensiblement différente de celle développée en 2007. Elle ne résout pas (encore) les modes laser mais permet un contrôle et une stabilisation de la fréquence mesurée, amenant à un équilibre intéressant des trois axes évoqués : gamme spectrale, sensibilité et résolution spectrale. Ce travail, essentiellement expérimental, nous a cependant conduit, par nécéssité, à développer un formalisme adapté à ce couplage. Le manuscrit, scindé en quatre chapitres, décrit à la fois le formalisme et la mise en place du couplage Vernier en vue de l'optimisation des performances d'un nouveau type de spectromètre.

Le premier chapitre sera dédié à l'introduction générale des concepts permettant une compréhension simple du couplage d'un peigne de fréquences avec une cavité optique. Dans un premier temps, une présentation des oscillateurs femtosecondes sera faite, faisant le lien entre le train d'impulsions temporelles généré et le peigne de fréquences, et détaillant les types d'oscillateurs existants ainsi que leurs plages spectrales, avant de finir par une présentation plus poussée de l'oscillateur Titane:Saphire utilisé dans ce travail et de ses paramètres de contrôle. Des généralités sur les cavités sont ensuite présentées. Leurs modes de résonance seront caractérisés spatialement et spectralement et les aspects dynamiques de leur injection seront abordés. Dans un second temps, nous nous attacherons à décrire de nouveau cette cavité mais avec un degré de réalisme supplémentaire. Nous tiendront compte des altérations du spectre de résonances de la cavité induites par la dispersion spectrale des miroirs la constituant ainsi que par l'absorption non résonante d'espèces gazeuses. Ensuite, les effets plus spécifiques d'une absorption résonantes seront identifiés. Enfin, dans un troisième temps, une partie sera consacrée à une présentation succinte du couplage laser-cavité identifiant une position d'accord parfait entre les deux peignes, formés par le laser d'une part, et par les résonances de cavité d'autre part. Les différents schémas, déjà réalisés au moment de la rédaction de ce manuscrit, seront présentés, pour permettre un tour d'horizon de l'état de l'art des méthodes utilisant un couplage peigne de fréquences-cavité optique pour la spectroscopie moléculaire.

Le deuxième chapitre sera consacré à la formalisation de ce que nous appellerons le couplage Vernier entre les peignes de fréquences laser et de résonances de cavité. Celui-ci résulte de la création d'un désaccord contrôlé entre les graduations des deux peignes et est similaire à une figure de Moiré en fréquences. Partant de la situation d'accord parfait entre les deux peignes, deux régimes Vernier seront différenciés et détaillés dans l'objectif d'une mesure de spectroscopie moléculaire. Le premier, que nous appellerons "filtrage Vernier haute résolution", où les dents laser sont résolues, correspond à la seule autre approche expérimentale déjà réalisée pour la spectroscopie. Le second, dit "filtrage Vernier basse résolution", correspond à une situation intermédiaire entre la correspondance parfaite et le filtrage haute résolution, et se caractérise par le fait que plusieurs dents laser sont partiellement transmises par la cavité. La structure spectrale de ce Moiré sera approfondie de manière a établir formellement le peigne de fréquences Vernier. Cette formulation permettra d'identifier simplement les paramètres expérimentaux le définissant et ainsi de discuter la réalisation d'un balayage contrôlé de ce peigne sur l'intégralité du spectre laser. Cette approche sera ensuite étudiée pour la spectroscopie. Cela conduira à définir l'intensité transmise par un ordre du peigne Vernier et sa diminution induite par l'absorption moléculaire, et ce, en vue d'une mesure Cavity-Enhanced Absorption Spectroscopy (CEAS) où la réduction relative du signal optique permet de déterminer le spectre d'absorption. La vitesse de balayage spectral limite sera également établie. Enfin, deux schémas de détection seront discutés, s'adaptant à la présence ou non de plusieurs ordres du peigne Vernier dans le spectre laser. Le second schéma, où les différents ordres Vernier sont dispersés par un réseau de diffraction placé en sortie de cavité, sera expérimentalement choisi car nous montrerons qu'il permet la stabilisation, à l'aide d'une boucle d'asservissement, et le contrôle de la fréquence d'un ordre du peigne Vernier.

Le troisième chapitre détaillera le montage expérimental. Les deux cavités utilisées lors de ce travail seront présentées et caractérisées. Le principe de la détection du peigne Vernier sera exposé et les limitations en terme de résolution spectrale accessible à la mesure CEAS seront identifiées. Ceci passera par la présentation du montage du réseau de diffraction et de la photodiode à cadrans utilisés pour le contrôle et la stabilisation d'un ordre Vernier. Nous décrirons le protocole expérimental suivi pour l'obtention d'un peigne Vernier possédant la résolution spectrale souhaitée. La boucle d'asservissement électronique mise en place dans ce montage sera décrite et son dimensionnement expliqué. Nous présenterons les mesures évaluant ses performances et limitations. Enfin, les différentes étapes d'obtention expérimentale d'un spectre Vernier de réduction relative d'intensité, calibré de manière relative en fréquence, seront détaillées.

Le quatrième chapitre présente les performances du spectromètre déduites des spectres de la vapeur d'eau et de l'oxygène de l'air ambiant. Nous y discutons en détail de la conversion des spectres Vernier de réduction relative d'intensité en spectres d'absorption. Celle-ci nécessite en effet une attention particulière que nous avons cherché à mettre en relief par un chemin presque en accord avec la chronologie de ce travail. Il commence donc par les résultats obtenus avec une première cavité de finesse modérée ayant constitué la preuve de concept de notre approche. Nous présenterons les performances de gamme spectrale, sensibilité et résolution. Mais nous verrons que les spectres de réduction relative d'intensité présentent un comportement inattendu et non explicable à ce stade du manuscrit. Cela nous conduira à reprendre le formalisme de façon plus complète, intégrant tous les effets des raies d'absorption sur les résonances de cavité. A l'aide de la base de données HITRAN où sont présentes toutes les données spectrosocpiques de  $H_2O$  et  $O_2$  dans notre gamme spectrale d'étude, nous montrerons que le calcul permet une reproduction parfaite de nos mesures, à la fois en intensité et en largeur de raies. Ce travail de modélisation mettra en lumière une forte dépendance au signe du désaccord induit entre les deux peignes sur les spectres de réduction relative d'intensité. L'influence de l'intensité des raies et de la résolution spectrale pour chaque signe du désaccord sera, par le calcul, discutée et comparée. Afin de valider cette discussion, mais aussi et surtout d'améliorer les performances de notre système, nous présenterons ensuite les résultats obtenus avec la seconde cavité, de finesse plus élevée. Nous établirons la figure de mérite de notre spectromètre, sa gamme dynamique de mesure, et sa capacité à réaliser une moyenne des spectres.

## Chapitre 1

# Peignes de fréquences et cavités optiques

L'objectif de ce chapitre est d'introduire de la manière la plus simple possible les concepts nécessaires à la compréhension de la spectroscopie Vernier. Cette dernière est le fruit du couplage d'une cavité optique et d'un train d'impulsions femtosecondes. Il est donc en premier lieu utile de présenter ces deux systèmes optiques avant de s'intéresser à leur combinaison. Dans ce chapitre, une première partie présente les oscillateurs femtosecondes et la base des cavités optiques. Une deuxième partie détaille avec plus de réalisme la réponse d'une cavité optique lorsque celle-ci est remplie d'un gaz absorbant. Enfin, la troisième partie s'intéresse aux différents couplages qui ont pu être réalisés jusqu'à présent dans le cadre de la spectroscopie d'absorption.

### 1.1 Composants du système

Cette première partie est dévolue à la présentation des deux systèmes optiques cruciaux pour ce travail : le laser femtoseconde et la cavité optique. Plusieurs développements y sont rappelés afin d'introduire les concepts clés pour le couplage Vernier proprement dit. Ils peuvent être retrouvés pour plus de détails dans [31],[32],[33]. Dans un premier temps, nous nous attacherons à décrire le fonctionnement d'un laser femtoseconde à modes bloqués et à dériver son spectre. Parce que le développement instrumental présenté dans ce travail est susceptible de pouvoir s'étendre à toutes les sources laser à modes bloqués et ainsi couvrir un important domaine spectral, un tour d'horizon des différentes gammes spectrales accessibles avec ce type de laser sera fait avant d'aborder le cadre plus spécifique de ce travail de thèse avec la présentation de l'oscillateur Titane-Saphire utilisé. Dans un second temps, les principales caractéristiques des cavités optiques seront rappelées de la manière la plus générale possible. Les cavités sont dans un premier temps considérées comme vides, les changements liés à l'introduction d'un gaz à l'intérieur de la cavité étant abordés dans la partie suivante.

#### 1.1.1 Oscillateur femtoseconde

Les caractéristiques appréciées sur les oscillateurs femtosecondes (précision et robustesse) proviennent toutes deux du nombre réduit de paramètres à contrôler pour connaître parfaitement le peigne de fréquences. En effet, seules deux grandeurs spectrales le régissent. La première est le taux de répétition  $f_{rep}$  de l'oscillateur qui fixe l'écart entre entre deux dents consécutives du peigne, donc la graduation du peigne. La seconde est la fréquence du tout premier mode du peigne extrapolé jusqu'à l'origine  $f_0$ , nécessairement comprise entre 0 et  $f_{rep}$  qui fixe la position absolue de l'échelle de fréquence. Ces deux fréquences définissent intégralement le peigne et leur stabilité donne directement la largeur spectrale des dents. Elles sont toutes deux comprise dans le domaine des radiofréquences, typiquement les dizaines ou centaines de MHz, permettant un transfert de la grande précision technologique acquise dans ce domaine vers celui des fréquences optiques (centaines de THz). Cette avancée, considérable dans le domaine de la métrologie, a conduit aux prix Nobel de Theodor W. Hänsch [4] et de John L. Hall [5] en 2005.

#### 1.1.1.1 Génération d'un peigne de fréquences

La génération d'un peigne de fréquences repose sur le caractère fortement non linéaire du cristal présent dans l'oscillateur qui conduit à faire osciller un très grand nombre de pulsations simultanément dans la cavité tout en conservant une relation de phase fixe entre elles. La gamme spectrale accessible est limitée sur sa zone d'accordabilité par la courbe de gain du milieu amplificateur utilisé mais en pratique c'est la chute de la réflectivité des miroirs utilisés dans la cavité laser qui constitue la restriction la plus forte : les pertes devenant trop importantes au regard du gain du cristal, le mode ne peut pas être amplifié lors de son tour de cavité. Pour que les modes ayant des pertes inférieures au gain de la cavité soient amplifiés, ils doivent encore tous satisfaire à la condition de bouclage sur un tour de cavité, ce qui revient à accumuler sur ce tour un déphasage multiple de  $2\pi$ . Ceci est rendu possible pour tous les modes simultanément en compensant la dispersion, présente dans le cristal et plus généralement dans la cavité, en insérant des prismes ou des miroirs à compensation de dispersion sur le trajet du faisceau dans l'oscillateur. De cette manière, le déphasage existant entre modes à leur génération reste constant au cours de l'amplification, permettant ainsi la création et la propagation d'une impulsion dans l'oscillateur (c'est aussi pourquoi on parle de laser à



FIGURE 1.1: Description schématique du train d'impulsions temporelles.

modes bloqués). A chaque fois que l'impulsion intracavité se réfléchit sur le miroir de sortie de l'oscillateur, une petite partie de l'impulsion est transmise à l'extérieur de la cavité. L'oscillateur laser génère donc des impulsions de manière régulière à la cadence imposée par le temps d'aller-retour de l'impulsion dans la cavité.

#### 1.1.1.2 Formalisme temporel et fréquentiel du train d'impulsions

Afin de dériver la structure spectrale en peigne de fréquences d'un laser femtoseconde, il est nécessaire de commencer par décrire temporellement le champ sortant de l'oscillateur. Cette succession d'impulsions périodiques est appelée train d'impulsions et une représentation est proposée fig.1.1. Les impulsions sont espacées d'une période  $\tau_{rep}$ , fixée par le temps d'aller-retour dans la cavité laser. Les impulsions successives sont produites identiques excepté un possible glissement de la porteuse, à la fréquence centrale du laser  $\nu_{las}$ , par rapport à l'enveloppe de chaque impulsion d'une quantité constante  $\Delta \phi_{CEO}$ (*CEO* pour Carrier Envelope Offset, décalage porteuse-enveloppe en français). Ce glissement est induit par une faible dispersion résiduelle non compensée et conduit à une petite différence entre vitesse de phase  $v_{\phi}$  et vitesse de groupe  $v_g$ . La variation de phase d'une impulsion à l'autre est donnée par la relation :

$$\Delta\phi_{CEO} = 2\pi \cdot c \left(\frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_\phi}\right) \nu_{las} \cdot \tau_{rep} \tag{1.1}$$

Pour décrire temporellement le train d'impulsions, il est utile de commencer par exprimer le champ électrique de la  $n^{ieme}$  impulsion isolée à l'intant t:

$$E_{impulsion}(t) = E_{enveloppe}(t - n\tau_{rep}) \cdot e^{i\left(2\pi \cdot \nu_{las}(t - n \cdot \tau_{rep}) + \frac{t}{\tau_{rep}}\Delta\phi_{CEO}\right)}$$
(1.2)

La porteuse à la fréquence  $\nu_{las}$  est modulée temporellement par la fonction décrivant la forme de l'enveloppe  $E_{enveloppe}$  qui, pour une impulsion gaussienne de durée  $\Delta t_{imp}$ comme celle représentée fig.1.1, est de la forme :

$$E_{enveloppe}(t) = E_0 \cdot \frac{2\sqrt{ln2}}{\Delta t_{imp}\sqrt{\pi}} e^{-4ln2\left(\frac{t}{\Delta t_{imp}}\right)^2}$$
(1.3)

Alors le champ d'un train d'impulsions peut être décrit par la somme des champs des impulsions successives :

$$E_{train}(t) = \sum_{n} E_{enveloppe}(t - n\tau_{rep}) \cdot e^{i\left(2\pi \cdot \nu_{las}(t - n\tau_{rep}) + \frac{t}{\tau_{rep}}\Delta\phi_{CEO}\right)}$$
(1.4)

L'équation 1.4 peut encore être écrite comme une somme de produits de convolution d'une impulsion avec une distribution de Dirac centrée en  $n\tau_{rep}$ :

$$E_{train}(t) = \sum_{n} \int_{-\infty}^{+\infty} \delta(t' - n\tau_{rep}) E_{enveloppe}(t - t') \cdot e^{i\left(2\pi \cdot \nu_{las}(t - t') + \frac{t}{\tau_{rep}}\Delta\phi_{CEO}\right)} dt' \quad (1.5)$$

Le spectre de ce train d'impulsions s'obtient en faisant la transformée de Fourier du champ  $E_{train}$  dérivé dans l'équation 1.5. La transformée de Fourier d'un produit de convolution étant le produit des transformées de Fourier des fonctions convoluées, le spectre sera dérivé de :

$$\hat{E}_{train}(\nu) = \mathcal{TF}\left(\sum_{n} \delta(t' - n\tau_{rep}) \cdot e^{i\frac{t}{\tau_{rep}}\Delta\phi_{CEO}}\right) \cdot \mathcal{TF}\left(E_{enveloppe}(t) \cdot e^{i2\pi\cdot\nu_{las}t}\right)$$
(1.6)

ce qui finalement donne accès au spectre du train d'impulsions,

$$\hat{E}_{train}(\nu) = \sum_{n} \delta(\nu - n \cdot f_{rep} - f_{CEO}) \hat{E}_{enveloppe}(\nu - \nu_{las})$$
(1.7)



FIGURE 1.2: Description schématique du peigne de fréquences.

 $E_{train}$  est un peigne de fréquences (représenté sur la fig. 1.2) dont les dents sont séparées de  $f_{rep} = 1/\tau_{rep}$ , le taux de répétition de l'oscillateur, et translatées de  $f_{CEO} = \frac{\Delta\phi_{CEO}}{2\pi}$ .  $f_{rep}$  correspondant au décalage entre la première dent du peigne las extrapolé (en gris sur la fig.1.2) et l'origine. L'enveloppe du spectre sera quant à elle donnée par la transformée de Fourier de l'enveloppe de l'impulsion. Si l'impulsion est gaussienne (cf Eq.1.3), l'enveloppe du spectre sera elle aussi gaussienne, centrée en  $\nu_{las}$  et de largeur fixée par l'inverse de la durée de l'impulsion ( $\Delta \nu = 1/2\Delta t_{imp}$ , plus le spectre est large, plus l'impulsion sera courte en sortie de l'oscillateur). Typiquement, un spectre de pleine largeur à mi-hauteur  $\Delta \lambda = 50 \, nm$  induit une durée d'impulsion de 18.8 fs. Il est à noter qu'il s'agit de la durée minimale qu'on puisse espérer obtenir, ce qui est désigné comme des impulsions en limite de Fourier. En pratique, pour de tels spectres, la dispersion de l'air ou des éléments optiques traversés ne peut être négligée et conduit à l'étirement temporel des impulsions au cours de leur propagtion. Spectralement, cela revient à affecter les phases relatives des modes entre eux sans pour autant altérer la structure de peigne. Il est donc possible de référencer de manière très simple les modes de l'oscillateur, la pulsation du  $n^{ieme}$  mode étant donnée par la relation :

$$f_n = n \cdot f_{rep} + f_{CEO} \tag{1.8}$$

Pour un taux de répétition de 100 MHz, un peigne de fréquences de largeur pleine à mi-hauteur égale à 40 THz centré autour de 400 THz (soit 80 nm de spectre centré sur 800 nm) est donc constitué de  $4 \cdot 10^5$  modes centrés autour du  $(4 \cdot 10^6)^{ieme}$  mode.



1.1.1.3 Oscillateurs existants et gammes spectrales accessibles

FIGURE 1.3: Gammes spectrales couvertes par les peignes de fréquences existants (fig. extraite de [34] complétée). Les courbes en pointillé indiquent la gamme accessible pour les sytèmes accordables.

Il est aujourd'hui possible de trouver une multitude de sources de peignes de fréquences s'étalant spectralement de l'UV profond à l'IR moyen. En plus des sources commerciales Titane :Saphire (Ti: Sa), Erbium fibré (Er :fibre) et Ytterbium fibré (Yb :fibre), on trouve maintenant des sources à modes bloqués Thulium fibré [35] et Cr : ZnSe [36] avant des plages de fonctionnement situées plus loin dans l'IR moyen. Par ailleurs, le comportement à modes bloqués a aussi été observé assez récemment, et de manière unique jusqu'à présent, dans les lasers à cascade quantique (QCL) [37] dont la longueur d'onde de fontionnement directe est encore plus éloignée dans l'IR. Si les QCL sont des sources directes puissantes dans ces gammes spectrales, leur fonctionnement à modes bloqués est encore loin d'être couramment utilisé. A l'heure actuelle, les peignes de fréquences entre  $2 \,\mu m$  et  $10 \,\mu m$  exploitables dans le cadre de mesures spectroscopiques sont obtenus en utilisant des procédés de génération indirects comme la génération par différence de fréquence (DFG) et les oscillateurs paramétriques optiques (OPO). La DFG a été exploitée avec divers oscillateurs, réalisée dans un cristal non linéaire de gallium-selenide (GaSe)[38] ou encore dans un cristal de Lithium de Niobate polarisé périodiquement (PPLN) (démontré avec un oscillateur Yb :fibré) [39]. Les OPO peuvent être composés du même cristal PPLN [40] ou utiliser un cirstal de Gallium-Arsenide à motif orienté (oriented pattern gallium arsenide)[41]. Ils permettent d'étendre les gammes spectrales accessibles dans le moyen IR en utilisant le signal non linéaire direct et/ou en utilisant le signal idler l'accompagnant. Les systèmes basés sur des OPO sont en moyenne plus large spectralement (couverture spectrale de  $8\,\mu m$  jusqu'à  $10\,\mu m$ ) et génèrent des peignes plus puissants que ceux obtenables avec des systèmes DFG pour des longueurs d'ondes identiques. Les fibres optiques non linéaires permettent d'étirer ou de déplacer les spectres de laser fibrés [42], [43]. Enfin, le laser Titane :Saphire est utilisé couplé à d'autres procédés pour élargir encore la gamme spectrale qu'il couvre en utilisant des fibres non linéaires (PCF pour photonic cristal fiber)[44], la génération d'octave [45], les générations de seconde et troisième harmoniques (SHG et THG) et enfin la génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG)[46].

#### 1.1.1.4 Cas particulier de l'oscillateur Ti:Sa utilisé

Dans le cadre de cette thèse le laser utilisé est un oscillateur Titane-Saphire Chinook de Kapteyn and Murnane Labs. Le cristal de Titane-Saphir ( $Ti: Al_2O_3, Ti:Sa$ ) est pompé par un laser continu Coherent Verdi G5 émettant à 532 nm avec une puissance moyenne de 4W. La cavité du laser femtoseconde est représentée fig.1.4. Le faisceau de pompe est polarisé horizontalement et focalisé dans le cristal de Titane-Saphir avec un angle d'incidence égal à l'angle de Brewster. L'émission induite du cristal Ti:Sa est collectée par les miroirs diélectriques courbes l'encadrant pour être envoyée soit vers le miroir de sortie de la cavité (1), où une partie de l'impulsion est transmise vers l'extérieur, soit vers une paire de prismes avant de faire demi-tour en se réfléchissant sur le miroir de



FIGURE 1.4: Représentation schématique de la cavité femtoseconde.

fond de cavité (2). L'ensemble {paire de prismes + miroir de fond de cavité} permet de contrôler finement la compensation de la dispersion au sein de la cavité ainsi que de modifier la forme du spectre du train d'impulsions transmis.



FIGURE 1.5: Spectres obtenus en sortie de l'oscillateur. (a) Spectre moyen, (b) présentant une forte composante continue, (c) spectre le plus large possible.

Un spectre typique de cet oscillateur est donné en fig.1.5(a). Il est aussi possible d'obtenir des états où les deux modes de fonctionnement, continu et modes bloqués, cohabitent (fig.1.5(b)). Enfin, il est possible de générer des peignes de fréquences sur une gamme spectrale s'étalant de 740 nm (soit  $13500 \, cm^{-1}$ ) à  $850 \, nm$  (soit  $11765 \, cm^{-1}$ ) à la mihauteur du spectre avec une puissance moyenne mesurée en sortie d'oscillateur de l'ordre de 400 mW (fig.1.5(c)). L'ordre de grandeur du nombre de modes présents dans la pleine largeur du spectre est  $5 \cdot 10^5$  modes, ce qui donne une puissance moyenne par mode de l'ordre du  $\mu W$ .

#### Contrôle des paramètres du peigne de fréquences

Le taux de répétition est fixé par le temps de parcours de l'impulsion pour faire un tour de cavité. Pour modifier sa valeur, il suffit de changer la longueur de la cavité donc de déplacer un des miroirs de la cavité. Les longueurs mises en jeu restant généralement inférieures à quelques  $\mu m$ , une solution pour faire ces corrections rapidement est de coller un des miroirs de la cavité sur un actuateur piezoélectrique (PZT) lui même collé au support d'origine du miroir. Un PZT va traduire une tension reçue à ses électrodes en dilatation du matériau dont il est composé, ce qui aura pour effet de translater le miroir collé. Afin de faire ce changement sans affecter la fréquence d'offset en même temps, il faut que le déplacement de ce miroir se fasse sans que le faisceau laser se déplace dans le plan transverse à son axe de propagation. Ceci implique de n'utiliser que les miroirs dits de fond de cavité sur lesquels le faisceau fait demi-tour pour retourner vers le cristal. Il y en a deux : le miroir de sortie ((1) sur la fig. 1.4) et le miroir situé après les deux prismes ((2) sur la fig. 1.4). Chacun des deux présente quelques inconvénients : le miroir de sortie (1) implique l'utilisation d'un PZT tubulaire qui laissera passer le faisceau sortant, tandis que le miroir (2) doit être strictement déplacé dans l'axe du faisceau sans aucune rotation sous peine de modifier la fréquence d'offset en changeant sa position. Effectivement, les deux prismes ont pour effet de distribuer spatialement les différents modes laser qui ne vont de ce fait pas parcourir le même chemin optique avant de se réfléchir sur le miroir de fond de cavité et de se recombiner pour retourner vers le cristal et la sortie de l'oscillateur. La rotation pure de ce miroir aura donc pour effet de changer la fréquence d'offset du peigne tandis que sa translation pure modifiera son taux de répétition. Comme il est relativement malaisé de découpler parfaitement la rotation de la translation dans le mouvement du miroir, il semble préférable d'utiliser le miroir de sortie pour corriger les fluctuations du taux de répétition. Pour les mêmes raisons, la rotation du miroir de fond de cavité ((B) sur la fig.1.4) ne va pas modifier uniquement  $f_{CEO}$  et n'est donc pas la solution optimale pour son contrôle. Une deuxième manière d'influencer la fréquence d'offset du peigne est d'ajuster la puissance du faisceau de pompe incident sur le cristal avec un atténuateur variable [47]. Cette variation de la puissance de pompe induit un petit changement dans la réponse non linéaire du cristal qui va affecter le fonctionnement à modes bloqués du laser. La faible variation résultant de la dispersion se traduit par une variation majoritaire de  $f_{CEO}$ . Toutefois, le taux de répétition va lui aussi être influencé par ces changements de l'intensité de pompe. Une autre solution, basée sur le même principe de modulation d'intensité du faisceau de pompe, a été proposée par Cheng en 2008 [48]. Elle consiste à monter le miroir d'injection du faisceau de pompe sur un PZT ((A) sur la fig.1.4) et conduit à faiblement varier le recouvrement du faisceau de pompe avec le mode laser et donc à moduler la puissance effective de la pompe. Enfin, une dernière possibilité, dont la mise en oeuvre est plus onéreuse, est de corriger les fluctuations de  $f_{CEO}$  à l'extérieur de la cavité laser en faisant passer le peigne de fréquences dans un Modulateur Accousto-Optique (AOM) accordable en fréquence. Dans [49], les auteurs utilisent cette technique pour stabiliser  $f_{CEO}$  afin de tester la pertinence de plusieurs modèles de laser de pompe pour le cristal Ti:Sa dont le Verdi G5 Coherent.

### 1.1.2 Cavité passive

Les développements autour des cavités présentés dans cette section ont déjà fait l'objet de traitements approfondis dans nombre d'ouvrages dont [31] et [33]. Ils sont ici rappelés afin d'introduire diverses notions clés présentées dans la suite.

Les cavités sont des résonateurs optiques constitués de deux miroirs ou plus formant un système fermé. Afin de pouvoir injecter de l'énergie dans ce système et observer ce qui se passe à l'intérieur, des miroirs partiellement réfléchissants et sans perte sont utilisés afin que la lumière non réfléchie soit transmise. La portion du champ électrique piégée entre les miroirs va osciller dans la cavité et venir se recombiner sur elle-même après chaque tour de cavité. Comme tout système oscillant, ces cavités vont être caractérisées par des modes de résonance dont la répartition spectrale est définie par la longueur de la cavité et celle spatiale par la géométrie des miroirs la constituant. Pour une fréquence quelconque, la cavité n'est à priori pas résonante et le champ ne se recombine pas en phase avec lui-même après un tour. Le champ intracavité et celui transmis sont alors très faibles, égaux à l'intensité incidente affectée des coefficients de transmission des deux miroirs traversés et encore minorée par l'interférence destructive ayant lieu au sein de la cavité.

Pour certaines fréquences, celles qui correspondent à un nombre entier de cycles optiques sur un tour de cavité, le champ se reboucle parfaitement sur lui-même. Le champ intracavité s'amplifie alors passivement de manière cohérente et la lumière transmise n'est plus nulle (fig.1.6). Cependant, pour que cette résonance soit manifeste, encore faut-il que le faisceau reste confiné au cours de sa propagation dans la cavité. Pour qu'il repasse strictement sur lui-même, il est nécessaire d'insérer dans la cavité des éléments optiques convergents, ce qui s'obtient par l'emploi de miroirs avec des rayons de courbures.

Détaillons dans cette partie les conditions à remplir pour qu'un faisceau laser incident soit résonant dans la cavité. Dans un premier temps, l'accord spatial nécessaire entre



FIGURE 1.6

le faisceau entrant et le mode de la cavité est déterminé puis, dans un second temps, les contraintes spectrales imposées par la propagation du champ dans la cavité seront abordées.

#### 1.1.2.1 Aspect spatial : modes gaussiens

Le traitement du champ intracavité avec les équations de Maxwell tenant compte des conditions aux limites imposées par la géométrie de la cavité conduit à expliciter ses modes propres sur la base des modes transverses d'Hermite-Gauss [31]. Ils correspondent aux modes propres cartésiens d'une cavité sans symétrie cylindrique -les modes propres d'une cavité parfaitement cylindrique (symétrie souvent rompue par l'astigmatisme, même faible, des miroirs) étant les modes de Laguerre-Gauss [31]. Ces modes d'Hermite-Gauss s'expriment avec les polynômes d'Hermite (notés  $H_k(x)$ ) comme suit :

$$\mathcal{E}_{mn} = \mathcal{E}_0 \frac{\overline{\omega}_0}{\overline{\omega}(z)} H_m\left(\sqrt{2}\frac{x}{\overline{\omega}(z)}\right) H_n\left(\sqrt{2}\frac{y}{\overline{\omega}(z)}\right) \exp\left(-ik\frac{x^2+y^2}{2q(z)} - ikz + i(m+n+1)\eta(z)\right)$$
(1.9)

où q(z) est le paramètre gaussien à la position z s'exprimant comme :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i\frac{\lambda}{\pi\varpi^2(z)} \tag{1.10}$$

défini par le rayon de courbure au point z, R(z), et par la dimension transverse à ce même point  $\varpi(z)$  reliée à la valeur du waist  $\varpi_0$  du faisceau (rayon de ceinture en français, peu usité) par :

$$\varpi(z) = \varpi_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)} \tag{1.11}$$

avec  $z_R = \pi \varpi_0^2 / \lambda$  la distance de Rayleigh. On considère usuellement que tant que  $z < z_R$ , le faisceau reste collimaté tandis que pour  $z > z_R$  le faisceau devient nettement divergent. Enfin, la phase de Gouy  $\eta(z) = \arctan(z_R/z)$ , induit un déphasage au cours de la propagation propre à chaque ordre de mode transverse  $TEM_{mn}$ .



FIGURE 1.7: Faisceau gaussien  $TEM_{00}$ 

Ces paramètres sont représentés sur la fig. 1.7 pour le mode transverse fondamental  $TEM_{00}$ . La position du waist, pour laquelle la dimension transverse du faisceau est la plus petite, est alors l'origine de l'axe de propagation, z = 0.

La plupart des lasers étant optimisés pour générer des champs proches du  $TEM_{00}$ , on cherche à coupler le champ incident dans ce mode de cavité dans la plupart des cas. Il correspond au mode où l'intensité sera la plus importante sur l'axe de propagation. La répartition de son intensité dans le plan transverse à l'axe de propagation est tracée fig.A.4 avec celles des deux modes transverses  $TEM_{10}$  et  $TEM_{11}$ .

Notons enfin que la formulation Eq.1.9 permet de traiter aisément la propagation de faisceaux astigmatiques en séparant les deux dimensions cartésiennes  $\mathcal{E}_{mn}(x, y, z) = \mathcal{E}_m(x, z) \cdot \mathcal{E}_n(y, z) e^{-ikz}$  avec :

$$\mathcal{E}_m(x,z) = \frac{\varpi_x 0}{\varpi_x(z)} H_m\left(\sqrt{2}\frac{x}{\varpi_x(z)}\right) exp\left(-ik\frac{x^2}{2q_x(z)} + i(m+1/2)\eta_x(z)\right)$$
$$\mathcal{E}_n(y,z) = \frac{\varpi_y 0}{\varpi_y(z)} H_n\left(\sqrt{2}\frac{y}{\varpi_y(z)}\right) exp\left(-ik\frac{y^2}{2q_y(z)} + i(n+1/2)\eta_y(z)\right) \quad (1.12)$$



FIGURE 1.8: Répartition de l'intensité au waist de plusieurs modes transverses.

Ces modes propres sont obtenus pour toute géométrie de cavité. Cependant, nous nous sommes intéressés dans ce travail à des modes propres qui restent confinés autour de l'axe optique, traduisant la notion de stabilité de la cavité. Les dérivations nécessaires pour déterminer cette stabilité sont courantes [31] et ne seront pas rappelées ici. Celleci s'obtient à l'aide de l'optique gaussienne qui conduit à déplier la propagation du faisceau gaussien sur un axe infini et à placer périodiquement au cours de la propagation des lentilles de focales égales à celles des miroirs sphériques. La condition de stabilité est fonction des rayons de courbure des miroirs et de la distance qui les sépare et s'obtient en s'assurant que la dimension transverse du faisceau à la position z est identique à celle obtenue un nombre entier de longueur de cavité plus loin :  $\varpi(z) = \varpi(z + nL_{cav})$ . Le principe est rappelé fig. 1.9.



FIGURE 1.9: Stabilité schématique d'une cavité de trois miroirs ou plus. Les deux miroirs sphériques de courbure respective  $R_1$  et  $R_2$  sont représentés par les deux lentilles de focales correspondantes  $f_1$  et  $f_2$ . Les distances  $L_1$  et  $L_2$  séparant les deux miroirs courbes ne sont pas nécessairement égales ce qui conduit à la définition de deux dimensions de waists différentes  $\varpi_{0A}$  et  $\varpi_{0B}$ .

#### 1.1.2.2 Accord de mode spatial

Une fois connues les caractéristiques spatiales du mode  $TEM_{00}$ , c'est-à-dire essentiellement la dimension du premier waist rencontré sur le parcours optique ainsi que sa position, on utilise de nouveau l'optique gaussienne pour faire l'accord de mode entre le mode laser et celui de la cavité. Une connaissance préalable des dimensions et de la position du waist laser (par exemple pour la cavité Ti-Sa utilisée, le waist se trouve sur la surface du miroir de sortie) permet, grâce à un jeu de lentilles placées sur le chemin optique d'adapter la dimension du faisceau aux dimensions et position du waist de la cavité. Un accord de mode rigoureux requiert la prise en compte de l'ellipticité du faisceau laser ainsi que de celle du mode propre de cavité en présence d'astigmatisme. D'une manière générale pour espérer coupler 100% du faisceau incident dans le mode  $TEM_{00}$ , il est nécessaire de séparer les propagations sur les deux axes (Eq. 1.12) et d'utiliser des lentilles cylindriques.

En pratique, la multiplication des éléments optiques sur la propagation du faisceau est source d'interférences parasites éventuelles. Par ailleurs, l'utilisation de lentilles sphériques permet d'obtenir des accords de modes où plus de 99% du mode laser est injecté dans le mode  $TEM_{00}$ . La puissance restante peut alors être couplée dans des modes transverses d'ordres plus élevés pour certaines fréquences. Dans ces situations, il est utile de pouvoir simuler la puissance couplée dans les différents modes transverses. Ceci s'obtient par le calcul des intégrales de recouvrements du mode laser  $\mathcal{E}_{00}^{las}$  avec les modes transverses donnant le coefficient de couplage en amplitude :

$$c_{mn} = \int \int \mathcal{E}_{00}^{las} \cdot \mathcal{E}_{mn}^* \, dx dy \tag{1.13}$$

La fraction de puissance couplée s'obtient ensuite en prenant son carré.

L'accord spatial entre laser et cavité étant réalisé et ses imperfections éventuelles quantifiées, il reste à considérer l'accord spectral entre le champ laser et le mode propre de la cavité.

#### 1.1.2.3 Aspect spectral : fonction de transfert

Dans cette partie, afin de limiter la complexité des expressions qui vont suivre, nous considérons le champ électrique incident comme une onde plane, ce qui correspond à un mode spatial  $TEM_{00}$  dont seule la propagation sur l'axe optique (x = 0 et y = 0) est considérée et dont la phase de Gouy est négligée. Cette restriction permet une description fidèle de la réponse spectrale d'une cavité optique. L'effet de la phase de Gouy sera discuté dans la suite. Considérons une cavité de longueur totale, aller-retour, L avec un nombre k quelconque de miroirs. Chacun des miroirs est caractérisé par un coefficient de réflexion en champ  $r_k$  et en intensité  $R_k = |r_k|^2$  (valable pour les petits angles d'incidence). Il est utile de définir un coefficient de réflexion équivalent à un tour de cavité (l'abréviation rt sera utilisée par la suite, contraction de round-trip) :

$$r_{rt} = \prod_{k} r_k \text{ et } R_{rt} = \prod_{k} R_k \tag{1.14}$$

Deux miroirs se démarquent des autres par leur utilisation à la fois en réflexion et en transmission. Il s'agit des coupleurs d'entrée (input coupler en anglais, IC) et de sortie (outpout coupler, OC). En les considérant idéaux, sans perte, leur coeffcient de transmission s'écrit en intensité  $T_{IC/OC} = 1 - R_{IC/OC}$  et en champ  $t_{IC/OC} = \sqrt{T_{IC/OC}}$ . Connaissant le champ incident sur le coupleur d'entrée  $E_0(\nu)$ , le champ électrique transmis par le miroir de sortie de la cavité correspond à la somme des champs ayant fait de multiples allers-retours qui peut être exprimé comme suit :

$$E_{s}(\nu) = t_{IC}t_{OC}E_{0}(\nu) + t_{IC}E_{0}(\nu) \cdot r_{rt}e^{-i2\pi\frac{\nu}{c}L} + t_{IC}E_{0}(\nu) \cdot r_{rt}^{2}e^{-i\frac{2\pi\nu}{c}\cdot2L} + \cdots$$
  
$$= t_{IC}t_{OC}E_{0}(\nu)\sum_{n=0}^{\infty} \left(r_{rt}e^{-i\frac{2\pi\nu}{c}L}\right)^{n}$$
  
$$= t_{IC}t_{OC}E_{0}(\nu)\frac{1}{1 - r_{rt}e^{-i\frac{2\pi\nu}{c}L}}$$
(1.15)

Dans un premier temps, la cavité est considérée comme absolument non dispersive. Le déphasage  $\Phi(\omega)$  sur un tour de cavité n'est alors dû qu'à la propagation du champ :  $\Phi(\nu) = 2\pi \frac{\nu}{c}L$ . L'intensité du champ en sortie  $I_s(\nu) = |E_s(\nu)|^2$  peut alors être exprimée comme :

$$I_s(\nu) = \frac{T_{IC}T_{OC}}{1 + R_{rt} - 2r_{rt}cos(2\pi\frac{\nu}{c}L)} \cdot I_0(\nu)$$
(1.16)

où  $I_0$  est l'intensité du champ incident à la fréquence  $\nu$ . L'équation 1.16 peut encore se mettre sous la forme répandue :

$$H(\nu) = \frac{I_s(\nu)}{I_0(\nu)} = \frac{T_{IC}T_{OC}}{(1 - r_{rt})^2} \cdot \frac{1}{1 + \left(2\frac{F}{\pi}\right)^2 \sin^2(\pi\nu\frac{L}{c})}$$
(1.17)

où l'on a introduit la grandeur F, appelée finesse de la cavité, définie par :

$$F = \pi \frac{\sqrt{r_{rt}}}{1 - r_{rt}}.$$
 (1.18)

Il apparaît immédiatement que  $H(\nu)$  va passer par sa valeur maximale  $H_{max} = \frac{T_{IC}T_{OC}}{(1-r_{rt})^2}$ dès que  $2\pi \cdot \nu_m \cdot \frac{L}{c} = 2m\pi$ . Ce passage en résonance périodique de la cavité est caractérisé par son Intervalle Spectral Libre (ISL) défini par la différence entre deux fréquences de
résonance sussessives :

$$ISL_{cav} = \nu_{m+1} - \nu_m = \frac{c}{L}$$
(1.19)



FIGURE 1.10: Résonances d'une cavité de finesse F=10

Ici, il convient de noter que la prise en compte de la nature gaussienne du champ intracavité apparaîtrait dans le terme de phase de la fonction de transfert sous la forme d'un déphasage supplémentaire dû à la phase de Gouy propre à chaque mode transverse (en restant à l'origine du plan transverse). Cela a pour effet de translater toutes les résonances d'une valeur constante mais distincte pour chaque  $TEM_{mn}$ . L'ISL y sera donc insensible et les structures de peignes de résonances associées aux différents modes transverses seront toutes légèrement décalées les unes par rapport aux autres, la pulsation résonante d'ordre k du mode  $TEM_{mn}$  étant donnée par [50] :

$$\nu_k^{mn} = \frac{c}{L} \left[ k + \frac{1}{\pi} (m + n + 1) \cdot \arccos(f(R_{c1}, R_{c2}, L_c)) \right]$$
(1.20)

où f est une fonction des rayons de courbure des deux miroirs sphériques ainsi que de la longueur de la cavité. L'écart entre les différents peignes de résonances est déterminé par un déphasage lié à l'ordre des modes transverses ainsi qu'aux rayons de courbures des deux miroirs sphériques composant la cavité.

La largeur de ces résonances peut quant à elle s'obtenir en linéarisant le sinus à proximité d'une des résonances, l'Eq.1.17 devenant :

$$H(\nu) = H_{max} \cdot \frac{1}{1 + (\frac{2F}{ISL_c}(\nu - \nu_m))^2}$$
(1.21)

La forme spectrale de la résonance est alors une lorentzienne de pleine largeur à mihauteur  $\Gamma_c = \frac{ISL_c}{F}$ . La finesse, définie en premier lieu par les coefficients de réflexion des miroirs utilisés, est donc aussi directement donnée par le rapport de l'ISL de la cavité



FIGURE 1.11: Transmission normalisée d'une cavité dont le faisceau incident est désaligné tant sur l'axe horizontal que sur le vertical par rapport au mode fondamental de la cavité. Ce désaccord met en évidence les peignes de résonances de plusieurs modes transverses.

sur la largeur d'un mode de résonance  $\Gamma_c$ . On retrouve donc à première vue, à l'instar du spectre du train d'impulsions, une structure spectrale en forme de peigne, de résonances cette fois-ci (fig. 1.10). Les modes de ce peigne sont espacés d'un ISL uniquement fixé par la longueur de la cavité et leur largeur est à la fois fixée par la finesse de la cavité et par son ISL (plus la finesse sera élevée, plus les modes de résonance seront fins spectralement si l'ISL est constant).

Intéressons-nous maintenant à la valeur de  $H_{max}$ , qui est reliée aux coefficients de réflexion de la cavité et aux transmissions des miroirs d'entrée et de sortie. Dans le cas le plus favorable, les miroirs autres que ceux d'entrée et sortie peuvent être considérés comme infiniment réfléchissants. Le produit de toutes les réflectivités se résume alors à  $r_{rt} = r_{IC} \times r_{OC}$ . Si en plus ces deux miroirs sont parfaitement identiques, alors  $r_{rt} = R_{IC} = 1 - T_{IC}$ . Dans ce cas, on parle d'une cavité transparente et  $H_{max}$  atteint l'unité. En pratique, il est difficile d'atteindre cette valeur qui se situe plutôt dans les dizaines de % pour les cas les plus favorables.

Comme toute grandeur spectrale, les résonances de cavité ont leur pendant dans l'espace du temps qui se manifeste par ce qui est couramment désigné par le temps de ring down (temps de déclin).

#### 1.1.2.4 Temps de ring down

Supposons que la cavité soit injectée avec un champ monochromatique de pulsation  $\nu_{las}$  accordée sur une des résonances de la cavité et revenons à l'expression du champ électrique transmis par l'OC. Si le champ est résonant, alors  $exp(i\frac{2pi\nu_{las}}{c}L) = 1$  et la

somme Eq.1.15 devient :

$$E_{s}(\nu_{las}) = E_{0}(\nu_{las})t_{IC}t_{OC}\sum_{n=0}^{\infty}r_{rt}^{n}$$
(1.22)

Comme les cavités sont quasiment toujours montées avec des miroirs de haute réflectivité (> 99%), il est possible de réécrire  $r_{rt}$  comme une perte globale d'énergie sur un tour de cavité  $r_{rt} = e^{-\delta rt}$  [31], qui peut encore être réexprimée en terme de pertes linéiques  $\delta_{rt} = \frac{1}{2}\alpha_{rt}L$ . L'équation 1.22 devient :

$$E_s(\nu_{las}) = E_0(\nu_{las}) t_{IC} t_{OC} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-\frac{\alpha_{rt}}{2}nL}$$
$$= E_0(\nu_{las}) t_{IC} t_{OC} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-\frac{\alpha_{rt}}{2}c \cdot nT_{rep}}$$
(1.23)

Le champ incident est maintenant coupé infiniment rapidement, et le champ à l'instant t après l'extinction peut s'écrire :

$$E_s(t, \nu_{las}) = E_0(\nu_{las}) t_{IC} t_{OC} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-\frac{\alpha_{rt}}{2}c \cdot (nT_{rep} + t)}$$
$$= E_s(\nu_{las}) \cdot e^{-\frac{\alpha_{rt}}{2}ct}$$
(1.24)

En intensité, on obtient pour une cavité transparente :

$$I_s(t,\nu_{las}) = I_0(\nu_{las}) \cdot e^{-\alpha_{rt}ct}$$
(1.25)

L'intensité en sortie de cavité décroît donc exponentiellement avec une constante de temps appelée temps de ring down (fig.1.12),  $\tau_{RD} = (\alpha_{rt}c)^{-1}$ . Or, la finesse pouvant être approchée par  $\pi \frac{1}{1-r_{rt}}$  et  $-ln(r_{rt})$  par  $1 - r_{rt}$  dans le cas de réflectivités proches de l'unité,  $\alpha_{rt}$  peut être relié à la finesse par la relation :

$$\tau_{RD} = \frac{L}{c} \cdot \frac{F}{2\pi} = \frac{1}{2\pi \cdot \Gamma_c} \tag{1.26}$$

ce qui détermine la relation de Fourier liant la fonction de transfert en fréquence à la réponse temporelle de la cavité. Cela montre encore qu'une mesure de  $\tau_{RD}$  permet la mesure de la finesse de la cavité, sa longueur étant déterminée par ailleurs.

Notons qu'il est nécessaire d'attendre  $10\tau_{RD}$  après l'extinction du faisceau incident pour que 99,995% de la puissance intracavité présente à l'état stationnaire soit dissipée dans les diverses sources de pertes de la cavité. Dans le cas inverse, où un champ incident arrive sur une cavité initialement vide de champ, à une pulsation résonante, la même dynamique temporelle entre en jeu et il est de la même manière nécessaire d'attendre



FIGURE 1.12: Illustration du ring down occurent à l'extinction du faisceau incident.

 $10\tau_{RD}$  après la début de l'injection avant de considérer que le champ intracavité a atteint son état stationnaire, dans le cas de performances en terme de bruit de détection situées à  $5.10^{-5}$  ou plus.

Cependant, nous avons fait dans cette partie une omission de taille : le laser injectant la cavité est toujours considéré comme accordé sur une fréquence de résonance de la cavité. En pratique, pour arriver à cette fréquence de résonance, il faut soit balayer la fréquence du laser soit balayer la longueur de la cavité de manière à trouver cet accord. La vitesse à laquelle se fait cet accord fait appel à la dynamique décrite par le temps de ring down. L'impact de celle-ci sur les pics de résonance est l'objet de la suite.

#### 1.1.2.5 Ringing et vitesse adiabatique

Comme nous l'avons vu précédemment, l'ISL entre les résonances de la cavité est défini par la longueur de la cavité. Un balayage de cette longueur, au moyen d'un actuateur piezoélectrique collé derrière un des miroirs de la cavité, induit un balayage spectral du peigne de résonances. Imaginons que cette cavité soit injectée avec un laser monochromatique de fréquence  $\nu_{las}$  quelconque. Dès lors, la vitesse de déplacement du mode de résonance n'est pas anodine puisqu'elle va déterminer notamment le temps d'injection du laser dans la cavité. De même, le déplacement du miroir doit être pris en compte dans l'expression du champ intracavité. Il est possible de relier la modification de la longueur de la cavité  $L(t) = L_0 + vt - v$  est la vitesse d'expansion/compression de la cavité égale au double de la vitesse de déplacement du miroir- à la position de la résonance d'ordre m à l'instant t:

$$\nu_m(t) = m \frac{c}{L_0} \left( 1 - \frac{vt}{L_0} \right) \tag{1.27}$$

On peut déduire directement de 1.27 la vitesse de balayage spectral de cette résonance, si on suppose que la longueur  $L_0$  de la cavité est accordée de manière à ce que la fréquence du laser soit résonante ( $\nu_{las} = m \cdot c/L_0$ ) :

$$\dot{\nu}(t) = -\nu_{las} \frac{v}{L_0} \tag{1.28}$$

On a considéré dans l'Eq.1.28 que la modification de longueur induite par le déplacement du miroir était petite devant la longueur totale de la cavité, ce qui est généralement vrai, la longueur totale des cavités optiques étant de l'odre du mètre tandis que le déplacement des miroirs se fait sur quelques  $\mu m$ . Il est alors possible de montrer [51] qu'à chaque réflexion sur le miroir réalisant le balayage de la cavité, le champ électrique intracavité incident voit sa fréquence subir un décalage Doppler et repartir avec une fréquence  $\nu_1 = \nu_{las}(1 + v/c)/(1 - v/c)$ . Plus généralement, la fréquence du champ incident après ntours de cavité peut s'écrire  $\nu_n = \nu_{las} [(1 - v/c)/(1 + v/c)]^n$ . Le champ intracavité peut alors être exprimé après n tours juste derrière le miroir d'entrée comme [51] :

$$E_n(t) = H_{max} t_{IC} r_{rt} E_{n-1}(t) \ exp\left[i2\pi\nu_n t - i\frac{L_0}{c}\frac{\sum_{p=0}^{n-1}2\pi\nu_p}{1+v/c}\right]$$
(1.29)

Comme  $v/c \ll 1$ , on peut réécrire  $\nu_n \simeq \nu_{las}(1-2n\frac{v}{c})$  et  $\sum_{p=0}^{n-1} 2\pi\nu_p \simeq 2\pi\nu_{las}n\left(1-\frac{v}{c}(n-1)\right)$ . De même que précédemment (Eq.1.15), le champ total à l'intérieur de la cavité est la somme des champs ayant fait un ou plusieurs tours avec le champ entrant :

$$E_{cav}(t) = H_{max} t_{IC} E_0(t) \sum_n r_{rt}^n \exp i \left[ 2\pi\nu_{las} \left( 1 - 2n\frac{v}{c} \right) t - \frac{L_0}{c} 2\pi\nu_{las} n \left( 1 - \frac{v}{c} (n-1) \right) \right]$$
(1.30)

Enfin, l'intensité transmise  $I_s(t)$  par la cavité derrière son miroir de sortie est obtenue en prenant le module au carré de cette somme.

Plusieurs profils de transmission pour différentes vitesses de balayage sont représentés fig.1.13. Afin de donner un caractère plus général à ces courbes quelle que soit la cavité considérée [51], la vitesse de balayage spectrale est définie par rapport à une vitesse caractéristique  $\frac{2\pi\Gamma_c}{\tau_{RD}}$  par le biais d'un paramètre adimensionné  $\eta$  définit par :  $\eta = \frac{\dot{\nu}}{2\pi\Gamma_c/\tau_{RD}}$ . Lorsque le scan est effectué à vitesse très lente ( $\eta = 1/20$ , fig.1.13(a)), la déformation



FIGURE 1.13: Profil de l'intensité transmise en fontion du paramètre  $\eta$  proportionnel à la vitesse de balayage d'une résonance de la cavité.

du profil transmis est négligeable et on peut considérer que le scan de la résonance est fait de manière adiabatique : pour chaque étape élémentaire du mouvement du miroir l'état stationnaire de la cavité est atteint. On retrouve alors un profil de résonance lorentzien dans le domaine temporel qui est une image fidèle du spectre de résonances de la cavité. Pour des vitesses plus élevées ( $\eta = 1, 10, 100, \text{fig.}1.13(\text{b-d})$ ), le profil s'éloigne de plus en plus de la lorentzienne, perdant en intensité maximale de transmission et présentant des oscillations après le passage de la résonance à mesure que la vitesse augmente. Ce phénomène est couramment désigné sous le terme de ringing. Pour chaque profil est tracé pour comparaison en pointillés le profil transmis qui serait obtenu sans effet Doppler à la réflexion, normalisé par le maximum de transmission du profil mesuré. Il permet de prendre la mesure du retard mais surtout de l'élargissement du profil lorsque la vitesse augmente. Dans le cas de mesure reposant sur l'analyse de l'intensité lumineuse transmise par la cavité, il est crucial de rester dans des gammes de vitesses adiabatiques  $(\eta \leq \frac{1}{2\pi})$  pour pouvoir en faire une analyse quantitative. Cependant, cet effet peut aussi être exploité, notamment pour déterminer la finesse d'une cavité [52], le délai entre le pic de transmission et la première oscillation ainsi que le rapport des intensités de ces deux mêmes maxima étant déterminés par la finesse de la cavité.

Finalement, nous sommes maintenant capables de caractériser le peigne de fréquences issu de l'oscillateur femtoseconde, spectralement et spatialement. Son couplage avec une cavité optique a été introduit et a mis en lumière la nécessité de faire à la fois un accord de mode spatial et spectral entre eux. Des caractéristiques dynamiques clés des cavités optiques ont par la même occasion été présentées à travers le temps de ring-down et la notion de vitesse adiabatique. Afin de compléter cette description, des cavités optiques plus réalistes vont maintenant être caractérisées avant d'aborder la problématique du couplage effectif de l'ensemble du peigne de fréquences dans la cavité.

## 1.2 Cavité réelle - altération des résonances de la cavité

Dans la partie précédente, les cavités étaient considérées idéales, c'est-à-dire caractérisées par un spectre de résonances identiques et équidistantes. Cela revient à considérer la propagation d'une onde dans le vide parfait, en omettant l'effet des miroirs de la cavité ou d'objets physiques autres (air ambiant, gaz autres, gouttelettes, lame de verre...). Ces différents éléments vont pourtant amener chacun leur signature spectrale, qu'il faudra prendre en compte pour déterminer un facteur limitant ou au contraire pour mesurer une grandeur physique. Dans tous les cas, la description de la propagation d'une onde intracavité dans un milieu autre que le vide absolu nécessite l'ajout d'un terme de phase spectralement dépendant  $\phi(\nu)$ . Dans le cadre de ce travail, ce terme dispersif sera induit par l'air ambiant présent dans la cavité ouverte ainsi que par les miroirs qui la constituent.

Dans les développements qui vont suivre, nous traitons distinctement les effets dispersifs selon leur évolution spectrale. Plus précisément, après une introduction du formalisme nécessaire à la prise en compte de cette dispersion, le premier type de dispersion traité sera celui induit par les miroirs et par les gaz présents dans l'air et n'absorbant pas dans la gamme spectrale du laser (700 - 900 nm). Cette dispersion aura un effet visible si on considère le spectre femtoseconde dans son entier mais restera anecdotique si la zone spectrale considérée se réduit à quelques GHz. Dans un second temps, une description précise de la déformation d'une résonance de cavité située dans le profil d'une transition moléculaire sera faite.

#### 1.2.1 Dispersion intracavité - Formalisme

#### 1.2.1.1 Formalisme de la dispersion

Reprenons maintenant l'expression du champ intracavité en ajoutant un terme dispersif dans sa propagation :

$$E_{s}(\nu) = t_{IC} t_{OC} E_{0}(\nu) \sum_{n=0}^{\infty} \left( r_{rt} e^{i \left[\frac{2}{\pi}\nu cL - \phi(\nu)\right]} \right)^{n}$$
(1.31)

On peut de la même manière que dans la première partie dériver à nouveau la fonction de transfert de la cavité en intensité :

$$H_c(\nu) = \frac{T_{IC}T_{OC}}{(1 - r_{rt})^2} \frac{1}{1 + 4\frac{F^2}{\pi^2}sin^2\left(\frac{1}{2}\left(\frac{2\pi\cdot\nu}{c}L - \phi(\nu)\right)\right)}$$
(1.32)

A défaut de connaître exactement la forme de  $\phi(\nu)$ , il est toujours possible de développer ce terme en série de Taylor autour d'une pulsation de référence  $\nu_{ref}$ :

$$\phi(\nu) = \phi_0 + \phi_1 \cdot (\nu - \nu_{ref}) + \frac{1}{2} \cdot \phi_2 \cdot (\nu - \nu_{ref})^2 + \frac{1}{6} \phi_3 \cdot (\nu - \nu_{ref})^3 + \cdots$$
(1.33)

avec les différents ordres de dispersion pris en  $\nu_{ref}$  :  $\phi_n = \left(\frac{d^n \phi}{d\nu^n}\right)_{\nu_{ref}}$ . La condition d'interférence constructive pour une fréquence  $\nu_n$  s'obtient de la phase accumulée sur un tour  $\Phi(\nu)$  qui doit toujours s'accorder à un multiple de  $2\pi$  :

$$\Phi(\nu_n) = 2\pi \cdot \nu_n \frac{L}{c} - \phi(\nu_n) = 2n\pi$$
(1.34)

# **1.2.1.2** Conséquences des différents ordres de dispersion sur le spectre de résonances

Nous passons ici en revue les premiers ordres du développement de Taylor effectué en 1.33. Nous nous limitons aux quatre premiers, les ordres supérieurs étant généralement très faibles et créant des distortions spectrales extrapolables à partir des premiers ordres. Tous les ordres envisagés sont illustrés sur quelques dizaines de résonances. Pour que les effets discutés soient visibles, les ordres de grandeurs des dispersions utilisées sont surestimés de 5 ordres de grandeurs. Ces effets sont en réalité très ténus, et leur conséquences ne se ressentent que sur des gammes spectrales couvrant plusieurs THz, ce qui pour une cavité de 3 m comme la nôtre représente plus de  $10^5$  résonances.

**Ordre 0 de la dispersion :**  $\phi_0 \neq 0$ 



FIGURE 1.14: Spectre de résonances avec (trait rouge plein) et sans (trait noir pointillé) dispersion d'ordre 0.

Dans le cas d'une dispersion induisant un déphasage constant et indépendant de la fréquence regardée, la condition de bouclage s'écrit :

$$\Phi(\nu_m) = 2\pi \cdot \nu_m \frac{L}{c} - \phi_0 = 2m\pi \tag{1.35}$$

d'où on déduit facilement l'ISL :

$$ISL_{\phi 0} = \nu_{m+1} - \nu_m = \frac{c}{L}$$
(1.36)

Le peigne de résonances est donc translaté de la quantité  $\phi_0 \times c/L$  sans déformation de son ISL (fig.1.14).

### Dispersion du premier ordre : $\phi_1 \neq 0$

De même que précédemment, on a une nouvelle condition de bouclage qui est :



FIGURE 1.15: Spectre de résonances avec (trait rouge plein) et sans (trait noir pointillé) dispersion du premier ordre.

$$\Phi(\nu_m) = \nu_m \frac{L}{c} - \phi_1 \cdot (\nu_m - \nu_{ref}) = 2m\pi$$
(1.37)

que l'on peut réécrire :

$$\nu_m \frac{L_{eff}}{c} + \phi_1 \cdot \nu_{ref} = 2m\pi \tag{1.38}$$

en introduisant la longueur effective de la cavité :  $L_{eff} = L - c \cdot \phi_1$ . Pour des raisons de vraisemblance, il est évident qu'avec les conventions de signe adoptées ici,  $\phi_1$  doit être négatif. On trouve alors le nouvel ISL de la cavité, plus petit que celui de la même cavité sans dispersion, mais toujours indépendant de la fréquence :

$$ISL_{\phi 1} = \frac{c}{L - c \cdot \phi_1} \tag{1.39}$$

Ce nouveau peigne de résonances est représenté fig.1.15. Sa périodicité est plus resserrée que celle du peigne sans dispersion, et il est translaté de la quantité  $\phi_1 \cdot \nu_{ref}$  qui vient à faire correspondre les deux résonances (avec et sans dispersion) à la fréquence  $\nu_{ref}$ . Expérimentalement, ce déphasage n'est pas quantifiable et n'est en aucun cas une difficulté puisqu'il suffit de changer la longueur de la cavité pour la réaccorder sur la longueur effective désirée.

#### Dispersion du second ordre : $\phi_2 \neq 0$

On procède toujours de la même manière en nous intéressant cette fois à la différence  $\Phi(\nu_{m+1}) - \Phi(\nu_m)$ :

$$2\pi(\nu_{m+1} - \nu_m)\frac{L}{c} - \frac{1}{2}\phi_2 \cdot \left((\nu_{m+1} - \nu_{ref})^2 - (\nu_n - \nu_{ref})^2\right) = 2\pi \tag{1.40}$$

En faisant l'approximation  $(\nu_{m+1} - \nu_{ref})^2 - (\nu_m - \nu_{ref})^2 \simeq 2(\nu_{m+1} - \nu_m)(\nu_m - \nu_{ref})$ , valable pour des dispersions  $\phi_2$  variant lentement sur l'intervalle c/L, on peut réécrire l'équation 1.40 :

$$ISL_{\phi 2} \cdot \left(2\pi \cdot \frac{L}{c} - \phi_2 \cdot (\nu_n - \nu_{ref})\right) = 2\pi$$
(1.41)

Enfin, pour des dispersions faibles, on peut donner une expression de l'ISL linéaire en pulsation :

$$ISL_{\phi 2}(\nu_m) = \frac{c}{L} \left( 1 + 2\pi \cdot \phi_2 \frac{c}{L} (\nu_n - \nu_{ref}) \right)$$
(1.42)

L'ISL n'est plus constant sur le spectre entier et, dans le cas où  $\phi_2$  est positif, va augmenter avec la pulsation (figure 1.16).

Cet ordre est le premier qui puisse être une vraie limitation lorsqu'on cherche à coupler un peigne de fréquences femtoseconde dans la cavité. Sa quantification est réalisée à travers la Group Delay Dispersion, exprimée en  $fs^2$ , et définie comme  $d^2\phi/d\omega^2$  et est donc égale à  $\phi_2/(2\pi)^2$ .



FIGURE 1.16: Spectre de résonances avec (trait rouge plein) et sans (trait noir pointillé) dispersion du deuxième ordre.

#### Ordres supérieurs - exemple de la dispersion du troisième ordre :

Pour des dispersions d'ordre 3, et supérieurs, le même raisonnement que celui utilisé pour l'ordre 2 s'applique. Il permet ainsi de remonter jusqu'à l'ISL pour une dispersion du troisième ordre :

$$ISL_{\phi3}(\nu_m) = \frac{c}{L} \left( 1 + \frac{1}{3} (2\pi)^2 \cdot \phi_3 \frac{c}{L} (\nu_m - \nu_{ref})^2 \right)$$
(1.43)

La dépendance spectrale de l'ISL est maintenant quadratique et va continuer d'augmenter à mesure que l'ordre de dispersion sera grand. Pour l'ordre 3, le spectre de résonance est illustré fig.1.17 et on voit que l'ISL commence à montrer un fort effet d'accordéon qui est d'autant plus marqué que l'ordre de dispersion est grand.



FIGURE 1.17: Spectre de résonances avec (trait rouge plein) et sans (trait noir pointillé) dispersion du troisième ordre.

#### **1.2.2** Sources de dispersion spectralement lente

Nous sommes à présent en mesure de caractériser les différents types de dispersion auxquels nous sommes confrontés. Expérimentalement, la dispersion qui nous intéresse en tant que source potentielle de problèmes est celle qui concerne des ordres plus élevés que le premier. A partir de maintenant, on se contentera donc de commenter la  $GDD(\omega)$ (dont la dépendance spectrale, traditionnellement en pulsation, inclut les termes d'ordres plus élevés) induite par les divers éléments de la cavité. Commençons par les effets de dispersion visibles sur de grands spectres. Une première source de dispersion, inhérente à la construction de la cavité est celle des miroirs utilisés. Une seconde arrive dès que la cavité est remplie d'un gaz quel qu'il soit, même non résonant avec le rayonnement.

#### 1.2.2.1 Dispersion des miroirs

Pour atteindre des coefficients de réflexion à la fois élevés et précisément contrôlés, des miroirs diélectriques multicouches sont usuellement utilisés.

La haute réflectivité de ces miroirs est obtenue en utilisant la structure interférométrique résultant de l'empilement des couches minces diélectriques combinant à la fois la possibilité de contrôler la réflectivité et de limiter les pertes optiques dans le miroir à  $\leq 10^{-4}$ typiquement (les pertes sont définies ici comme la portion de lumière ni réfléchie ni transmise par le miroir). Ce procédé interférométrique rend impossible de définir strictement une surface de réflexion des différentes longueurs d'onde et induit une dispersion supplémentaire affectant le champ réfléchi. Une interprétation simpliste, utilisée sur la fig.1.18, consiste à considérer une surface de réflexion effective différente pour chaque longueur d'onde. La GDD induite par ces miroirs est alors définie par la différence de chemin optique parcouru par les longueurs d'onde  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  et  $\lambda_3$ . Un effort d'ingénierie important est porté sur la fabrication de ces miroirs afin qu'ils présentent une GDD la plus proche possible de  $0 fs^2$  sur la plus grande gamme spectrale possible. Par ailleurs, la demande de plus en plus forte pour des structures de GDD toujours mieux contrôlées a conduit à l'élaboration de miroirs caractérisés par des GDD négatives permettant une correction, imparfaite pour le moment, de la dispersion induite par les autres éléments optiques (GDD>  $0 fs^2$ ). Ces miroirs sont notamment utilisés pour tenter de corriger la GDD induite par l'air dans le cas des cavités ouvertes. Dans la partie 2 nous présenterons une étude expérimentale portant sur de tels miroirs.



FIGURE 1.18: Schéma qualitatif de l'effet dispersif d'un miroir diélectrique multicouche.

#### 1.2.2.2 Dispersion de l'air - coefficients de Sellmeier

La présence d'un gaz quelle que soit sa nature va induire une dispersion dans la cavité du fait de la variation spectrale de son indice de réfraction n. Cette variation d'indice peut être évaluée grâce à la relation de Sellmeier pour des longueurs d'onde situées loin des bandes d'absorption de ce gaz :

$$n(\lambda) = 1 + \sum_{k} \frac{B_k \lambda^2}{\lambda^2 - C_k} \tag{1.44}$$

où les coefficients  $B_k$  et  $C_k$  sont les coefficients de Sellmeier du gaz considéré, disponibles dans la littérature ([53],[54] par exemple). Connaissant les variations spectrales de n, le déphasage induit par ce gaz pour une propagation du champ sur une distance L est :

$$\Delta\phi(\omega) = \frac{\omega}{c}L(n(\omega) - 1) \tag{1.45}$$

La GDD est finalement obtenue en prenant la dérivée seconde de cette expression.

Dans la figure 1.19, les GDD induites par la propagation sur 3m de plusieurs gaz sont tracées. On voit que la dispersion de l'air est relativement élevée comparée à celle de l'Hélium ou du Néon. A titre de comparaison, la GDD induite par 1mm de verre BK7 est de 45  $fs^2$ , du même ordre de grandeur que celle induite par 3m d'air.

Il est possible de calculer la variation de l'ISL de la cavité en présence de chacun de ces gaz grâce à l'Eq. 1.42. L'écart induit sur l'ISL reste très faible puisque cantonné à quelques centaines de Hz même pour des modes très éloignés de la pulsation centrale.



FIGURE 1.19: GDD induite par la propagation sur une longueur de 3 m dans différents gaz à pression atmosphérique et à température ambiante (21°C). La dispersion du second ordre induite par la traversée de 1 mm de verre BK7 est donnée à titre de comparaison [53],[54].

En revanche, l'accumulation de ces petits écarts sur de grandes plages spectrales peut conduire à des déplacements de pulsations de résonances absolus atteignant plusieurs dizaines de MHz comme illustré sur la fig.1.20.

#### 1.2.3 Espèces absorbantes intracavité

Une espèce gazeuse absorbant dans la gamme spectrale considérée affecte en premier lieu les pertes des résonances comprises dans le profil d'absorption mais aussi leur position du fait des effets dispersifs associés à l'absorption. A l'inverse des effets dispersifs non résonants qui s'établissent sur des gammes spectrales importantes, ceux liés à l'absorption résonante sont confinés dans le profil de la transition et affectent donc un nombre réduit de résonances de cavité.

Le terme de propagation sur un tour de cavité peut toujours s'écrire de la manière suivante :

$$\Phi(\nu) = 2\pi \frac{\nu}{c/n(\nu)} L \tag{1.46}$$

où  $n(\nu)$  est l'indice de réfraction du milieu de propagation dispersif lui-même relié à la susceptibilité complexe de ce milieu  $\chi = \chi' + i\chi''$  par la relation  $n(\nu) = \sqrt{1 + \chi(\nu)}$ . Dans le cas d'espèces gazeuses,  $\chi$  est suffisamment faible pour que l'indice puisse être



FIGURE 1.20: Différence induite sur l'ISL (a) et sur la position absolue des résonances (b) par la GDD des mêmes gaz comparé à une lame de BK7. L'effet cumulatif des écarts relativement petits d'ISL conduit à un déplacement important des résonances pour une cavité de 3m de périmètre (100 MHz).

approché par  $n = 1 + \frac{1}{2}\chi(\nu) = 1 + \frac{1}{2}\chi'(\nu) + i\frac{1}{2}\chi''(\nu)$ . La relation 1.46 devient alors :

$$\Phi(\nu) = 2\pi \frac{\nu}{c} \left( 1 + \frac{1}{2} \chi'(\nu) \right) L + i \frac{\chi''(\nu)}{2} \cdot 2\pi \frac{\nu}{c} L$$
(1.47)

 $\Phi$  n'est donc plus un terme de phase pure. Sa partie complexe va définir l'absorption linéique  $\alpha(\nu) = \chi''(\nu) \frac{2\pi\nu}{c}$  tandis que sa partie réelle supplémentaire va définir la dispersion moléculaire  $\delta n(\nu) = \chi'(\nu)/2$ . En négligeant les termes de propagation et d'absorption du premier passage entre les coupleurs d'entrée et sortie, le champ transmis par la cavité devient :

$$E_s(\nu) = E_0(\nu) \frac{t_{IC} t_{OC}}{1 - r_{rt} e^{i\frac{2\pi \cdot \nu}{c}(1 + \delta n(\nu))L} \cdot e^{-\frac{\alpha(\nu)}{2}L}}$$
(1.48)

Cette expression nous permet de dériver à nouveau quelques grandeurs caractéristiques des cavités. Mais avant toute chose, penchons-nous plus en détail sur l'absorption linéique  $\alpha(\nu)$  d'une espèce gazeuse.

#### 1.2.3.1 Profil d'absorption

Lorsque le gaz a étudié est dans des conditions thermodynamiques standard de température et de pression, où les effets collisionnels dominent, le profil des transitions atomiques ou moléculaires peut souvent être décrit par une fonction lorentzienne [32], et le coefficient d'absorption linéique s'écrit comme :

$$\alpha(\nu) = \frac{N_a S_a}{\pi} \cdot \frac{\Gamma_a/2}{(\Gamma_a/2)^2 + (\nu - \nu_a)^2}$$
(1.49)

Nous rappelons ici brièvement les paramètres définissant  $\alpha$ :

- $-\nu_a$  est la pulsation centrale de la transition en Hz,
- $-S_a$  est l'intensité de la transition corrigée par le facteur de population de Boltzmann en  $Hz.cm^2$ ,
- $-N_a$  est le nombre de molécules *a* par unité de volume en  $cm^{-3}$ ,
- $-\Gamma_a$  est la pleine largeur à mi-hauteur de la transition définie par le mélange gazeux et les coefficients d'élargissement par collision en Hz.

Sachant que les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité sont reliées par la relation de Kramers-Kroenig [32], on peut exprimer la variation d'indice induite par l'absorption moléculaire par :

$$\delta n(\nu) = -\frac{c}{2\pi\nu} \cdot \frac{\nu - \nu_a}{\Gamma_a} \cdot \alpha(\nu)$$
(1.50)

#### 1.2.3.2 Temps de ring-down

En premier lieu, la présence d'espèces absorbantes à l'intérieur de la cavité peut être tout simplement considérée comme l'ajout de pertes supplémentaires (en plus des pertes induites par les miroirs partiellement transmissifs). On peut donc s'attendre à une diminution du temps de ring-down du mode de résonance de la cavité ainsi qu'à une augmentation de sa largeur. Dans la partie précédente,  $\tau_{RD}$  s'exprimait comme suit :

$$\tau_{RD}(\nu) = \frac{1}{\alpha_{rt}(\nu)c} \tag{1.51}$$

où  $\alpha_{rt}$  est l'ensemble des pertes linéiques de la cavité qui peuvent être maintenant décomposées comme la somme des pertes dues aux miroirs  $\alpha_m$  et de celles dues à l'absorption  $\alpha(\nu)$ . Le temps de ring-down en présence d'absorption  $\tau_{RD}^{\alpha}$  se réécrit, en faisant apparaître le temps de ring-down sans absorption  $\tau_{RD}^{0}$ :

$$\tau_{RD}^{\alpha}(\nu) = \frac{1}{c\alpha_m + c\alpha(\nu)} = \frac{1}{(\tau_{RD}^0)^{-1} + c\alpha(\nu)}$$
(1.52)

ce qui nous permet d'exprimer l'absorption moléculaire :

$$\alpha(\nu) = \frac{1}{c} \left( \frac{1}{\tau_{RD}^{\alpha}(\nu)} - \frac{1}{\tau_{RD}^{0}} \right)$$
(1.53)

Cette relation constitue la base de la Cavity Ring-Down Spectroscopy (CRDS) qui sera



FIGURE 1.21: La variation d'intensité en sortie de cavité en présence ou non d'espèces absorbantes dans la cavité s'accompagne automatiquement d'une variation de son temps de ring-down.

abordée plus loin.

#### 1.2.3.3 Fonction de transfert

La modification du temps de ring down se traduit aussi comme une modification de la fonction de transfert au voisinage de la raie d'absorption. L'expression du champ transmis par la cavité en présence d'absorption a déjà été dérivée Eq. 1.48. En suivant excatement le même raisonnement que dans la première partie, celle-ci nous donne la fonction de transfert en intensité (les effets d'absorption sont négligés au numérateur) :

$$H_s(\nu) = \frac{T_{IC}T_{OC}}{(1 - r_{rt}e^{-\frac{\alpha(\nu)}{2}L})^2} \cdot \frac{1}{1 + 4\frac{F_\alpha(\nu)^2}{\pi^2} \cdot \sin^2\left(\frac{1}{2}\frac{2\pi\nu}{c}\left[1 + \delta n(\nu)\right]L\right)}$$
(1.54)

Les résonances de cavité (F=30) sont représentées fig.1.22, affectées ou non par une raie d'absorption (représentée dans l'encart haut), calculées à l'aide de l'Eq. 1.54. Le dessin de la forme lorentzienne de la raie dans les maxima des résonances successives constitue l'effet le plus marqué de la signature de la transition. Toutefois, il est aussi visible que les résonances vont s'élargir selon leur position dans le profil de raie et que leur position va être affectée par la variation locale d'indice  $\delta n$ . Pour plus de clarté sur la fig.1.22, les effets d'élargissement sont amplifiés d'un facteur 5 tandis que ceux de position dus à la dispersion moléculaire le sont d'un facteur 100.

Détaillons à présent les différentes déformations des résonances comprises dans le profil de la raie. Dans tous les développements qui vont venir, nous considérons les résonances de la cavité comme infiniment fines devant la largeur de la raie d'absorption. De cette



FIGURE 1.22: Fonction de transfert d'une cavité de 3m et de finesse 30 en présence d'absorption (trait plein rouge) et sans (trait pointillé noir) - pour plus de s, l'effet d'élargissement est amplifié d'un facteur 5 tandis que l'effet de la dispersion moléculaire est amplifié d'un facteur 100.

manière, l'absorption affectant le mode de résonance est constante sur toute la résonance de la cavité.

#### Diminution de l'intensité des résonances

L'effet le plus immédiat de l'absorption intracavité va être de moduler l'intensité des résonances comprises dans son profil. En effet, le terme déterminant cette intensité,  $H_{max}$ , dépend maintenant lui aussi de la pulsation et, dans le cas de petites absorptions  $(e^{-\frac{\alpha(\nu)}{2}L} \simeq 1 - \frac{\alpha(\nu)}{2}L)$ :

$$H_{max}^{\alpha}(\nu) = \frac{T_{IC}T_{OC}}{(1-r_{rt})^2} \left(1 - \frac{r_{rt}}{1-r_{rt}}\alpha(\nu)L\right)$$
$$\simeq H_{max}^0 \left(1 - \frac{F_0}{\pi}\alpha(\nu)L\right)$$
(1.55)

Une mesure de l'absorption est donc possible moyennant la quantification de  $H^{\alpha}_{max}(\nu)$ et de  $H^{0}_{max}$ , la finesse de la cavité sans absorption  $F_{0}$  et sa longueur L étant déterminées par ailleurs : c'est le principe de base de la Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy (CEAS). A ce stade, il est possible de faire un rapprochement avec la loi de Beer-Lambert dans sa forme linéaire (absorption faible) avec l'expression 1.55. On s'aperçoit alors que l'effet de résonance permet d'augmenter artificiellement la longueur d'interaction L d'un facteur  $F/\pi$ . Notons que certaines approches de CEAS intègrent la lumière transmise sur toute la plage spectrale concernée par une résonance. Dans ce cas, l'intégration de l'Eq.1.54 donne une longueur d'interaction augmentée d'un facteur  $F/2\pi$ .

#### Elargissement des résonances

La présence d'absorption à l'intérieur de la cavité étant en tout point comparable à un ajout de pertes, elle va naturellement se traduire par une diminution de la finesse et donc par un élargissement des modes de résonance compris dans son profil. La finesse en présence d'absorption  $F_{\alpha}(\nu)$  est introduite dans l'Eq.1.54 et s'écrit :

$$F_{\alpha}(\nu) = \pi \frac{\sqrt{r_{rt} e^{-\frac{\alpha(\nu)}{2}L}}}{1 - r_{rt} e^{-\frac{\alpha(\nu)}{2}L}}$$
(1.56)

qui peut être, dans le cas des faibles absorptions, réécrite sous la forme linéaire  $F_{\alpha}(\nu) = F_0(1 + \delta F^{\alpha}(\nu)/F_0)$  avec  $F_0$  la finesse de la cavité vide et  $\delta F^{\alpha}$  la variation de finesse liée aux pertes induites par l'absorption. On peut réécrire la finesse :

$$F_{\alpha}(\nu) = F_0 \left( 1 - \frac{F_0}{2\pi} \alpha(\nu) L \right) \Rightarrow \delta F^{\alpha}(\nu) = -\frac{F_0^2}{2\pi} \alpha(\nu) L$$
(1.57)

Cette variation de la finesse est le pendant du raccourcissement du temps de ring-down évoqué précédemment. De fait, une relation identique à celle d'une cavité vide est obtenue, qui illustre l'élargissement des modes de résonance d'une quantité  $\delta\Gamma^{\alpha}(\nu)$ :

$$\tau_{RD}^{\alpha}(\nu) = \frac{L}{c} \frac{F_0 + dF^{\alpha}(\nu)}{2\pi} = \frac{1}{2\pi \left(\Gamma_c + \delta\Gamma^{\alpha}(\nu)\right)}$$
(1.58)

L'Eq.1.53 donne directement accès à la relation entre cet élargissement de la pleine largeur à mi-hauteur des modes de résonance et le profil de la raie d'absorption :

$$\delta\Gamma^{\alpha}(\nu) = \frac{1}{2\pi} \cdot \alpha(\omega) \tag{1.59}$$

#### Altération de l'ISL

Le déplacement des résonances se quantifie à partir de la partie propagative de la fonction de transfert. La condition de bouclage est maintenant satisfaite par des féquences  $\nu'_m$ :

$$\Phi_{\alpha}(\nu'_{m}) = 2\pi \cdot \nu'_{n} \frac{L}{c} (1 + \delta n(\nu'_{m})) = 2m\pi$$
(1.60)

Le déplacement des résonances restant très petit devant l'ISL de la cavité ( $ISL_0 = \frac{c}{L}$  sans absorption),  $\delta n$  varie lentement au regard du déplacement des modes qu'il induit[55]. La condition de bouclage peut alors se réécrire :

$$\frac{\nu'_m}{ISL_0}(1 + \delta n(\nu_m)) = m$$
(1.61)

Le nouveau centre de la résonance d'ordre m est donné par :

$$\nu'_m = \frac{\nu_m}{1 + \delta n(\nu_m)} \simeq \nu_m \left(1 - \delta n(\nu_m)\right) \tag{1.62}$$

Il est donc déplacé de la grandeur  $\delta \nu_m^{\alpha} = -\nu_m \cdot \delta n(\nu_n)$  par rapport à sa position sans aborption.

Par ailleurs, la quantification des écarts visibles fig.1.22 conduit à exprimer l'ISL en présence d'absorption comme :

$$ISL_{\alpha}(\nu_m) = (m+1)ISL_0(1+\delta n(\nu_{m+1})) - mISL_0(1+\delta n(\nu_m))$$
(1.63)

La différence des ISL avec et sans absorption est donc donnée par :

$$\delta ISL(\nu_m) = ISL_{\alpha}(\nu_m) - ISL_0 = \nu_m \cdot \delta n(\nu_m) - \nu_{m+1} \cdot \delta n(\nu_{m+1})$$
(1.64)

La variation d'indice induite par une raie d'absorption de  $10^{-5} cm^{-1}$  est tracée fig.1.23(b).



FIGURE 1.23: Représentation quantitative de la variation d'indice  $\delta n$  (b), de l'ISL (c) trait noir pointillé- et du déplacement des centres des résonances (c) -trait rouge pleininduits par une raie d'absorption (a) de largeur  $\Gamma_a = 10 \cdot ISL_0 = 1 \, GHz$ .

Elle atteint son maximum (en valeur absolue) à la demi-largeur de la raie, ce changement restant très faible ( $\delta n_{max} = 3.10^{-11}$ ). Cet écart d'indice donne une variation d'ISL (1.23(c) - trait pointillé) plus rapide dans le profil d'absorption, l'ISL étant plus grand que  $\frac{c}{L}$  au centre de la raie et devenant plus petit pendant une courte gamme spectrale juste après la demi-largeur. Cette variation d'ISL conduit à un déplacement du centre des résonances de plusieurs dizaines de kHz (1.23(c) - trait plein). Le calcul est fait pour un ISL à vide de 100 *MHz*.

#### Fonction de transfert lorentzienne

Le mode de résonance n de la cavité va donc être affecté par la présence d'une espèce absorbant dans sa plage spectrale de trois manières : son intensité va diminuer, sa largeur à mi-hauteur augmenter en même temps que son centre va être translaté. La fonction de transfert d'une telle résonance peut être réécrite en linéarisant le *sinus* présent au dénominateur comme précédemment. De cette manière, nous faisons apparaître la nouvelle fonction réponse de la cavité :

$$H_{s}(\nu) = H_{max}^{0} \left( 1 - \frac{F_{0}}{\pi} \alpha(\nu) L \right) \cdot \frac{1}{1 + \left( \frac{\nu - (\nu_{m} + \delta\nu_{m}^{\alpha})}{1/2(\Gamma_{c} + \delta\Gamma^{\alpha}(\nu_{m}))} \right)^{2}}$$
(1.65)

où  $\delta\Gamma^{\alpha}(\nu_m)$  et  $\delta\nu_m^{\alpha}$  sont les variations de largeur et de position de la résonance définies plus hauts.

Cette fonction de transfert (Eq.1.65) sera celle considérée par la suite lorque nous nous intéresserons à la signature d'une raie d'aborption dans le cadre de l'injection de cette cavité par un peigne de fréquences.

# 1.3 Couplage peigne de fréquences-cavité et état de l'art

L'objet de cette partie est de faire l'état de l'art des approches utilisant des peignes de fréquences en cavité pour faire de la spectroscopie. Dans un premier temps, le passage en résonance d'une cavité injectée avec un peigne de fréquences est décrit de manière à appréhender le plus simplement possible, dans un second temps, les différentes méthodes de couplage et d'analyse utilisées.

#### 1.3.1 Passage en résonance de la cavité

#### 1.3.1.1 Point magique

Dans l'espace des fréquences, il apparaît de manière évidente que le spectre laser et la fonction de transfert en fréquence de la cavité ont des structures similaires. La manière la plus intuitive d'accorder le laser et la cavité est alors de les faire correspondre au mieux. Si la cavité est supposée exempte de toute dispersion, il est même possible de les accorder parfaitement en ajustant le taux de répétition laser à l'ISL de la cavité (ou l'inverse) et la fréquence d'offset (du laser, la seule accordable) à l'offset induit par le déphasage  $\phi_0$  de la cavité :

$$PM \begin{cases} L_0 = c/f_{rep} \\ f_{CEO} = \phi_0 \times f_{rep} \end{cases}$$
(1.66)

De cette manière, la totalité des fréquences du peigne laser sont simultanément résonantes dans la cavité (fig.1.24 (a)), ce qui conduit à l'intensité transmise la plus grande possible. Cet accord parfait avec une cavité idéale sera par la suite appelé point ma-



FIGURE 1.24: Représentation de l'accord parfait entre un peigne de fréquence et une cavité idéale sans dispersion (a). La même cavité avec dispersion voit son ISL devenir spectralement dépendant (b), ce qui finalement limite le spectre transmis (c). Dans tous les cas, les ISL et les fréquences d'offset sont ajustés pour que les peignes correspondent au centre du spectre laser.

gique (PM). Dans le cas d'une cavité réelle affectée d'une disperison d'ordre 2 ou plus, les résonances de cavité ne sont plus rigoureusement équidistantes dans l'espace des fréquences (fig.1.24(b)) et la correspondance parfaite entre peignes n'est plus possible sur l'intégralité de la plage spectrale couverte par le laser. Le spectre couplé au PM est alors réduit en largeur : sur la fig.1.24(c), le spectre effectivement résonant dans la cavité en rouge est comparé au peigne laser incident en bleu. Par ailleurs, toutes les fréquences laser ne sont plus en résonance parfaite dans la cavité au PM, c'est-à-dire qu'elles ne sont pas toutes centrées dans la résonance leur correspondant. Dans ce cas, le point magique est définit comme étant l'accord permettant l'intensité transmise maximale, ce qui correspond à faire l'accord des peignes localement, au centre du spectre laser.

L'intensité transmise à ce point magique est maximale et est, dans l'absolu, égale au module de la somme de tous les champs n composant le spectre femtoseconde. Toutefois, si le photodétecteur utilisé en transmission de cavité a une bande passante petite comparée au taux de répétition du laser, il est aveugle aux battements existants entre les différents modes. Le signal observé se réduit alors en pratique à la somme des intensités des fréquences transmises :

$$I_{out} = \sum_{n} |E_s(f_n)|^2$$
 (1.67)

#### 1.3.1.2 Balayage de la longueur de cavité

Considérons à présent un petit changement  $\delta L$  de la longueur totale d'une cavité sans dispersion. Même si la différence induite sur l'ISL de la cavité n'est pas perceptible sur la position des premières résonances ( $\frac{\delta ISL_{cav}}{ISL_{cav}} = \frac{\delta L}{L_0} \simeq 1/10^{-8}$  pour un déplacement de quelques nm dans une cavité de longueur supérieure à 1m), l'effet d'accumulation sur tout le peige de fréquences jusqu'aux modes compris dans le spectre laser ( $\nu_{las}/f_{rep} \simeq$  $10^6$ ) rend cet écart significatif et conduit au premier ordre à une translation pure des résonances comprises dans le spectre. Lors de ce changement de longueur, toutes les dents du peigne vont décrire simultanément leurs modes de résonance lorentziens respectifs. La largeur à mi-hauteur du pic de transmission lors d'un balayage linéaire de la longueur de cavité autour du point magique sera donc une image fidèle en temps ou en distance de celle des modes de résonance dans le domaine des fréquences  $\Gamma_c$ . En revanche, dans le cas d'une cavité dispersive, toutes les fréquences laser ne rentreront pas en résonance pour la même longueur de cavité et le pic d'intensité en transmission lors du balayage sera plus large et moins intense que celui obtenu pour une cavité sans dispersion, la position de leur maximum restant inchangée.

A l'inverse, lorsque la longueur de la cavité est balayée sur des distances plus grandes, il devient nécessaire de considérer l'effet du changement de son ISL au cours du balayage (cf fig.1.25). Certaines longueurs vont conduire à faire correspondre les résonances  $n \pm 1$  à la fréquence n, les résonances  $n \pm 2$  à la fréquence  $n, \dots n \pm k$ ... Pour ces longueurs, la variation d'ISL est suffisamment importante pour ne plus permettre le passage en résonance simultané de l'ensemble des dents du spectre mais un passage décalé dans le temps au cours du balayage. Le pic de transmission est alors réduit en intensité et



FIGURE 1.25: Peigne de fréquences las er (centre - trait gras noir) et peignes de résonances pour plusieurs passages en résonance de la fréquence n (haut - trait rouge - lors que la cavité est rétrécie / bas - trait bleu - lors qu'elle est allongée).

élargi. Pour celui qui correspond à l'interférence constructive à la longueur d'onde  $\lambda_{las}$ , la distance parcourue entre deux pics est donnée par  $\lambda_{las}$ .



FIGURE 1.26: Intensité collectée par une photodio de lente derrière le coupleur de sortie d'une cavité injectée avec un peigne de fréquences lors que sa longueur est balayée autour du point magique. Calcul réalisé pour une cavité de finesse 100 et un peigne la ser de 50 nm centré sur 800 nm avec un taux de répétition de 10 GHz.

Sur la fig.1.26 sont représentés les premiers pics de transmission calculés de part et d'autre du PM. Pour correspondre au discours, l'échelle de distance est rapportée à la longueur d'onde  $\lambda_{las}$ . Avec cette échelle, la largeur à mi-hauteur d'une résonance de cavité est donnée par  $\lambda_{las}/F$  et correspond ici à la largeur du PM. Les deux situations

décrites sur la fig.1.25 étant parfaitement identiques, les deux pics de transmission adjacents au PM sont de même intensité. Il n'en est pas de même si la correspondance entre fréquences d'offset n'est pas réalisée.

#### 1.3.1.3 Influence de la fréquence d'offset

Un décalage dû à la fréquence d'offset ne permet plus l'accord parfait des deux peignes. Néanmoins, ici encore, on pourra toujours modifier la longueur de cavité de manière à faire correspondre la résonance d'ordre n avec la fréquence n. De la même façon que précédemment, la variation d'ISL conduit à un élargissement du pic de transmission et donc à une diminution de son intensité. Cette nouvelle longueur,  $L_{CEO}$ , s'obtient en écrivant la correspondance entre fréquence et résonance à l'ordre n qui conduit à :

$$L_{CEO} = \frac{c}{f_{rep} + (f_{CEO} - f_0)/n} \simeq L_0 \left( 1 - \frac{f_{CEO} - f_0}{f_{rep} \times n} \right)$$
(1.68)

La dépendance de cette distance à l'ordre de la fréquence n fait clairement apparaître l'étalement, d'autant plus marqué que la différence entre fréquences d'offset est importante.



FIGURE 1.27: Peigne de fréquences las er (centre - trait gras noir) et peigne de résonances lors que l'ISL de la cavité est accordé au taux de répétition las er lors que les fréquences d'offset diffèrent. La modification d'ISL à faire pour atte indre le passage en résonance de la fréquence n n'est plus la même selon le signe de sa variation.

Le désaccord d'offset conduit par ailleurs à rompre la symétrie précédemment rencontrée sur les pics de transmission adjacents du fait d'une modification d'ISL plus prononcée d'un côté ou de l'autre en fonction du signe du désaccord (cf fig.1.27).

L'intensité des pics de transmission ainsi que leur largeur évolueront de manière opposée, comme illustré fig.1.28. La symétrie des deux résonances adjacentes au PM constitue donc l'observable la plus simple à regarder lorsqu'on souhaite faire l'accord des fréquences d'offset.



FIGURE 1.28: Comparaison entre les passages par le point magique lorsque les fréquences d'offset sont accordées (courbe noir pointillée) et lorsque  $\phi_0 - \phi_{CEO} = \pi/2$ . Pour des raisons de visibilité des effets d'élargissement des pics de transmission, la modification de la longueur de la cavité au point magique entre les deux cas a été soustraite.

#### 1.3.1.4 Transmission de cavité loin du point magique

Lorsque la cavité est balayée sur une plage de longueur beaucoup plus étendue, on peut enregistrer des transmissions semblables à celle présentée fig.1.29. Celle-ci a été obtenue avec une cavité de finesse 600 injectée par un peigne de fréquences centré autour de 800 nm. La longueur de la cavité y est scannée sur  $50 \mu m$  centrée autour du point magique. L'échelle de tracé étant logarithmique, on s'aperçoit facilement que plus on s'éloigne du point magique plus les pics de résonance sont faibles et élargis. Dans le même temps, on remarque qu'ici, à partir de la dixième résonance environ, l'intensité entre deux résonances successives ne repasse plus par zéro, devenant même quasiment constante (et non nulle) à plus de  $20 \mu m$  du point magique.

Lorsque l'on s'éloigne du point magique, un phénomène de battement se crée entre les deux peignes de fréquences, l'accumulation du petit désaccord d'ISL sur un grand nombre de modes créant des accords locaux régulièrement espacés en fréquences et se resserrant lorsque le désaccord entre les deux peignes grandit. Tant que ces accords périodiques sont suffisamment éloignés les uns des autres pour qu'il n'y en ait qu'un battement à la fois compris dans l'enveloppe du spectre, le signal transmis par la cavité retombe à zéro lorsque ce battement sort du spectre. Lorsqu'au contraire cette période spectrale devient inférieure à la largeur du spectre, l'intensité transmise ne repasse plus par zéro et il y aura toujours au moins une partie du spectre laser qui sera résonante dans la cavité jusqu'à ce qu'il y en ait assez pour que l'intensité transmise devienne insensible à leur mouvement. Ces situations seront reprises en détail dans le chapitre suivant.



FIGURE 1.29: Intensité mesurée expérimentalement par une photodiode lente derrière le coupleur de sortie d'une cavité (F=300) injectée avec un peigne de fréquence. Un offset de  $10 \, mV$  a été ajouté afin de pouvoir tracer cette intensité en échelle logarithmique, ce qui met en valeur - figure issue du rapport de stage M1 de Thomas Quinci, 2010.

#### 1.3.2 Etat de l'art

Les différentes approches que nous allons à présent décrire exploitent globalement l'accord entre peigne de fréquences et peigne de résonances de trois manières différentes. La première consiste à verrouiller la position d'un peigne par rapport à l'autre de manière à rester fixé au sommet du point magique, le signal transmis étant alors analysé avec des méthodes interférométriques. La deuxième approche consiste à balayer la longueur de cavité autour du point magique de manière à faire entrer en résonance toutes les fréquences laser le plus rapidement possible. Dans ce cas le signal transmis est dispersé et l'intensité du spectre intégrée sur une barrette ou une caméra CCD (Charge Coupled Device). Enfin, une troisième approche exploite l'effet de filtrage des fréquences laser par la cavité loin du point magique dans ce que l'on appelle le couplage Vernier.

Afin d'être en mesure de comparer les différentes approches existantes, il est courant d'utiliser la grandeur appelée figure de mérite définie comme suit :

$$M = \alpha_{min} \sqrt{t_{acq} \frac{\delta \nu}{\Delta \nu}} \tag{1.69}$$

où  $\alpha_{min}$  est l'absorption équivalente au bruit, pondérée par la racine du temps d'acquisition d'un élément spectral, lui-même donné par le temps d'acquisition total  $t_{acq}$ divisé par le nombre d'éléments spectraux compris dans un spectre couvrant  $\Delta \nu$  avec la résolution  $\delta \nu$ .

#### 1.3.2.1 Coulage au point magique

L'idée de ce couplage en coïncidence parfaite des deux peignes est de se placer au sommet du point magique avec les fréquences d'offset accordées et d'y rester le temps suffisant pour faire la mesure. Cette approche, utilisée dans [56] et [57], nécessite des techniques élaborées d'asservissement analogiques [58], [59] pour contrôler en temps réel à la fois la longueur de la cavité optique (ou celle du laser) et la fréquence d'offset du laser de manière à satisfaire le système Eq.1.66 à tout instant. Tout écart à cet accord va se traduire par un changement de la position relative du peigne laser dans le peigne de résonances et ainsi modifier l'intensité de transmission dans une proportion qui sera fonction de cet écart. Dans l'exemple donné fig.1.29, une cavité de finesse 600 injectée avec un laser centré autour de 2 nm environ : afin d'avoir une intensité transmise au sommet du point magique constante avec une précision de  $\frac{\Delta I}{L} = 1/1000$ , il est nécessaire de contrôler la longueur de la cavité à une échelle inférieure à  $\delta L \simeq \sqrt{\frac{I}{\Delta I}} \times \frac{\lambda_{las}}{2.F} = 21 \, pm$ .

Dans le cas sans dispersion, et en supposant ce verrouillage réalisé, la cavité transmet l'intégralité des fréquences laser et l'intensité transmise à analyser en présence d'espèces absorbantes à l'intérieur de la cavité est de la forme :

$$I_{out} = \sum_{n} I_0(f_n) \cdot H^{\alpha}_{max}(f_n)$$
(1.70)

où  $f_n$  prend les valeurs des fréquences des dents laser successives parfaitement résonantes dans la cavité, pondérées par leur intensité initiale. L'intensité mesurée en sortie est donc la somme de toutes ces composantes spectrales mélangées, ce qui permet dans l'absolu de faire l'acquisition d'un spectre large très rapidement. De plus, le fait de rester figé au sommet du point magique permet de bénéficier du facteur de cavité à résonance permettant d'accroître la longueur d'interaction du facteur  $F/\pi$ , le plus grand possible. Cependant, encore faut-il pouvoir extraire une information spectrale de ce signal. Pour ce faire, il est nécessaire de recourir à des stratégies de détection interférométriques qui vont reposer sur l'analyse du faisceau transmis soit avec un Spectromètre à Transformée de Fourier (STF) soit en analysant le battement hétérodyne du peigne transmis avec un second peigne de fréquence.

#### Détection par battement de peignes hétérodynes

Cette stratégie, illustrée fig. 1.30, consiste à faire battre le peigne de fréquences obtenu en sortie de la cavité avec un second peigne de fréquence n'étant pas passé dans la cavité et dont le taux de répétition est légèrement différent de celui du premier. Ainsi, en collectant le signal issu de leur superposition avec un détecteur ayant une bande passante inférieure aux taux de répétition des deux peignes mais suffisamment grande



FIGURE 1.30: Dispositif expérimental de détection par battements de peignes hétérodynes.

pour être sensible à la pulsation de battement entre fréquences les plus proches des deux peignes, un interférogramme contenant toute l'information spectrale est enregistré. En connaissant le désaccord entre les taux de répétition des deux peignes, il est possible de remonter à une calibration relative du spectre ainsi mesuré, la stabilisation en fréquence d'un des deux peignes permettant une calibration absolue du spectre. De plus, cette approche est particulièrement favorable lorsque l'intensité du peigne transmis par la cavité est faible : l'intensité du signal d'interférence étant donnée par  $\sqrt{I_n I'_n}$ , on voit que le second peigne peut être utilisé pour amplifier le faible signal transmis par la cavité. Par cette approche multi-hétérodyne, les auteurs [57] arrivent à détecter dans une cavité de finesse > 1200 des absorptions minimales de  $3 \times 10^{-8} cm^{-1}$  avec des temps d'acquisition particulièrement courts de  $18 \,\mu s$ . Le spectre mesuré couvre  $220 \, cm^{-1}$  avec une résolution de  $4.5 \, GHz$  (1500 éléments spectraux). La détection par battements de peignes hétérodynes conduit donc à une figure de mérite  $M_{het} = 1 \times 10^{-10} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$ . Cette approche présente le temps d'acquisition le plus court existant mais elle est aussi très sensible à toutes les fluctuations résiduelles du verrouillage du peigne sur la cavité conduisant à un bruit de conversion fréquence-amplitude mais également à l'instabilité entre les deux peignes.

#### Spectromètre à transformée de Fourier

Une seconde solution proposée en 2011 par Foltynowicz et al. [56] consiste à adapter le

schéma déjà ancien de la spectroscopie à transformée de Fourier [60] à la détection de peignes de fréquences. Le champ transmis par la cavité est envoyé vers un interféromètre de Michelson dans un arrangement particulier permettant un balayage rapide de la différence de marche de l'interféromètre. L'interférogramme est mesuré avec un détecteur dit auto-équilibré qui, moyennant la détection de deux interférogrammes en opposition de phase sur deux surfaces photosensibles identiques, permet la soustraction des bruits de conversion fréquence-amplitude de l'asservissement. En parallèle au traitement de la



FIGURE 1.31: Dispositif expérimental de la détection par spectromètre FTS reproduit à partir de la référence [22]. Le faisceau sortant de la cavité est envoyé dans un interféromètre de Michelson.

sortie de cavité, un faisceau de référence à 780 nm produit par une diode à cavité étendue (ECDL) stabilisée en fréquence est lui aussi envoyé dans le Michelson et est mesuré seul sur un autre détecteur (non représenté sur la fig. 1.31). Ce faisceau de référence permet la calibration absolue du spectre obtenu.

Cette approche permet aux auteurs [22], [56], de faire l'acquisition de spectres couvrant  $130 \, cm^{-1}$  avec une résolution de  $380 \, MHz$ , la sensibilité la plus petite possible obtenue étant égale à  $1.4 \times 10^{-9} \, cm^{-1}$  pour des spectres mesurés en 6 s. Ces performances donnent la figure de mérite  $M_{STF} = 3.4 \times 10^{-11} \, cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ , obtenue avec une finesse de 8000. Beaucoup plus lente que l'approche précédente puisqu'il faut balayer un des bras de l'interféromètre pour faire l'acquisition de l'interférogramme, cette méthode de détection permet d'atteindre la limite du bruit de photon.

Dans les deux cas, la GDD résiduelle de la cavité, induite par les miroirs utilisés et par l'échantillon gazeux, rend impossible le couplage de l'intégralité du peigne de fréquences dans la cavité. La plage spectrale accessible est alors limitée avec ce type de méthode à moins de  $250 \, cm^{-1}$  et les raies d'absorption mesurées sur les extrémités du spectre peuvent même être considérablement déformées, les fréquences laser n'étant plus parfaitement au centre des résonances [22].

#### 1.3.2.2 Balayage autour du point magique

Pour tenter de dépasser cette limitation imposée par la GDD, il est possible d'opter pour une stratégie où la longueur de la cavité est balayée périodiquement autour de  $L_0$  afin que tous les modes du peigne laser passent en résonance dans la cavité. Moins exigeante en terme d'asservissement de position, cette stratégie nécessite tout de même une surveillance, éventuellement numérique, de la position du PM au cours du balayage de manière à ce que les différentes dérives thermiques ou mécaniques ne le fassent pas sortir de la zone de scan. L'analyse spectrale de l'intensité transmise en CEAS nécessite alors l'utilisation de spectromètres, parfois élaborés, combinés à des barrettes ou des caméras CCD permettant d'intégrer le spectre diffracté sur un balayage. Par ailleurs, cette stratégie de balayage autour du passage en résonance permet aussi de faire des mesures en CRDS.

#### **CEAS** : spectromètre haute résolution



FIGURE 1.32: Dispositif expérimental de l'approche combinant un réseau à une barrette CCD [23].

La toute première approche de CEAS utilisant le peigne de fréquences comme source d'excitation directe de l'échantillon gazeux [19] consistait simplement à analyser la lumière transmise au cours d'un scan autour du point magique dans un spectromètre à fort pouvoir résolvant. Cette méthode avait alors permis d'atteindre une figure de mérite  $M_{Spectro2002} = 1 \times 10^{-8} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$  en mesurant un spectre couvrant  $55 cm^{-1}$ avec une résolution de  $0.2 cm^{-1}$ , en 40 ms et avec une sensibilité de  $8 \times 10^{-7} cm^{-1}$ (F = 420). Cette figure de mérite a été considérablement améliorée avec les travaux plus récents du même groupe, basés sur la même approche [23] mais avec une cavité de plus haute finesse (F = 32000). L'analyse spectrale du faisceau transmis se fait toujours en dispersant spatialement le spectre avec un réseau à fort pouvoir résolvant permettant d'atteindre une résolution de 10 GHz. Toutefois, l'utilisation d'une CCD pour intégrer la lumière ainsi diffractée restreint le nombre d'éléments spectraux de la mesure au nombre de pixels de la barrette (2048), ce qui limite la gamme spectrale accessible avec la résolution évoquée à  $65 cm^{-1}$ . Le temps d'acquisition d'un spectre de 12 ms et la sensibilité de la mesure  $\alpha_{min} = 3 \times 10^{-9} cm^{-1}$  donnent alors une figure de mérite de  $M_{Res} = 1.5 \times 10^{-11} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ .

La simplicité du procédé le rend très robuste, tout en réussissant à conserver un niveau de sensibilité au bruit de photon, permettant ainsi des campagnes de mesure in situ comme celle réalisée au pôle Sud [26].

#### **CEAS** : Virtual Imaging Phase Array (VIPA)

Cette approche se distingue de la précédente par sa stratégie de dispersion en deux temps utilisée après la cavité. Le faisceau transmis traverse en premier lieu un VIPA, un étalon à faces parallèles, inclinées par rapport au faisceau incident, dispersant verticalement les modes laser adjacents avec une périodicité déterminée par son ISL. Ainsi certains modes se retrouvent superposés mais ont des fréquences suffisamment différentes pour être résolues par un réseau standard les dispersant dans le plan horizontal. Ce spectre à deux dimensions est ensuite intégré sur une caméra CCD. Une figure de mérite de



FIGURE 1.33: Dispositif expérimental de la détection par VIPA reproduit à partir de la référence [29]. Le faisceau sortant de la cavité est dispersé dans les deux directions, verticalement par le VIPA et horizontalement par un réseau.

 $M_{VIPA} = 2,5.10^{-10} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$ a été démontrée [28] en faisant l'acquisition d'un spectre

couvrant  $150 \, cm^{-1}$  avec une résolution de  $800 \, MHz$  et une sensibilité de  $8 \times 10^{-8} \, cm^{-1}$  (F = 3000) [61]. Avec un oscillateur femtoseconde, cette stratégie permet d'atteindre la résolution ultime du mode par mode [28], [62]. Par contre, le nombre d'éléments spectraux par spectres reste fixé par les dimensions de la caméra utilisée ( $256 \times 320$  pixels).

#### CRDS

Le passage périodique par le point magique permet aussi de faire des mesures CRDS ([20],[63]) sur un grand nombre de fréquences laser en même temps, moyennant la coupure rapide du faisceau incident sur la cavité à l'entrée en résonance au PM. Les temps de déclin pour les différents éléments spectraux sont mesurés avec un spectromètre de résolution égale à  $25 \, GHz$  et une caméra CCD permettant de couvrir une gamme spectrale de  $80 \, cm^{-1}$  sur son axe horizontal. Un miroir de renvoi vers la caméra est monté sur un axe de rotation de manière à distribuer l'extinction temporelle du faisceau le long de l'axe vertical de la caméra. La sensibilité de la mesure est égale à  $2 \times 10^{-8} \, cm^{-1}$  pour un temps d'acquisition de 1s, ce qui donne une figure de mérite égale à  $M_{CRDS} = 2.10^{-9} \, cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ .

#### 1.3.2.3 Couplage Vernier

Le dernier aspect exploré du couplage peigne de fréquences-cavité est le couplage loin du point magique évoqué plus tôt. Cette approche, appelée couplage Vernier [21], consiste à induire de manière volontaire un désaccord entre le peigne de fréquences et le peigne de résonances. Dans le cas du Vernier exploité en [21], le désaccord est tellement grand devant la largeur des résonances de la cavité  $(F = 3000, f_{rep} = 1GHz)$  que seule une fréquence laser sur 69 est en résonance dans la cavité, ses plus proches voisines étant directement hors de leurs résonances respectives. L'écart entre deux fréquences laser transmises successives étant suffisant pour être résolu par un réseau de 2100 l/mm, celles-ci peuvent être séparées spatialement et envoyées sur une caméra CCD. Le spectre est balayé sur un ISL de la cavité en changeant la longueur de la cavité et le passage en résonance des fréquences laser successives est enregistré en synchronisant la rotation du miroir de renvoi vers la CCD avec le changement de longueur de manière à ce que deux résonances successives ne se recouvrent pas. De cette manière, tout le peigne de fréquences entre en résonance petit à petit et l'enregistrement de l'intensité transmise dans chaque passage en résonance permet de remonter à la fonction de transfert de la cavité  $H^{\alpha}(\omega)$  affectée par l'absorption intracavité.  $H^{\alpha}(\omega)$  est alors décrite aux fréquences du peigne de fréquence laser donc précisément calibrée en fréquence. L'ajustement de ces fonctions d'Airy permet de remonter à la fois aux coefficients d'absorption des raies mesurées mais aussi à la dispersion induite par ces mêmes raies d'absorption.

Le spectre mesuré en [21] s'étend sur 4 THz (limité par les dimensions de la caméra CCD) avec une résolution de 1 GHz. Avec un temps d'acquisiton de 10 ms pour un spectre et une sensibilité égale à  $5.10^{-6} cm^{-1}$ , la figure de mérite devient  $M_{Vernier07} = 8.10^{-9} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ . Cette valeur, bien inférieure à toutes celles rencontrées jusqu'à présent, est dûe à des instabilités mécaniques du système qui se traduisent par des variations du temps d'intégration de chaque mode.



FIGURE 1.34: Dispositif expérimental reproduit depuis [21]. Le montage expérimental permet d'isoler tous les modes laser à mesure qu'ils passent en résonance (a). Le désaccord entre les ISL du laser et de la cavité est choisi de manière à ce qu'un seul mode soit transmis dans chaque battement (b). En (c) est représentée une image de la surface de la CCD. Le trajet à suivre pour reconstituer le spectre est indiqué en noir.

# Chapitre 2

# **Couplage Vernier : formalisme**

Une échelle Vernier est couramment utilisée sur les pieds à coulisse pour accroître la résolution de la mesure de distance faite avec cet instrument à 0.1 mm, plus fine que celle de l'oeil. Cette précision de mesure est obtenue en gravant, sur la partie du pied coulissant, une seconde règle avec une graduation de 0.9 mm faisant face à la graduation habituelle des instruments de mesure de 1 mm. La mesure principale, précise au mm, est donnée par la règle classique et la décimale supplémentaire est donnée par la correspondance entre deux graduations appartenant aux deux règles distinctes. Lorsqu'il y a une correspondance exacte entre deux graduations, la mesure devient précise à la différence des deux graduations,  $100 \mu m$ . Dans le cas qui nous préoccupe, les deux règles sont dans l'espace des fréquences et le désaccord entre les deux graduations est créé en changeant la longueur de la cavité par rapprt au point magique.

L'objet de ce chapitre est d'expliciter de manière détaillée le couplage Vernier. Celui-ci repose sur l'utilisation de la cavité, désaccordée du point magique, comme d'un filtre spectral pour le peigne de fréquences laser. Il résulte de ce filtrage un nouveau peigne de fréquences pour lequel il est possible de définir un nouvel ISL et une largeur de mode. Selon que cette nouvelle largeur de mode comprend une ou plusieurs fréquences laser, deux grandes classes de filtrage se dégagent : les filtrages que nous qualifierons de haute ou basse résolution, dont les formalismes vont maintenant être introduits et dont l'application à la spectroscopie sera discutée.

## 2.1 Battement de peignes désaccordés

Le principe du couplage Vernier est l'utilisation de la cavité comme un filtre spectral sur les fréquences laser. Ce filtrage, obtenu en désaccordant l'ISL de la cavité du taux de répétition laser, est complètement assimilable à un effet de Moiré dans l'espace des fréquences [64]. Il en découle une figure dans l'espace des fréquences de battement périodique entre les peignes de fréquences laser et de résonances de cavité.

Afin de conserver le caractère le plus général possible au développement qui suit, les fréquences d'offset  $f_{CEO}$  du peigne de fréquences laser et  $f_0 = \frac{\phi_0}{2\pi} ISL_c$  du peigne de résonances de cavité ne sont pas considérées comme égales et ne s'annulent pas. Pour plus de clarté, les fréquences laser seront référencées par les indices n telles que  $f_n = n \cdot f_{rep} + f_{CEO}$  tandis que les centres des modes de résonances de la cavité seront référencées par les indices m tels que  $f_m = m \cdot ISL_c + f_0$ . La longueur de la cavité au point magique  $L_0$  est définie de manière à ce que l'ISL de la cavité au point magique et le taux de répétition laser soient accordés  $(c/L_0 = f_{rep})$ . La longueur de la cavité sera par la suite toujours référencée à  $L_0$  en l'écrivant  $L = L_0 + \Delta L$ . De la même manière, on réécrit la fréquence d'offset  $f_{CEO} = f_0 + \delta f_0$  où  $f_0$  satisfait la condition d'égalité des offsets au PM tandis que  $\delta f_0$  comprend ses variations ultérieures.

#### 2.1.1 Désaccord et Moiré de fréquence

Dans un premier temps, définissons le désaccord entre les deux peignes. Une fois le laser et la cavité choisis, il est le seul paramètre qui fixe la périodicité du filtrage spectral.



FIGURE 2.1: Désaccord en fréquence des peignes laser et cavité (b) induite par le désaccord de longueur de cavité  $\Delta L$  (a). Le peigne de fréquence laser est en traits pleins rouges et le peigne de résonance de la cavité en traits gris pointillés (en clair accordé au PM et en gris foncé désaccordé). La position du spectre laser est symbolisée par la gaussienne rouge - trait plein.
Partant du point magique  $(f_{rep} = c/L_0, f_0 = \phi_0 \frac{ISL_c}{2\pi}$  et  $\delta f_0 = 0)$ , la longueur de la cavité est modifiée d'une quantité algébrique  $\Delta L$  (représentée dans le cas positif sur la fig. 2.1(a)). Le désaccord relatif  $\epsilon_V$  (fig.2.1(b)) induit entre le taux de répétition  $f_{rep}$  et l'ISL de la cavité  $ISL_c = c/(L_0 + \Delta L)$  peut se quantifier de la manière suivante :

$$\epsilon_V = \frac{f_{rep} - ISL_c}{f_{rep}} = \frac{\Delta L}{L_0 + \Delta L} \tag{2.1}$$

De cette manière, en extrapolant les peignes jusqu'à l'origine, la fréquence laser n = 1est séparée de la résonance m = 1 de l'écart en fréquence  $\epsilon_V \times f_{rep}$ , la deuxième fréquence est séparée de deux fois cette quantité de la deuxième résonance et la fréquence d'ordre n de  $n \times \epsilon_V \cdot f_{rep}$  (fig.2.1(b)).

Un Moiré de fréquence apparaît lorsque l'accumulation du désaccord conduit à faire correspondre une des fréquences laser avec une des résonances. Cette condition s'écrit :

$$m \times \epsilon_V \cdot f_{rep} = k \cdot f_{rep} \quad , k \in \mathbb{Z}$$

$$\tag{2.2}$$

Naturellement, une fois vraie pour une fréquence, cette condition le sera aussi pour la fréquence double, triple, etc... conduisant ainsi à une transmission de cavité correspondant à un nouveau peigne, filtré, de fréquences. Les fréquences qui nous concernent sont évidemment comprises dans le spectre d'émission du laser et cette relation se retrouve très simplement à l'aide du raisonnement supportant l'analyse des pics de transmission observés au cours d'un balayage de cavité (cf section 1.3.1.2). En particulier, nous avions montré qu'il existait une succession de longueurs conduisant à l'observation de pics de transmission, définies par la succession d'égalités suivante (on rappelle que  $\delta f_0 = 0$ ) :  $n \cdot f_{rep} = (n \pm 1)ISL_{c1} = (n \pm 2)ISL_{c2} = (n \pm k)ISL_{ck}$ . Pour la  $k^{ieme}$  transmission et en autorisant les valeurs de k algébrique, cette égalité peut se réécrire :  $(n+k) \cdot f_{rep} - k \cdot f_{rep} = (n+k) \cdot ISL_{ck}$ . En se rappelant que l'ordre m de la résonance correspondant à la fréquence n pour la  $k^{ieme}$  transmission, la résonance m = n + k est parfaitement accordée à la fréquence n du peigne.

Par exemple, avec le laser utilisé dans ce travail à 800 nm, le premier pic de transmission observé adjacent au PM (fig.1.29 et 2.4) correspond au premier battement Moiré, le deuxième se situant deux fois plus loin en fréquence, à 400 nm. Le deuxième pic de transmission correspond au passage de ce deuxième battement dans le spectre laser, le premier étant maintenant à une fréquence deux fois moindre, à 1600 nm. Ces figures de Moiré de fréquences sont illustrées fig.2.2, où la fréquence centrale du laser correspond à l'ordre  $n_c = 50$  et où le spectre laser est composé de 15 fréquences seulement pour une meilleure visibilité. La position de désaccord nul, k = 0, correspond au PM où les deux peignes sont parfaitement superposés (fig.2.2(a)). Partant de cette position de référence, une variation de longueur induit un désaccord  $\epsilon_V$ , encore trop faible pour que le premier battement atteigne la gamme du spectre du laser et aucune intensité n'est transmise par la cavité (fig.2.2(b)). En continuant d'augmenter la longueur de cavité (fig.2.2(c)),



FIGURE 2.2: Battements Vernier du peigne de fréquences laser -rouge- avec le peigne de résonances de cavité -noir : (a) accord parfait des peignes au point magique, (b) désaccord entre peignes, (c) premier passage en résonance et (d) deuxième passage en résonance.

la résonance  $m = n_c - 1$  s'accorde à la fréquence laser  $n_c$  ( $m \cdot \epsilon_V = 1$ ). Cette position correspond au premier passage en résonance du spectre après le PM. Le changement de longueur de cavité nécessaire pour se retrouver dans cette situation peut se déduire de :

$$\epsilon_V = \frac{1}{m} = \frac{\Delta L_1}{L_0} \tag{2.3}$$

d'où, en se rappelant que  $L_0 \simeq \frac{\lambda_n}{n}$ , on retrouve que :

$$\Delta L_1 = \frac{L_0}{m} \simeq \lambda_{n_c+1} \tag{2.4}$$

Enfin en 2.2(d) le désaccord conduit au passage en résonance du second battement Moiré  $(m \cdot \epsilon_V = 2)$ . Dans ce cas,  $\Delta L_2$  est égal à  $2 \times \lambda_m$ . Ce raisonnement se généralise pour le  $k^{ieme}$  battement, qui est observé pour le désaccord  $\Delta L_k = k \times \lambda_m$ .

La périodicité du battement Moiré est, quant à elle, simplement égale à la fréquence centrale du laser  $\nu_c \left(=\frac{c}{1 \times \lambda_m} = \frac{c}{\Delta L_1}\right)$  dans le cas du premier pic de transmission (k = 1), à  $\nu_c/2 \left(=\frac{c}{2 \times \lambda_m} = \frac{c}{\Delta L_2}\right)$  dans le cas du second pic (k = 2) et à  $\nu_c/k$   $(= c/k\lambda_m = c/\Delta L_k)$  dans le cas du  $k^{ieme}$  battement Moiré. L'ISL du nouveau peigne issu du filtrage Vernier est donc donné de façon générale par :

$$ISL_V = \frac{c}{\Delta L} \tag{2.5}$$

Ce raisonnement s'est attaché à décrire la correspondance sur la dent centrale du spectre  $n_c$  mais peut être fait pour n'importe quelle fréquence du peigne, et permet d'écrire de façon générale la position spectrale du  $k^{ieme}$  battement :

$$\nu_k = k \cdot \frac{c}{\Delta L} , \qquad (2.6)$$

en se rappelant toutefois que cette relation n'a de sens que si  $\nu_k$  est confondu avec une fréquence du peigne laser, ce qui conduit à une discrétisation des valeurs de  $\Delta L$ .



FIGURE 2.3: Positions spectales des 100 premiers ordres Vernier. La plage spectrale couverte par le spectre Ti: Sa est encadrée en rouge. Les battements se resserrent linéairement avec l'augmentation du désaccord  $\Delta L$ .

La fig.2.3 représente les positions des 100 premiers ordres Vernier en fonction du désaccord par rapport au point magique  $\Delta L$ . Ces positions spectrales sont données en longueurs d'onde, donc linéaires avec  $\Delta L$ . Pour un désaccord  $\Delta L$  fixé (ligne droite verticale), les différents ordres sont équidistants en fréquence (donc se resserrent en longueur d'onde vers l'origine), et se rapprochent linéairement lorsque le désaccord augmente.

#### 2.1.2 Analyse à partir du point magique

L'analyse et le contrôle du désaccord se font à partir du point magique, ce qui nécessite une bonne compréhension de la figure de transmission au cours du balayage autour du PM en fonction de paramètres tels que l'étendue du spectre et la finesse de la cavité employée. Mesurée en sortie de cavité, cette transmission correspond à la somme de toutes les fonctions de transfert prises aux fréquences du peigne et pondérées par son enveloppe (on rappelle que la bande passante de la détection filtre le taux de répétition du laser). Sur la fig.2.4 nous avons représenté le résultat d'un tel calcul pour différentes largeurs de spectre et finesses (en échelle logarithmique). Le déplacement des différents ordres Vernier est également représenté sur la même échelle de désaccord (a).

En (b), on retrouve le comportement précédemment discuté où les pics de transmission s'élargissent au fur et à mesure des ordres, perdant dans les mêmes proportions en intensité. Tant que les distances entre ordres sont supérieures à la largeur du spectre (750 à 850 nm), l'intensité repasse à zéro entre deux pics. Quand le désaccord est tel que l'ISL du Vernier devient inférieur à cette largeur ( $\Delta L = 7.5 \,\mu m$ ), l'intensité ne repasse plus par zéro et, après un comportement oscillant, elle tend à devenir constante. Pour ces désaccords, la densité des ordres Vernier dans ce spectre est suffisante (environ 4 à  $\Delta L = 30 \,\mu m$ ) pour que l'intensité ne soit plus sensible à leur passage. Pour un spectre deux fois moins étendu (c), le désaccord nécessaire pour passer de la zone où l'intensité repasse par zéro à l'autre est deux fois plus grand ( $\Delta L = 15 \,\mu m$ ).

Pour interpréter la différence de contraste entre le PM et le premier pic en fonction de l'étendue du spectre, il est nécessaire de considérer la sélectivité imposée par la finesse de la cavité qui affecte directement l'étalement spectral d'une coïncidence Vernier. En effet, pour les premiers ordres, la variation d'ISL est suffisamment faible pour que les fréquences adjacentes à une coïncidence parfaite soient partiellement transmises par les résonances leur correspondant. Ainsi, tant que la sélectivité est suffisamment forte pour que l'étendue spectrale d'une coïncidence soit inférieure à celle du spectre, l'intensité des pics est inchangée, excepté le PM où le passage simultané des dents d'un spectre deux fois plus grand conduit à une intensité deux fois plus grande. De plus, le désaccord en distance étant deux fois plus grand au second pic qu'au premier, l'écart entre l'ISL et l'espacement des dents est deux fois plus grand, réduisant d'autant l'étendue spectrale de la seconde coïncidence par rapport à la première. Son intensité se trouve donc réduite de moitié. Il en va de même avec les pics successifs tant que l'intensité repasse par zéro,



FIGURE 2.4: Intensités transmises par une cavité injectée par un peigne de fréquences de  $10 \, GHz$  de taux de répétition pour plusieurs largeurs de spectre  $\Delta \nu$  et plusieurs finesse F. Un offset de  $10^{-4}$  a été ajouté à toutes les intensités afin de les tracer en échelles logarithmiques. Encart bas : Position des résonances d'ordres successifs dans le spectres laser correspondant à la transmission du haut.

l'intensité du  $k^{ieme}$  pic étant divisée par k par rapport au premier, ce qui s'observe sur l'intensité tracée par l'évolution linéaire des intensités des premiers pics (donnée par l'échelle logarithmique).

Le même comportement de réduction progressive de l'intensité des pics se reproduit dans le cas d'une transmission d'une cavité de finesse deux fois plus faible (d), mais où cette fois l'intensité de chaque pic est deux fois plus élevée que pour une finesse double. Cette notion de sélectivité sert de base aux développements qui vont suivre. Elle permet notamment de faire la distinction entre ce que nous appellerons les filtrages Vernier haute et basse résolution. En effet, en augmentant le désaccord, l'étendue spectrale d'une coïncidence Vernier se réduit continûment jusqu'à ne plus filtrer qu'une seule dent à la fois. Dans ce domaine de haute résolution, la structure de peigne peut être résolue.

# 2.2 Filtrage Vernier Haute Résolution

Cette partie décrit le formalisme du filtrage Vernier haute résolution. Dans cette approche du couplage Vernier, on observe les correspondances parfaites entre une résonance et une fréquence laser. Nous sommes alors dans le cas d'une échelle Vernier rigoureuse puisqu'il s'agit ici de faire coïncider une fréquence laser avec une résonance de cavité.

#### **2.2.1** Désaccord 1/F

#### 2.2.1.1 Structure spectrale

Pour obtenir cette nouvelle règle en fréquence, il est évident que le désaccord entre les deux peignes doit être tel que, pour une fréquence en résonance parfaite dans la cavité, ses premières voisines de part et d'autres sont déjà en dehors de leurs résonances respectives (fig2.5).

Le désaccord le plus intuitif pour réaliser ce filtrage est celui tel que lorsqu'une fréquence sort de la pleine largeur à mi-hauteur de la résonance lui correspondant, la fréquence suivante y entre tout juste. Ceci implique que la différence entre le taux de répétition laser et l'ISL est justement égale à  $\Gamma_c$ , ce qui conduit aux désaccords, relatif et absolu :

$$\epsilon_V = \frac{1}{F} \iff \Delta L = \frac{L_0}{F} \tag{2.7}$$

Avec un tel désaccord, une fréquence laser sur F est parfaitement résonante dans la cavité et la première fréquence adjacente est décalée, par rapport au centre de la résonance lui correspondant, de  $\Gamma_c$  (fig.2.5).

#### 2.2.1.2 Balayage en fréquence

Une fois le désaccord ajusté pour qu'une dent sur F soit résonante, il peut être finement varié pour sonder successivement les fréquences laser. La variation de longueur nécessaire pour balayer un ISL du Vernier complet (soit F dents) étant donnée par la longueur



FIGURE 2.5: Peigne de fréquences Vernier dans le cas du mode par mode pour une cavité de finesse F = 7 et avec un désaccord 1/F.

d'onde d'émission, il en découle qu'un changement de longueur égal à  $\lambda/F$  va translater la coïncidence Vernier d'une dent à l'autre (fig.2.5). De manière absolue, ce changement de désaccord peut être induit en changeant soit la longueur de la cavité soit le taux de répétition laser. De manière générale, nous parlerons du changement de désaccord relatif  $\delta \epsilon_V = dl/L_0$ .

A ce stade, il est intéressant de faire une comparaison avec ce qui serait obtenu avec un laser continu accordable : tandis que dans le cas d'un laser continu, seule une portion 1/Fdu balayage est réellement utilisée pour injecter une résonance de cavité, le glissement Vernier sur un peigne de fréquences permet de faire disparaître tout temps mort et donc de diminuer considérablement le temps d'acquisition d'une plage spectrale.

#### 2.2.1.3 Intensité transmise

L'intensité transmise par une coïncidence au cours du glissement Vernier est tracée fig.2.6 en fonction du désaccord. Elle est calculée en faisant la somme de la fonction de transfert échantillonnée aux fréquences du peigne sur un demi-ISL Vernier de part et d'autre de la dent la plus proche d'un centre de résonance. L'ISL Vernier étant constitué de F modes



FIGURE 2.6: Intensité transmise par la cavité dans le cas d'un désaccord faiblement varié autour de sa valeur centrale  $\epsilon_V = 1/F$ : le signal transmis calibré en fréquence est modulé au taux de répétition mais est loin de passer par 0. Cette intensité est calculée en faisant la somme les intensités de l'ensemble des fréquences adjacentes partiellement transmises par la cavité.

laser successifs, la somme se fait sur F/2 modes de part et d'autre :

$$I(\delta\epsilon) = \sum_{n=n_k-F/2}^{n_k+F/2} H_c(n \cdot \omega_{rep} + \omega_0)$$
(2.8)

avec  $n_k$  défini comme la partie entière du ratio de  $\omega_k$  sur  $\omega_{rep}$ . Dans les différents encarts de la fig.2.6 sont représentés les fréquences laser filtrées par la cavité pour plusieurs désaccords caractéristiques. Il est alors visible qu'il n'y a jamais une fréquence unique transmise par la cavité (en moyenne, il y a 1.55 fréquences transmises) et que la condition d'exclusion sur la largeur à mi-hauteur n'est pas assez stricte pour décrire réellement le peigne laser mode après mode. Comme la variation de longueur,  $\lambda/F$ , pour observer deux résonances successives est également celle qui décrit leur largeur, elle donne l'impression d'une finesse effective  $F_{eff} = 1$  se traduisant par le comportement oscillant observé sur la fig.2.6 au cours de la variation de  $\delta\epsilon_V$ .

#### 2.2.1.4 Extinction et finesse effective



FIGURE 2.7: Intensité transmise par la cavité pour plusieurs désaccords relatifs  $\epsilon_V$ . Elle est tracée dans l'encart haut en fonction de la variation de désaccord  $\delta\epsilon_V$  autour de  $\epsilon_V$ et dans l'encart bas en fonction de la fréquence de la coïncidence.

Si le désaccord entre peignes est agrandi par rapport à la situation précédente, le contraste de la modulation augmente pour tendre de plus en plus vers une situation de mode par mode, la résolution du filtrage étant de plus en plus fine. Les intensités transmises pour des désaccords relatifs égaux à 1/F (déjà discuté), 2/F, 4/F, et 8/F sont tracées fig.2.7, soit en fonction de  $\delta\epsilon$ , soit en fonction de la fréquence de la coïncidence déduite du désaccord grâce à la relation  $\nu_k = k \cdot c/[(\epsilon_v + \delta\epsilon) \cdot L_0]$ . Lorsque la valeur d' $\epsilon_V$  augmente, la (petite) variation  $\delta\epsilon_V$  autour de ce désaccord relatif à parcourir entre deux fréquences laser consécutives est de plus en plus grand et évolue linéairement avec  $\epsilon_V$ . La largeur de chaque passage en résonance reste alors constante et la finesse effective augmente avec  $\epsilon_V$  comme  $F_{eff} = \epsilon_V \times F$ . Lorsque le désaccord relatif est converti en fréquence, les modulations des intensités transmises pour les différents désaccords sont toutes à la fréquence du taux de répétition. C'est la largeur des passages en résonance qui s'affine lorsque  $\epsilon_V$  augmente.

#### 2.2.2 Facteur d'extinction

Il est à présent possible de définir une nouvelle condition à la situation de filtrage haute résolution se basant sur le facteur d'extinction désiré expérimentalement, définie par l'intensité minimale transmise par le filtre Vernier. La situation d'un filtrage Vernier haute résolution (fig.2.8) est alors fixée par le désaccord  $\epsilon_V^{HR}$  tel que la somme des intensités d'une fréquence laser n sortant de sa résonance m et de sa fréquence voisine n+1 entrant dans sa résonance m+1 est au niveau du facteur d'extinction désiré  $S_{ext}$ . En considérant des intensités normalisées, ceci s'écrit :

$$S_{ext} = H(f_n) + H(f_{n+1}) = \frac{1}{1 + \left(\frac{f_n - f_m}{\frac{1}{2}\Gamma_c}\right)^2} + \frac{1}{1 + \left(\frac{f_{n+1} - f_{m+1}}{\frac{1}{2}\Gamma_c}\right)^2}$$
(2.9)

A l'aide de la fig.2.8, on voit facilement que  $f_n - f_m = -(f_{n+1} - f_{m+1}) = \frac{1}{2} \cdot (f_{rep} - ISL_c) = \epsilon_V^{HR} \cdot \frac{1}{2} f_{rep}.$ 



FIGURE 2.8: Cas limite du filtrage Vernier haute résolution.

On peut alors réécrire l'Eq.2.9 comme :

$$S_{ext} = 2 \times \frac{1}{1 + \left(\frac{\epsilon_V^{HR} \cdot \frac{1}{2} f_{rep}}{\frac{1}{2} \Gamma_c}\right)^2}$$
(2.10)

ce qui revient à considérer le désaccord en distance  $\Delta L_{HR}$  :

$$\Delta L_{HR} = \epsilon_V^{HR} \cdot (L_0 + \Delta L)$$
  
=  $\frac{\Gamma_c}{f_{rep}} \cdot \sqrt{\frac{2}{S_{ext}} - 1} \cdot (L_0 + \Delta L_{HR})$  (2.11)

En se rappelant que  $ISL_c = 2\pi c/(L_0 + \Delta L)$ ,  $\Delta L_{HR}$  peut se réécrire en faisant apparaître sa dépendance à la finesse F, au taux de répétition  $f_{rep}$  ainsi qu'au facteur d'extinction par la relation :

$$\Delta L_{HR} = \frac{1}{F} \cdot \frac{c}{f_{rep}} \sqrt{\frac{2}{S_{ext}} - 1}$$
(2.12)

Celle-ci montre que l'écart au point magique est d'autant plus petit que la finesse ou le taux de répétition sont grands. A l'inverse, il est d'autant plus important que l'extinction désirée est élevée.

Enfin, la finesse effective de l'intensité transmise est reliée au facteur d'extinction par :

$$F_{eff} = \epsilon_V^{HR} \times F = \sqrt{\frac{2}{S_{ext}} - 1}$$
(2.13)

A titre d'exemple, un facteur d'extinction  $S_{ext} = 10^{-3}$  (correspondant à une situation expérimentale où le signal dans la gamme du Volt est mesuré avec un bruit de l'ordre du mV), en sortie d'une cavité de finesse égale à 2000 injectée avec un peigne de fréquences de 100 MHz de taux de répétition, conduira à un désaccord de longueur de cavité nécessairement supérieur à 67 mm et à une finesse effective de 45. Le gain en terme de temps d'acquisition par le facteur F discuté précédemment dans le cadre de la comparaison avec un laser continu est en fait tempéré dans la situation mode par mode à haute résolution. La distance séparant le passage en résonance de deux dents successives, qui était donné par  $\lambda/F$  auparavant, est maintenant  $F_{eff}$  fois plus longue. Ceci se traduit aussi par une augmentation du même facteur du temps d'acquisition par rapport à la situation idéale discutée précédemment.

Cette augmentation a une conséquence directe sur la vitesse de balayage et conduit à la définition de la vitesse adiabatique de balayage en fonction des paramètres du Vernier, vitesse pour laquelle le passage en résonance des dents n'est pas affecté en forme ou en intensité par des effets de ringing (cf paragraphe 1.1.2.5). La vitesse de balayage spectrale des résonances de la cavité en interaction avec les fréquences du laser doit être inférieure à  $v_f = \frac{\Gamma_c}{\tau_{RD}}$  (en Hz/s) pour être adiabatique. Cette vitesse de déplacement spectral fixe la vitesse limite de variation de la longueur de cavité à  $v_L = \frac{\lambda}{ISL_c} \cdot v_f$  (en nm/s). Dans le cas du Vernier, un changement de longueur de cavité de  $\lambda$  conduit à un balayage des dents laser comprises dans  $ISL_V$ . En se souvenant que  $\epsilon_V = ISL_c/ISL_V = F_{eff}/F$ , on obtient la vitesse effective de balayage spectral en limite adiabatique (en Hz/s) :

$$v_{vernier} = \frac{ISL_V}{\lambda} \cdot v_L = \frac{F}{F_{eff}} \cdot v_f \tag{2.14}$$

soit un gain de temps d'acquisition comparé à une approche à las er continu accordable pour des plages spectrales identiques du ratio  $F/F_{eff}$ .

#### 2.2.3 Contexte de la spectroscopie

L'approche du Vernier haute résolution a déjà été exploitée dans le groupe de T.W. Hänsch en 2007 (Gohle *et al.* [21]) pour la spectroscopie à 800 *nm* et a récemment été reprise dans le proche infrarouge [25]. Nous cherchons à positionner ici leurs différents paramètres expérimentaux dans le formalisme qui vient d'être présenté.

Les auteurs de la première étude, déjà présentée rapidement section 1.3.2.3, utilisent un oscillateur femtoseconde à modes bloqués, lasant librement - ni  $f_{rep}$  ni  $f_{CEO}$  ne sont asservies - autour de 800 nm et ayant un taux de répétition égal à  $1 \, GHz$ , couplé dans une cavité de finesse environ égale à 3000 ( $\tau_{RD} = 0.5 \, \mu s^{-1}$ ). Le désaccord entre les peignes de fréquences est fixé par ce qu'ils nomment le ratio Vernier  $ISL_c/f_{rep}$ , égal à 69/68, ce qui correspond à un changement de longueur  $\Delta L \simeq 4.3 \, mm$  et au désaccord relatif  $\epsilon_V = 1/69$ . L'intensité transmise lors du balayage de la longueur de la cavité a alors le contraste de celle transmise par une cavité de finesse effective  $F_{eff} = 43.5$ . Le facteur d'extinction entre deux fréquences laser consécutives attendu est déterminé en utilisant l'Eq.2.12 qui conduit à  $S_{ext} = 1 \cdot 10^{-3}$ .

Le peigne de coïncidences Vernier sortant de la cavité est dispersé spatialement avec un réseau, et une caméra CCD de  $1000 \times 1200$  pixels est placée de manière à enregistrer le premier ordre du réseau. L'éloignement entre la caméra CCD et le réseau est ajusté de manière à ce que les dimensions d'un pixel de la caméra corresponde à sa résolution. Celle-ci est d'environ 30 GHz, suffisante pour résoudre convenablement l'ISL du Vernier, de 69 GHz. Pour un désaccord donné, l'image enregistrée est alors une ligne horizontale de spots espacés chacun de 69 GHz soit 2 ou 3 pixels.

Il est encore nécessaire de balayer les coïncidences du Vernier sur toutes les dents laser. Un changement de la longueur de cavité de la distance  $\lambda/69$  a pour effet de translater le peigne Vernier d'une fréquence laser à la suivante. Pour pouvoir enregistrer ces peignes distincts en fréquence sans les superposer, un miroir de renvoi placé entre le réseau et la caméra est monté sur une platine de rotation dont le mouvement vertical est synchronisé avec le déplacement de la cavité. De cette manière, chaque fréquence laser est distinctement observée sur la CCD et il devient possible de calibrer très précisément le déplacement de la cavité en réalisant un balayage sur plus d'un ISL Vernier. La reconnaissance de motifs spectraux se reproduisant à l'identique une fois que l'ISL est dépassé permet de définir exactement le nombre de fréquences laser contenues dans cet ISL.

De cette manière, les passages en résonance des fréquences laser successives sont collectés sur la CCD sur un axe oblique dont la pente est fonction de la vitesse de balayage et

<sup>1.</sup> Dans [21], les auteurs font état d'un temps de ringdown de  $1 \mu s$  incompatible avec la finesse donnée.

du désaccord Vernier. Il semble d'après l'image vue sur la CCD qu'environ 730 pixels (sur les 1000 pixels que la CCD comporte sur sa dimension verticale) soient utilisés pour enregistrer un ISL du Vernier soit 69 fréquences laser, ce qui signifie que la finesse effective est décrite par une dizaine de pixels. La discrétisation imposée par la CCD conduit alors nécessairement à intégrer les pics de transmission, ce qui peut poser problème lorsqu'une coïncidence arrive entre deux pixels. Pour s'affranchir de cette limitation, les auteurs ajustent la dimension spatiale des spots Vernier de manière à ce qu'ils s'étendent sur 2 ou 3 pixels sur chaque dimension (l'axe horizontal imposant cette limitation). En ajustant à posteriori les intensités de chaque faisceau avec des fonctions gaussiennes sur les deux dimensions, les intensités intégrées de chaque coïncidence et leurs positions sur la CCD peuvent être mesurées. L'intensité intégrée leur donne alors accès aux pertes dues aux raies d'absorption, la partie imaginaire de la susceptibilité  $\chi$ , de l'échantillon gazeux présent dans la cavité (le dioxygène ici) tandis que le déplacement entre résonances donne accès à la dispersion moléculaire de l'échantillon, la partie réelle de  $\chi$ . Remarquons ici que comme les pics de transmission sont intégrés par les pixels, le facteur de cavité correspond à  $F/2\pi$ .

Par ailleurs, les auteurs indiquent réaliser leur mesure en 9 ms, ce qui correspond au temps de balayage adiabatique d'un ISL Vernier. En effet, le temps de balayage nécessaire pour couvrir la plage spectrale  $ISL_V$  se calcule à partir de l'expression 2.14 :

$$t_{ISLV} = \frac{ISL_V}{v_{vernier}} = 2\pi\tau_{RD} \times F \tag{2.15}$$

avec pour une cavité de finesse F = 3000,  $\tau_{RD} = 0.5 \,\mu s$  et  $t_{ISLV} = 9.5 \,ms$ .

Les auteurs présentent au final un spectre d'absorption de  $O_2$  couvrant 4 THz avec 4000 éléments spectraux et un bruit sur la ligne de base de  $5 \times 10^{-6} cm^{-1}$ , environ 100 fois audessus du bruit de photon. Ceci donne une figure de mérite égale à  $8 \times 10^{-9} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ en tenant compte de leur temps d'acquisition de 9 ms. Cette première approche est une des deux seules méthodes permettant d'exploiter le peigne de fréquences mode par mode et donc de bénéficier de la calibration très précise donnée par le peigne. Ils présentent toutefois une figure de mérite plutôt médiocre du fait d'une sensibilité très réduite par rapport aux autres approches. Les auteurs attribuent cette sensibilité au faible niveau de signal ( $\mu W/mode$ ) et aux instabilités mécaniques de la cavité. Nous pensons que c'est surtout la seconde contribution qui gouverne un tel bruit ( $5 \times 10^{-2}$  en absorption relative), le  $\mu W$  se mesurant avec une incertitude plus faible. Le fait que le balayage de la cavité se fasse de manière indépendante au peigne fait que toute fluctuation de longueur due à l'environnement se traduit par une variation de la vitesse de balayage et donc par une variation du temps d'intégration. Il s'ensuit une fluctuation de l'intensité collectée. Une autre source de bruit qui n'est pas abordée par les auteurs est celle apportée par la présence, même faible, de modes transverses. En effet, ceux-ci participent également à l'ajustement gaussien effectué sur les pixels.

Il est intéressant de noter que, la mesure de l'intensité des spots étant intégrée, elle pourrait être faite plus rapidement, ce qui limiterait sa sensibilité aux bruits basse fréquence. En effet, il est possible de montrer numériquement que la réduction relative de contraste entre l'intégrale du passage en résonance avec et sans absorption n'est pas affectée par l'effet de ringing (cf section 1.1.2.5). La fig.2.9 représente la transmission d'une cavité pour deux vitesses de balayage v normalisées par la vitesse de balayage adiabatique  $v_f$  $(\eta = v/v_f)$  et pour plusieurs absorptions elles-même normalisées par les pertes de la cavité ( $Pn = \alpha \cdot L/T_{IC}$ ). Quelque soit la vitesse de balayage, la relation de la CEAS intégrée reste vérifiée :

$$\frac{A(\eta,0) - A(\eta,\alpha)}{A(\eta,0)} = \alpha \cdot L \frac{F}{2\pi}$$
(2.16)

Ceci peut aussi s'interpréter en faisant la comparaison avec la CEAS en lumière blanche



FIGURE 2.9: Profil de l'intensité transmise par une résonance de cavité bayalée à la vitesse adiabatique ( $\eta = 0.1$  - b) et 1000 fois trop rapide ( $\eta = 100$  - a) pour plusieurs niveaux d'absorption normalisée par les pertes du résonateur Pn. Les aires de recouvrement effectif de la résonance avec la fréquence laser sont indiquées en pointillés.

incohérente dont le traitement est similaire à celui de la CEAS intégrée [65, 66]. Plus le passage à travers la résonance se fait rapidement, plus la transmission de la cavité se rapproche de sa réponse impulsionnelle (cf section 1.1.2.4) et plus le mode laser interagissant avec la résonance peut être assimilé à une source blanche. Un balayage rapide du Vernier permettrait donc une mesure des profils d'absorption en réduisant l'effet des instabilités de cavité mais au détriment d'une réduction de l'intensité du signal mesuré.

Le Vernier haute résolution a été étendu au proche infrarouge très récemment [25]. Les auteurs de cet article y appliquent rigoureusement la même approche du passage mode par mode avec un peigne de fréquences de 250 MHz de taux de répétition et une cavité

de finesse F = 30000. Ils présentent le spectre de l'acétylène mesuré avec deux désaccords  $\epsilon_{V1} = 1/500$  et  $\epsilon_{V2} = 1/250$  conduisant aux finesses effectives  $F_{eff1} = 60$  et  $F_{eff2} = 120$ . Le spectre mesuré couvre  $170 \, cm^{-1}$  centré sur  $1530 \, cm^{-1}$  avec une résolution estimée à  $1.1 \, GHz$ , limité par la dimension verticale de la caméra CCD utilisée (il faudrait au moins  $3 \times 250$  pour décrire complètement l'ensemble des fréquences contenues dans un ISL Vernier pour  $\epsilon_{V2}$ ) et une sensibilité donnée à  $8 \times 10^{-8} cm^{-1}$  pour  $\epsilon_{V1}$ . Ici encore le temps de mesure d'un ISL du Vernier est fixé par la cavité à  $0.5 \, s$  et la figure de mérite ainsi calculée est égale à  $M_{Vernier2014} = 1.2 \times 10^{-9} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ . Cependant, la comparaison des spectres mesurés avec ceux calculés avec la base de donnée HITRAN montre des désaccords à la fois en intensité et en largeur des raies mesurées avec le spectre simulé. Notamment, les désaccords en intensité semblent être liés à la fois à la sensibilité aux bruits de conversion fréquence-amplitude toujours présents mais aussi à quelque chose de plus systématique traduit par l'élargissement des raies mesurées et par les intensités des raies d'absorption les plus faibles qui sont toujours plus importantes qu'attendu.

# 2.3 Filtrage Vernier Basse Résolution

Nous allons à présent détailler ce que nous appelons le couplage Vernier basse résolution, qui concerne les Vernier de finesse effective inférieure à 1. Dans ces cas, les modes ne peuvent plus être considérés comme résolus car plusieurs dents sont transmisses simultanément autour d'une coïncidence. Cette gamme de désaccord se caractérise par une transmission continue, et par une largeur spectrale de la coïncidence fonction du désaccord et de la finesse de la cavité.

#### 2.3.1 Groupes de modes

La structure spectrale du peigne de coïncidence Vernier conserve des caractéristiques communes avec le cas du filtrage haute résolution. Ainsi, l'ISL du Vernier reste défini de la même manière par  $c/\Delta L$  (cf section 2.1.1), la seule différence venant des valeurs du désaccord absolu  $\Delta L$  qui sont à présent plus petites que  $L_0/F$ .

#### 2.3.1.1 Largeur spectrale

Pour des désaccords Vernier  $\epsilon_V$  inférieurs à 1/F, les deux dents les plus proches voisines de part et d'autres,  $f_{n-1}$  et  $f_{n+1}$ , ne sont décalées par rapport à leur résonance respective que de la quantité  $\epsilon_V \times f_{rep}$  qui est alors inférieure à la largeur à mi-hauteur des modes de résonance concernés. Dès lors, un ordre Vernier est composé de plusieurs fréquences laser de plus en plus partiellement transmises par la cavité à mesure qu'on s'éloigne de la coïncidence parfaite (fig.2.10). Nous parlerons alors de coïncidence Vernier étendue. La



FIGURE 2.10: Coïncidence étendue ou groupe de modes laser partiellement transmis autour d'une dent en résonance parfaite pour une cavité de finesse 10 avec 5 modes laser compris dans la largeur de la coïncidence.

largeur à mi-hauteur de cette coïncidence se détermine aisément en considérant la situation où une dent laser est parfaitement résonante dans la cavité. En effet, le nombre de dents adjacentes  $N_V$  (non nécessairement entier) dont l'écart aux centres des résonances respectifs reste inférieur à  $\Gamma_c/2$  est donné par le ratio  $\Gamma_c/(\epsilon_V \times f_{rep})$ . La largeur  $\Gamma_V$  de la coïncidence étendue est alors donnée par :

$$\Gamma_V = N_V \cdot f_{rep} = \frac{\Gamma_c}{|\epsilon_V|} \tag{2.17}$$

#### 2.3.1.2 Relation de finesse

A basse résolution, le peigne Vernier apparaît donc comme une succession équidistante en fréquence de coïncidences étendues, faisant assez naturellement appel à la notion de finesse du filtrage Vernier. Celle-ci se définit comme le rapport de  $ISL_V$  sur  $\Gamma_V$ . A l'aide des relations Eq.2.5 et Eq.2.17, il apparaît immédiatement qu'elle correspond à la finesse de la cavité :

$$\frac{ISL_V}{\Gamma_V} = \frac{ISL_c/|\epsilon_V|}{\Gamma_c/|\epsilon_V|} = F$$
(2.18)

C'est-à-dire que, à la manière d'une cavité optique, la finesse de la cavité est la seule grandeur qui fixe le ratio entre l'écart spectral entre les ordres Vernier et leur résolution. La largeur du groupe de modes Vernier peut donc se réécrire :

$$\Gamma_V = \frac{c}{F \cdot \Delta L} \tag{2.19}$$

Notons que la validité de ces résultats repose sur le fait que les fréquences laser ont pu être considérées infiniment fines devant la largeur des résonances de cavité. La bonne stabilité intrinsèque des lasers à modes bloqués fait que la validité s'étend vers des valeurs de finesse relativement élevées. Cependant, pour des finesses supérieures à 10000 et des longueurs de cavité de l'ordre du mètre ( $\Gamma_c < 10 \, kHz$ ), la validité de ce développement pourrait être mise en défaut si aucune stabilisation du laser n'est faite par ailleurs.

#### 2.3.1.3 Peigne Vernier basse résolution

Le nouveau peigne issu du filtrage Vernier apparaît assez simplement à l'aide de la fonction de transfert de la cavité. Celle-ci, sans absorption, dans une situation caractérisée par le désaccord  $\Delta L$ , s'écrit :

$$H_s(f_n, \Delta L) = H_{max} \cdot \frac{1}{1 + 4\frac{F^2}{\pi^2} \sin^2\left(\frac{1}{2}\Phi(f_n)\right)}$$
(2.20)

avec la phase accumulée sur un tour de cavité  $\Phi(f_n)$ :

$$\Phi(f_n) = 2\pi (n \cdot f_{rep} + f_{CEO}) \cdot \frac{L_0 + \Delta L}{c} - \phi_0 - \phi(f_n)$$
(2.21)

où  $\phi_0$  est un terme de phase constant dû à la cavité et où  $\phi(f_n)$  regroupe l'ensemble des termes de phase spectralement dépendants dont les effets sont définis section 1.2.1.2 et qui seront pour l'instant négligés. Considérant la définition du PM (cf Eq.1.66),  $\Phi(f_n)$ peut se réécrire :

$$\Phi(f_n) = n \times 2\pi + 2\pi (n \cdot f_{rep} + f_{CEO}) \cdot \frac{\Delta L}{c} + 2\pi \cdot \delta f_0 \cdot \frac{L_0}{c}$$
$$= 2\pi \cdot f_n \cdot \frac{\Delta L}{c} + 2\pi \cdot \delta f_0 \cdot \frac{L_0}{c}$$
(2.22)

Il apparaît alors que  $H_c(f_n, \Delta L)$  ne prend des valeurs significatives que lorsque  $f_n$  est proche ou égale à une des fréquences  $\nu_k$  pour lesquelles la condition de bouclage  $\Phi(\nu_k) = k \times 2\pi$  est vérifiée. A l'aide de l'Eq.2.22, on détermine ces fréquences :

$$\nu_k = k \cdot \frac{c}{\Delta L} - \delta f_0 \cdot \frac{L_0}{\Delta L} \tag{2.23}$$

Le peigne de coïncidences Vernier apparaît alors explicitement, de manière similaire à celui de fréquences laser, avec son ISL,  $ISL_V = c/\Delta L$ , son ordre  $k \in \mathbb{N}$  et son offset  $f_{V0} = \delta f_0 \cdot L_0 / \Delta L$ . Il peut aussi se réécrire en fonction du désaccord relatif  $\epsilon_V \simeq \Delta L / L_0$  ainsi :

$$\nu_k = k \cdot \frac{f_{rep}}{\epsilon_V} - \frac{\delta f_0}{\epsilon_V} \tag{2.24}$$

On voit donc que ce peigne Vernier est entièrement caractérisé par le taux de répétition  $f_{rep}$ , fixant la longueur  $L_0$ , l'écart à cette longueur  $\Delta L$ , et l'écart entre les fréquences d'offset des deux peignes  $\delta f_0$ .

Une caractéristique de cette configuration basse résolution est que le fait qu'il y ait plusieurs dents laser comprises dans la coïncidence Vernier relâche la condition stricte de bouclage pour chaque fréquence laser. Il n'est en effet plus nécessaire que les pulsations définissant les centres des ordres Vernier  $\nu_k$  soient confondues avec des fréquences laser pour que la coïncidence existe. Comme illustré sur la fig.2.11, toutes les coïncidences successives ne sont pas nécessairement centrées sur des fréquences laser existantes sans que cela gêne leur définition.  $\nu_k$  correspond alors au centre de l'enveloppe de la coïncidence étendue et non à une fréquence du peigne initial.



FIGURE 2.11: Peigne de fréquence Vernier. 4 ordres Vernier sont représentés avec une cavité de finesse F = 7 et un désaccord Vernier  $\epsilon_V = 1/15.2$ . Notons qu'on retrouve une périodicité stricte de la figure de battement (non représentée) en considérant 76 =  $5 \times 15.2$  fréquences laser. C'est le premier nombre entier de fréquences qui permet d'écrire  $\epsilon_V = 5/76$  comme une fraction rationnelle.

#### 2.3.1.4 Contrôle du peigne Vernier

Dans le cadre d'une mesure spectralement résolue comme la CEAS, il est nécessaire de pouvoir contrôler de manière précise la fréquence de la coïncidence Vernier dont l'intensité est mesurée. Les trois degrés de liberté du peigne sont donc  $\Delta L$ ,  $f_{rep}$  et  $\delta f_0$ et chacun est en mesure de faire varier la fréquence d'un ordre. Au premier ordre, l'effet de leurs variations, respectivement  $\delta l$ ,  $\delta f_{rep}$  et  $\delta f_0$  (qui représente déjà une modification de la fréquence d'offset par rapport à sa valeur au PM), se traduit par une modification de la fréquence de la coïncidence d'ordre k:

$$\nu_{k}(\delta l, \delta f_{rep}, \delta f_{0}) = k \cdot \frac{c}{\Delta L} \cdot \left(1 - \frac{\delta l}{\Delta L}\right) - \delta f_{0} \cdot \frac{L_{0}}{\Delta L}$$
$$= k \cdot \frac{f_{rep}}{\epsilon_{V}} \cdot \left(1 + \frac{\delta f_{rep}}{f_{rep}}\right) - \frac{\delta f_{0}}{\epsilon_{V}}$$
(2.25)

On détermine facilement l'amplitude de variation de chaque paramètre, pour accorder la fréquence Vernier d'ordre k sur  $ISL_V$ , en posant :

$$\nu_k(\delta x) = \nu_k(0) + ISL_V \tag{2.26}$$

#### Longueur de la cavité

Dans le cas d'une modification de la longueur de la cavité d'une grandeur  $\delta l$ , la longueur à parcourir pour couvrir  $ISL_V$  est donnée par :

$$k \cdot \frac{c}{\Delta L} \cdot \left(1 - \frac{\delta l}{\Delta L}\right) = k \cdot \frac{c}{\Delta L} + ISL_V \iff \delta l = -\frac{\Delta L}{k} = -\lambda_k \tag{2.27}$$

Un écart égal à la longueur d'onde de la coïncidence est donc suffisant pour translater la coïncidence k de  $ISL_V$ .

#### Taux de répétition de l'oscillateur laser

De manière équivalente, le taux de répétition peut être modifié pour faire le même balayage. L'écart en taux de répétition à faire est alors donné par :

$$k \cdot \frac{f_{rep}}{\epsilon_V} \cdot \left(1 + \frac{\delta f_{rep}}{f_{rep}}\right) = k \cdot \frac{f_{rep}}{\epsilon_V} + \frac{f_{rep}}{\epsilon_V} \iff \delta f_{rep} = \frac{f_{rep}}{k}$$
(2.28)

A titre d'exemple correspondant à notre situation expérimentale, le balayage sur  $ISL_V$  de l'ordre k = 100 à 800 nm avec un taux de répétition de 100 MHz nécessite une variation du taux de répétition de 1 MHz.

#### Fréquence d'offset du peigne laser

Enfin, une modification de la fréquence d'offset a aussi pour effet de translater le peigne, l'Eq.2.26 :

$$-\frac{\delta f_0}{\epsilon_V} = ISL_V \tag{2.29}$$

Il est alors évident qu'un balayage de  $\nu_k$  sur  $ISL_V$  sera induit par un changement d'offset  $\delta f_0$  égal à  $f_{rep}$ .

La relation 2.25 montre aussi que toute variation de deux de ces paramètres peut être corrigée en agissant sur le troisième. Notamment, l'utilisation d'un oscillateur laser non stabilisé, pour lequel  $f_{rep}$  et  $f_{CEO}$  sont susceptibles de fluctuer, ne contrarie pas une stabilisation en fréquence de l'ordre k en agissant sur la longueur de la cavité.

Enfin, si nous reprenons la fonction de transfert du peigne Vernier exprimée Eq.2.20, celle-ci peut à présent être réécrite :

$$H_s(\nu) = H_{max} \cdot \frac{1}{1 + 4\frac{F^2}{\pi^2} \sin^2\left(\pi \cdot \nu \frac{\Delta L}{c} - \frac{\phi_0}{2}\right)}$$
(2.30)

Cette expression de la fonction de transfert fait apparaître le peigne Vernier à proprement parler : elle décrit une transmission périodique d'ISL égal à  $ISL_V$  et de finesse F. Chaque coïncidence étendue k peut aussi être approximée pour des fréquences proches de  $\nu_k$  par la fonction lorentzienne :

$$H_s(\nu) = H_{max} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{\nu - \nu_k}{\frac{1}{2}\Gamma_V}\right)^2}.$$
 (2.31)



#### 2.3.2 Intensité transmise par un ordre

FIGURE 2.12: Intensité transmise par une coïncidence Vernier en fonction de la variation de désaccord  $\delta \epsilon_V$  autour de différents désaccords relatifs  $\epsilon_V$ . Les spectres des coïncidences concernées sont représentés dans les encarts.

Intéressons-nous à présent à l'intensité transmise par une telle coïncidence et à définir plus rigoureusement ce régime de basse résolution. De même que précédemment, on considère que le photodétecteur mesurant cette intensité a une bande passante plus basse que le taux de répétition laser. Si les variations du spectre laser peuvent être négligées sur la largeur d'une coïncidence, le signal mesuré est alors la somme des intensités des fréquences laser  $f_n = n \cdot f_{rep} + f_{CEO}$  transmises par la cavité :

$$I_{det}(f_n, \Delta L) = \sum_n H_c(f_n, \Delta L) \,. \tag{2.32}$$

De même que le filtrage haute résolution a été défini par une contrainte expérimentale, liée au facteur  $S_{ext}$ , le régime basse résolution peut être défini par l'impossibilité d'observer le passage des résonances successives. Sur la fig.2.12 sont représentées les intensités transmises pour plusieurs désaccords lors du balayage d'un des paramètres du peigne où l'oscillation présente pour  $\epsilon_{V1} = 1/F$  s'estompe progressivement avec la diminution du désaccord. Pour des désaccords de  $\epsilon_V = 1.9 \times 10^{-4}$  le contraste de modulation atteint  $10^{-3}$  pour une finesse de cavité de  $2000(\epsilon_V = 1.5 \times 10^{-4} \text{ pour } 10^{-4})$ .

A titre d'exemple, le régime basse résolution pour une sensibilité de détection de  $10^{-3}$  permet d'atteindre une résolution de 270 MHz (il y a alors entre 2 et 3 modes laser dans la largeur de la coïncidence) avec un taux de répétition de 100 MHz, tandis qu'une sensibilité de  $10^{-4}$  limitera la résolution accessible à 340 MHz soit 3 ou 4 modes laser dans  $\Gamma_V$ .

#### 2.3.2.1 Vitesse adiabatique de balayage

Comme dans le cas du filtrage haute résolution, il convient de s'intéresser à la modification de la vitesse adiabatique de balayage induite par la présence de plusieurs modes laser simultanément transmis à des degrés divers par la cavité selon leur proximité à la fréquence centrale de la coïncidence. La définition donnée dans le cas haute résolution (Eq.2.14) reste parfaitement valable dans le contexte de la basse résolution. Elle était définie par rapport à la vitesse adiabatique de balayage des résonances de cavité  $v_f$  par la relation :

$$v_{vernier} = \frac{F}{F_{eff}} \cdot v_f \tag{2.33}$$

Dans le cas du filtrage basse résolution, la vitesse adiabatique de balayage va pouvoir être considérablement augmentée car  $F_{eff}$  peut être largement inférieure à l'unité. Ce gain de vitesse est dû au fait que chaque dent laser commence à entrer en interaction avec la résonance lui correspondant bien avant que la dent adjacente ne soit sortie de la sienne, et lorsqu'une fréquence balaye une largeur de résonance de cavité, la fréquence de l'ordre Vernier balaye une plage correspondant à sa propre largeur. Ceci est illustré fig.2.13, où le déplacement d'une coïncidence est représentée : au cours du balayage les fréquences glissent à travers la coïncidence. Comme le temps d'interaction d'une fréquence laser avec une résonance ne peut être plus court que  $2\pi \times \tau_{RD}$  pour rester dans un régime adiabatique, le balayage d'un ordre Vernier dans sa largeur ne peut se faire plus rapidement que celui-ci. En fait, partant de l'Eq.2.33, ce résultat s'obtient directement en écrivant :

$$v_{vernier} = \frac{1}{\epsilon_V} \cdot v_f = \frac{ISL_V}{ISL_c} \cdot \frac{\Gamma_c}{\tau_{RD}} = \frac{ISL_V}{F} \cdot \frac{1}{\tau_{RD}}$$
  
soit  $v_{vernier} = \frac{\Gamma_V}{\tau_{RD}}$  (2.34)



FIGURE 2.13: Glissement de la coïncidence Vernier quand les résonances sont balayées autour de leur dent.

Cette vitesse limite ne doit pas être dépassée avec une configuration de filtrage basse résolution afin de pouvoir faire des mesures d'intensité transmise quantitatives comme en CEAS.

#### 2.3.3 Approche pour la spectroscopie

Afin de faire de la spectroscopie à partir de l'intensité transmise par une coïncidence, le comportement d'une coïncidence étendue, comportant plusieurs dents laser transmises simultanément, en présence d'absorption, est analysé.

#### 2.3.3.1 Fonction de transfert en présence d'absorption

Afin de déterminer la fonction de transfert du peigne Vernier en présence d'espèces absorbantes à l'intérieur de la cavité, il est nécessaire de revenir à celle de la cavité dans les même conditions sous sa forme lorentzienne :

$$H_s(f_n) = H_{max}^0 \left( 1 - \frac{F_0}{\pi} \alpha(f_n) L \right) \cdot \frac{1}{1 + \left( \frac{f_n - (f_m + \delta f_n^\alpha)}{1/2(\Gamma_c + \delta \Gamma^\alpha(f_n))} \right)^2}$$
(2.35)

qui est maintenant échantillonée aux fréquences du peigne laser, avec  $F_0$  la finesse de la cavité sans absorption et les variations de largeur  $\delta\Gamma^{\alpha}(f_n) = c \cdot \alpha(f_m)$  et de position du centre des résonances  $\delta f_n^{\alpha} = -f_n \cdot \delta n(f_n)$  dues à l'absorption. En faisant un traitement similaire à celui de la section 2.3.2.1 sur cette nouvelle fonction de transfert, on obtient :

$$H_{s}(f_{n}) = H_{max}^{0} \left(1 - \frac{F_{0}}{\pi} \alpha(f_{n})L\right) \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{f_{n} - (f_{k} + \delta\nu_{V}^{\alpha}(f_{n}))}{1/2(\Gamma_{V} + \delta\Gamma_{V}^{\alpha}(f_{n}))}\right)^{2}}$$
(2.36)

où l'élargissement  $\delta \Gamma_V^{\alpha}(f_n)$  est défini par :

$$\delta\Gamma_V^{\alpha}(f_n) = \frac{\delta\Gamma^{\alpha}(f_n)}{\epsilon_V} = c \cdot \alpha(f_n) \cdot \frac{L_0 + \Delta L}{\Delta L}$$
(2.37)

et où le déplacement  $\delta \nu_V^{\alpha}(f_n)$  du centre de la coïncidence est donné (pour un profil de raie lorentzien) par :

$$\delta\nu_V^{\alpha}(f_n) = -\frac{\delta f_n^{\alpha}}{\epsilon_V} = -c \cdot \frac{f_n - \nu_a}{\Gamma_a} \alpha(f_n) \cdot \frac{L_0 + \Delta L}{\Delta L}$$
(2.38)

Cette fonction de transfert Vernier est très similaire à celle de la cavité en présence d'absorption avec cependant une différence importante : dans le cas du Vernier, il n'est plus possible de considérer l'absorption constante sur toute la gamme spectrale concernée par le groupe de fréquences tandis qu'il l'est si on ne considère qu'une seule résonance de cavité. Cela signifie que  $\delta\Gamma_V^{\alpha}(f_n)$  et  $\delta\nu_V^{\alpha}(f_n)$  vont varier sur un ordre Vernier et que la fonction de transfert du Vernier n'est plus une lorentzienne.

Il est utile pour la suite de réécrire la fonction de transfert (Eq.2.36) à l'aide d'une fonction de réponse Vernier normalisée :

$$f_V(f_n) = \frac{2}{\pi(\Gamma_V + \delta\Gamma_V^{\alpha}(f_n))} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{f_n - f_k}{1/2(\Gamma_V + \delta\Gamma_V^{\alpha}(f_n))}\right)^2}$$
(2.39)

La fonction de transfert Vernier peut alors se réécrire :

$$H_{s}(f_{n}) = H_{max}^{0} \left(1 - \frac{F_{0}}{\pi} \alpha(f_{n})L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_{V} + \delta \Gamma_{V}^{\alpha}(f_{n})}{2} \cdot f_{V}(f_{n})$$
  
$$= H_{max}^{0} \left(1 - \frac{F_{0}}{\pi} \alpha(f_{n})L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_{V}}{2} \left(1 + \frac{\delta \Gamma_{V}^{\alpha}(f_{n})}{\Gamma_{V}}\right) \cdot f_{V}(f_{n}) \qquad (2.40)$$

En reprenant la définition de la variation de la largeur donnée Eq.2.37, on peut écrire :

$$\frac{\delta\Gamma_V^{\alpha}(f_n)}{\Gamma_V} = c \cdot \alpha(f_n) \frac{L}{\Delta L} \cdot \frac{1}{\Gamma_V} 
= \alpha(f_n) L \frac{1}{2\pi} \cdot \frac{ISL_V}{\Gamma_V} 
= \alpha(f_n) L \frac{F_0}{2\pi}$$
(2.41)

ce qui permet, dans le cas d'une absorption faible, de simplifier le produit en négligeant les termes d'ordre 2 :

$$\left(1 - \frac{F_0}{\pi}\alpha(f_n)L\right) \cdot \left(1 + \frac{\delta\Gamma_V^\alpha(f_n)}{\Gamma_V}\right) \simeq \left(1 - \frac{F_0}{2\pi}\alpha(f_n)L\right)$$
(2.42)

Aussi, dans ce même régime d'absorption faible, la fonction réponse peut s'écrire en négligeant les effets de largeur, lui donnant alors une forme de lorentzienne pure :

$$f_V(f) = \frac{2}{\pi \cdot \Gamma_V} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{f - \nu_k}{\Gamma_V/2}\right)^2}$$
(2.43)

La fonction de transfert peut finalement se réécrire :

$$H_s(f_n) = H_{max}^0 \cdot \left(1 - \frac{F_0}{2\pi} \alpha(f_n) L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2} \cdot f_V(f_n)$$
(2.44)

Cette fonction de transfert établie, il est maintenant possible de calculer l'absorption (faible, toujours) mesurée à partir du signal transmis par la cavité<sup>2</sup>.

#### 2.3.3.2 Traitement des données en CEAS

L'intensité transmise par un ordre Vernier pour un désaccord  $\Delta L$  fixé est la somme sur un ISL du Vernier des fréquences laser transmises par la cavité (l'intensité du spectre

<sup>2.</sup> Le régime d'absorption forte sera considéré dans le chapitre 4 Spectre Vernier

laser est considérée constante sur cet intervalle spectral) :

$$I_{\alpha}(\nu_k) = \sum_{p=\frac{\nu_k - ISL_V/2}{f_{rep}}}^{\frac{\nu_k + ISL_V/2}{f_{rep}}} H_{max}^0 \cdot \left(1 - \frac{F_0}{2\pi}\alpha(f_p)L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2} \cdot f_V(f_p)$$
(2.45)

Elle peut se réécrire sous la forme d'une intégrale avec un pas d'intégration égal à  $f_{rep}$ :

$$I_{\alpha}(\nu_k) = \int_{\nu_k - \frac{ISL_V}{2}}^{\nu_k + \frac{ISL_V}{2}} H_{max}^0 \cdot \left(1 - \frac{F_0}{2\pi}\alpha(f)L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2} \cdot f_V(f) \cdot \frac{df}{f_{rep}}$$
(2.46)

Le traitement standard de l'intensité transmise en CEAS conduit à considérer la réduction relative d'intensité en sortie de cavité  $\frac{I_0(\nu_k)-I_\alpha(\nu_k)}{I_0(\nu_k)}$ .  $I_0(\nu_k)$  est l'intensité transmise par le même ordre Vernier mais sans l'espèce absorbante dans la cavité et elle est, selon les cas, mesurée expérimentalement (la cavité peut être complètement vidée) ou bien extrapolée à partir de la ligne de base du spectre affecté des raies d'absorption (fig.2.14).



FIGURE 2.14: Intensité transmise par la cavité avec et sans absorption.

Cette intensité à vide s'exprime encore en intégrant la fonction de transfert Vernier sans absorption :

$$I_{0}(\nu_{k}) = \int_{\nu_{k}-\frac{ISL_{V}}{2}}^{\nu_{k}+\frac{ISL_{V}}{2}} H_{max}^{0} \cdot \pi \frac{\Gamma_{V}}{2} \cdot f_{V}(f) \cdot \frac{df}{f_{rep}}$$
$$= H_{max}^{0} \cdot \pi \frac{\Gamma_{V}}{2}$$
(2.47)

La réduction relative d'intensité transmise devient alors :

$$\frac{I_0(\nu_k) - I_\alpha(\nu_k)}{I_0(\nu_k)} = \frac{H_{max}^0 \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2} - \int_{\nu_k - \frac{ISL_V}{2}}^{\nu_k + \frac{ISL_V}{2}} H_{max}^0 \cdot \left(1 - \frac{F_0}{2\pi} \alpha(f)L\right) \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2} \cdot f_V(f) \cdot \frac{df}{f_{rep}}}{H_{max}^0 \cdot \pi \frac{\Gamma_V}{2}} \\
= \int_{\nu_k - \frac{ISL_V}{2}}^{\nu_k + \frac{ISL_V}{2}} \alpha(f)L \frac{F_0}{2\pi} \cdot f_V(f) \frac{df}{f_{rep}}$$
(2.48)

La transmission de cavité est finalement reliée assez simplement aux coefficients d'absorption des raies présentes dans le spectre :  $\alpha$  apparaît, multiplié par la longueur de cavité et par le facteur de cavité intégré  $F_0/2\pi$ , convolué avec la fonction réponse de l'ordre Vernier :

$$\frac{\Delta I(\nu_k)}{I_0(\nu_k)} = L \frac{F_0}{2\pi} \cdot (\alpha * f_V)(f)$$
(2.49)

On rappelle que la longueur L correspond ici à un tour de cavité, le facteur deux présent au dénominateur du terme de cavité correspond bien au fait que la mesure est intégrée sur la résonance, même si, ici, cette intégration se répartit sur un ensemble de résonances. La mesure CEAS est donc particulièrement simple, puisque le spectre d'absorption, multiplié par la longueur effective d'interaction de cavité, est seulement convolué par la fonction réponse lorentzienne du Vernier.

### 2.4 Schémas de détection

A présent que les deux grandes gammes de filtrage ont été identifiées, il est important de s'intéresser à la manière dont elles peuvent s'adapter aux différentes stratégies de détection envisageables. Une première stratégie, la plus évidente, consiste à placer simplement un photodétecteur derrière le miroir de sortie de la cavité. Cette configuration, extrêmement simple expérimentalement, exige de trouver un équilibre entre la couverture spectrale voulue et la résolution de la mesure. Une seconde stratégie, plus élaborée, consiste à disperser la lumière transmise par la cavité de manière à lever la principale limitation de la première méthode sur la couverture spectrale de manière à exploiter l'intégralité du peigne femtoseconde.

#### 2.4.1 Transmission directe

Dans l'approche en transmission directe, resprésentée fig.2.15, le faisceau transmis par la cavité est simplement détecté avec une photodiode. L'intensité ainsi mesurée n'est facile à analyser quantitativement que lorsqu'elle est composée spectralement d'une seule coïncidence du Vernier. Cette condition simple fixe la résolution la plus fine  $\delta \nu_{direct}$ 



FIGURE 2.15: Schéma de l'approche en transmission directe

donnée par cette approche. En effet, pour n'avoir toujours qu'un seul ordre Vernier de fréquence  $\nu_k$  comprise dans le spectre laser, il est nécessaire que  $ISL_V$  reste strictement supérieur à la largeur totale du spectre laser  $\Delta \nu_{las}$ . D'où on déduit  $\delta \nu_{direct}$ , connaissant la finesse F:

$$\delta\nu_{direct} = \Gamma_V = \frac{\Delta\nu_{las}}{F} \tag{2.50}$$

La résolution est donc directement proportionnelle à la largeur du spectre laser et inversement proportionnelle à la finesse, le paramètre en pratique le plus difficile à faire varier. La largeur du spectre laser est le paramètre le plus simple à ajuster pour obtenir la résolution souhaitée. Moyennant une finesse assez élevée (> 10000), il est possible d'atteindre la résolution du mode par mode pour une largeur spectrale de quelques THz. Dans notre travail, où les finesses employées les plus élevées étaient de 3000, le GHz de résolution s'obtient avec ce type de couverture spectrale.

Le désaccord relatif maximal qu'il est possible de créer entre les deux peignes pour rester dans cette approche est déterminé par le ratio  $ISL_V/ISL_c$  soit encore  $\Delta \nu_{las}/ISL_c$ . Une fois ce désaccord fixé, la variation d'un des trois paramètres définissant le peigne Vernier ( $\Delta L$ ,  $f_{rep}$  ou  $f_{CEO}$ ) permet de balayer la fréquence centrale de la coïncidence présente dans le spectre et la puissance lumineuse mesurée pourra être traitée, selon que le filtrage est haute ou basse résolution, afin d'obtenir une mesure quantitative de coefficients d'absorption.

#### 2.4.2 Transmission dispersée

Si le désaccord Vernier  $\epsilon_V$  excède la limite fixée par l'Eq.2.50, il y aura nécessairement plusieurs coïncidences présentes simultanément dans le spectre laser. Dans ce cas, l'approche en transmission directe aboutirait sur la mesure de la somme des intensités des différentes coïncidences transmises à plusieurs fréquences distinctes.

#### 2.4.2.1 Approche et plage de validité

Dans l'approche en transmission dispersée, représentée fig.2.16, le faisceau transmis par le filtre Vernier est analysé en dispersant spatialement à l'aide d'un réseau de diffraction les différentes coïncidences. De cette manière, il est possible d'augmenter la résolution précédente tout en conservant un spectre laser et une finesse identiques. Pour une finesse donnée, la plus forte résolution est atteinte lorsque le pouvoir dispersif du réseau ne permet plus de séparer spatialement deux ordres consécutifs du Vernier, c'est-à-dire  $ISL_V$ .



FIGURE 2.16: Schéma de l'approche en transmission dispersée

Tant que  $\epsilon_V$  est plus petit que le désaccord imposé par la limite précédente, chaque coïncidence est résolue spatialement en gardant sa finesse spectrale  $\Gamma_V$  et crée un faisceau distinct des autres après le réseau. Si le peigne Vernier est balayé spectralement, les fréquences des ordres varient et leurs faisceaux respectifs changent de direction.

Les puissances optiques transmises dans chacun de ces faisceaux, en supposant possible leur mesure au cours de leur déplacement, vont alors décrire le spectre laser affecté par les raies d'absorption du gaz intracavité, avec la résolution  $\Gamma_V$ , et avec toutefois un certain décalage temporel, image du décalage en fréquence existant entre deux coïncidences, dû à la structure de peigne. Ce décalage est déterminé par la valeur de  $ISL_V$ , et est donc constant si on néglige tous les effets de dispersion intracavité.

#### 2.4.2.2 Influence de la GDD intracavité

Cependant, les effets de dispersion rendent  $ISL_V$  lui aussi dépendant de la fréquence et sa variation induite par la GDD peut être quantifiée. Pour plus de simplicité, le raisonnement est mené en pulsation et les différents ISL sont maintenant exprimés en pulsation.

En suivant le même raisonnement que dans la section 1.2.1.2, on introduit une dispersion du second ordre dans la phase accumulée sur un tour de cavité pour une fréquence laser d'ordre n:

$$\Phi(\omega_n) = \frac{\omega_n}{c} (L_0 + \Delta L) - \phi_0 - \frac{1}{2} \phi_2 \cdot (\omega_n - \omega_{ref})^2$$
(2.51)

De même que précédemment, le terme  $\frac{\omega_n}{c}L_0 - \phi_0$  satisfait les conditions du point magique et est donc égal à  $2n\pi$ . La phase accumulée devient alors :

$$\Phi(\omega_n) = \frac{\omega_n}{c} \Delta L + \frac{\delta \omega_0}{c} L_0 - \frac{1}{2} \phi_2 \cdot (\omega_n - \omega_{ref})^2$$
(2.52)

Pour calculer le nouvel ISL de la cavité en tenant compte de la GDD, on s'intéresse à la différence de phase entre deux pulsations du peigne Vernier  $\Phi(\omega_{k+1}) - \Phi(\omega_k) = 2\pi$ :

$$\frac{\omega_{k+1} - \omega_k}{c} \Delta L - \frac{1}{2} \phi_2 \cdot \left[ (\omega_{k+1} - \omega_{ref})^2 - (\omega_k - \omega_{ref})^2 \right] = 2\pi$$
(2.53)

La différence des carrés peut se réécrire de la manière suivante :

$$(\omega_{k+1} - \omega_{ref})^2 - (\omega_k - \omega_{ref})^2 = 2 \cdot (\omega_{k+1} - \omega_k) \cdot \left(\omega_k - \omega_{ref} + \frac{1}{2}ISL_V\right)$$
(2.54)

ce qui permet, en reprenant l'Eq.2.53, d'exprimer le nouvel ISL Vernier  $ISL'_V$  (le terme contenant la GDD est considéré petit devant 1) :

$$(\omega_{k+1} - \omega_k) \cdot \left(\frac{\Delta L}{c} - \phi_2 \cdot \left(\omega_k - \omega_{ref} - \frac{ISL_V}{2}\right)\right) = 2\pi$$
  
$$\Leftrightarrow ISL'_V(\omega_k) = ISL_V\left(1 + \phi_2 \cdot \frac{ISL_V}{2\pi}\left(\omega_k - \omega_{ref} - \frac{ISL_V}{2}\right)\right)$$
(2.55)

La mesure des variations de l'ISL Vernier donne donc accès à la GDD, son effet étant décuplé par la grande sensibilité du peigne Vernier aux altérations du peigne de résonances de la cavité. Ceci est quantifiable en considérant les variations relatives des ISL Vernier et de cavité en fonction de la GDD :

$$\frac{ISL'_V - ISL_V}{ISL_V} = \phi_2 \frac{c}{\Delta L} \left( \omega_k - \omega_{ref} - \frac{ISL_V}{2} \right) \simeq \frac{L}{\Delta L} \cdot \frac{ISL'_c - ISL_c}{ISL_c}$$
(2.56)



FIGURE 2.17: Variations relatives de l'ISL du Vernier pour plusieurs désaccords  $\Delta L$  et une GDD  $\phi_2 = 75 \, fs^2$  (a) et pour plusieurs valeurs de GDD et  $\Delta L = 100 \, \mu m$  (b) -  $(\lambda_{ref} = 800 \, nm)$ 

La fig.2.17 (a) présente les variations relatives de l'ISL du peigne Vernier entre 700 et 900 nm pour plusieurs désaccords et une GDD constante égale à 75  $fs^2$ , soit la GDD induite par la propagation dans 3 m d'air. La variation relative de l'ISL n'est pas constante pour tout  $\Delta L$  et est inversement proportionnelle à ce désaccord : la mesure la plus sensible de la GDD dans une approche Vernier se fait donc avec le désaccord entre peignes le plus petit possible (bien évidemment, il faut tout de même qu'il y a ait deux ordres Vernier dans le spectre laser pour faire cette mesure). A désaccord fixé (b), la variation relative d' $ISL_V$  est parfaitement proportionnelle à la valeur de la GDD.

Il est par ailleur également intéressant d'évaluer au passage l'influence que la GDD de la cavité va avoir sur la largeur d'un groupe de modes Vernier. L'Eq.1.42 écrite dans la section 1.2.2.2 donne directement le nouvel ISL de cavité dans le cas Vernier pour la résonance m, la pulsation de référence étant dans ce cas prise en  $\omega_k$ :

$$ISL_c'(\omega_m) = 2\pi \frac{c}{L_0 + \Delta L} \left( 1 + \phi_2 \frac{c}{L_0 + \Delta L} (\omega_m - \omega_k) \right) = ISL_c \left( 1 + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} \omega_m - \omega_k \right)$$
(2.57)

La nouvelle pulsation centrale de la résonance m est alors donnée par :

$$\begin{aligned}
\omega_m' &= \omega_k + \int_{\omega_k}^{\omega_m} ISL_c'(\omega) \frac{d\omega}{ISL_c} \\
&= \omega_m + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} \left( \frac{1}{2} \omega_m^2 - \omega_k \omega_m \right) + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} \cdot \frac{1}{2} \omega_k^2 \\
&= \omega_m + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} (\omega_m - \omega_k)^2
\end{aligned} \tag{2.58}$$

et la nouvelle largeur du groupe Vernier est déduite comme précédemment de  $\omega_m'-\omega_n=\Gamma_c/2$  :

$$\frac{\Gamma_c}{2} = \omega_m - \omega_n + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} (\omega_m - \omega_k)^2$$
$$= \epsilon_V \cdot \omega_{rep} \frac{\Gamma'_V/2}{\omega_{rep}} + \phi_2 \frac{ISL_c}{2\pi} (\omega_m - \omega_k)^2$$
(2.59)

D'où on déduit la nouvelle largeur du groupe de mode  $\Gamma_V'$  :

$$\Gamma_V'(\omega_m) = \Gamma_V \left( 1 - \phi_2 \frac{F}{\pi} (\omega_m - \omega_k)^2 \right)$$
(2.60)

Ce qui signifie que pour une cavité de finesse F = 1000, une GDD de  $100 fs^2$ , une largeur d'ordre Vernier  $\omega_m - \omega_k \simeq 1 \, GHz$ , la variation relative de largeur Vernier sera de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-8}$  donc négligeable par la suite.

#### 2.4.2.3 Conclusion

Dans la suite de ce travail, c'est l'approche en transmission dispersée qui a été préférée. D'une part, l'utilisation d'un réseau en sortie de cavité permet d'accéder à des résolutions plus fines pour de grandes gammes spectrales que l'approche en transmission directe. D'autre part, elle crée aussi un discriminateur en fréquence des différentes coïncidences grâce à leur dispersion spatiale qui permet la mise en place de stratégies de contrôle de la position spectrale d'une coïncidence particulière. Elle est aussi la seule approche qui autorise l'exploitation de la totalité de la plage spectrale accessible avec un oscillateur Ti: Sa, l'approche en transmission directe reposant sur la limitation du spectre laser selon la résolution désirée.

# Chapitre 3

# Couplage Vernier : montage expérimental

Expérimentalement, nous nous sommes donc placés dans une configuration où la lumière transmise par la cavité est spatialement dispersée en utilisant un réseau de diffraction. L'objet de ce chapitre est de décrire précisément la réalisation de chaque étape du filtrage Vernier.

# 3.1 Dispositif

Le dispositif expérimental est présenté fig.3.1. En (a), le faisceau du laser de pompe à 532 nm est injecté dans l'oscillateur femtoseconde Ti: Sa. Cet oscillateur a déjà été évoqué dans la section 1.1.1.4. Il produit un train d'impulsions de quelques dizaines de femtosecondes. Sa puissance moyenne est comprise entre 300 et  $400 \, mW$  et elle est mesurée avec un puissance-mètre non représenté ici. Son spectre peut aussi être observé avec un spectromètre USB d'une résolution autour du nm AvaSpec - 2048 d'Avantes captant une réflexion résiduelle du faisceau sur une des lentilles traversées plus loin. Il est globalement comprisentre 750 et  $850 \, nm$ . Plusieurs spectres typiques de cet oscillateur étaient présentés dans la première partie. Ce spectre peut être ajusté selon la situation en modifiant essentiellement les positions transverses des deux prismes (montés sur des platines de translation micrométriques) et l'orientation du coupleur de sortie de la cavité. Enfin, le taux de répétition  $f_{rep}$  de l'oscillateur est mesuré à 91 MHz en plaçant derrière l'un des miroirs de renvoi à  $45^{\circ}$  une photodiode ayant une bande passante suffisante pour observer le passage des impulsions successives (avec une surface photosensible de  $1 \, mm^2$ ). Le second paramètre du peigne de fréquences,  $f_{CEO}$ , n'est pas mesuré directement en sortie de l'oscillateur. Il peut cependant être ajusté en orientant le miroir de



FIGURE 3.1: Dispositif expérimental complet.

fond de cavité situé derrière les deux prismes (cf section 1.1.1.4), qui est monté sur deux cales piezoélectriques contrôlées par un ordinateur (l'ensemble **Pzt CEO** sur le schéma) permettant de modifier indépendamment son orientation horizontale et celle verticale.

Les dimensions spatiales du waist du faisceau sur le miroir de sortie ont été mesurées et sont égales à  $\varpi_{0x}^{las} = 230 \, \mu m$  sur la dimension horizontale et  $\varpi_{0y}^{las} = 255 \, \mu m$  sur la dimension verticale. Le faisceau laser est donc légèrement elliptique et ses dimensions spatiales peuvent être amenées à changer lorsque son spectre change (des variations de l'ordre de 25% ont été observées lorsque le spectre passe d'une largeur de  $50\,nm$  à 100 nm). Afin d'adapter les dimensions de ce faisceau à celles du waist défini par la cavité optique située en aval, deux lentilles sont placées sur son trajet ((b) -  $L_1$  et  $L_2$ ). Le choix de leurs distances focales ainsi que les distances les séparant du laser et de la cavité est explicité dans l'Annexe A. Leurs valeurs, qui dépendent de la géométrie de la cavité utilisée, sont données avec les caractéristiques des deux cavités de ce travail (partie 3.2). Cependant, dans les deux montages réalisés, une fois les focales des deux lentilles fixées, le paramètre d'ajustement le plus fin de la dimension du waist obtenu est la distance séparant  $L_1$  et  $L_2$  (qui reste toujours proche de la somme des deux distances focales). C'est pourquoi une des deux lentilles est montée sur une platine de translation micrométrique (ici  $L_2$ ). Enfin, afin de parfaire l'accord spatial de mode entre le faisceau incident et le mode  $TEM_{00}$  de la cavité deux miroirs de renvoi à 45° sont placés entre les lentilles et la cavité pour que la direction du faisceau soit elle aussi confondue avec le mode de cavité.

Après cet accord de mode, le faisceau laser atteint la cavité optique (c). Deux cavités de finesses différentes ont été utilisées. La première a une finesse modérée égale à 300 tandis que la seconde a une finesse plus élevée, F = 3000. Leurs géométries variant quelque peu (tout en gardant une longueur totale, fixée par  $f_{rep}$ , identique) et la détermination de leur finesse ayant nécessité des mesures différentes, chacun des deux montages optiques fera l'objet d'un exposé plus complet dans la section suivante. Dans les deux cas, les deux miroirs sphériques, de rayon Rc, constituant la cavité sont collés avec de la colle cyanolite sur des actuateurs piezoélectriques annulaires (les montages et les caractéristiques de ces actuateurs Pzt Lent et Pzt Rapide sont détaillés dans la section 3.5.2). L'intensité directement transmise par la cavité est collectée derrière un des miroirs sphériques avec une photodiode (**PD1**) Thorlabs PDA36A ayant un gain maximal de  $2.47\times10^6\,V/W$ pour une bande passante de  $12.5 \, kHz$ . Le second miroir sphérique est quant à lui monté sur une platine de translation micrométrique afin de pouvoir ajuster de manière précise la longueur de la cavité soit pour trouver la longueur correspondant au point magique  $L_0$ , soit pour créer un désaccord  $\Delta L$  par rapport à  $L_0$  de manière à créer un filtrage Vernier du peigne laser.

L'intensité transmise par le miroir coupleur de sortie de la cavité est ensuite envoyée dans le bras de détection Vernier (d). Elle y est dispersée spatialement avec un réseau de diffraction, lui-même monté sur l'axe d'un moteur galvanométrique qui permettra par la suite de balayer horizontalement la position du spectre dans l'espace de manière continue. Si un désaccord  $\Delta L$  existe et reste assez petit pour que  $ISL_V$  reste supérieur à la résolution du réseau, alors un ou plusieurs faisceaux sont diffractés et correspondent aux différentes coïncidences Vernier présentes dans le spectre laser (les limitations en termes de résolution atteignables avec notre montage seront abordées dans la section3.4.1). Un diaphragme placé après le réseau vient sélectionner un seul ordre du Vernier qui est dirigé vers une photodiode à cadrans (**PDcad**, cf section 3.4.2) qui va délivrer un signal proportionnel à l'éloignement du spot Vernier par rapport au centre de la photodiode. Ces écarts sont l'effet soit d'un mouvement du réseau soit d'une variation contrôlée ou d'une fluctuation de la fréquence de l'ordre Vernier. Le signal de **PDcad** sera le signal d'erreur utilisé pour l'asservissement de la position des ordres détaillé section 3.6 et schématisé dans l'encart (e). Par ailleurs, une portion du faisceau incident sur **PDcad** est envoyée vers une photodiode, **PD2**, pour mesurer l'intensité du spot. Afin d'obtenir en parallèle une calibration relative en fréquence du spectre mesuré, une autre portion de ce même faisceau est envoyée sur un étalon solide de basse finesse dont le signal interférométrique est mesuré en réflexion par la photodiode **PD3**.

# 3.2 Cavités optiques

Deux cavités de finesse différente ont été utilisées durant ces travaux. La première, de finesse modérée, a été utilisée pour faire la démonstration de faisabilité du Vernier. L'utilisation de coupleurs d'entrée et sortie de transmissions significatives environ égales à 1% permet d'obtenir des transmissions de cavité maximales très proche de l'unité et donc de bénéficier d'une puissance optimale pour chaque mode transmis. Cependant, la modération de la finesse limite la résolution accessible et augmente par là même la sensibilité de la mesure aux modes transverses. Par la suite, l'expérience a été réalisée avec une cavité de finesse d'un ordre de grandeur plus élevée. Ces deux cavités sont à ondes propagatives réduisant l'encombrement et permettant de s'affranchir de l'utilisation d'un isolateur optique.

Pour caractériser à la fois spatialement et spectralement les modes de ces cavités, on utilise le formalisme de la famille des faisceaux gaussiens. Il permet notamment de déterminer les dimensions et les positions des deux waists de chaque cavité. Connaissant ces caractéristiques, le réglage de l'accord de mode du laser avec la cavité peut être dimensionné et ses performances estimées. Seuls les principaux résultats sont donnés dans cette partie (les calculs complets sont présentés en Annexe A). Par ailleurs, chacune de ces cavités est caractérisée par des mesures expérimentales de finesse et des mesures de dispersion du second ordre sont présentées en Annexe B.

#### 3.2.1 Finesse modérée

#### 3.2.1.1 Dimensions

La première cavité utilisée est une cavité papillon parfaitement symétrique dont une représentation schématique est donnée fig.3.2. Cette parfaite symétrie rend les deux waists de la cavité égaux et ses dimensions ( $81 \, cm \times 20 \, cm$ ) les placent 1.3 cm avant les coupleurs d'entrée et de sortie, dans le sens de propagation de la lumière. De plus, les rayons de courbure des deux miroirs sphériques,  $M_2$  et  $M_4$ , ( $Rc = 3 \, m$ ) induisent des waists de  $\varpi_x = 582.3 \, \mu m$  sur la dimension horizontale et de  $\varpi_y = 585.25 \, \mu m$  sur la verticale, l'ellipticité du mode  $TEM_{00}$  de cavité étant induite par les réflexions non normales du faisceau sur les miroirs sphériques. Ces waists ont alors des distances de Rayleigh égales à 1.33 m.

L'accord de mode doit donc fixer un nouveau waist pour le faisceau issu du laser aux dimensions du waist de cavité et placé  $1.3 \, cm$  avant la surface réfléchissante du coupleur d'entrée (soit  $4 \, mm$  avant le substrat BK7 d'indice  $n_{BK7} = 1.5$  et d'épaisseur  $6 \, mm$ ). Cet accord est réalisé avec deux lentilles sphériques  $L_1$  et  $L_2$  de distances focales respectives  $f_1 = 100 \, mm$  et  $f_2 = 150 \, mm$ .  $L_1$  est placée  $70 \, cm$  après le miroir de sortie de l'oscillateur, les deux lentilles sont séparées de  $25.8 \, cm$  et le waist est situé  $1.652 \, m$  après  $L_2$ . De cette manière, le waist est parfaitement accordé sur sa dimension horizontale à celui de la cavité et souffre d'un désaccord de 7% sur la dimension verticale avec le mode de cavité (en prenant les dimensions du faisceau laser précédemment données, le waist ainsi créé mesure  $625 \, \mu m$  sur sa dimension verticale). Ce réglage permet d'obtenir des accords de mode avec moins de 1% de puissances laser couplées dans les modes TEM d'ordres autres que le fondamental et il permet par ailleurs de limiter le nombre d'optiques présentes sur le trajet du faisceau -sources d'interférences parasites et de pertes par réflexion sur des surfaces non traitées (90.3% de transmission pour deux lentilles contre 81.5% avec quatre lentilles).

Les miroirs utilisés sont des miroirs diélectriques multicouches fabriqués par la société allemande Layertec. Le coupleur d'entrée, de coefficient de transmission égal en moyenne à  $T_{IC} = 1\%$  (les variations du coefficients de réflexion  $R_{IC}$ , données par le constructeur, sont représentées fig.3.3), est un miroir plan à GDD dite "optimisée"  $n^{\circ}100889$ . Le coupleur de sortie (de même numéro mais de spécifications constructeur différentes) est un miroir plan dont les variations de réflectivité ne sont pas connues,  $T_{OC}$  étant aussi donné égal à 1%. Enfin, les miroirs sphériques ( $Rc = 3000 \, mm$ ) ont des réflectivités données supérieures à 99.9% (représentées elles aussi fig.3.3) et sont identiques ( $n^{\circ}106927$ ). La


FIGURE 3.2: Géométrie de la cavité de finesse modérée.

connaissance de ces coefficients de réflexion permet de calculer la transmission maximale attendue de cette cavité  $H_{max} = 0.98$  et une finesse théorique oscillant autour de F = 300.



FIGURE 3.3: Coefficients de réflexion des différents miroirs utilisés. Les données constructeur du coupleur de sortie donnant seulement une valeur de transmission nominale, son coefficient de réflexion est pris constant. La structure oscillante du coupleur d'entrée est induite par une optimisation de sa GDD.

#### 3.2.1.2 Mesure de la finesse

La finesse de la cavité, calculée théoriquement à partir des spécifications données par le constructeur, a aussi été mesurée afin de connaître précisément la longueur effective d'interaction intracavité et ses variations spectrales. Pour cela, le faisceau transmis lorsque la longueur de la cavité est balayée autour du point magique est dispersé spatialement et seule une petite partie est collectée par une photodiode, la largeur de la fente utilisée fixant la résolution de la mesure faite (cf fig.3.4).



FIGURE 3.4: Dispositif expérimental de la mesure de finesse

De cette manière, il est possible de comparer l'intensité transmise par la cavité avant et après le réseau de diffraction (fig.3.5) lorsque la longueur de la cavité est balayée de façon adiabatique. La transmission prise directement en sortie de cavité (a) est fortement déformée par rapport à celle attendue avec ce type de cavité, symétrique par rapport à un PM beaucoup plus intense que ses résonances adjacentes (par exemple, ce genre de transmission est présentée dans la section 2.3.1.2). Cette distortion est due à la GDD intracavité elle-même spectralement dépendante (la mesure expérimentale de la GDD de cette cavité est présentée en Annexe B). Ceci disperse en longueur de cavité le passage des dents laser au PM, avec pour effet de diminuer drastiquement l'intensité du PM observé. La forme générale de tous les passages en résonance est donc à la fois fonction du spectre laser et de la GDD intracavité. Lorsque l'intensité transmise est filtrée spectralement (b), la figure de transmission observée ressemble beaucoup plus à celle connue : la restriction du spectre observé à 1 nm rend l'effet de la GDD négligeable. Cette largeur spectrale peut se déduire du rapport d'intensité entre les pics de transmission successifs, la réduction de la gamme spectrale observée tendant à rendre cette transmission similaire à celle obtenue avec un laser continu où tous les pics ont des intensités égales. Par ailleurs, il est évident que l'accord de mode ne semble pas aussi bon entre le cas dispersé (a) ou non (b). En effet, s'il est possible d'obtenir des accords de mode meilleurs que 99% de couplage dans le mode  $TEM_{00}$  de la cavité pour une longueur d'onde, il est difficile



FIGURE 3.5: Balayage de la longueur de cavité autour de la position du PM avant (a) et (b) après le réseau et la sélection en longueur d'onde

voire impossible d'obtenir cette performance pour l'intégralité du spectre laser qui peut couvrir aisément 80 nm. Les caractéristiques spatiales du mode de cavité dépendant de la longueur d'onde considérée à travers son waist, des variations de l'ordre de 10% sont attendues sur cette valeur selon que l'on considère  $\lambda_{las} = 760 nm$  ou bien  $\lambda_{las} = 840 nm$ .

Une fois l'intensité transmise obtenue pour une zone spectrale étroite, il est possible de mesurer la durée séparant deux pics de transmission successifs et de la diviser par la largeur temporelle du pic de transmission correspondant au PM. Si l'accord des fréquences d'offset est fait, ce qui se traduit par l'égalisation des intensités des deux pics adjacents au PM, alors ce ratio correspond à la finesse de la cavité, la longueur d'onde de mesure étant connue en envoyant une partie du faisceau dans le spectromètre fibré.

La mesure de finesse résultante est présentée fig.3.6. La finesse mesurée varie suivant les mêmes tendances que la finesse théorique autour d'une valeur moyenne de 270, 10% plus faible que celle calculée. Les pertes dues à la présence de dioxygène et de vapeur d'eau de l'air ambiant dans la cavité sont visibles, respectivement entre 750 et 770 nm et entre 790 et 830 nm, et ne seront pas prises en compte dans la finesse utilisée ultérieurement dans le calcul des coefficients d'absorption.



FIGURE 3.6: Finesse mesurée expérimentalement comparée à la finesse théorique ajustée - le coefficient d'ajustement venant soit d'une poussière, soit d'une erreur sur la valeur du coefficient de réflexion de l'OC.

# 3.2.2 Haute finesse

#### 3.2.2.1 Dimensions

La seconde cavité utilisée est encore une cavité papillon, cette fois asymétrique, représentée fig.3.7. La géométrie de la cavité place le premier waist A rencontré par le faisceau laser incident au milieu du segment reliant les coupleurs d'entrée et sortie et le second waist B au milieu des deux miroirs sphériques. Les miroirs sphériques  $M_3$  et  $M_4$  utilisés ici sont les mêmes que pour la cavité précédente et ils fixent les dimensions des deux waists à :

Waist A  $\begin{cases} \varpi_{A0}^{x} = 421.0\,\mu m \\ \varpi_{A0}^{y} = 448.4\,\mu m \end{cases}$ Waist B  $\begin{cases} \varpi_{B0}^{x} = 838.5\,\mu m \\ \varpi_{B0}^{y} = 796.6\,\mu m \end{cases}$ 

L'ellipticité des waists de cette cavité est plus marquée que dans le cas précédent. Elle est induite par les angles de réflexion utilisés sur les miroirs courbes, qui sont considérablement plus grands que dans la cavité à finesse modérée. Ils sont eux-mêmes fixés par l'épaisseur des substrats des coupleurs - plans - d'entrée et sortie de cavité de 3 mm afin de limiter au maximum l'amplitude des interférences parasites du faisceau dans ces substrats. Enfin, les dimensions du waist A compris entre les miroirs d'entrée et de sortie conduisent à une longueurs de Rayleigh de l'ordre de 70 cm.



FIGURE 3.7: Géométrie de la cavité de haute finesse

De même que pour la première cavité, l'accord de mode doit fixer un nouveau waist pour le faisceau issu du laser aux dimensions du waist de cavité. Les deux lentilles sphériques  $L_1$  et  $L_2$  choisies ici ont des distances focales de  $f_1 = 100 mm$  et  $f_2 = 125 mm$ .  $L_1$  est placée 65 cm après le miroir de sortie de l'oscillateur, les deux lentilles sont séparées de 246.7 mm et le waist est situé 1.001 m après  $L_2$ . En Annexe A est présentée la répartition en fréquence de la position des différents modes transverses. Le meilleur couplage sur le mode  $TEM_{00}$  que l'on peut espérer atteindre est de 99%, le restant de la puissance optique étant majoritairement réparti entre les deux modes paires  $TEM_{02}$  et  $TEM_{20}$ .

Les miroirs sphériques utilisés sont les même que pour la première cavité. Les coupleurs d'entrée et de sortie sont des miroirs plans identiques, de coefficient de transmission égal à  $T_{IC} = 0.1\%$ , Layertec  $n^{\circ}108203$ . Avec ces données constructeur, la transmission maximale de la cavité est attendue égale à 0.82% de la puissance incidente et la finesse théorique de cette cavité est égale à 3100 (la courbe de finesse théorique, calculée à partir des réflectivités données par le constructeur, est présentée fig.3.8).

#### 3.2.2.2 Mesure de la finesse

Avec le même montage expérimental que celui présenté fig.3.5, la finesse expérimentale de cette cavité peut être mesurée. Etant donné la valeur de finesse attendue, la mesure en passage adiabatique par le PM devient très lente et trop sujette aux bruits de l'environnement pour être réalisable. Le choix est alors fait de se placer au contraire dans une dynamique de cavité où les effets de ringing sont bien présents et identifiables. De cette manière, en connaissant la vitesse de déplacement de l'actuateur réalisant le balayage en longueur de la cavité, il est possible de réaliser l'ajustement des profils de ringing pour



FIGURE 3.8: Finesse mesurée expérimentalement - en rouge - par l'ajustement du profil temporel du ringing de la cavité.

chaque longueur d'onde qui donne alors accès à la valeur de la finesse, paramètre de cet ajustement. Un exemple pour  $\lambda_{las} = 812 \, nm$  est visible dans l'encart haut de la fig.3.8 et la courbe de finesse résultant de ces mesures est présentée dans l'encart bas de la même figure. La finesse mesurée, tout en étant de l'ordre de grandeur de celle calculée, présente cette fois des écartes significatifs qui ne permettent pas une utilisations fiables de ces mesures. En effet, le calcul de la variation de finesse induite par la présence de l'air ambiant dans la cavité ne permet pas de retrouver des variations aussi marquées. L'analyse des spectres mesurés à haute résolution et présentés dans le chapitre 4 confirmera l'incohérence de cette mesure en présence de pertes moléculaires. La détermination de la finesse par le profil ringing se retrouve dans cette situation en défaut et c'est la courbe constructeur qui sera utilisée dans la suite.

# 3.3 Détection du Vernier

Le faisceau transmis par la cavité est envoyé dans une ligne de détection. L'objectif est alors d'isoler un unique ordre du Vernier et d'en mesurer l'intensité lorsqu'il balaye le spectre du laser.

# 3.3.1 Réseau de diffraction

Le faisceau transmis par la cavité rencontre en premier lieu un réseau de diffraction en réflexion Thorlabs GR 13-1208 gravé de 1200 l/mm et avec un angle de Blaze égal à  $26^{\circ}44'$ . Lorsque l'angle d'incidence du faisceau par rapport à la normale au réseau est égal à cet angle de Blaze, alors l'ordre diffracté -1 revient parfaitement dans la direction du faisceau d'incidence et l'efficacité de diffraction dans cet ordre est maximale. Afin d'avoir accès aux faisceaux diffractés par le réseau correspondant aux ordres Vernier, le faisceau incident arrive sur le réseau avec un angle d'incidence  $\theta_{inc}$  proche de l'angle de Blaze. Proche du réseau, les différents faisceaux diffractés sont indiscernables, quand bien même leur écart en fréquence  $(ISL_V)$  est supérieur au pouvoir résolvant du réseau, à cause de leur forme spatiale gaussienne. Il est en fait possible, connaissant les caractéristiques du réseau ainsi que celles du faisceau incident, de déterminer la résolution maximale atteignables avec un tel montage. Afin de s'affranchir de toutes les sources d'interférences parasites, le montage a été réalisé sans lentille et la résolution atteignable est donc fonction, entre autre, de la dimension du waist de cavité localisé juste avant le coupleur de sortie.

Pour guider le calcul qui va suivre, la diffraction du faisceau est schématiquement représentée fig.3.9. Les angles y sont été exagérés afin de faciliter la représentation et en pratique, le faisceau incident arrive avec un angle  $\theta_{inc} = 24^{\circ}$  sur le réseau, afin que les faisceaux diffractés aient 10° d'écart avec le faisceau incident. Le pouvoir résolvant du réseau  $\nu/\delta\nu$ , indiquant la plus petite différence de fréquence résolvable avec ce réseau, est donné par le nombre de traits du réseau éclairés par le faisceau incident  $N_t$  soit :

$$N_t = d_{res} \times 1200 \, l/mm \tag{3.1}$$

où  $d_{res}$  est déduit de la dimension horizontale du faisceau transmis par la cavité  $\varpi_{inc}$ , dont la valeur dépend de la cavité considérée ( $\varpi_{inc} = 582 \, \mu m$  pour la finesse modérée et



FIGURE 3.9: Représentation de la dispersion de deux coïncidences Vernier.

 $421\,\mu m$  pour la haute finesse), qui conduit à :

$$d_{res} = 2 \times \frac{\varpi_{inc}}{\cos(\theta_{inc})} \tag{3.2}$$

La résolution spectrale du réseau  $\Delta \nu^{res}$  s'écrit alors :

$$\Delta \nu^{res} = \frac{\nu_{las}}{N_t} = \nu_{las} \cdot \frac{\cos(\theta_{inc})}{2 \cdot \varpi_{inc}} \cdot \frac{1}{1200 \ l/mm}$$
(3.3)

qui peut se réécrire en longueur d'onde :

$$\Delta\lambda^{res} = \frac{\lambda_{las}^2}{c} \cdot \Delta\nu^{res} = \lambda_{las} \cdot \frac{\cos(\theta_{inc})}{2 \cdot \varpi_{inc}} \cdot \frac{1}{1200 \ l/mm}$$
(3.4)

Ceci signifie que la plus petite résolution Vernier  $\delta \nu_V^{res}$  atteignable avec ce réseau est à priori égale à  $\Delta \nu^{res}/F$ . La résolution du réseau se traduit par une dispersion angulaire  $\delta \theta_d^{res}$  se déduisant à partir de la relation des réseaux :

$$\sin\theta_d = \sin\theta_{inc} - m \cdot \lambda \cdot 1200 \, l/mm \tag{3.5}$$

qui peut se réécrire, pour l'ordre m = -1 :

$$\theta_d = \arcsin\left(\sin\theta_{inc} + \lambda \cdot 1200\,l/mm\right) \tag{3.6}$$

En différentiant l'Eq.3.6, on obtient l'expression :

$$\frac{d\theta_d}{d\lambda} = \frac{1200\,l/mm}{\sqrt{1 - (\sin\theta_{inc} + \lambda \cdot 1200\,l/mm)^2}} = \frac{1200\,l/mm}{\cos\theta_d} \tag{3.7}$$

qui nous permet d'exprimer la dispersion angulaire  $\delta \theta_d$  induite par un écart en longueur d'onde  $\delta \lambda$ :

$$\delta\theta_d^{res} = \frac{1200 \, l/mm}{\cos\theta_d} \cdot \delta\lambda^{res} = \frac{\lambda}{2 \cdot \varpi_{inc}} \cdot \frac{\cos\theta_{inc}}{\cos\theta_d} \tag{3.8}$$

La différence de direction angulaire entre deux éléments spectraux les plus proches est maintenant établie. Cependant, ces deux éléments spectraux sont aussi des faisceaux gaussiens se propageant depuis le réseau et il est nécessaire de comparer la dispersion angulaire donnée par la résolution du réseau  $\delta \theta_d^{res}$  à la divergence des faisceaux gaussiens considérés  $\theta^G$ .

Cette divergence gaussienne est reliée à la dimension du waist du faisceau diffracté par la relation :

$$\theta^G = \frac{\lambda}{\pi \cdot \varpi_d} \tag{3.9}$$

Elle peut se réécrire en fonction du waist du faisceau incident comme :

$$\theta^G = \frac{\lambda}{\pi \cdot \varpi_{inc}} \cdot \frac{\cos\theta_{inc}}{\cos\theta_d} \tag{3.10}$$

Dans un cas limite représenté fig.3.10, les faisceaux diffractés sont parfaitement contigus lorsque leurs fréquences respectives sont séparées de  $\Delta \nu^{res}$ . Cela correspondrait à l'égalité :  $\delta \theta_d^{res} = 2 \times \theta^G$ .

Cependant, le waist est défini en intensité comme étant la dimension radiale pour laquelle l'intensité ne vaut plus que  $1/e^2$  soit 13.5% de sa valeur maximale. Afin de considérer que deux faisceaux sont clairement distincts spatialement, il est nécessaire que leurs directions angulaires soient différentes d'au moins  $4 \times \theta_G$ . Dans ce cas, l'intensité d'un faisceau a été atténué d'un facteur  $1/e^{32}$  lorsqu'il atteint le centre du second faisceau. Ceci définit une résolution du réseau liée à la divergence des faisceaux :

$$\Delta \nu^{G} = \frac{\nu}{\lambda} \cdot \delta \lambda_{G}$$

$$= \frac{\nu}{\lambda} \cdot \delta \theta_{G} \cdot \frac{\cos \theta_{d}}{1200 \, l/mm}$$

$$= 4 \cdot \frac{\nu_{las}}{\pi \varpi_{inc}} \cdot \frac{\cos \theta_{inc}}{1200 \, l/mm}$$
(3.11)

La résolution Vernier  $\delta \nu_V^G$  atteignable est encore une fois donnée par  $\Delta \nu^G/F$ .



FIGURE 3.10: Représentation de la dispersion de deux coïncidences Vernier dans le cas limite  $\delta \theta_d^{res} = 2 \times \theta^G$ .

Expérimentalement, le réseau est placé directement en sortie de la cavité de manière à être encore dans la zone de Rayleigh des deux waists considérés ( $\varpi_{0B}$  dans le cas de la finesse modérée et  $\varpi_{0A}$  dans le cas de la haute finesse), ce qui permet d'appliquer l'analyse précédente. Pour un angle d'incidence  $\theta_{inc} = 24^{\circ}$ , l'Eq.3.11 nous donne une résolution limitée par la divergence gaussienne atteignable pour la cavité de finesse modérée ( $F \simeq 270$ ,  $\varpi_{0B} = 582 \,\mu m$ ) égale à  $2.3 \,GHz$  à  $800 \,nm$ , tandis qu'elle serait de 900 MHz si elle était limitée par le pouvoir résolvant du réseau. Le même calcul pour la cavité de haute finesse ( $F \simeq 2500$ ,  $\varpi_{0A} = 421 \,\mu m$ ) conduit à une résolution maximale  $\delta \nu_V^{G} = 340 \,MHz$  tandis que  $\delta \nu_V^{res} = 130 \,MHz$ . Ces limites peuvent être diminuées si nécessaire en augmentant l'angle d'incidence sur le réseau mais cela se fait au détriment d'une diminution de puissance optique, l'efficacité de diffraction du réseau étant elle aussi diminuée. Enfin, ce réseau est monté sur un moteur galvanométrique G300 de Cambridge Technology qui permet de contrôler finement sa rotation.

#### 3.3.2 Photodiode à cadrans

Les différents faisceaux issus de la diffraction des ordres Vernier par le réseau sont filtrés spatialement à l'aide d'un diaphragme de manière à n'avoir qu'un seul faisceau qui se dirige ensuite vers la photodiode à cadrans. Celle-ci est un composant OPR2100 de TTelectronics - OPTEK Tecnology constitué de six surfaces photosensibles, dont la géométrie et les dimensions sont données fig.3.11. En pratique, deux de ses surfaces seulement sont utilisées et la différence des deux signaux qu'elles génèrent délivre un



FIGURE 3.11: Représentation de la photodiode à cadrans.

signal en forme de dérivée dont l'amplitude est proportionnelle à l'éloignement du spot du centre de la photodiode. Par ailleurs, la somme des deux courants (convertis en tension) doit permettre une mesure directe de la puissance lumineuse du spot Vernier simultanément à celle de sa position. Cependant avec ce modèle, la distance séparant les deux surfaces photosensibles est trop importante pour éviter l'apparition d'un creux à la position centrale tel que représenté fig.3.10. Mis à part la perte de signal que cela implique, cet effet rend l'intensité mesurée sensible à la qualité du contrôle de la position du spot puisque toute fluctuation résiduelle de la position conduit alors automatiquement à une fluctuation de l'intensité uniquement due à son déplacement spatial, cette sensibilité étant directement proportionnelle à la dimension de l'intervalle entre les deux surfaces rapporté à la dimension du spot. La mesure de la puissance d'un ordre Vernier n'a donc pu être optimale avec cette photodiode à cadrans, ce qui nous a conduit à préférer, malgré la perte de puissance optique, l'emploi d'une lame séparatrice 50/50% placée juste avant afin de faire cette détection avec une photodiode Thorlabs PDA36A ayant une surface sensible de  $13 \, mm^2$ . L'utilisation d'un autre modèle tel que le Hamamatsu S3096-02 où l'écart entre surfaces n'est que de  $30 \,\mu m$  (contre 100  $\mu m$  avec le modèle actuel) permettrait l'optimisation de la puissance des signaux à la fois pour l'erreur en position et pour l'intensité absolue.

La sensibilité du signal au déplacement du spot par rapport au milieu des surfaces est donnée par la puissance maximale détectée par chacune des deux surfaces photosensibles. Ceci implique que le meilleur discriminant en position sera obtenu lorsque la dimension totale du spot est égale à la largeur d'une surface soit  $1.34 \, mm$ . De même, pour que le signal délivré soit une image fidèle du mouvement de l'ordre Vernier d'intérêt, il est nécessaire que celui-ci soit rigoureusement seul sur les surfaces et que celles-ci soient aussi éloignées que possible du réseau puisqu'une variation de la direction du spot conduira à



FIGURE 3.12: Montage électronique réalisant la conversion et l'amplification de la différence des photocourants

un écart au centre de la photodiode d'autant plus grand que cette dernière est éloignée. C'est alors la stabilité du réseau qui impose la distance.

Les six surfaces de ce modèle sont montées avec leurs propres cathodes, ce qui nous permet de convertir en tension et d'amplifier directement la différence des deux photocourants (montage fig.3.12). L'amplificateur opérationnel (AOP) LT1007 (Linear Technology) a été choisi en raison de son faible bruit et réalise la conversion courant/tension avec le gain  $V_S = (i_2 - i_1) \cdot 1 M\Omega$  qui induit une bande passante de détection légèrement inférieure à 100 kHz - dans tous les cas bien plus élevée que les bandes passantes d'asservissement, limitées par la fréquence de résonance de l'actuateur piezoélectrique utilisé.

Au final, la photodiode à cadrans permet de fournir un signal d'erreur utilisé pour rendre fixe dans l'espace le faisceau issu d'un ordre Vernier. Une position donnée de l'angle du réseau de diffraction fixe alors la fréquence de l'ordre Vernier, l'ensemble des fluctuations du peigne et de la cavité étant stabilisé.

# 3.3.3 Calibration en fréquence

Dans la suite, la photodiode à cadrans sert à asservir la position du spot Vernier au centre de sa surface, aussi durant la rotation du réseau. De ce fait, la fréquence centrale de la coïncidence Vernier correspondant à ce spot va balayer le spectre laser. Cependant, le choix, fait dans ce travail, de réaliser nos mesures Vernier dans des configurations de filtrage basse résolution ne permet pas de bénéficier de la calibration relative (si  $f_{rep}$  est stabilisée) voire absolue (si  $f_{rep}$  et  $f_{CEO}$  sont stabilisées) en fréquence qu'apporte le peigne femtoseconde. Il est alors nécessaire de calibrer le balayage en fréquence du réseau avec une mesure supplémentaire. Pour cela, une partie significative du faisceau (70%) est envoyée sur un barreau de BK7. Le signal réfléchi sur cet étalon de basse finesse est celui du faisceau réfléchi sur la face d'entrée du barreau (R = 4%) interférant avec celui

réfléchi sur la face de sortie (R = 4%). Ceci permet d'obtenir un signal sinusoïdal dont la périodicité en nombre d'onde est déduite de l'épaisseur du barreau  $e_{Et}$ :

$$\Delta \sigma_{Et} = \frac{1}{2 \cdot n_{BK7} \cdot e_{Et}} \text{ avec } n_{BK7} = 1.5$$
(3.12)

Cette périodicité permet de réaliser une calibration relative du mouvement du miroir, la calibration absolue étant faite pour le moment en reconnaissant une raie d'absorption du spectre et en lui adressant le nombre d'onde central donné par la base de données HITRAN [67] pour cette raie.

L'épaisseur du barreau étalon doit pouvoir être ajustée à la résolution de la mesure. En effet, lorsque la résolution du Vernier augmente, la plage spectrale qu'il est possible de couvrir sur une durée déterminée diminue si la mesure est adiabatique. L'intervalle de temps séparant deux maxima de la figure d'interférence de l'étalon, s'il reste identique, augmente donc proportionnellement à la résolution Vernier. Ceci a pour effet de rendre la calibration sensible aux fluctuations de plus en plus lentes d'amplitudes plus importantes et affecte d'autant plus la linéarité de la calibration. Pour autant, utiliser systématiquement l'étalon le plus épais, qui donne accès à l'échelle de fréquence la plus précise, n'est pas nécessairement une bonne idée : lorsque la résolution du Vernier devient du même ordre de grandeur que la périodicité de l'étalon, le contraste de la figure d'interférence se réduit, le signal étant déjà faible. Dans ce travail, trois étalons différents ont été utilisés : une lame de microscope d'épaisseur égale à  $1 mm (\Delta \sigma_{Et} = 3.3 cm^{-1} - \Delta \nu_{Et} = 100 GHz)$ , un premier barreau d'épaisseur  $5 mm (\Delta \sigma_{Et} = 0.67 cm^{-1} - \Delta \nu_{Et} = 20 GHz)$  et un second de  $6.5 mm (\Delta \sigma_{Et} = 0.5 cm^{-1} - \Delta \nu_{Et} = 15 GHz)$ .

# 3.3.4 Procédure Vernier

Le filtrage Vernier est mis en place en suivant une procédure relativement simple.

Dans un premier temps, la longueur de la cavité est balayée en envoyant un signal de commande sinusoïdal à l'actuateur **PZT Lent**. En observant la fraction de l'intensité transmise, puis dispersée, collectée par la photodiode **PD2**, la longueur moyenne de la cavité est ajustée à sa valeur au PM  $L_0$  en translatant le miroir courbe de la cavité monté sur une platine micrométrique. La figure de transmission obtenue est alors similaire à celle présentée fig.3.13, la fréquence d'offset étant ensuite ajustée de manière à ce que les intensités des deux pics de transmission de part et d'autre du PM soient égales. Enfin, l'accord de mode est fait soit en optimisant la distance entre les lentilles  $L_1$  et  $L_2$  si les modes transverses sont pairs soit en ajustant la direction du faisceau incident sur la cavité grâce aux deux miroirs d'injection de la cavité **M1** et **M2** si les modes sont impairs.



FIGURE 3.13: Intensité transmise dans la portion de spectre collectée par la photodiode **PD2** lorsque la longueur de la cavité est balayée autour du point magique

Une fois la transmission au point magique optimisée, le désaccord Vernier est créé en translatant de nouveau le miroir monté sur platine de translation d'une distance  $d_{miroir}$ égale à la moitié du désaccord Vernier absolu  $\Delta L = \epsilon_V \times L_0$  (la translation du miroir d'une distance d quelconque entraîne un agrandissement ou un rétrécissement de la longueur de la cavité de  $2 \times d$ ). Cette distance est fixée par la finesse de la cavité, sa longueur au PM ainsi que par la résolution du filtrage Vernier désirée. Il est alors nécessaire de changer le gain de la photodiode PD2 (Thorlabs PDA36A) passant du gain le plus faible -  $1.51 \times 10^3 V/A$  position 0dB - utilisé pour observé le PM, à un gain plus élevé tout en s'assurant que la bande passante de détection reste du même ordre de grandeur que celle de la cavité, soit environ  $300 \, kHz$  pour la cavité à finesse modérée et  $40 \, kHz$  pour la cavité à haute finesse, afin de ne pas déformer le signal transmis par la cavité. La fig.3.14 présente d'une part l'intensité mesurée par la photodiode **PD2** pour un désaccord Vernier relatif  $\epsilon_V = 4.5 \times 10^{-5}$  lorsque la longueur de la cavité est balayé, d'autre part le signal de position délivré par la photodiode à cadrans. Le réseau étant fixe, les deux photodiodes captent continuellement l'intensité transmise dans la même portion du spectre. Le signal devient non nul au passage des différents ordres Vernier dans cette fenêtre spectrale. Comme vu précédemment, le changement de longueur de cavité nécessaire pour que la coïncidence Vernier suivante arrive à la place de l'actuelle est égal à la longueur d'onde centrale de la fenêtre spectrale considérée, soit un changement de longueur de l'actuateur **PZT Lent** égale à  $\lambda/2$ . Cette distance nous servira par la suite de repère pour calibrer la sensibilité en terme de déplacement de cavité du signal d'erreur en position de **PDcad**. Fig.3.14, les pics de transmission dus au passage des ordres Vernier successifs ont des formes similaires seulement affectées par leur placement dans la rampe sinusoïdale de la commande du PZT (le passage est fait plus lentement



FIGURE 3.14: Intensités et positions des spots Vernier successifs lorsque la longueur de la cavité est balayée pour un désaccord relatif  $\epsilon_V = 4.5 \times 10^{-5}$ 

lorsque les ordres Vernier sont au début ou à la fin du balayage). Le signal délivré par **PDcad** correspond bien au déplacement des spots Vernier dans l'espace : le signal de position devient non nul lorsque l'intensité du spot commence à augmenter, il diminue à nouveau jusqu'à atteindre zéro lorsque l'intensité du spot est maximale et continue sa décroissance vers des valeurs négatives lorsque le spot Vernier quitte la photodiode **PD2**. Lorsque les deux photodiodes sont désalignées, le croisement du signal de position de **PDcad** avec l'axe 0V ne correspond plus au maximum du pic d'intensité de **PD2**. Cela signifie que les deux photodiodes ne collectent plus exactement la même plage spectrale. Il est alors nécessaire de déplacer l'une des deux photodiodes de manière à retrouver des signaux similaires à ceux présentés ici.

Par ailleurs, si ce n'est pas la longueur de cavité qui est balayée mais la position angulaire du réseau grâce au moteur galvanométrique, les signaux de position et d'intensité mesurés sont l'image du peigne Vernier (cf fig.3.15). Dans ce cas, l'intensité des pics de transmission ainsi que l'amplitude du signal de position sont alors pondérées par l'enveloppe du spectre laser et de la réponse des miroirs constituant la cavité. Cette observable permet de centrer le balayage du **Galvo** sur la fréquence centrale du spectre ainsi que de déterminer le nombre  $N_S$  de spots présents dans le spectre laser, dont on connaît la largeur  $\Delta \nu_{las}$ , avec la résolution  $\delta \nu_V$  souhaitée puisque  $N_S = \Delta \nu_{las}/(F \times \delta \nu_V)$ .

Finalement, le système est prêt pour démarrer l'asservissement de la position du spot



FIGURE 3.15: Intensités et positions des spots Vernier successifs lorsque la position du réseau est balayée pour un désaccord relatif  $\epsilon_V = 4.5 \times 10^{-5}$ 

Vernier au centre de **PDcad**, agissant sur la longueur de la cavité grâce aux deux actuateurs **PZT Lent** et **PZT Rapide**. Ensuite, lorsque la rotation du réseau démarre, l'asservissement va maintenir le spot Vernier au milieu de **PDcad**, bien que la fréquence centrale de cette coïncidence soit en train de décrire le spectre laser.

# 3.4 Asservissement

Le signal de position du spot Vernier délivré par la photodiode à cadrans est utilisé comme signal d'erreur dans une boucle d'asservissement. Comme cela a été abordé dans la section 2.3.1.4, toute fluctuation d'un des trois paramètres du peigne Vernier ( $\Delta L, f_{rep}$ et  $\delta \omega_0$ ) se traduit par un changement de la fréquence centrale des coïncidences et donc par un déplacement spatial des spots Vernier que la photodiode à cadrans détecte. Par ailleurs, une action sur un seul de ces trois paramètres permet de corriger l'ensemble de ces variations pour le spot centré dans la photodiode à cadrans et ici, nous avons fait le choix de réaliser cette correction sur la longueur de cavité par le biais des deux actuateurs piezoélectriques collés derrière les deux miroirs sphériques de la cavité. Les variations de position du réseau, contrôlées ou non, ont alors pour effet de changer la fréquence sur laquelle ce contrôle est réalisé et d'entraîner un ajustement de la longueur de cavité. Ceci implique que, lorsque la rotation du réseau est faite de manière contrôlée, une coïncidence peut balayer le spectre laser, mais aussi que toute vibration du montage du réseau se traduit par une instabilité de la fréquence de l'ordre Vernier. Pour minimiser cet effet, le réseau et le moteur galvanométrique sont montés sur une monture optique la plus lourde possible n'offrant aucun degré d'ajustement une fois fixée afin de lester au maximum la structure.

L'outil mathématique d'analyse spectrale le plus pertinent dans les problématiques d'asservissement est la densité spectrale de bruit (DSB). Numériquement, il s'agit de décomposer le signal considéré en une série de Fourier normalisée par la résolution spectrale df de chaque élément de la DSB. Pour un signal enregistré sur une durée  $N \times dt$  où N est le nombre de points mesurés et dt l'intervalle de temps entre points consécutifs (df est alors égale à  $\frac{1}{N \times dt}$ ), la DSB est définie par :

$$DSB(f) = \frac{1}{\sqrt{df}} \cdot \sum_{n=0}^{N-1} \left( S(t_k) \cdot e^{-i \cdot 2\pi f \cdot t_k} dt \right)$$
(3.13)

Les DSB sont généralement représentées en échelles logarithmiques sur leur deux axes, où un bruit caractérisé par une DSB proportionnelle à 1/f est caractérisé par une droite de pente égales à -1.

# 3.4.1 Principe

Le principe de fonctionnement de cet asservissement est représenté schématiquement fig.3.16. Lorsqu'un des paramètres du peigne Vernier varie, la fréquence centrale de la coïncidence Vernier considérée change et le spot est translaté spatialement d'une distance  $\epsilon$ . Celle-ci est détectée par la photodiode à cadrans qui la convertit en tension avec une sensibilité  $S_{det}$ . Le signal ainsi généré sert de signal d'entrée à la cascade d'intégrateurs (Int) et/ou proportionnels intégrateurs (PI) de gain en boucle ouverte G(f) qui génère un signal de correction qui peut être amplifié en sortie (Amp) avant d'être envoyé sur l'actuateur PZT de fontion de transfert  $H_{PZT}$  qui réalise physiquement la correction de la longueur de la cavité. Le montage Vernier convertit enfin ce changement de longueur de cavité en déplacement du spot d'intérêt par rapport au centre de la photodiode à cadrans, modifiant ainsi le signal d'erreur mesuré (en le rapprochant de zéro si la boucle est correctement dimensionnée). On parle alors de circuit de rétroaction ou de boucle d'asservissement fermée, la boucle ouverte s'arrêtant à l'actuateur PZT sans prendre en compte la modification de l'erreur due à la correction. Le gain en boucle ouverte d'un tel schéma d'asservissement est alors défini par :

$$G_{BO}(f) = S_{det}(f) \cdot G(f) \cdot Amp \cdot H_{PZT}(f)$$
(3.14)



FIGURE 3.16: Principe d'asservissement en boucle fermée

Le gain en boucle fermée tient compte de la rétroaction et se déduit de  $G_{BO}$  de la manière suivante :

$$G_{BF}(f) = \frac{G_{BO}(f)}{1 + G_{BO}(f)}$$
(3.15)

Le dimensionnement de la boucle d'asservissement consiste à caractériser tous les éléments présents sur la boucle afin d'ajuster G(f), le gain de l'intégrateur de correction, de manière à ce que le gain en boucle fermée du circuit de correction soit égal à 1 sur la plage spectrale la plus grande possible.

Pour cela, la DSB du signal d'erreur en position lorsqu'aucun asservissement n'est mis en place (seules les dérives lentes de la position du spot sont compensées par l'expérimentateur afin que le spot ne sorte pas de la surface du détecteur) est mesurée et est présentée fig.3.17. Elle y est convertie en unité de déplacement de PZT (son unité sur la fig.3.17 est  $[nm/\sqrt{Hz}]$  alors que la mesure brute est en  $[V/\sqrt{Hz}]$ ) grâce à la détermination de la sensibilité de la **PDcad** lorsque la longueur de cavité est balayée (cf section 3.4.4). L'erreur de la cavité libre a un comportement en 1/f sur lequel viennent



FIGURE 3.17: Densité spectrale de bruit du signal d'erreur sans asservissement

s'additionner trois résonances (marquées par les flèches verticales) dues à la table optique sur laquelle le montage est fait. La DSB de la **PDcad** dans le noir (convertie elle aussi en  $[nm/\sqrt{Hz}]$ ) indique la limite de bruit de la mesure correspondant à la valeur constante de la DSB du signal d'erreur au-delà de  $10 \, kHz$ . La correction de ces fluctuations doit rendre la DSB du signal d'erreur aussi proche que possible du bruit du détecteur.

### 3.4.2 Réponse des actuateurs piezoélectriques

Une fois quantifié le bruit à corriger, il est nécessaire de connaître les caractéristiques des actuateurs qui vont être utilisés pour réaliser physiquement la correction sur le système, notamment la position spectrale de leur première résonance ainsi que son amplitude. La résonance mécanique entraînant un déphasage de la réponse de l'actuateur de  $\pi$ , il est nécessaire de cesser de corriger les fluctuations du système avant cette fréquence particulière pour éviter d'accentuer, plutôt que de corriger, toutes celles qui sont plus rapides.

Ici, ce sont deux actuateurs piezoélectriques PICA Thru Ring Actuators de Physik Instrumente (PI) GmbH : un P-016.05H dont la résonance à vide est donnée à  $88 \, kHz$  de déplacement maximum égale à  $10 \, \mu m$  pour un signal de  $1000 \, V$  à ses bornes, et un P-016.00H dont la résonance à vide est donnée à  $144 \, kHz$  pour un déplacement maximum de  $5 \, \mu m$  toujours pour  $1000 \, V$ . Ce sont tous deux des actuateurs cylindriques annulaires, de manière à avoir accès au faisceau transmis par les miroirs de cavité qu'ils déplacent.

#### 3.4.2.1 Montage Michelson

Chacun des deux actuateurs a été caractérisé à la fois en amplitude et en phase grâce à un montage Michelson représenté fig.3.18. Un faisceau laser continu polarisé est rendu divergent avec une lentille de courte focale puis séparé en deux faisceaux similaires grâce à une lame séparatrice 50%/50%. Le faisceau transmis par la séparatrice est réfléchi sur lui-même par un miroir métallique collé sur un haut parleur (Miniature Speaker  $8\Omega$ , 0.25 W de diamètre 29 mm - RadioSpare Components) dont la position peut être contrôlée au  $\mu m$  près grâce à une alimentation continue ajustée par l'expérimentateur. Le faisceau réfléchi à 90° par la lame est réfléchi par le miroir collé sur le piezo testé monté de la même manière que dans la cavité optique de façon à prendre en compte l'influence de l'environnement dans notre caractérisation. Les deux faisceaux se recombinent derrière la lame séparatrice pour créer une figure d'interférence en anneaux sur la surface de la photodiode. Lorsque la longueur d'un des deux bras est balayée sur plusieurs  $\mu m$ , les franges défilent sur la photodiode et leur périodicité spatiale est donnée par la longueur d'onde du laser utilisé. Lorsque ce balayage est coupé, l'expérimentateur



FIGURE 3.18: Schéma du dispositif expérimental de caractérisation des actuateurs PZT

ajuste la position du haut-parleur pour que le signal de la photodiode soit à mi-pente d'une frange de manière à ce que tout déplacement du miroir testé se traduise par un changement linéaire de tension mesurée, qui peut ensuite être converti en déplacement.

Un signal sinusoïdal, de fréquence contrôlée et d'amplitude inférieure à 1V, est envoyé aux bornes de l'actuateur en même temps qu'à une carte d'acquisition. De cette manière, la photodiode enregistre le déplacement des franges correspondant au mouvement du piezo et, tant que le signal sinusoïdal qui en résulte reste dans la partie linéaire autour de la mi-pente d'une frange, il est possible de le convertir en déplacement du piezo. En parallèle, le signal de commande du piezo est lui aussi enregistré afin de mesurer toutes ses altérations en amplitude ou en phase dues à son couplage avec l'actuateur piezo, notamment lorsque celui-ci entre en résonance. Une fois ces deux signaux enregistrés, leurs DSB respectives sont calculées. Comme la fréquence du signal de consigne est connue, il est possible d'extraire directement l'amplitude et la phase du signal à cette fréquence pour ces deux signaux. Leur rapport donne accès au facteur de conversion  $H_{PZT}$  en nm/V tandis que la différence des phases permet de connaître le déphasage de la réponse de l'actuateur à la fréquence de la commande. L'incrémentation de la valeur de cette fréquence permet de déterminer la réponse de l'actuateur testé, la résolution de la mesure étant donnée par l'inverse du temps auquel l'actuateur est soumis à la commande de fréquence f avant de passer à la suivante.

Les caractéristiques mesurées pour les deux actuateurs utilisés sont présentées fig.3.19 (a) et (b). La première est la caractéristique de l'actuateur **PZT Lent**. Il s'agit du



FIGURE 3.19: Caractéristique en phase et en amplitude des actuateurs **PZT Lent** (a) et **PZT Rapide** (b)

P-016.05H (de fréquence de résonance propre  $88 \, kHz$ ) collé, avec une colle cyanolite, au miroir sphérique sur une de ses faces et sur une bague d'acier sur l'autre face. La rigidité de ce montage induit un fort couplage de la vibration avec sa monture et réduit très fortement la fréquence de la première résonance puisqu'elle est mesurée à 9 kHz. Cependant, cela n'a pas d'importance ici car cet actuateur sera par la suite utilisé pour réaliser les corrections des dérives lentes de grandes amplitudes. Il sera par ailleurs utilisé avec un amplificateur haute tension PI E508 dont la bande passante est égale à quelques kHz, trop faible pour pouvoir amplifier un signal de commande à 9 kHz.

Le second actuateur sera utilisé pour réaliser les corrections rapides de petites amplitudes sur le système. Il doit présenter la résonance la plus élevée possible en fréquence avec une amplitude la plus petite possible. C'est pourquoi il a été choisi avec une fréquence de résonance propre la plus élevée possible. Il est ensuite possible de réaliser un montage isolant au mieux l'actuateur de l'environnement en l'enserrant dans une monture à trois points comme celle décrite dans [68]. En réalisant ce montage, la fréquence de résonance obtenue est égale à  $65 \, kHz$  pour une amplitude de résonance environ égale à 50 fois la valeur de  $H_{PZT}$  hors résonance ( $3.2 \, nm/V$ ).

### 3.4.2.2 Filtres Notch

Afin de pouvoir avoir une bande passante d'asservissement la plus élevée possible, il est nécessaire que le déphasage atteigne 90° pour la fréquence la plus élevée possible tout en gardant un gain le plus faible possile pour cette fréquence. Ceci signifie que l'amplitude de la résonance doit être petite. Comme il n'est pas simple d'aplatir la réponse d'un actuateur piezoélectrique de manière mécanique (la seule réalisation d'un tel actuateur [69] est très complexe), il est possible d'ajouter en amont du **PZT Rapide** des filtres coupe-bande (ou notch filters en anglais) qui ont des caractéristiques présentant en amplitude une forme d'antirésonance à une fréquence ajustable [70]. Cette chute piquée en amplitude s'accompagne cependant d'un saut de phase qui vient s'accumuler au retard de phase déjà existant.

La caractéristique du fitre réalisé est présentée fig.3.20. Il est composé d'un enchaînement de deux filtres coupe-bande dont les fréquences de coupure ont été ajustées semi-empiriquement, l'existence d'un couplage entre les deux filtres rendant la prédiction de la fréquence de coupure effective précise difficile. La caractéristique de l'actuateur **PZT Rapide** précédé des deux filtres est présentée fig.3.21. La résonance à  $65 \, kHz$  redescend au même niveau que la partie constante à basse fréquence de la caractéristique. La nouvelle fréquence de coupure est toutefois plus faible que celle de la résonance puisque le déphasage atteint désormais 90° à  $21 \, kHz$ . Cette fréquence constitue cependant une bande passante acceptable pour notre circuit de correction puisqu'elle correspond à la fréquence pour



FIGURE 3.20: Caractéristique en phase et en amplitude de la cascade des deux filtres coupe-bande



FIGURE 3.21: Caractéristique en phase et en amplitude de l'actuateur **PZT Rapide** précédé des filtres Notch

laquelle la DSB du signal d'erreur de la cavité non asservie rejoint celle du détecteur dans le noir (cf fig.3.17).

# 3.4.3 Dimensionnement du circuit d'asservissement

#### 3.4.3.1 Asservissement rapide

L'asservissement rapide est réalisé électroniquement en faisant passer le signal d'erreur issu de la photodiode à cadrans dans un montage AOP amplificateur à gain variable puis dans un intégrateur simple de gain unitaire égal à  $15 \, kHz \, (R = 1 \, k\Omega \, \text{et} \, C = 10 \, nF)$ , imposé par le montage des filtres coupe-bande associés à l'actuateur **PZT Rapide**. Le gain de l'amplificateur est ajusté à l'aide d'un potentiomètre lorsque l'asservissement est en marche de manière à être légèrement inférieur au gain limite pour lequel le système devient oscillant. Dans le cas de l'asservissement rapide, le signal de correction produit est envoyé directement aux filtres coupe-bande sans passer par un amplificateur supplémentaire. Le facteur Amp vaut 1 dans ce cas, et la caractéristique de l'actuateur à considérer est celle présentée fig.3.21.

#### 3.4.3.2 Dérives lentes

Les dérives lentes sont corrigées par l'actuateur **PZT Lent**. L'asservissement lent utilise le signal de correction rapide comme signal d'erreur. Son rôle est donc de garder la correction rapide proche de zéro afin qu'elle ne prenne pas des valeurs en-dehors de la gamme de tension définie par les AOP utilisés soit +/-15V. La correction rapide est envoyée dans une circuit intégrateur pur de faible gain unitaire ( $R = 10 k\Omega$  et  $C = 1 \mu F$  donnent  $f_c = 16 Hz$ ) suivi ici encore d'un amplificateur à gain variable qui permet un ajustement fin de cette fréquence. Ce signal est enfin sommé à une tension constante égale à 5V puis forcé à rester compris entre 0 et 10V afin de ne pas envoyer sur l'amplificateur haute tension (Amp = 100) une commande supérieure à la limite de l'actuateur (1000 V).

De plus, afin de ne pas être obligé de trop augmenter la bande passante de l'intégrateur lent, le signal de correction lente est sommé avant l'amplificateur haute-tension avec le sinus du balayage de réseau, si le balayage est en marche, adapté en amplitude et en phase. On appellera par la suite ce signal le feedforward (signal d'anticipation). En effet, l'asservissement rapide ne passe pas par un amplificateur haute-tension (pour rester rapide) et ne peut donc pas compenser des déplacements importants. Pour qu'il reste centré autour de zéro et dans la gamme de tension qui lui est accessible, il serait nécessaire d'augmenter la bande passante de l'asservissement lent, augmentant par là l'instabilité potentielle du circuit (qui partira plus facilement en oscillations lors d'un changement de gain par exemple).

## 3.4.4 Performances

#### 3.4.4.1 Système statique

Lorsque l'asservissement est en marche sans que la rotation du réseau soit activée, les DSB du signal d'erreur et de correction rapide sont enregistrées et sont présentées fig.3.22. Celles-ci ont été converties en unité de déplacement du **PZT Rapide** de manière indépendante en utilisant d'une part la caractéristique de l'actuateur fig.3.21 et d'autre part en calibrant au préalable le signal d'erreur. La fréquence de coupure observée expérimentalement correspond à l'intersection des deux DSB et est égale à  $15 \, kHz$ . La DSB du signal de correction rapide est constante à l'origine et reflète ainsi la présence de l'asservissement lent qui réalise une partie des corrections à ces fréquences.



FIGURE 3.22: DSB du signal d'étalon lorsque le réseau est statique

De même, la DSB du signal d'étalon a été réalisée en se plaçant à mi-frange d'une oscillation à l'aide d'un contrôle manuel de la tension appliquée au moteur galvanométrique. Elle est tracée fig.3.23, où elle a été convertie en  $MHz/\sqrt{Hz}$  après calibration du signal d'étalon. Elle se décompose en trois grandes parties. La première couvre de l'origine jusqu'à 200 Hz où la DSB a un comportement en 1/f, traduisant les fluctuations d'origine mécanique du montage du réseau sur la table optique, cette dépendance en 1/f n'étant pas présente sur la DSB du signal d'erreur. La deuxième partie concerne la plage où la DSB est constante (de 200 Hz à 15 kHz) et où elle est le reflet de la stabilité spectrale induite par l'asservissement de la position du spot. Enfin, la troisième concerne les



fréquences supérieures à  $15 \, kHz$  où la DSB diminue, comportement attribué à la faible bande passante de la photodiode mesurant le signal d'étalon.

FIGURE 3.23: DSB du signal d'étalon solide d'épaisseur 5 mm lorsque le réseau est statique pour une résolution Vernier égale à 1 GHz (cavité de haute finesse).

A partir de cette courbe, il est possible de déduire la stabilité en fréquence du spot Vernier. En effet, la calibration en fréquence des spectres Vernier, qui sera faite ultérieurement, est insensible à toutes les fluctuations de fréquence du spot se produisant à des fréquences inférieures à celle donnée par l'intervalle de temps séparant deux maxima successifs de l'étalon (estimée à 3 kHz avec un étalon de 5 mm d'épaisseur et une résolution de  $1\,GHz$ ), celles-ci étant prises en compte dans la calibration en fréquence. Par ailleurs, toutes les fluctuations se produisant plus rapidement que la bande passante de la photodiode sont lissées. Finalement, seules les fréquences comprises dans le grisé de la fig.3.23 participent à l'instabilité résiduelle de la fréquence Vernier. Si on considère la DSB Etalon constante sur cette plage spectrale égale à  $0.75 MHz/\sqrt{Hz}$ , alors la somme de toutes les fluctuations de fréquences comprises entre 3 kHz et 30 kHz donne une stabilité en fréquence d'une coïncidence Vernier égale à 123 MHz. La coïncidence Vernier est donc stabilisée à un dizième de sa largeur. Il s'ensuit que chacune des dents laser composant cette coïncidence étendue est stabilisée dans la résonance qui lui correspond avec une précision égale à un dizième de sa largeur soit 2 kHz. Ce résultat témoigne donc de la pertinence de l'approche Vernier pour la stabilisation d'un peigne de fréquences optiques sur une cavité optique.

#### 3.4.4.2 Système dynamique

Une fois le système démarré en asservissement statique, le balayage du réseau peut être démarré avec une faible amplitude. Cela a pour effet de distordre à la fois le signal de consigne lent et le signal de consigne rapide. La consigne rapide doit être plus particulièrement surveillée car elle est susceptible de dépasser sa tension maximale et d'induire un décrochement de l'asservissement. Le signal de feedforward est alors ajouté à la correction lente en ajustant son amplitude et sa phase de manière à rendre la consigne rapide la plus plate possible au cours du temps. L'amplitude de balayage du réseau peut être augmentée de nouveau en répétant les mêmes contrôles jusqu'à ce que la plage spectrale couverte soit celle recherchée.



FIGURE 3.24: Spectre Vernier et signal étalon correspondant à la mesure de DSB lorsque la cavité est balayée. La plage spectrale couverte correspond à  $1500 \, cm^{-1}$ .

Sur la fig.3.24 est tracé le spectre Vernier couvert par un tel balayage et sur la fig.3.25 sont présentées les DSB des signaux d'erreur et de consigne rapide enregistrées lorsque le réseau est ainsi balayé. Le balayage couvre une grande plage spectrale (>  $1000 \, cm^{-1}$ ) en  $100 \, ms$ , indiquant une fréquence de balayage du réseau de  $5 \, Hz$ . La structure des deux courbes est globalement la même que celle des DSB des mêmes sigaux enregistrées sans balayage, sur lesquelles viennent s'ajouter des pics de fluctuation aux harmoniques de la fréquence de balayage.



FIGURE 3.25: DSB des différents signaux d'asservissement lorsque le réseau est balayé

# 3.5 Acquisition du signal et traitement en temps réel

Lorqu'un spectre Vernier est enregistré, un certain nombre de transformations sont faites en simultané de manière à pouvoir faire la moyenne des spectres mesurés successivement sans que le résultat soit affecté par des bruits en intensité purs et des fluctuations du balayage réseau. Expérimentalement, l'acquisition et ce traitement sont réalisés dans le même programme LabVIEW (National Instrument, version 2008) dans deux boucles fonctionnant en parallèle : la première réalise l'acquisition des spectres bruts en coup à coup, sans perdre de temps à faire des calculs, tandis que la seconde réalise les transformations nécessaires à la moyenne des spectres sans être limitée en temps imparti pour faire ces calculs, qui peuvent prendre plusieurs secondes lorsque la gamme spectrale couverte est grande.

Le traitement d'un spectre se fait en plusieurs grandes étapes : l'acquisition durant laquelle les signaux bruts sont enregistrés, la transformation du spectre brut en diminution relative d'intensité  $\Delta I/I$  et enfin la calibration relative en fréquence du spectre grâce au signal étalon.

# 3.5.1 Acquisition

Les signaux des deux photodiodes **PD2** et **PD3** sont enregistrés avec une carte d'acquisition National Instrument PCIe-6361 et sont présentés fig.3.26. Le nombre de points nécessaire pour réaliser la mesure doit être au moins égal au nombre d'éléments spectraux contenus dans le spectre mesuré. Cependant, lorsque la résolution devient similaire aux largeurs des raies mesurées, il est confortable de prendre plus de points que ce qui est rigoureusement nécessaire de manière à garder une dizaine de point dans la largeur des raies afin que leur forme soit clairement définie. La cavité utilisée pour ce spectre est celle ayant une finesse modérée, la première construite.



FIGURE 3.26: Signaux enregistré par la carte d'acquisition : le signal Vernier - **PD2** (a) et le signal d'étalon - **PD3** (b)

Dans l'enregistrement présenté, les deux voix sont constitées de 80000 points collectés avec un taux d'aquisition de 800 kHz couvrant ainsi un aller du réseau réalisé en 100 ms. Le signal correspondant au spectre Vernier (a) a la forme générale du spectre femtoseconde couvrant une centaine de nm de part et d'autres de sa longueur d'onde centrale à 800 nm. Cette enveloppe large est modulée par les fines raies d'absorption du dioxygène (entre 12 et 25 ms) et de la vapeur d'eau (entre 40 et 80 ms) présents dans l'air ambiant remplissant la cavité. La gamme dynamique de la carte d'acquisition y est exploitée au mieux puisque le signal augmente jusqu'à 7.5 V au maximum (pour une tension maximale acceptable par la carte de 10 V). La photodiode **PD2**, Thorlabs PDA36A, est alors positionnée sur son gain égal à  $4.75 \times 10^5 V/A$  (pour une efficacité moyenne sur cette gamme spectrale égale à 0.5 A/W), sa bande passante étant alors égale à 45 kHz. Le signal d'étalon (il s'agit de la lame de microscope d'épaisseur 1 mm) (b) a une amplitude beaucoup plus faible, bien que **PD3** (modèle PDA36A elle aussi) soit sur son gain maximal égal à  $4.75 \times 10^6 V/A$  avec une bande passante réduite à 12.5 kHz, un peu faible comparée au passage des franges d'étalon, qui ont une période de  $150 \mu s$  au plus rapide du balayage. Sur la fig.3.27, deux parties de ce signal d'étalon sont agrandies : (a) entre 15 et 25 ms et (b) entre 35 et 45 ms. L'agrandissement (b) montre que le comportement parfaitement oscillant attendu de l'étalon est effectivement enregistré lorsqu'aucune raie d'absorption n'est présente. Cependant, comme le faisceau envoyé sur l'étalon est directement transmis par la cavité, les raies d'absorption affectent son intensité et il est visible en (a) que la distortion du signal d'étalon rend impossible son utilisation directe. Il est donc nécessaire de le normaliser par l'intensité du spectre Vernier de manière à supprimer toutes les modulations induites par les raies d'absorption.



FIGURE 3.27: Agrandissement de deux zones du signal d'étalon - PD3

## 3.5.2 Ligne de base

Une fois que les signaux sont enregistrés, les offsets des deux photodiodes, mesurés au préalable, sont soustraits de leur signal respectif. Il est alors possible de normaliser le spectre Vernier par le spectre laser (affecté des modulations induites par les miroirs de la cavité), qui sera donné expérimentalement par l'enveloppe large de la transmission mesurée. Pour cela, une routine d'ajustement est utilisée, basée sur une méthode itérative d'écrêtage de pics [71, 72] où la ligne de base s au temps t se calcule par l'expression :

$$s_p(t_i) = \min\left\{s_{p-1}(t_i), \frac{s_{p-1}(t_{i+p}) - s_{p-1}(t_{i-p})}{2}\right\}$$
(3.16)

où p est l'indice d'itération, i est l'indice considéré du buffer de point et s est le signal traité. Cet algorithme requiert que celui-ci soit exprimé en absorbance plutôt qu'en transmittance. Pour cela, le maximum du spectre mesuré est normalisé à 1 et le spectre en absorbance est obtenu en soutrayant le spectre précédent à 1. Une fois cette absorbance obtenue, la ligne de base est calculée pour chaque point du buffer  $s(t_i)$ , plusieurs paramètres pouvant être ajustés par l'expérimentateur, comme le nombre total d'itérations de la boucle p et le degré de lissage désiré, qui dépendent à la fois du nombre de points contenus dans le buffer et du degré de structuration de la ligne de base présentée fig.3.28.



FIGURE 3.28: Ligne de base calculée en absorbance par l'algorithme d'écrêtage - ligne de base en trait gras rouge et spectre en trait fin noir

Le spectre peut alors être normalisé en intensité (cf fig.3.29(a)) en calculant le ratio :

$$S_{norm} = \frac{1 - \text{absorbance}}{1 - \text{ligne de base}}$$
(3.17)

Il peut enfin être converti en diminution relative d'intensité grâce à la relation :

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{\text{absorbance} - \text{ligne de base}}{1 - \text{ligne de base}} = 1 - S_{norm}$$
(3.18)

Le spectre en diminution relative d'intensité obtenu est présenté fig.3.29(b). Il est, sous cette forme, insensible aux variations d'intensités du laser, ce qui permet donc de ne pas atténuer le contraste des raies d'absorption mesurées lorsque plusieurs spectres sont moyennés.



FIGURE 3.29: Spectre normalisé par la ligne de base (a) puis converti en diminution relative d'intensité (b)

# 3.5.3 Linéarisation relative

Une dernière étape pour pouvoir faire la moyenne de spectres successifs est de s'affranchir des fluctuations basse fréquence du mouvement du réseau. Pour cela, le signal d'étalon est mesuré et il doit être normalisé par le signal Vernier pour ne plus être affecté par la présence de raies d'absorption. La normalisation se fait simplement en divisant le signal d'étalon dont l'offset a été soustrait par le signal Vernier dont l'offset a lui aussi été soustrait. Le résultat de ce calcul (centré autour de 1 de manière arbitraire) est visible fig.3.30. Si la normalisation est efficace de 25 à 60 ms, elle ne suffit pas à effacer totalement les raies d'absorption trop intenses présentes au début et à la fin du spectre. Ceci est dû à la bande passante trop faible de la photodiode mesurant le signal étalon, qui change la forme les raies d'absorption mesurées par rapport à celles mesurées par la photodiode du signal Vernier. Par ailleurs, la chute du signal Vernier vers la fin du spectre (l'intensité transmise tend vers zéro) fait diverger le rapport des signaux vers la fin du balayage. Cependant, la plage centrale du balayage est facilement exploitable en utilisant un simple algorithme de détection de pics nous donnant une règle en fréquence, la variation de fréquence entre deux pics de l'étalon étant supposée linéaire. La fig.3.31 présente une portion du signal d'étalon prise au centre du balayage avec à la fois l'échelle temporelle lui correspondant en haut et l'échelle relative en unité de périodes d'étalon.



FIGURE 3.30: Signal d'étalon normalisé par le signal Vernier.



FIGURE 3.31: Linéarisation du signal d'étalon donnée par la lame de BK7 d'épaisseur  $1\,mm$ 

De cette manière, il est possible de convertir l'échelle temporelle en échelle de fréquence relative quasiment sur l'intégralité de la plage spectrale couverte. Le spectre obtenu fig.3.32 est alors à la fois linéarisé en fréquence et converti en diminution relative d'intensité. Il peut être moyenné. La calibration absolue en fréquence est ensuite faite en reconnaissant une raie d'absorption du spectre dans la base de données HITRAN qui nous permet d'adresser un nombre d'onde précis à un indice de l'échelle relative. A partir de celui-ci, il est possible de convertir l'unité relative de calibration (en nombre de périodes d'étalon) en nombre d'onde puisque 1 période =  $\frac{1}{2 \cdot n_{BK7(\sigma) \cdot e}}$ . Il est alors important de tenir compte de la variation spectrale de l'indice de réfraction du BK7 et,



FIGURE 3.32: Spectre en diminution relative d'intensité calibré avec une échelle relative en fréquence

connaissant l'épaisseur de la lame e = 1 mm, il est possible d'obtenir une échelle en nombre d'onde. Le spectre alors obtenu est tracé fig.3.33.



FIGURE 3.33: Spectre final en diminution relative d'intensité calibré en nombre d'onde

# 3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, les deux cavités utilisées ont été caractérisées. Les dimensions de la première cavité, de finesse modérée variant autour de F = 270, permettent de localiser le waist le plus proche du coupleur de sortie  $1.3 \, cm$  avant celui-ci. Avec une dimension de waist  $\varpi = 580 \, \mu m \, (z_R = 1.33 \, m)$ , il est possible de placer le réseau à une distance bien inférieure à la distance de Rayleigh et ainsi de considérer le front d'onde du faisceau incident sur le réseau comme plan. En travaillant avec un angle d'incidence sur le réseau égal à l'angle de Blaze (pour lequel l'efficacité du réseau est maximale), la résolution Vernier la meilleure accessible est limitée par la dimension gaussienne du faisceau et est égale à  $2.3 \, GHz$ . La seconde cavité, de finesse plus élevée F = 3100, a un waist de  $\varpi = 420 \, \mu m$  situé  $30 \, cm$  avant le coupleur de sortie, ce qui permet encore une fois de placer le réseau de diffraction à une distance du waist environ égale à  $z_R/2$  ( $z_R = 70 \, cm$ ). La résolution Vernier la meilleure accessible est alors égale est alors égale à  $340 \, MHz$ .

Par ailleurs, les deux mesures de finesse effectuées, bien qu'en relativement bon accord avec celles calculées à partir des spécifications des miroirs utilisés, montrent que la détermination expérimentale de leur variation sur toute la gamme spectrale du laser est inévitable pour réaliser par la suite une calibration des spectres mesurés en absorption absolue, puisque les deux courbes expérimentales présentent des différences significatives avec les courbes théoriques. De même, l'accord de mode du faisceau laser avec celui de la cavité est lui aussi spectralement dépendant, ce qui implique que si celui-ci est réalisable avec des taux de couplage dans le mode  $TEM_{00}$  meilleurs que 99% pour une longueur d'onde précise, il est impossible d'obtenir cette performance sur l'intégralité du spectre laser. Il sera donc nécessaire d'être vigilant sur l'exclusion des modes transverses les plus intenses lors du filtrage spatial des spots Vernier.

L'asservissement de ce système est réalisé avec une photodiode à cadrans générant un signal d'erreur fonction de la position spatiale du spot Vernier traduisant une position spectrale de la coïncidence lui correspondant. Le montage électronique de ce détecteur est réalisé avec un gain transimpédance de  $M\Omega$  fixant sa bande passante de détection à environ  $100 \, kHz$ , largement supérieure à la limite de détection des fluctuations de longueur de la cavité non asservie, qui est égale à  $15 \, kHz$ . La boucle d'asservissement est ensuite calibrée pour corriger ces flutuations jusqu'à cette fréquence limite, induisant ainsi une stabilité d'une dent du peigne laser par rapport à la résonance lui correspondant égale à  $6 \, kHz$ .

# Chapitre 4

# Spectres Vernier et analyse

L'objet de ce chapitre est de développer l'exploitation quantitative des spectres Vernier mesurés. Plusieurs cas de figure seront distingués selon la résolution Vernier utilisée (comparée à la largeur des raies mesurées), l'intensité de ces raies et le signe du désaccord Vernier qui n'a pas été considéré jusqu'à présent, mais qui se révèle être déterminant dans l'exploitation des données mesurées. Les performances du spectromètre Vernier sont elles aussi évaluées afin de déterminer la figure de mérite du système, la gamme dynamique de mesure du Vernier ainsi que la possibilité de faire la moyenne des spectres successifs.

Plusieurs spectres sont présentés dans ce chapitre, enregistrés avec les deux cavités qui viennent d'être présentées pour différentes résolutions. Il s'agit dans tout les cas de spectres de l'atmosphère ambiant présent naturellement dans la cavité de mesure ouverte. La gamme spectrale de l'oscillateur Ti: Sa couvrant de 750 à 850 nm environ, deux bandes de raies d'absorption sont attendues. Il s'agit de la bande A de  $O_2$  présente entre 760 et 775 nm (12950 – 13170 cm<sup>-1</sup>) et de la bande  $3\nu + \delta$  de la vapeur d'eau présente entre 770 et 850 nm (11800 – 13000 cm<sup>-1</sup>). Toutes les mesures étant faites à pression atmosphérique et à température ambiante, le profil des raies mesurées est attendu lorentzien et les pressions partielles de chacun des deux gaz détectés sont connues :  $P_{O2} = 0.2 \times P_{atm}$  et  $P_{H2O} = HR \times 0.028 \cdot P_{atm}$  avec HR, l'humidité relative de l'atmosphère mesurée par un hygromètre commercial.

# 4.1 Finesse modérée

Les premières mesures réalisées l'ont été avec la cavité de finesse modérée. Celle-ci nous a permis d'enregistrer le spectre dont le traitement (calibration en fréquence et passage
en diminution relative d'intensité) vient d'être détaillé. A la fin de ces transformations le spectre obtenu est celui de nouveau présenté fig.4.1. Il couvre  $1400 \, cm^{-1}$  autour de  $12500 \, cm^{-1}$ . La résolution du Vernier attendue est égale à  $10 \, GHz$  soit  $0.31 \, cm^{-1}$  pour un désaccord Vernier  $\Delta L = -120 \, \mu m$ . L'objectif était alors de couvrir l'intégralité du spectre laser, limitant ainsi la résolution accessible du fait de la course de l'actuateur lent limitée. En effet, cette course détermine le nombre maximal d'ordres Vernier simultanément transmis sous le spectre pour qu'au cours du balayage, un seul ordre puisse couvrir l'intégralité du spectre. Cela désigne donc une valeur minimale à l'ISL du Vernier et donc la meilleure résolution accessibe. Enfin, cette mesure est réalisée en  $100 \, ms$ , soit un balayage du réseau à une fréquence de  $5 \, kHz$ .



FIGURE 4.1: Spectre large bande mesuré avec une résolution Vernier  $\Gamma_V = 10 \, GHz$  en diminution relative d'intensité

Par ailleurs, un second spectre est présenté fig.4.2 avec la résolution attendue la meilleure possible, égale à 4.6 GHz. Celle-ci est deux fois supérieure à la limite calculée précédemment et est induite par la présence de modes transverses pairs placés spectralement approximativement à la moitié de l'ISL Vernier. De cette manière, la mesure reste insensible à leur présence. Avec cette résolution, la bande spectrale enregistrée couvre  $500 \, cm^{-1}$ autour de  $12450 \, cm^{-1}$ . La mesure est réalisée en  $50 \, ms$ .

Dans la suite, les caractéristiques de ces spectres sont détaillées point par point de manière nous permettre de calculer la figure de mérite qui leur est associée.



FIGURE 4.2: Spectre large bande mesuré avec une résolution  $\Gamma_V = 4.6 \, GHz$  en diminution relative d'intensité

# 4.1.1 Performances

#### 4.1.1.1 Eléments spectraux

Le nombre d'éléments spectraux compris dans un spectre est donné de manière générale par la gamme spectrale totale couverte divisée par la résolution de la mesure. Avec le Vernier, ce nombre est entièrement défini par la finesse de la cavité ainsi que par la course de l'actuateur utilisé pour balayer la longueur de la cavité. Dans notre cas, ce dernier a une course mesurée de  $7 \mu m$ , ce qui signifie que la longueur totale de la cavité peut être balayée sur  $14 \mu m$  au maximum, soit  $17.5 \times \lambda_{las}$ . Comme le signal de commande de l'actuateur **PZT Lent** est en réalité la somme du signal de feed forward et de la correction lente de l'asservissement, il est nécessaire que le feed forward n'occupe pas la totalité de la course de l'actuateur. En pratique, le spectre large bande est mesuré en utilisant  $13.5 \mu m$  pour le balayage de la cavité, couvrant ainsi  $16.8 ISL_V$ , et réservant le  $0.5 \mu m$  restant à la correction des dérives lentes. Chacun des  $16.8 ISL_V$  étant composé de F éléments spectraux ( $ISL_V = F \times \Gamma_V$ ), il en résulte qu'un spectre Vernier réalisé avec cette cavité de finesse moyenne égale à 270 est composé de 4550 éléments spectraux. La durée du balayage est ensuite fixée par la vitesse adiabatique de balayage Vernier définie section 2.3.2.1 comme :

$$v_{vernier} = \frac{\Gamma_V}{2\pi\tau_{RD}}$$
en  $[Hz/s]$  (4.1)

Le temps de mesure minimal pour couvrir un élément spectral s'écrit alors :

$$t_{Element} = \Gamma_V \frac{2\pi\tau_{RD}}{\Gamma_V} = 2\pi\tau_{RD} \tag{4.2}$$

Il est égal à  $3 \mu s$  pour cette cavité ( $\tau_{RD} = 0.5 \mu s$ ). Le temps nécessaire pour balayer les  $16.8 \times ISL_V$  est donc donné par :

$$t_{acq} = 16.8 \times ISL_V \frac{2\pi\tau_{RD}}{\Gamma_V} = 12 \times F \cdot 2\pi\tau_{RD}$$
(4.3)

Il faut donc une durée minimale d'acquisition de 13.5 ms pour balayer la plage spectrale accessible de manière adiabatique. Les éléments spectraux sont alors enregistrés avec une fréquence égale à leur temps de passage soit 300 kHz. Afin de ne pas déformer le signal Vernier, il est nécessaire que le photodétecteur utilisé ait une bande passante supérieure à 300 kHz, ce qui n'est pas le cas de la photodiode PDA 36A utilisée sur le gain  $1.5 \times 10^5 V/A$ , qui a une bande passante à 45 kHz. La mesure enregistrée avec un temps d'acquisition égale à la limite fixée par l'Eq.4.3 est alors fortement convoluée à la réponse de la photodiode utilisée. Pour éviter ce biais, le balayage est ralenti de manière à ce que la fréquence de passage des éléments spectraux successifs soit égale à 40 kHz, ce qui revient à allonger la durée totale du balayage d'un facteur 7.5. La nouvelle durée de mesure est alors égale à 100 ms.

### 4.1.1.2 Sensibilité de la mesure

La sensibilité de la mesure est déduite de l'ajustement d'un groupe de neuf raies d'absorption prises autour de  $12456.5 \, cm^{-1}$  dans le spectre haute résolution présenté fig.4.2. Ces raies ont été choisies dans la partie faible de la bande de la vapeur d'eau afin de pouvoir convertir de manière linéaire la diminution d'intensité relative mesurée en absorption grâce à la relation :

$$\alpha(\nu) = \frac{\Delta I(\nu)}{I_0(\nu)} \cdot \frac{2\pi}{F(\nu) \times L}$$
(4.4)

L'ajustement des raies converties en absorption est visible dans l'encart haut de la fig.4.3, son résidu étant tracé dans l'encart bas. Le résidu ne présente pas de distortion particulière au passage des raies mais est clairement affecté par des franges résiduelles d'interférences parasites. La sensibilité de la mesure est quantitativement donnée par la



FIGURE 4.3: Ajustement lorentzien d'un groupe de raies.

déviation standard de ce résidu, qui est ici de  $\alpha_{min}^{FM} = 1.6 \times 10^{-8} \, cm^{-1}$ . Elle se compare à la sensibilité équivalente à la limite du bruit de photon (*shot noise*) définie par la relation :

$$\alpha_{min}^{SN} = \frac{\sqrt{2 \cdot e \cdot \langle P_{Vernier} \rangle \cdot R_{PD} \cdot Bp_c} \times G_{PD}}{V_{max}} \times \frac{2 \cdot \pi}{F \times L}$$
(4.5)

où *e* est la charge élémentaire,  $\langle P_{Vernier} \rangle$  est la puissance moyenne transmise par la cavité dans un ordre Vernier,  $R_{PD}$  est la réponse du photodétecteur en A/W,  $G_{PD}$  est le gain du photodétecteur en V/A,  $Bp_c$  est la bande passante de la cavité en Hz et  $V_{max}$  est la tension maximale du signal mesuré. Ici le détecteur utilisé est une photodiode silicium avec les caractéristiques suivantes :  $R_{PD} = 0.52 A/W$ ,  $G_{PD} = 4.75 \times 10^5 V/A$ . La puissance moyenne du spot Vernier est évaluée à  $30 \ \mu W - 2 \ \mu W$  de puissance moyenne par mode donne une puissance moyenne pour une résolution de  $10 \ GHz$  égale à  $300 \ \mu W$  affectée ensuite par la transmission maximale de la cavité ( $H_{max} = 0.9$ ), l'efficacité du réseau de 0.8 et par les deux lames séparatrices envoyant respectivement 30% puis 50% de la puissance incidente vers la photodiode Vernier. Avec la bande passante de la cavité, la sensibilité équivalente au bruit de photon est trouvée égale à  $5.8 \times 10^{-9} \ cm^{-1}$  soit 3 fois moindre que celle trouvée expérimentalement.

#### 4.1.1.3 Immunité au bruit de conversion fréquence-amplitude

La valeur de sensibilité peut surprendre si l'on considère qu'elle est obtenue avec une stabilisation des dents du peigne à l'échelle de  $\Gamma_c/5$ . La variation relative d'amplitude induite par une variation de fréquence  $\delta f$  d'une dent laser initialement centrée dans sa résonance est donnée par  $\frac{\delta f}{\Gamma_c/2}^2$ , soit ici 16%, et plus généralement par  $p(f) \cdot \delta f$  où p est la dérivée du profil de résonance lorsque la dent n'est pas centrée. La précision relative atteinte dans notre mesure est cependant de  $1.5 \times 10^{-4}$ , deux ordres de grandeur plus faible. Ce caractère insensible aux bruits de conversion fréquence-amplitude est dû au filtrage Vernier basse résolution.

D'une façon générale et en supposant les fluctuations de chaque dent du peigne non corrélées, la fluctuation de l'intensité de la coïncidence Vernier peut s'écrire comme :

$$\frac{\delta I}{I} = \sqrt{\sum_{-F/2}^{F/2} p^2(f_n) \cdot \delta f_n^2}$$
(4.6)

Cependant, le fonctionnement laser en modes bloqués induit une très forte corrélation des fluctuations des différentes dents. En effet, chacune des dents est verrouillée par l'injection d'un fort signal résultant de la superposition des bandes latérales de modulation des autres dents [73]. Le bruit relatif s'écrit alors plus simplement comme :

$$\frac{\delta I}{I} = \sum_{-F/2}^{F/2} p(f_n) \cdot \delta f_n \tag{4.7}$$

Plusieurs travaux portent sur l'analyse de ces fluctuations [74–78] d'où il ressort in fine une descritpion du comportement des fluctuations des peignes de fréquences comme une combinaison de translations et de dilatations. Les fluctuations du peigne sont alors décrites par "le modèle de la bande élastique" où les fluctations d'une dent sont uniquement induites par les fluctuations du taux de répétition et de la fréquence d'offset. En fonction des sources de bruit du laser (mécanique, thermique, pompe du laser), les corrélations entre leurs fluctuations conduisent à des points fixes pouvant se situer aussi bien à l'intérieur ou à l'extérieur du peigne optique. Dans tous les cas, les le nombre de dents concernées par une coïncidence Vernier est suffisamment faible pour pouvoir considérer leurs fluctuations identiques. Le bruit d'intensité est alors directement proportionnel à l'intégrale de la dérivée du profil lorentzien et possède donc une valeur nulle.

$$\frac{\delta I}{I} = \delta f \cdot \int p(f)\delta f = 0 \tag{4.8}$$



FIGURE 4.4: (a) Deux coïncidences Vernier successives et (b) pentes des résonances de cavité relevées aux fréquences impliquées dans les coïncidences

L'approche Vernier basse résolution possède donc la propriété remarquable de s'affranchir du bruit de conversion fréquence-amplitude. Elle permet d'obtenir, même pour des finesses modérées, une haute sensibilité.

Notons cependant, que dans le cas où le point fixe est présent dans le spectre, la coincidence Vernier à cette fréquence ne satisfait pas le développement précédent, mais en pratique, nous n'avons pas observé une augmentation du bruit à une position particulière du spectre.

#### 4.1.1.4 Figure de mérite

La figure de mérite peut à présent être calculée. Elle est définie comme la sensibilité de la mesure multipliée par la racine du temps d'acquisition par élément spectral. Elle est égale avec cette cavité au produit :

$$M_{FM} = \alpha_{min}^{FM} \times \sqrt{\frac{100 \, ms}{4550 \, \text{el. spec.}}} = 7.5 \times 10^{-11} cm^{-1} / \sqrt{Hz}$$
(4.9)

Elle pourrait cependant être améliorée en éliminant les franges résiduelles afin de gagner encore en sensibilité et en utilisant un détecteur ayant une bande passante égale aux  $300 \, kHz$  nécessaires pour réaliser une mesure propre à la vitesse adiabatique (ce détecteur devrait cependant conserver un gain similaire à celui de la photodiode utilisée). Ce dernier point permettrait notamment de gagner un facteur  $\sqrt{10}$  sur la figure de mérite et amènerait cette nouvelle valeur aux niveaux record actuellement établis pour les techniques de cavité avec peigne de fréquences, mais ici, avec une finesse de seulement 300, soit un [22] à deux [23] ordres de grandeur inférieure aux valeurs de l'état de l'art.



# 4.1.2 Distortions des raies

FIGURE 4.5: Agrandissement de la transmission de cavité autour de la bande A de  $O_2$ 

Toute l'analyse en sensibilité s'est concentrée sur des raies d'absorption faible. Il a notamment été démontré que ces raies peuvent être ajustées avec des fonctions lorentziennes sans que des distortions soient visibles dans le résidu de leurs ajustements au niveau de détection expérimental. Cependant, une attention plus particulière portée aux raies intenses du dioxygène laisse entrevoir un comportement inattendu de la ligne de base.

Sur la fig.4.5, le signal Vernier collecté par la photodiode semble remonter au-dessus de l'enveloppe générale du spectre laser. Lorsque l'alogrithme de la ligne de base contourne cette déformation induite du spectre laser, l'absorption obtenue présente un décollement artificiel de sa ligne de base.

# 4.1.2.1 Causes expérimentales

Plusieurs biais expérimentaux peuvent amener une déformation des raies mesurées. Le premier est la présence de modes transverses d'ordres élevés ou bien du mode  $TEM_{00}$ 

de polarisation orthogonale à celle majoritairement injectée confondus au moins partiellement avec le mode  $TEM_{00}$  mesuré. Le filtrage spatial des ordres Vernier ne pouvant pas séparer deux modes trop proches spectralement dont les faisceaux se recouvrent, il en résulte que le spectre Vernier enregistré sera en réalité la somme du spot correspondant au mode  $TEM_{00}$  désiré et d'une fraction faible d'un second mode autre, légèrement décalé en fréquence. Ces deux spots ne vont donc pas être affectés par les raies d'absorption simultanément, et plus la raie d'absorption mesurée est intense, plus la déformation liée à cet "écho" en fréquence sera marquée. L'accord de mode entre laser et cavité n'étant pas constant, les bords du spectre mesuré, qui sont plus éloignés de la fréquence à laquelle cet accord a été optimisé, sont plus susceptibles d'être affectés par ces déformations.

La seconde source de distortion possible est liée à la vitesse de balayage du spectre Vernier. Elle se sépare en deux cas distincts : celui où le balayage est adiabatique mais altéré par la bande passante du photodétecteur et celui où le balayage n'est plus adiabatique et où le passage en résonance d'une fréquence laser s'accompagne d'un effet de ringing. Dans le cas de la cavité à finesse modérée, le second cas est peu probable, la photodiode utilisée étant déjà limitée en bande passante à  $45 \, kHz$  pour avoir un gain suffisant pour réaliser la mesure. Par contre, si le temps de balayage n'est pas ajusté, la fontion réponse du détecteur convolue le signal Vernier et donc déforme les raies mesurées. Enfin, dans le cas d'une cavité avec une finesse plus élevée, le passage non adiabatique devient mesurable avec les détecteurs utilisés et peut devenir une source de distortion.

Si la déformation liée à la vitesse de balayage peut aisément être évitée en ajustant la durée du balayage aux diverses limites imposées par la cavité et par le photodétecteur, celle due aux modes transverse est beaucoup plus difficile à éradiquer totalement puisqu'un accord de mode parfait (> 99% de couplage dans le mode  $TEM_{00}$ ) au centre du spectre n'empêche pas un désaccord aux bords du spectre. Elle peut cependant être minimisée en dimensionnant la cavité de manière à ce que les modes transverses les plus susceptibles de croître soient placés le plus loin possible des modes  $TEM_{00}$  (cf Annexe A). Ces deux sources de distortion peuvent avoir un effet similaire sur les raies mesurées : créer une dissymétrie en élargissant la raie d'un seul côté. Ils peuvent cependant être distingués en observant l'aller et le retour du balayage du réseau : si l'effet des modes transverse est spectral et donc symétrique par rapport au demi-tour du réseau, celui de la vitesse de balayage est dynamique et créera toujours un retard sur les raies d'absorption (illustré fig.4.6).



FIGURE 4.6: Exemple de déformation due à une bande passante de photodiode non adaptée au balayage

## 4.1.2.2 Cas des raies d'absorption fortes

La déformation des raies du dioxygène présentée plus haut ne se réduit pas, à priori, seulement à une explication expérimentale. Les raies présentent une dissymétrie probablement due à des modes transverses mais elles sont aussi déformées de manière tout à fait symétrique par rapport au centre de la raie. La partie du spectre large bande déjà présenté comprise entre 12960 et  $13120 \, cm^{-1}$ , transformée en diminution relative d'intensité sans avoir été linéarisée, est présentée fig.4.7(a). Des épaulements sont clairement visibles de part et d'autres des raies les plus fortes de cette bande. Leur présence semble proportionnelle à l'intensité de la raie d'absorption. De plus, lorsque la mesure à résolution plus élevée est réalisée autour de la bande de  $O_2$  (fig.4.7(b)), ces épaulements sont toujours présents mais moins marqués.

Le traitement d'un spectre Vernier établi avec une finesse modérée nous a donc permis de définir une sensibilité ainsi qu'une figure de mérite, toutes deux issues de la possibilité de faire l'ajustement avec un modèle lorentzien, attendu aux conditions thermodynamiques de l'expérience. Cependant, les raies fortes manifestent clairement un comportement étrange que nous n'avons pu expliquer par des biais expérimentaux. Ceci nous a conduit à revoir le modèle développé jusque-là (section 2.3.3.2) en exloitant la base de données HITRAN.



FIGURE 4.7: Spectres en diminution relative d'intensité centrés sur les raies d'absorption les plus intenses présentant des épaulements à leur base pour deux résolutions différentes

# 4.2 Modélisation du spectre Vernier

# 4.2.1 Modèle linéaire et convolution

Le traitement le plus évident pour pouvoir comparer notre mesure aux données de HI-TRAN est celui développé dans la section 2.3.3.2. Celle-ci concluait que, dans le cas d'absorption faible, l'absorption calculée à partir du spectre mesuré pouvait s'interpréter comme le spectre réel, balayé par la fréquence centrale de la coïncidence Vernier étendue  $\nu_k$ , convolué avec une fonction lorentzienne de largeur égale à la résolution de la coïncidence Vernier  $\Gamma_V$ :

$$\frac{\Delta I(\nu_k)}{I_0(\nu_k)} \times \frac{2\pi}{F(\nu_k) \cdot L} = (\alpha * f_V)(\nu_k)$$
(4.10)

où  $f_V$  est la fonction réponse Vernier dans sa forme la plus simple, lorentzienne :

$$f_V(f) = \frac{2}{\pi \cdot \Gamma_V} \frac{1}{1 + \left(\frac{f - \nu_k}{\Gamma_V/2}\right)^2}$$
(4.11)

Sur la fig.4.8 est présentée la comparaison du spectre mesuré (a) avec celui de l'air ambiant issu de la base HITRAN (version 2012) convolué avec une lorentzienne normalisée de largeur égale à la résolution du Vernier  $\Gamma_V = 10 GHz$  (b). Les variations de finesse mesurées et présentées dans la section 3.2 ont, après interpolation, également été prises en compte.



FIGURE 4.8: Comparaison en miroir du spectre mesuré avec celui calculé en convoluant le spectre théorique avec une lorentzienne de largeur égale à la résolution Vernier



FIGURE 4.9: Spectre mesuré (trait noir pointillé) superposé au spectre HITRAN convolué (trait plein rouge)

D'une manière générale, les deux spectres se correspondent bien sur l'axe des fréquences mais les contrastes diffèrent nettement : les raies intenses sont moins contrastées sur la mesure tandis que la bande de raies la plus faible est plus contrastée sur la mesure que sur la convolution. Ce désaccord en intensité est détaillé sur une petite plage spectrale fig.4.9 où il est visible que même les raies les plus faibles sont toujours plus contrastées sur la mesure.

## 4.2.2 Modèle complet : Effets d'élargissement et de dispersion moléculaire

Le modèle de convolution est le traitement le plus simple qui puisse être réalisé mais pour l'obtenir, des termes ont été négligés dans la fonction réponse du Vernier. Classés en importance relative, il s'agit des effets d'élargissement des résonances de cavité dus aux pertes supplémentaires induites par les raies d'absorption puis des effets de déplacement des centres des résonances toujours induits par les raies d'absorption. Comme le modèle de convolution simple ne représente pas le spectre mesuré, les effets d'élargissement sont ajoutés en premier au modèle. Le calcul réalisé est alors une convolution par une fonction de forme similaire à celle d'une lorentzienne dont la largeur serait dépendante de la fréquence considérée. La fonction Vernier devient :

$$f_V(f) = \frac{2}{\pi \cdot \Gamma_V} \frac{1}{1 + \left(\frac{f - \nu_k}{1/2(\Gamma_V + \delta\Gamma_V^\alpha(f))}\right)^2} \quad \text{avec} \quad \delta\Gamma_V^\alpha(f) = \frac{c}{2\pi} \cdot \alpha(f) \frac{L}{\Delta L}$$
(4.12)

De plus, pour obtenir le meilleur accord possible sur l'intégralité du spectre qui couvre une plage spectrale représentant environ 10% de sa fréquence centrale, la modification de la largeur Vernier est prise en compte,  $\Gamma_V$  dépendant du désaccord  $\epsilon_V$  et donc du balayage en longueur de la cavité (cet effet serait donc nul si le balayage était réalisé avec la fréquence d'offset du peigne laser). De même, pour que l'accord ne dépende pas de l'intensité de la raie observée, la variation relative d'intensité n'est pas directement convoluée avec la fonction  $f_V$  sous sa forme linéaire mais sous sa forme exponentielle. Le spectre simulé est donc le résultat du calcul :

$$\frac{\Delta I(\nu_k)}{I_0(\nu_k)} = 1 - \frac{2}{\pi \cdot \Gamma_V} \cdot \int \frac{(1 - r_{rt})^2}{(1 - r_{rt} \cdot exp(-\frac{\alpha(f)}{2} \cdot L))^2} \times f_V(f) \frac{df}{f_{rep}}$$
(4.13)

Le spectre simulé obtenu avec ce modèle est comparé avec celui mesuré fig.4.10 sur toute la gamme spectrale (a-b) puis en détail sur une petite plage prise au centre de la bande faible de la vapeur d'eau (c). Si le désaccord en contraste entre les deux spectres est réduit en comparaison du modèle simple de convolution, le spectre mesuré n'est toujours pas reproduit à l'identique, le contraste des raies du spectre simulé restant inférieur à celui des raies mesurées.



FIGURE 4.10: Comparaison en miroir entre les spectres en diminution relative d'intensité mesuré (a) et simulé avec HITRAN en tenant compte des effets de largeur. Un agrandissement (c) détaille le désaccord entre les deux spectres superposés.

Le spectre simulé avec ce modèle ne correspondant toujours pas à celui mesuré, les effets de dispersion moléculaire sont ajoutés. La fonction réponse Vernier s'écrit alors :

$$f_V(f) = \frac{2}{\pi \cdot \Gamma_V} \frac{1}{1 + \left(\frac{f - (\nu_k + \delta\nu_V^\alpha(f))}{1/2(\Gamma_V + \delta\Gamma_V^\alpha(f))}\right)^2}$$
(4.14)

où les effets d'élargissement  $\delta \Gamma_V^{\alpha}(f)$  sont toujours présents et où la dispersion moléculaire pour la fréquence f,  $\delta \nu_V^{\alpha}(f)$ , est donnée, pour des profils de raie lorentziens, par la somme :

$$\delta\nu_V^{\alpha}(f) = \sum_{N_a} -\frac{c}{2\pi} \cdot \frac{f - \nu_a}{\Gamma_a} \cdot \alpha(f) \frac{L}{\Delta L}$$
(4.15)

avec  $N_a$  le nombre de raies comprises dans le spectre,  $\nu_a$  la pulsation centrale de la raie a et  $\Gamma_a$  la pleine largeur à mi-hauteur de la raie a. Comme toutes les mesures ont ici été faites à pression atmosphérique et température ambiente, ce modèle n'a été dérivé que pour des raies lorentziennes mais il peut être modifié pour être adapté à d'autres profils de raie en dérivant la dispersion moléculaire leur correspondant grâce aux relations de Kramers-Kroenig[32].



FIGURE 4.11: Comparaison en miroir entre les spectres en diminution relative d'intensité mesuré (a) et simulé avec HITRAN avec le modèle complet (b). Trois agrandissements I, II et III détaillent l'accord entre les deux spectres superposés sur toutes la gamme spectrale.

Le nouveau spectre ainsi simulé est comparé à celui mesuré sur la fig.4.11 et la correspondance en diminution relative d'intensité semble excellente. Afin d'évaluer aussi l'accord en largeur des raies mesurées, trois agrandissements des plages spectrales encadrées sur le spectre complet (I, II et III) sont présentés où les deux spectres sont superposés. Un très bon accord peut être constaté à la fois en intensité et en largeur des raies des deux spectres et l'encart III détaille l'apparition des épaulements à la base des raies de  $O_2$ , l'écart entre les lignes de base étant dû à l'application de l'algorithme permettant de calculer la ligne de base pour les deux spectres.

Il est important de remarquer ici que si le signe du désaccord n'intervient absolument pas dans la définition de la lorentzienne de convolution utilisée en premier lieu pour tenter de reproduire le spectre mesuré, ce n'est plus le cas lorsqu'on ajoute les effets de déplacement des résonances. Ce décalage s'écrit :

$$\delta\nu_V^{\alpha}(f) = \frac{1}{\epsilon_V} \cdot \sum_{N_a} -\frac{c}{2\pi} \cdot \frac{f - \nu_a}{\Gamma_a} \cdot \alpha(f)$$
(4.16)

et cette fois ce changement de signe induit une déformation de la fonction Vernier différente selon le signe de  $\epsilon_V$ . Ceci induit une différenciation marquée entre les spectres mesurés selon le signe du désaccord, et la fig.4.12 compare les spectres obtenus pour la même résolution Vernier à vide ( $\Gamma_V$ , non affectée par l'absorption) pris d'un côté ou de l'autre du point magique.



FIGURE 4.12: Comparaison en miroir entre deux simulés mesurés avec une résolution - théorique - Vernier  $\Gamma_V$  de  $10 \, GHz$  (a) avec un désaccord positif et (b) avec un désaccord négatif.

Le spectre calculé du côté négatif (b) présente clairement un contraste des raies plus fort que celui calculé avec un désaccord positif (a). Il présente aussi une forte distortion de la forme des raies les plus intenses qui sont toutes dotées d'épaulements à leur base, comportement absent du côté positif.

# 4.2.3 Signe du désaccord et frontières des modèles

La compréhension de cette différence passe par une considération simple, illustrée fig.4.13 : bien que de part et d'autre du PM les coïncidences Vernier (non affectées par une quelconque absorption) soient identiques, elles sont en fait issues de deux filtrages différents puisque, dans le cas positif, l'ISL de la cavité est inférieur au taux de répétition laser tandis que dans le cas négatif,  $ISL_c$  est supérieur à  $f_{rep}$ . La dispersion moléculaire



FIGURE 4.13: Exemple de deux filtrages Vernier obtenus pour des valeurs  $|\epsilon_V|$  identiques mais de signes opposés

déplace les centres des résonances d'une quantité absolue uniquement induite par la raie d'absorption. Plus précisément, on a vu sur la fig.1.23 que la dispersion moléculaire augmente l'ISL de la cavité sous le profil de la transition (compris dans sa largeur) et le diminue légèrement dans ses ailes. Dans la raie, le recouvrement avec les dents va donc s'accroître dans le cas  $\epsilon_V > 0$  alors qu'il se réduit pour  $\epsilon_V < 0$ .

Sur la fig.4.14(a) sont représentées plusieurs positions d'une coïncidence Vernier balayant une raie d'absorption. La largeur de la coïncidence  $\Gamma_V$  est prise du même ordre de grandeur que la largeur de la raie d'absorption. La déformation de la coïncidence Vernier au cours de son balayage étant symétrique par rapport au centre de la raie (la variation de  $ISL_c$  sur la fig.1.23 est symétrique), sur le coté gauche sont tracés les profils de la coïncidence obtenue pour un désaccord négatif tandis qu'à droite sont tracés ceux obtenus pour un désaccord positif. En (b) sont tracées les intensités transmises par la cavité correspondant aux intégrales des coïncidences au cours de leur balayage. La réduction relative d'intensité obtenue pour un désaccord négatif est plus importante que pour un désaccord positif, ce qui constitue l'observation concrète de l'effet de dispersion moléculaire conduisant au centre de la raie à une coïncidence Vernier dans le cas négatif de largeur effective bien inférieure à celle obtenue dans le cas positif.

Dans chacune de ces configurations, il est évident que la fonction de convolution de la raie d'absorption n'est pas une lorentzienne et que le modèle complet doit être pris en compte. Cependant, dans le cadre de mesures en temps réel nécessitant des temps courts



FIGURE 4.14: Déformation d'une coïncidence Vernier lors du balayage d'une raie d'absorption selon le signe du désaccord ( $\epsilon_V < 0$  à gauche en trait bleu pointillé -  $\epsilon_V > 0$ à droite en trait rouge plein) et transmissions normalisées de la cavité associées. La résolution Vernier utilisée ici est égale à la largeur de la raie,  $\Gamma_V \sim \Gamma_a$ .

de convergence de l'algorithme d'ajustement du spectre, il peut être utile de connaître l'intensité et la largeur de raie mesurées à partir desquelles les effets d'élargissement et de dispersion moléculaire peuvent être effectivement négligés et pour lesquelles un ajustement par une fonction lorentzienne donnera accès à une mesure quantitative en coefficient d'absorption.

Ces plages de validité du traitement lorentzien peuvent se définir par l'importance de l'écart entre le modèle complet et le niveau de sensibilité de l'expérience. Sur la fig.4.15 sont représentés ces domaines pour trois niveaux de sensibilité de  $10^{-4}$ ,  $10^{-3}$  et  $10^{-2}$ . Les courbes tracées définissent la diminution relative d'intensité maximale mesurée avec une résolution  $\Gamma_V$ , ici normalisée par la largeur de la raie mesurée  $\Gamma_a$ , qu'il est possible d'ajuster avec une convolution lorentzienne en obtenant un résultat quantitatif au niveau de sensibilité indiqué en dessous de la courbe. Elles ont été évaluées en simulant le résidu de l'ajustement d'une raie d'absorption mesurée avec le Vernier par la convolution avec la fonction de réponse lorentzienne de largeur  $\Gamma_V$ , pour un désaccord positif en (a) et négatif en (b). Les parties grisées sont les plages effectives de validité de cette convolution lorentzienne, comprises entre la limite de sensibilité et les différentes courbes limites. Audelà de cette limite, l'ajustement du spectre doit être réalisé avec le modèle complet. Il paraît alors évident que la gamme dynamique la plus grande pour laquelle l'ajustement lorentzien est valide est obtenue pour un désaccord positif et que lorsque la résolution du Vernier commence à devenir fine comparée à la largeur de la raie mesurée ( $\Gamma_V < \Gamma_a/10$ ), les gammes dynamiques des deux signes du désaccord tendent à augmenter.



FIGURE 4.15: Plages de validité de l'ajustement des raies d'absorption mesurées en diminution relative d'intensité

D'une manière générale, le comportement attendu de ces limites est une décroissance de la diminution relative d'amplitude ajustable avec le traitement le plus simple lorsque la résolution du Vernier se dégrade. C'est le cas de la plupart des courbes obtenues à l'exception de celle obtenue avec une sensibilité de  $10^{-4}$  du côté des désaccords positifs. Cette dernière est croissante pour  $\Gamma_V/\Gamma_a \in [0.1; 1]$  et ne reste pas parallèle dans ce domaine aux limites des deux autres sensibilités tracées. Ce comportement différent est dû à l'ajout d'un facteur limitant supplémentaire devenant prépondérant à haute résolution lorsque la sensibilité désirée est très grande. Il s'agit du changement de largeur de la coïncidence Vernier dû au balayage de la longueur de la cavité réalisé expérimentalement, puisque  $\Gamma_V$  est donné par le ratio  $\Gamma_c/\epsilon_V$  et dépend donc de la longueur de la cavité. Sa variation sur la plage spectrale fixée par la largeur de la raie d'absorption mesurée est faible mais devient cependant suffisante pour se manifester avec une telle sensibilité. Cette plage étant inversement proportionnelle à l'ISL du Vernier, l'effet se manifeste à haute résolution. Au final, cet effet n'existe que si le balayage de la fréquence de l'ordre Vernier est fait en faisant varier la longueur de la cavité ou le taux de répétition laser, la fréquence d'offset du peigne laser n'intervenant pas dans la définition de  $\epsilon_V$ . Pour des résolutions trop hautes, la largeur de la lorentzienne de convolution Vernier ne peut plus être considérée comme constante si l'ajustement souhaité doit avoir une sensibilité très élevée et va limiter la gamme dynamique du traitement simple.

Pour conclure, c'est avec un désaccord  $\epsilon_V$  positif et important, donc à haute résolution, que la gamme dynamique accessible avec le modèle par simple convolution est la plus importante, située aux alentours de 50. Une gamme dynamique (ou de façon équivalente, une précision de mesure) supérieure requiert le modèle d'ajustement complet.

# 4.3 Haute finesse

Afin d'augmenter la résolution maximale atteignable et la sensibilité de la mesure Vernier, la suite des expériences a été réalisée avec la cavité de haute finesse ( $F \simeq 3100$ ). Les résultats obtenus ont par ailleurs permis de confronter à l'expérience les analyses issues du modèle complet, l'influence du signe du désaccord, et en particulier la validité du modèle de simple convolution.

L'obtention de spectres Vernier exploitables a été plus compliquée avec cette nouvelle cavité du fait de la transmission maximale des résonances qui a chuté mais surtout de la présence marquée d'interférences parasites dues aux substrats des coupleurs d'entrée et de sortie d'épaisseur égale à 3 mm. La géométrie de cette cavité a été modifiée de manière a obtenir les angles d'incidence les plus grands possible sur ces coupleurs afin de limiter au mieux l'amplitude de ces franges optiques mais au détriment de la qualité de l'accord de mode qu'il est impossible de conserver constant au cours du balayage de la cavité sur le spectre laser complet.

# 4.3.1 Mesures et validité du modèle complet

La fig.4.16 présente un spectre couvrant  $1200 \, cm^{-1}$  avec une résolution Vernier  $\Gamma_V$  égale à  $2 \, GHz$  et un désaccord positif ( $\epsilon_V = 1.5 \times 10^{-5}$ ). Le spectre mesuré, traité de manière à

obtenir un spectre calibré en diminution relative d'intensité, est comparé avec le spectre simulé en utilisant HITRAN et le modèle complet donné par l'Eq.4.14. Ici, la prise en compte des variations de finesse mesurées et présentées dans la section 3.2 ne conduit pas à un accord global ce qui confirme l'incohérence précédemment discutée de ces mesures. Les variations données par le constructeur ont alors été utilisées. Comme notre prise en compte de la ligne de base est faite en appliquant un algorithme sur le spectre mesuré, le fond continu qui accompagne le spectre de l'eau, qui est dense, est nécessairement soustrait lors de la mesure. Pour pouvoir comparer le spectre calculé à la mesure, celuici est soumis au même algorithme afin de s'affranchir de toute les variations lentes de la ligne de base du spectre. Une comparaison en miroir est faite dans l'encart haut : les deux spectres semblent en bon accord en intensité et en fréquence sur l'intégralité de la plage spectrale bien que les variations d'intensité maximales atteignent maintenant plus de 70% du signal transmis par la cavité. Plusieurs plages spectrales (I, II et III) sont ensuite isolées et agrandies dans les trois encarts suivants. Les deux spectres y sont superposés (la mesure en noir et la simulation en rouge) et leur différence y est tracée.

En I, la plage spectrale étudiée ne comporte que des raies d'absorption relativement faibles, les deux spectres s'accordent bien à la fois en largeur de raie et en intensité. Toutefois, une distortion du résidu de cet ajustement est visible pour chaque raie. Sa forme dispersive antisymétrique par rapport au centre de la raie et d'amplitude environ égale à 1% traduit un décalage en fréquence entre les deux spectres de  $0.023 \, cm^{-1}$  soit 700 MHz, dû à une erreur faite lors de la calibration absolue de l'échelle en fréquence du spectre. Dans l'encart II, la zone du spectre détaillée se trouve dans la partie la plus forte de la bande d'absorption de l'eau. La différence entre les deux spectres est affectée par l'erreur de calibration (forme dispersive) mais aussi par l'influence de l'algorithme de ligne de base qui ne s'applique pas exactement de la même manière aux deux spectres (forme symétrique), l'un étant affecté par la forme du spectre laser et l'autre ne l'étant pas. L'erreur sur la ligne de base induite par l'algorithme est encore plus flagrante dans la bande d'absorption de l'oxygène (III), où l'intensité et le rapprochement entre les raies creusent fortement le spectre transmis. Le fait que les deux spectres soient traités de manière indépendante induit des distortions, symétriques par rapport aux centres des raies, augmentant en intensité au fur et à mesure que la bande mesurée s'éloigne de zéro.

Le spectre Vernier obtenu pour la même résolution Vernier  $\Gamma_V = 2 GHz$  mais avec un désaccord négatif est présenté fig.4.17. De même que pour le spectre précédent, le spectre mesuré est comparé en miroir avec celui simulé avec HITRAN. Le modèle complet apparaît dans l'encart haut et trois zones spectrales (I, II et III) sont détaillées dans les encarts suivants. En I, on constate de nouveau un très bon accord en intensité, en largeur et en fréquence entre les raies mesurées et simulées (le décalage de 700 *MHz* étant toujours présent). En II, il est visible que les raies mesurées les plus intenses sont



FIGURE 4.16: Spectre Vernier de l'air ambiant (HR = 50%) mesuré avec une résolution  $\Gamma_V = 2 \, GHz$  et un désaccord Vernier  $\epsilon_V = +1.46 \times 10^{-5}$ . L'encart haut présente la comparaison en miroir du spectre mesuré entier avec le spectre calculé à partir d'HITRAN. Les encarts I, II et III détaillent l'accord entre spectres mesuré (en noir) et calculé (en rouge) ainsi que le différence entre les deux (en vert).



FIGURE 4.17: Spectre Vernier de l'air ambiant (HR = 50%) mesuré avec une résolution  $\Gamma_V = 2 \, GHz$  et un désaccord Vernier  $\epsilon_V = -1.46 \times 10^{-5}$ . L'encart haut présente la comparaison en miroir du spectre mesuré entier avec le spectre calculé à partir d'HITRAN. Les encarts I, II et III détaillent l'accord entre spectres mesuré (en noir) et calculé (en rouge).

déformées à leur sommet. Ce type de distortion est le résultat d'un asservissement du Vernier réagissant au passage des raies. L'accord de mode étant difficile à maintenir sur tout le spectre, des modes transverses d'ordres élevés apparaissent, même s'ils peuvent n'être que de quelques %, sur les bords du balayage spectral. Une fraction de l'intensité des spots leur correspondant peut alors atteindre la surface de la photodiode à cadrans et ainsi faiblement déséquilibrer le signal d'erreur. Le décalage spectral existant entre ces deux spots déséquilibre fortement l'erreur lorsque le spot principal est affecté par l'absorption.

Par ailleurs, en III, une déformation très importante des doublets de l'oxygène apparaît à partir de 13067  $cm^{-1}$ . Ici, ce n'est pas l'asservissement qui est en cause mais plutôt la calibration en fréquence du spectre : la variation relative d'intensité atteint pour ces raies 90% et le signal d'étalon normalisé n'est plus exploitable, les signaux des photodiodes tombant quasiment à 0 V. Cette partie du spectre n'est cependant pas exempte de toute déformation due aux modes transverses. En effet, elle comporte des raies d'intensité beaucoup plus faible que celles de l'oxygène qui sont en réalité des répliquats des doublets de l'oxygène (la périodicité spectrale est identique) dus au passage de ces raies par les modes transverses.

# 4.3.2 Validité du modèle linéaire



FIGURE 4.18: Spectre Vernier de l'air ambiant (HR = 35%) mesuré avec une résolution  $\Gamma_V = 1 \, GHz$  et un désaccord Vernier  $\epsilon_V = +3 \times 10^{-5}$ . Les différents niveaux de validité du traitement lorentzien du spectre pour  $\Gamma_V = \Gamma_a/6$  sont indiqués à droite du spectre.

La possibilité de traiter le spectre mesuré comme une simple convolution de HITRAN est à présent discutée. Un spectre centré sur la partie faible de la bande d'absorption

de l'eau est présenté fig4.18 en réduction relative d'intensité. Il est le résultat de la moyenne de 10 spectres pris avec une résolution de 1 GHz et un désaccord positif. Les niveaux de validité du traitement lorentzien pour cette résolution (les raies d'absorption de l'eau dans les conditions expérimentales ont toutes des largeurs autour de 6 GHz) y sont indiqués et semblent montrer qu'il est possible d'obtenir des ajustements avec une sensibilité à  $10^{-3}$  près jusqu'à une intensité relative de raie égale à 2.5%.

Un groupe de six raies d'absorption comprises entre 12493 et 12497.5  $cm^{-1}$  a été isolé dans ce spectre et, dans un premier temps, ses variations d'intensité et de largeur de raies sont observées en fonction de la résolution Vernier et du signe du désaccord. Sur la fig.4.19 sont tracés les spectres mesurés avec un désaccord positif en noir et négatif en rouge pour quatre résolutions différentes. Du côté négatif, peu de changement sont



FIGURE 4.19: Evolution des raies mesurées selon le signe du désaccord et la résolution Vernier

observables entre les résolutions (a) et (b) sur les raies mesurées : leurs intensités sont identiques, seule leurs largeurs diminuent. Lorsque la résolution augmente (c-d), les raies s'affinent toujours mais en perdant en intensité pour se rapprocher vers la mesure faite du côté positif. Cette dernière suit une évolution avec la résolution plus intuitive : les raies s'affinent et gagnent en contraste à mesure que la résolution s'améliore. Il est aussi évident que les mesures faites du côté positif et du côté négatif convergent vers un unique spectre lorsque la résolution devient suffisamment fine devant la largeur de la raie mesurée ( $\Gamma_a \simeq 5 \, GHz$  pour ces raies).

# 4.3.2.1 Cas positif

L'intensité relative limite de validité à  $10^{-3}$  d'accord entre le spectre mesuré et le spectre HITRAN convolué avec une lorentzienne attendue est égale à 1% pour 5*GHz* de résolution ( $\Gamma_V/\Gamma_a = 1$ ) et 2.5% pour 1*GHz* de résolution ( $\Gamma_V/\Gamma_a = 0.2$ ). Pour ces deux résolutions, les spectres mesurés du côté positif (fig4.19(a) et (d)) sont convertis en absorption de manière linéaire et comparés au spectre calculé à partir de HITRAN convolué avec une lorentzienne de largeur  $\Gamma_V$ , cf fig.4.20.



FIGURE 4.20: Comparaison entre raies mesurées avec un désaccord positif converties en absorption et spectre HITRAN convolué avec une lorentzienne

Pour la résolution de 5 GHz, la raie la plus intense n'est plus dans la plage de validité de la convolution simple puisque son intensité relative dépasse juste la limite de 1% mais les raies d'intensité plus faibles se superposent bien avec le spectre convolué. Lorsque la résolution augmente, la plage de validité de l'approximation lorentzienne augmente et on trouve dans ce cas un résultat quantitatif pour toutes les raies mesurées, l'accord étant d'autant meilleur que la raie considérée est faible en intensité.

## 4.3.2.2 Cas négatif

Le même travail est réalisé du côté négatif : la limite de validité à  $10^{-3}$  y est plus restrictive, égale à 0.002 pour une résolution de 5 GHz et à 0.004% pour une résolution de 1 GHz. La fig.4.21 présente la comparaison entre le même groupe de raies mesurées converties en absorption et le spectre calculé en convoluant le spectre HITRAN pour les résolutions 5 et 1 GHz. Les trois raies les plus intenses mesurées avec une résolution de 5 GHz sont en fort désaccord avec le spectre HITRAN et étaient effectivement bien au-dessus du seuil limite d'intensité tolérée pour faire cette comparaison. De plus, les raies sont ici ajustées par des fonctions lorentziennes (de paramètres libres) et le résidu de cet ajustement est tracé sur la même figure. Ce dernier permet d'évaluer la forme de la raie mesurée par rapport à une lorentzienne. Lorsque l'intensité de la raie est trop forte pour être comparée à HITRAN, le résidu de son ajustement présente une forme en "M" qui est caractéristique du désaccord négatif. Dans le cas de la mesure avec 1 GHz de résolution, l'augmentation du seuil de validité de l'approximation lorentzienne fait que la mesure et le calcul convergent, moins vite toutefois que pour le côté positif puisque les désaccords entre les deux courbes restent plus visibles.



FIGURE 4.21: Comparaison entre raies mesurées avec un désaccord négatif converties en absorption et spectre HITRAN convolué avec une lorentzienne

# 4.3.3 Performances

Nous discutons à présent les performances réalisées avec la mesure de ces spectres, comme cela a déjà été fait pour la cavité de finesse modérée.

# 4.3.3.1 Eléments spectraux

Comme dans le cas précédent, chaque ISL du Vernier est composé de F éléments spectraux, ce qui fixe le nombre maximal d'éléments spectraux contenus dans un spectre à 52500 si la course de l'actuateur lent de 7  $\mu m$  est utilisée dans son intégralité pour le balayage du spectre. Le spectre large bande pris avec un désaccord positif (fig.4.16) couvre 1200 cm<sup>-1</sup> avec une résolution de 2 GHz, ce qui représente 18000 éléments spectraux (et correspond à un balayage de 5.25  $\mu m$ ).

Le temps de ring down associé à cette cavité est de  $5 \mu s$ . Chaque élément spectral doit donc être balayé en  $30 \mu s$ . Dans le cas d'un balayage linéaire, le temps total de balayage doit être égal à 540 ms. Dans le cas d'un balayage sinusoïdal, le balayage doit durer 3 spour que la partie du sinus la plus rapide soit adiabatique. Enfin, avec cette finesse plus élevée, la fréquence de passage maximale des éléments spectraux est égale à 33 kHz. La bande passante de la photodiode n'est plus un facteur limitant la vitesse de balayage du spectre.

# 4.3.3.2 Sensibilité

La sensibilité de la mesure est ici évaluée à partir du spectre déjà présenté fig.4.18. Le même groupe de six raies comprises entre 12493 et  $1297.5 \, cm^{-1}$  est isolé dans ce

spectre et est tracé en trait plein fig.4.22(a), où il est comparé au spectre mesuré avec la même résolution Vernier mais un désaccord négatif (en pointillés). Les niveaux limites de validité du traitement lorentzien sont reportés ici, en trait plein pour le désaccord positif et en pointillés toujours pour le désaccord négatif. Cette comparaison entre les deux signes de désaccord montre la difficulté supplémentaire pour arriver à être quantitatif du côté négatif sans utiliser le modèle le plus complet d'ajustement.



FIGURE 4.22: Détermination de la sensibilité de la mesure à travers l'ajustement d'un groupe de raies lorentziennes

Les raies mesurées du côté positif sont converties linéairement en absorption, en multipliant la réduction relative d'amplitude  $\Delta I/I$  par le facteur de cavité  $2\pi/(F \times L)$  (b). Les absorptions ainsi obtenues sont comparées à la convolution lorentzienne d'HITRAN et le résidu de l'ajustement est tracé dans l'encart bas. Les variations du résidu calculé restent inférieures à  $10^{-3}$  entre 12493.8 et 12495.5  $cm^{-1}$  et le résidu devient plus structuré au delà, lorsque la convolution lorentzienne n'est plus valide qu'à 1%. La déviation standard du résidu est donc calculée sur la gamme où la convolution lorentzienne est valable et nous accès à l'absorption minimale détectable :

$$\alpha_{min}^{HF} = 2.3 \times 10^{-9} \, cm^{-1}$$

qui est la sensibilité obtenue en faisant la moyenne de 10 spectres successifs. Cette sensibilité peut encore se comparer à limite d'absorption fixée par le bruit de photon (définie Eq.4.5), égale ici à

$$\begin{aligned} \alpha_{min}^{SN} &= \frac{\sqrt{2 \cdot 1.6 \times 10^{-19} \, C \cdot 1 \, \mu W \cdot 0.52 \, A/W \cdot 33 \, kHz \cdot 1.5 \times 10^6 V/A}}{0.67 \, V} \cdot \frac{2\pi}{3100 \times 329.4 \, m} \\ &= 1 \times 10^{-9} \, cm^{-1} \end{aligned}$$

Le spectre traité étant le résultat de la moyenne de 10 mesures, la sensibilité équivalente au bruit de photon attendue est égale à  $\alpha_{min}^{SN}/\sqrt{10}$  soit  $3.3 \times 10^{-10} \, cm^{-1}$ . Cet écart, plus important que pour les mesures à finesse modérée, est essentiellement dû à la réduction de la puissance optique transmise par cette cavité.

# 4.3.3.3 Figure de mérite

La figure de mérite, définie Eq.4.9, peut être déduite des performances qui viennent d'être discutées :

$$M_{HF} = 2.3 \times 10^{-9} \, cm^{-1} \cdot \sqrt{10 \times 30 \, \mu s/\text{el. spec.}} = 4 \times 10^{-11} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$$

Cette figure de mérite n'est que 2 fois plus petite que celle calculée avec la cavité de finesse modérée, là où en ne considérant que l'augmentation de finesse, un facteur  $\simeq 8 \ (\sqrt{60})$  est attendu :

- l'augmentation de la longueur d'interaction effective intracavité proportionnelle à F devrait augmenter la sensibilité de la mesure dans les mêmes proportions (facteur 10)
  ce n'est pas exactement le cas, à cause de la diminution du signal transmis par la cavité,
- l'augmentation du temps de ring-down de la cavité du même facteur augmente le temps total nécessaire pour balayer un élément spectral avec une résolution donnée et réduit donc la figure de mérite de  $\sqrt{10}$ ,
- cette même augmentation du temps de balayge d'un élément spectral permet aussi sa mesure à la vitesse adiabatique limite alors que ce temps était augmenté d'un facteur 6 dans le cas de la finesse modérée.

Au regard de ces performances, le gain le plus immédiat serait apporté par l'augmentation de la puissance optique, ce qui s'envisage notamment facilement en changeant de modèle de photodiode à cadrans.

#### 4.3.3.4 Moyenne et franges optiques

La plupart des spectres mesurés avec ce dispositif sont affectés par des franges optiques de contraste significatif. Leur périodicité spectrale nous permet de les attribuer aux coupleurs d'entrée et sortie, tous deux ayant une épaisseur de substrat de 3 mm. Toutefois, de très faibles désaccords entre ces deux distances induisent un battement de très basse fréquence sur la ligne de base du spectre. C'est à un nœud de ces battements qu'a pu être définie la sensibilité dans la section 4.3.2.1. En effet, aucune frange n'est apparante sur le résidu de l'ajustement du spectre couvrant  $4 cm^{-1}$  de la fig.4.22. Nous avons cependant voulu évaluer cette sensibilité sur des plages spectrales plus importantes ainsi que notre capacité à l'améliorer en moyennant les spectres. Pour ce faire, deux moyennes de N spectres sont faites consécutivement puis soustraites, la sensibilité étant déduite de la déviation standard de cette différence. Cette méthode est cependant sensible aux instabilités en fréquence liées au processus de linéarisation se manifestant en présence d'absorption, limitant ainsi la gamme spectrale étudiée à une centaine de  $cm^{-1}$ , ce qui reste important.

La fig.4.23 illustre ces mesures en fonction du nombre de spectres compris dans la moyenne. Cette courbe est attendue inversement proportionnelle à la racine du nombre



FIGURE 4.23: Déviation standard de la ligne de base en absorption en fonction du nombre de spectres utilisés dans la moyenne

de spectres si cette ligne de base est affectée d'un bruit blanc. Cette tendance est représentée par la droite de pente -1/2 en trait plein noir. Ce résultat indique que jusqu'à 40 s (temps nécessaire pour moyenner 100 spectres), les bruits d'intensité sont spectralement blancs. Au-delà de ce temps, la dérive des franges sur la ligne de base devient visible à travers leur différence, stabilisant le minimum d'absorption mesurable à quelques  $10^{-10} \, cm^{-1}$ .

Sur la fig.4.24 est représentée la même portion de spectre, délibérément choisie affectée par des raies d'absorption faibles, pour trois points clés du comportement de la sensibilité. Le premier spectre n'est pas une moyenne et correspond au premier point de la courbe en sensibilité. Le deuxième est le résultat d'une moyenne réalisée sur 100 spectres et la gain d'un facteur 10 en sensibilité est évident en remarquant que plusieurs doublets de raies sont maintenant distinguables. En dernier est présenté le spectre résultant de



FIGURE 4.24: Effet de la moyenne sur la ligne de base pour trois nombre N de spectres différents

la moyenne de 1000 acquisitions, dont le seul gain visible est l'observation de franges optiques bien définies qui vont limiter la sensibilité maximale accessible.

#### 4.3.3.5 Gamme dynamique

La gamme dynamique de la mesure Vernier réalisée avec un désaccord positif et une résolution de 2 GHz est déduite des spectres mesurés et de notre capacité à les ajuster avec les modèles développés. Sur la fig.4.25 sont illustrées les deux limites extrêmes



FIGURE 4.25: Détermination de la gamme dynamique en absorption mesurable avec le Vernier

de détection démontrées. En (a), une partie de la bande de l'oxygène a été ajustée en intensité relative avec le modèle complet à partir du spectre HITRAN, tracé en miroir non convolué. L'intensité de la raie HITRAN la plus forte ajustée est égale à  $275 \times 10^{-6} \, cm^{-1}$ . En (b), la raie la plus faible discernable est prise avec un contraste deux fois plus grand que les franges optiques, soit des raies d'intensité environ égale à  $2 \times 10^{-8} \, cm^{-1}$ . Ces deux résultats donnent une gamme dynamique de détection en absorption couvrant 4 ordres de grandeurs. Son principal facteur limitant est l'existence des franges optiques parasites induites par les coupleurs d'entrée et de sortie de la cavité qu'il serait possible de restreindre considérablement en amplitude en utilisant des miroirs avec un substrat aux faces non parallèles.

Cette performance de gamme dynamique est particulièrement attractive pour des mesures de haute précision, pour des applications de détection de traces à forte variabilité ou encore la mesure de rapports isotopiques. A titre d'exemple, sur la fig.4.26, la présence de l'isotope  $O_2^{18}$ , d'une concentration 2000 fois plus faible que celle de l'isotope  $O_2^{16}$ , est parfaitement discernable.



FIGURE 4.26: Détail du spectre mesuré dans les bandes de  $O_2$ 

# 4.4 Conclusion

Ce chapitre a donc permis de caractériser de façon détaillée les spectes issus de notre approche particulière du couplage Vernier. Dans un premier temps, les résultats de la preuve de concept obtenus avec une finesse modérée de F = 300 ont été présentés. Malgré cette faible valeur, une figure de mérite de  $M_{FM} = 7.5 \times 10^{-11} cm^{-1}/\sqrt{Hz}$ a été démontrée plaçant cette performance d'ores et déjà au niveau de l'état de l'art des techniques pré-existantes. Cette approche se démarque toutefois par sa capacité d'acquisition d'un très grand nombre d'éléments spectraux, démontré à 4500 avec cette finesse et limité par la course de l'actuateur. Un spectre couvrant les  $1400 \, cm^{-1}$  (40 THz) du peigne de fréquences est présenté. De plus, la sensibilité en absorption obtenue sur l'acquisition d'un seul spectre,  $\alpha_{min} = 1.6 \times 10^{-8} cm^{-1}$  est remarquablement petite, malgré la faible valeur de F, pour une situation d'asservissement du peigne dans la cavité à un cinquième de la largeur des résonances. L'origine de ce faible niveau de bruit a pu être identifiée comme résultant de l'immunité aux bruits de conversion fréquenceamplitude conférée par le filtrage Vernier basse résolution. C'est la combinaision de cette caractéristique avec la gamme spectrale accessible qui constitue l'atout majeur de notre approche.

Cependant, les profils des spectres mesurés présentent des écarts significatifs à ce qui pourrait être attendu des profils de transitions atmosphériques, d'autant plus marqués que les transitions sont intenses. L'origine de ces écarts n'a pu être expliquée par des biais expérimentaux, tels que la présence de modes transverses d'ordres supérieurs au  $TEM_{00}$  ou de bandes passantes non adaptées, et nous a conduit à reprendre le modèle linéaire de convolution présenté dans le chapitre 2. Nous avons montré, en cherchant à simuler les spectres mesurés à l'aide de la fonction de transfert de la cavité et de la base de données HITRAN, que les effets d'élargissement des résonances et de déplacement spectral induits par l'absorption moléculaire devaient être pris en compte pour obtenir un accord de haute qualité sur les profiles des transitions sur l'intégralité du spectre. Ce modèle complet fait par ailleurs apparaître une dépendance marquée au signe du désaccord entre l'ISL de la cavité et l'espacement des dents du peigne sur le contraste des spectres et leur résolution apparente. Utilisant ce modèle, nous avons caractérisé le domaine de validité de l'approche linéaire de convolution en fonction du bruit de l'expérience, du signe du désaccord et de la résolution. Alors que le désaccord négatif conduit à un contraste élevé même pour des résolutions Vernier "médiocres", le désaccord positif offre une plus grande gamme dynamique dans le domaine de l'approche linéaire de convolution.

Enfin, nous présentons les résultats obtenus avec une cavité de finesse plus élevée, F = 3000, mise en place afin de pousser plus loin les performances de l'approche mais aussi de valider la compréhension issue du modèle complet. Il en ressort un accord quasiparfait entre modèle et mesure obtenu pour les deux signes du désaccord. Avec cette plus haute finesse, une résolution Vernier de 1 GHz a pu être obtenue et des spectres à 2 GHzde résolution de 18000 éléments spectraux sont présentés. La sensibilité d'absorption sur l'acquisition d'un spectre seul atteint  $\alpha_{min} = 7 \times 10^{-9} cm^{-1}$ , valeur restant plus de trois fois supérieure à celle qui aurait pu être escomptée avec le gain de finesse d'un facteur 10. Nous attribuons ce résultat à une réduction sensible d'intensité transmise par cette cavité. Avec des temps d'acquisition de l'ordre de la seconde, une figure de mérite de  $M_{HF} = 4 \times 10^{-11} cm^{-1} / \sqrt{Hz}$  est obtenue. Cette notion se rattachant à la capacité à réaliser la moyenne des spectres en présence de bruit blanc, nous avons voulu évaluer le bruit sur une ligne de base des spectres couvrant une centaine de  $cm^{-1}$  en fonction du temps. Afin de s'affranchir des franges optiques induites par les réflexions internes aux substrats des miroirs plans utilisés, une stratégie de soustraction des spectres moyennés consécutifs est mise en place et permet d'obtenir une augmentation de sensibilité correspondant à un bruit blanc jusqu'à l'acquisition de 100 spectres (soit 40 s). Cette augmentation de sensibilité est amoindrie ensuite par des dérives lentes des franges optiques mais permet tout de même d'atteindre une sensibilité d'absorption de  $4 \times 10^{-10} cm^{-1}$ . Enfin, une gamme dynamique de 4 ordres de grandeur a été démontrée.

Plusieurs améliorations peuvent être immédiatement apportées au montage afin d'augmenter encore la sensibilité de notre mesure, limitée actuellement par les franges optiques présentes sur la ligne de base et le faible niveau de signal transmis par la cavité. En premier lieu, il serait nécessaire de changer les miroirs de la cavité pour des miroirs avec des substrats à faces non parallèles. Le choix des réflectivités de ces miroirs devrait être fait de manière à conserver une transmission maximale de cavité proche de l'unité malgré l'augmentation de finesse (les réflectivités des miroirs courbes devant être prises considérablement plus grandes que celles des coupleurs d'entrée et de sortie). Enfin, comme précédemment discuté, l'utilisation d'une photodiode à cadrans avec une séparation entre surfaces plus petite nous permettrait de s'affranchir de la lame séparatrice actuellement utilisée.

L'ensemble des performances établies et leurs axes d'amélioration font de l'approche Vernier dans le régime basse résolution une technique particulièrement pertinente et adaptée pour des mesures de précision, de détection de traces ou de rapports isotopiques. Mais surtout, du fait de sa gamme spectrale très étendue, elle permet la résolution complète de systèmes moléculaires complexes et difficiles à produire en grande quantité.

# Conclusions et perspectives

De façon générale, mon travail de thèse s'est attaché à la réalisation d'un couplage particulier d'un peigne de fréquences optiques avec une cavité de haute finesse, le couplage Vernier, et à la mise en place d'un dispositif permettant de l'exploiter pour le développement d'une technique de spectroscopie alliant haute sensibilité, haute résolution  $(\sim GHz)$  et grande couverture spectrale, dans un temps d'acquisition de l'ordre de la seconde ou sub-seconde. L'exposé de ce développement, et les questions qui s'y rattachent, ont décomposé ce manuscript en quatre chapitres.

Le chapitre 1 a introduit dans un premier temps les notions clés liées aux peignes de fréquences femtoseconde, leur fonctionnement, leur diversité et leur contrôle avec un regard plus resserré sur le cas de l'oscillateur Titane :Saphire utilisé dans ce travail. Les notions générales liées aux cavités optiques ont ensuite été abordées, la notion de mode, spectral et spatial, introduite, et leur excitation dynamique décrite. Nous avons alors abordé la description de l'influence d'effets, souvent considérés négligeables, mais qui deviennent déterminants dans le contexte des peignes de fréquences optiques : les effets large bande de dispersion spectrale de longueur de cavité induits par la GDD (Group Delay Dispersion) même faible des miroirs, et/ou par la présence d'un gaz non absorbant au sein de la cavité. Les modifications des modes de résonance de la cavité induites par l'absorption moléculaire ont ensuite été discutées. L'ensemble de ces notions avait pour but d'appréhender la description de l'état de l'art des techniques de spectroscopie par cavité exploitant les peignes de fréquences.

Le chapitre 2 a porté sur la présentation d'un formalisme ayant pour objectif d'apporter une compréhension simple du couplage Vernier. Cela a conduit à la description de différents régimes et permis une intuition expérimentale de leur exploitation pour la spectroscopie. Ce couplage est obtenu lorsque les peignes de fréquences laser et de résonances de cavité sont volontairement désaccordés, conduisant à des figures Moiré de fréquences désignées dans ce travail comme le peigne de coïncidences Vernier. Ces coïncidences ont été décrites dans un premier temps en fonction du désaccord exprimé par rapport au couplage des deux peignes obtenu en correspondance parfaite. Un premier régime, appelé filtrage Vernier haute résolution, conduisant à résolute la structure du peigne de fréquences, a été décrit. Des preuves de concept pour la spectrosocpie ont déjà été établies dans ce régime. Nous avons cherché à montrer que le formalisme développé permettait de discuter facilement les performances obtenues au regard des paramètres expérimentaux. Le second régime, appelé filtrage Vernier basse résolution, est au cœur de la réalisation expérimentale présentée dans ce travail. Dans ce régime, plusieurs dents laser participent à une coïncidence Vernier. Nous avons alors simplement fait apparaître que la distance spectrale séparant deux coïncidences successives, rapportée à la largeur d'une coïncidence, est donnée uniquement par la finesse de la cavité. Une expression du peigne de coïncidences Vernier a été établie, celui-ci étant gouverné intégralement par le taux de répétition et la fréquence d'offset du laser ainsi que par la longueur de cavité. L'influence de chacun de ces paramètres sur la position spectrale des ordres Vernier a été discutée. En particulier, il est apparu que la fluctuation en fréquence des ordres du Vernier induite par les fluctuations libres des trois paramètres (le peigne de fréquences n'étant pas stabilisé) peut être stabilisée par l'action de n'importe lequel de ces trois paramètres. Aussi, le contrôle de l'un d'entre eux offre la possibilité de balayer un ordre du peigne Vernier sur toute la gamme spectrale du laser. Ces deux considérations, balayage et stabilisation, sont les deux concepts clés de notre approche pour la spectroscopie. La vitesse de balayage spectral a ensuite été discutée et nous avons montré que la vitesse maximale permise pour rester dans un régime adiabatique de réponse de cavité est donnée par la vitesse adiabatique qui serait obtenue dans le cas d'une onde monochromatique rapportée au désaccord relatif entre les deux peignes. Ce désaccord, compris typiquement entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$ , diminue considérablement les temps d'acquisition d'un balayage spectral. Nous avons établi un modèle simple pour déterminer quantitativement la réduction d'intensité transmise par un ordre Vernier en présence d'absorption de façon à exploiter le concept de Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy. Pour finir, deux schémas de détection ont été discutés selon qu'un ou plusieurs ordres Vernier sont présents dans le spectre. Dans le second schéma, que nous avons mis en œuvre dans notre travail expérimental, la transmission de la cavité est dispersée avec un réseau de diffraction de manière à résoudre spatialement les différents ordres Vernier. Leurs positions spatiales deviennent alors des discriminants en fréquence nous permittant de réaliser la stabilisation de l'un d'entre eux.

Le chapitre 3 a décrit le montage expérimental du filtrage Vernier basse résolution, tout d'abord dans son ensemble, puis en détaillant plusieurs aspects importants pour l'analyse des performances obtenues. Dans un premier temps, nous avons présenté les deux cavités que nous avons utilisé dans ce travail en incluant notamment la mesure de leur finesse, respectivement de 300 et 3000. Pour la plus haute finesse, des incohérences dans la mesure ont été clairement identifiées, ce qui nous a conduit à considérer dans la suite les données constructeur pour cette cavité. La détection du peigne Vernier a ensuite été discutée. Nous avons souligné les limitations induites par le pouvoir résolvant du réseau de diffraction sur la plus haute résolution Vernier accessible et discuté le fonctionnement et la limitation de la photodiode à cadrans utilisée. Nous avons ensuite détaillé le protocole suivi pour obtenir le peigne Vernier à partir du point magique facilement identifiable. La boucle d'asservissement et ses performances ont ensuite été présentées. Une stabilisation de 180 MHz pour une coïncidence de résolution Vernier de 1 GHz a été démontrée sur l'échelle de temps nécessaire au balayage d'une frange de l'étalon utilisé pour la calibration. Ceci est la traduction d'une stabilisation relative du peigne avec la cavité de 6 kHz sur ce même temps. Pour finir, la procédure permettant l'obtention d'un spectre Vernier calibré de façon relative en fréquence a été détaillée.

Le chapitre 4 a décrit la conversion des spectres Vernier de réduction relative d'intensité en absorption, la finesse étant connue par ailleurs. Nous avons montré qu'un modèle issu de la fonction de transfert de cavité prenant en compte l'élargissement spectral des modes de résonance ainsi que leur décalage en position, deux effets induits par l'absorption moléculaire, permettait de reproduire fidèlement les spectres mesurés. En particulier, la sensibilité à la dispersion moléculaire révèle une dépendance marquée au signe du désaccord entre les deux peignes. Dans le cas négatif, correspondant à un ISL de cavité plus étendu que l'espacement des dents laser, les signatures des absorptions moléculaires apparaissent plus contrastées et d'une résolution apparente plus élevée que la résolution Vernier, et ce d'autant plus que cette dernière est réduite. Le cas opposé, où le désaccord est positif, conduit à un comportement inverse. Il existe cependant pour les faibles absorptions et particulièrement pour un désaccord positif, un règime où la réduction relative d'intensité divisée par la longueur d'interaction effective,  $L_{eff} = \frac{F}{2\pi} \times$ L, correspond au spectre d'absorption convolué par une lorentzienne de largeur donnée par la résolution du Vernier. Des figures de mérite de  $M_{FM} = 7.5 \times 10^{-11} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$  et  $M_{HF} = 4 \times 10^{-11} \, cm^{-1} / \sqrt{Hz}$  ont été obtenues respectivement pour la cavité de finesse modérée (F=300) et de haute finesse (F=3000). Dans les deux cas, l'intégralité du spectre laser couvrant 40 THz a pu être sondée dans des temps de l'ordre du dizième de seconde pour F=300 avec 4500 éléments spectraux et de l'ordre de la seconde pour F=3000 avec 18000 éléments spectraux. Les plus petits coefficents d'absorption mesurables sur l'acquisition d'un spectre unique ont été évalués à  $1.6\times 10^{-8}\,cm^{-1}$  et  $7\times 10^{-9}\,cm^{-1}$ respectivement pour F=300 et F=3000. Cette haute sensibilité s'explique principalement par une immunité au bruit de conversion fréquence-amplitude du filtrage Vernier basse résolution. Pour la haute finesse, nous avons démontré la possibilité de faire la moyenne des spectres, augmentant ainsi la sensibilité d'un facteur légèrement supérieur à 10, limité par les franges optiques induites par les substrats des miroirs formant cette cavité. Une gamme dynamique de l'ordre de quatre ordres de grandeur a été déterminée. Enfin,
un fonctionnement continu à l'échelle de la demi-heure a pu être couramment obtenu, limité uniquement par la gamme de l'actuateur employé pour corriger les dérives lentes et réaliser le feedforward, témoignant ainsi de la robustesse du spectromètre.

Pour situer au mieux ses performances, nous les avons reportées dans le tableau suivant, où sont aussi répertoriées les autres approches développées autour du couplage peigne de fréquences femtosecondes-cavité optique, classées par ordre de figure de mérite. A celles déjà évoquées dans l'état de l'art a été ajoutée une nouvelle approche (publiée au cours de la rédaction de ce manuscrit) similaire à celle exploitant un spectromètre à transformée de Fourier, où le photodétecteur équilibré corrigeant les bruits de conversion fréquenceamplitude est remplacée par une stratégie inspirée de la technique NICE-OHMS ("Noise-Immune Cavity-Enhanced Optical Heterodyne Molecular Spectroscopy") [16] adaptée aux peignes de fréquences et nommée NICE-OFCS (pour "Optical Frequency Combs Spectroscopy") [24].

Approches	Fig. Mér.	F	Sensibilité	$t_{acq}$	Résolution	Spectre
	$[cm^{-1}/\sqrt{Hz}]$		$\alpha_{min} \left[ cm^{-1} \right]$		$\delta  u$	$\Delta \nu$
Spectro. CEAS	$1.5 \times 10^{-11}$	32000	$3 \times 10^{-9}$	12ms	10GHz	$65  cm^{-1}$
2012 [23]			Shot Noise			Limite CCD
Spectro. TF	$3.4 \times 10^{-11}$	8000	$1.4 \times 10^{-9}$	6 s	380MHz	$130  cm^{-1}$
2011 [22]			Shot Noise			Limite GDD
Vernier BR	$4 \times 10^{-11}$	3000	$7 \times 10^{-9}$	1.5 <i>s</i>	2 GHz	$1200  cm^{-1}$
Nous!						Laser
Hétérodyne	$1 \times 10^{-10}$	1200	$3 \times 10^{-8}$	$18\mu s$	4.5GHz	$250  cm^{-1}$
2009 [57]				$\gtrsim  au_{RD}$		Limite GDD
VIPA	$2.5 \times 10^{-10}$	30000	$8 \times 10^{-8}$	220ms	800MHz	$150  cm^{-1}$
2009 [28]					Mode/mode	Limite CCD
NICE-OFCS	$4.3 \times 10^{-10}$	2300	$3 \times 10^{-8}$	800ms	1GHz	$130  cm^{-1}$
2014 [24]						Limite GDD
Vernier HR	$1.2 \times 10^{-9}$	30000	$8 \times 10^{-8}$	500ms	1.1GHz	$170  cm^{-1}$
2014 [25]						Limite CCD
CRDS	$2 \times 10^{-9}$	4500	$2 \times 10^{-8}$	1 s	25GHz	$80  cm^{-1}$
2006 [20]						Limite CCD
Vernier HR	$8 \times 10^{-9}$	3000	$5 \times 10^{-6}$	10ms	1GHz	$130  cm^{-1}$
2007 [21]					Mode/mode	Limite CCD

Il ressort de ce tableau que chacun des paramètres est optimisé dans l'une de ces approches. Le choix de la méthode repose donc sur un compromis. Si la mesure doit être très sensible, les trois premières approches sont compétitives. Si le plus important est qu'elle soit rapide alors la méthode de mesure par battements multi-hétérodyne est en moyenne trois voire quatre ordres de grandeur plus rapide que les autres. La plus haute résolution est obtenue avec le spectromètre à transformée de Fourier. Les approches qui tirent parti de la calibration en fréquence du peigne femtoseconde sont le Vernier haute résolution (2007) et le VIPA - avec des taux de répétition de 1 GHz dans les deux cas, aucune méthode n'ayant pour le moment démontré une mesure en mode par mode avec un taux de répétition plus lent. Enfin, si la mesure doit couvrir une très large bande, alors notre approche couvre un ordre de grandeur de plus que les autres en gamme spectrale.

Plusieurs axes d'amélioration peuvent être envisagés dans le système actuel, principalement en vue d'augmenter l'intensité des signaux. Comme déjà discuté, des miroirs à faces non parallèles et optimisant la transmission de la cavité auraient un impact significatif au même titre qu'une photodiode à cadrans aux dimensions adaptées. Un gain important serait également apporté par le remplacement de l'étalon solide par un interféromètre de Michelson qui délivrerait un signal de calibration similaire mais d'amplitude égale à l'intensité qui lui est injectée. Ceci permettrait de ne prélever que 5% de la puissance du spot Vernier pour obtenir un signal de calibration en fréquence comparable à celui utilisé à présent. Cependant, la stabilité de l'étalon étant un élément primordial pour la calibration du déplacement angulaire du réseau, il serait alors nécessaire d'asservir la différence de marche du Michelson avec un second laser stabilisé en fréquence. Une calibration absolue du spectre pourrait également être obtenue en ajoutant une référence extérieure de longueur d'onde comprise dans le spectre femtoseconde.

La quantificaton absolue de l'absorption dans le cas d'une mesure CEAS implique aussi, dans tous les cas, la connaissance préalable des variations spectrales à vide de la finesse de la cavité utilisée. Cette mesure n'est ni simple ni rapide à réaliser sans mesure de temps de déclin, les mesures de profils au point magique étant affectées d'incertitudes relativement importantes, et son résultat est susceptible de changer d'un jour à l'autre en fonction de l'état de propreté des miroirs. Le transfert de l'approche Vernier basse résolution à la Cavity Ring Down Spectroscopy s'affranchit automatiquement de cette problématique. Ce choix serait en fait particulièrement bien adapté du fait de la transmission continue de l'ordre Vernier au cours d'un balayage. En effet, aucun processus actif n'est ici nécessaire pour injecter la cavité, ce qui permet l'obtention de déclins à la fréquence d'extinction, imposée, par exemple, par un interrupteur acousto-optique. La fréquence d'acquisition pourrait alors atteindre sa valeur maximale donnée par la bande passante de la cavité (30 kHz pour notre haute finesse), l'asservissement devant rester aveugle à cette fréquence. Nous avons déjà eu l'occasion au cours de ce travail de thèse d'insérer un tel dispositif sur le trajet optique et de nous assurer du bon fonctionnement de l'asservissement. Cependant la bande passante de notre photodétecteur ne permettait pas des mesures CRDS.

Il semble également possible d'aller vers le filtrage Vernier haute résolution avec notre système. Cela passe naturellement par l'utilisation d'un peigne cette fois stabilisé et éventuellement référencé. L'asservissement doit alors pouvoir opérer avec un niveau de signal fortement réduit mais surtout être aveugle au passage successif des dents du peigne, ce qui limite sa bande passante. La mise en œuvre doit donc se faire dans un environnement particulièrement calme qu'on peut obtenir grâce par des stratégies d'isolation de l'expérience aux sources de bruit accoustique. Le gain serait alors une haute précision et une grande exactitude sur l'échelle des fréquences. La longueur d'interaction effective serait par ailleurs multipliée par deux.

Enfin, le suivi simultané de plusieurs ordres Vernier, à l'aide d'une barrette de photodiodes par exemple, permettrait de réduire considérablement les temps d'acquisition. Il est néanmoins nécessaire d'être vigilant aux effets induits par la GDD intracavité, qui modifie l'ISL du Vernier au cours du balayage du spectre, ce qui peut rendre la calibration en fréquence complexe.

La performance unique de gamme spectrale accessible de ce spectromètre de haute sensibilité pouvant atteindre une résolution de l'ordre du GHz de résolution ouvre la voie à des perspectives multiples. En effet, nous avons démontré la possibilité de sonder une couverture spectrale large et précise de systèmes rovibrationnels et rovibroniques simultanément. Il existe cependant un nombre important de situations dans lesquelles des données spectroscopiques précises sont nécessaires pour décrire les surfaces d'énergie potentielle là où les méthodes de calcul *ab initio* peinent à converger avec suffisamment d'exactitude. Dans un futur proche, ce dispositif va être associé à une source à pulvérisation cathodique ainsi qu'à un caloduc permettant la production de molécules exotiques telles que les hydrures métalliques ou les dimères d'alcalins, molécules diatomiques constituées d'atomes à couches externes ouvertes ne satisfaisant pas la condition de Born-Oppenheimer. La connaissance de leur spectroscopie est cependant un enjeu majeur dans certaines problématiques d'astrophysique [79] ou de formation de molécules froides [80]. La possibilité de résoudre de tels systèmes dans des temps aussi courts est évidemment particulièrement séduisante.

Naturellement, le principe de ce spectromètre n'est pas limité au laser Titane :Saphire et pourrait être développé à d'autres longueurs d'onde, comme le proche infrarouge, zone spectrale adaptée à un grand nombre de problématiques de détection de traces. Enfin la couverture spectrale offerte est également adaptée à l'étude d'objets plus importants, des grosses molécules jusqu'à la réponse optique de nanoparticules. Par exemple, les nano-bâtonnets ou bi-pyramides présentent des résonances plasmon situées dans la gamme spectrale du Titane :Saphire et de largeur de quelques dizaines de nanomètres. En déposant ces objets sur des lames de microscope placées à incidence Brewster au waist (rendu petit ~  $15 \,\mu m$ ) de la cavité, le spectromètre devrait fournir leur réponse optique jusqu'à la résolution de l'objet unique [81]. Outre l'accroissement de précision apporté par la haute sensibilté du spectromètre, son évolution vers la CRDS permettrait de donner un caractére absolu à la mesure des pertes optiques induites par de tels objets.

Il ne s'agit que d'un premier aperçu du champ d'application de cette approche, qui ne saurait être exhaustif, et que nous souhaitons voir s'élargir dans le futur.

## Annexe A

# Calculs autour de l'accord de modes

Cette annexe a pour objectif de présenter les calculs entourant le dimensionnement de l'accord de modes entre le faisceau laser et la cavité. Il est dans un premier temps nécessaire de définir le mode  $TEM_{00}$  de la cavité dans lequel nous souhaitons coupler le mode laser, proche d'un  $TEM_{00}$ . Dans un second temps, les focales des lentilles d'accord de modes sont à déterminer en fonction des différentes distances dimensionnant la propagation du faisceau laser. Enfin, il est possible de calculer les positions spectrales des autres modes transverses ainsi que les performances qui sont attendues en terme de couplage du faisceau laser dans le mode de cavité. Une étude détaillant les calculs effectués est disponible dans la thèse [82].

Pour faire ces calculs, nous passons par la description du chemin optique avec les matrices  $\{ABCD\}$  [32] associées à chacun des éléments optiques rencontrés :

Miroir plan	$P = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$		
Propogation sur la distance $d$	$T(d) = \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$		
Lentille de focale $f$	$F(f) = \begin{pmatrix} 1 & 0\\ \frac{-1}{f} & 1 \end{pmatrix}$		
Réflexion sur un miroir de rayon de courbure $R_c$ avec	$SM_x(R_c, \theta_i) = \begin{pmatrix} 1 & 0\\ \frac{2}{R \cdot cos(\theta_i)} & 1 \end{pmatrix}$		
un angle d'incidence $\theta_i$ dans le plan d'incidence			
Réflexion sur un miroir de rayon de courbure $R_c$ avec	$SM(B, \theta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \end{pmatrix}$		
un angle d'incidence $\theta_i$ dans le plan orthogonal	$\frac{2 \cdot \cos(\theta_i)}{R} = \left(\frac{2 \cdot \cos(\theta_i)}{R}  1\right)$		

## A.1 Mode de cavité

Pour pouvoir ajuster les dimensions du faisceau laser à celles du mode de la cavité, il est dans un premier temps nécessaire de connaître ces dernières. Le développement qui va suivre s'applique à la géométrie de la cavité de haute finesse, rappelée fig.A.1.



FIGURE A.1: Géométrie de la cavité de haute finesse

Les waists de cette cavité sont attendus au milieu des coupleurs d'entrée et sortie ainsi qu'au milieu des deux miroirs courbes. Entre les miroirs d'entrée et de sortie de la cavité, au niveau du wait, le paramètre gaussien est donné par  $q(z_A) = i \cdot \pi \varpi_{0A}/800 nm$ , avec  $z_A$  la position du waist et  $\varpi_{0A}$  sa dimension. Partant de cette position de référence, il faut, pour que le mode de cavité existe, qu'après s'être propagé sur un tour et s'être réfléchi sur les quatre miroirs, le faisceau revienne identique à lui-même en  $z_A + L_c$ . La matrice de propagation s'écrit pour la dimension horizontale du faisceau :

$$\begin{pmatrix} A_x & B_x \\ C_x & D_x \end{pmatrix} = T(d_4 + d_1/2) \cdot SM_x(R_c, \theta_i) \cdot T(d_3) \cdot SM_x(R_c, \theta_i) \cdot T(d_2 + d_1/2) \quad (A.1)$$

et pour sa dimension verticale :

$$\begin{pmatrix} A_y & B_y \\ C_y & D_y \end{pmatrix} = T(d_4 + d_1/2) \cdot SM_y(R_c, \theta_i) \cdot T(d_3) \cdot SM_y(R_c, \theta_i) \cdot T(d_2 + d_1/2)$$
 (A.2)

La dimension du waist A sur l'axe horizontal est ensuite donnée par l'équation :

$$q_x(z_A) = \frac{A_x \cdot q_x(z_A) + B_x}{C_x \cdot q(z_A) + D_x}$$
(A.3)

dont la solution donne accès à la dimension ainsi qu'à la position du waist :

$$\varpi_{0A}^{x} = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi}} \cdot \sqrt{\frac{\sqrt{1 - \left(\frac{A_{x} + D_{x}}{2}\right)^{2}}}{C_{x}}}$$

$$z_{A} = \frac{A_{x} - D_{x}}{2 \cdot C_{x}}$$
(A.4)

Le même calcul sur la dimension verticale du faisceau permet de connaître l'ellipticité du mode  $TEM_{00}$  de la cavité.

Dans le cas de la cavité de haute finesse, ces calculs conduisent à un faisceau de dimension horizontale  $\varpi_{A0}^x$  égale à 421.0  $\mu m$ , de dimension verticale  $\varpi_{A0}^y$  égale à 448.4  $\mu m$ , et effectivement situé à  $d_1/2$ . Le même raisonnement peut s'appliquer sur le second waist de la cavité en faisant commencer la matrice de propagation au milieu des deux miroirs courbes, mais c'est sur le waist A que se fait le calcul d'accord de mode entre le faisceau laser et le mode de cavité.

## A.2 Accord de mode

La première étape de cet accord de mode consiste à connaître les dimensions du mode laser issu de l'oscillateur femtoseconde. Elles sont mesurées avec un chopper et sont égales à :

$$\varpi_{las}^x = 330\,\mu m \quad \text{et} \quad \varpi_{las}^y = 287\,\mu m \tag{A.5}$$

Ce waist laser  $\varpi_{las}$  est situé sur la surface du coupleur de sortie de l'oscillateur et se propage ensuite à travers deux lentilles sphériques de focales  $f_1$  et  $f_2$  qui vont réaliser l'accord de mode spatial avec la cavité. Ce montage est représenté fig.A.2 : la première lentille  $f_1$  est placée à une distance  $d_1$  de la sortie de l'oscillateur, les deux lentilles sont espacées de  $d_2$  et le faiceau parcourt encore  $d_3$  avant d'arriver au waist qui doit correspondre à la fois en dimension et en position à celui de la cavité  $\varpi_{0A}$ .



FIGURE A.2: Schéma de l'accord de mode entre laser et cavité à deux lentilles

Les focales des lentilles utilisées sont fixées à  $f_1 = 100 mm$  et  $f_2 = 125 mm$ . La propagation du faisceau laser est ensuite décrite par la matrice :

$$M_{ac}(d_1, d_2, d_3) = \begin{pmatrix} 1 & d_3 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{-1}{f_2} & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & d_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{-1}{f_1} & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & d_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$
(A.6)

qui sera identique pour les deux dimensions du faisceau. Les différents éléments de cette matrice sont des fonctions des différentes distances mises en jeu :

$$\begin{cases}
A_{ac}(d_2, d_3) = 1 + \frac{d_2 - d_3}{f_1} - \frac{d_3}{f_2} \cdot \left(1 + \frac{d_2}{f_1}\right) \\
B_{ac}(d_1, d_2, d_3) = d_3 \cdot \left(1 - \frac{d_1}{f_1} - \frac{d_1}{f_2}\right) - d_2 \cdot \left(\frac{d_3}{f_2} - 1\right) \cdot \left(1 - \frac{d_1}{f_1}\right) + d_1 \\
C_{ac}(d_2) = \frac{1}{f_1} \cdot \left(\frac{d_2}{f_2} - 1\right) - \frac{1}{f_1} \\
D_{ac}(d_1, d_2) = 1 - \frac{d_2}{f_2} \cdot \left(1 - \frac{d_1}{f_1}\right) - d_1 \cdot \left(\frac{1}{f_1} + \frac{1}{f_2}\right)
\end{cases}$$
(A.7)

Le waist  $q_{ac} = i \frac{\pi \varpi_{ac}^2}{\lambda}$  obtenu après les deux lentilles est alors déterminé par :

$$q_{ac} = q_{0A} = \frac{A_{ac}(d_2, d_3) \cdot q_{las} + B_{ac}(d_1, d_2, d_3)}{C_{ac}(d_2) \cdot q_{las} + D_{ac}(d_1, d_2)}$$
(A.8)

En fixant  $d_1$  à 65 cm, nous cherchons les solutions  $d_2(d_3)$  pour lesquelles l'équation A.8 est satisfaite. Par la suite, la distance  $d_3$  solution du système est déduite de la condition  $d_2(d_3) \in \mathbb{R}$ . Enfin, le couple de solutions n'existe que si les valeurs  $d_3$  et  $d_2(d_3)$ sont positives. Dans le cas contraire, il est nécessaire de choisir des distances focales différentes.

Pour  $f_1 = 100 \ mm$ ,  $f_2 = 125 \ mm$  et  $d_1 = 65 \ cm$ , le couple de distances solution est ( $d_2 = 24.7 \ cm$  et  $d_3 = 99.3 \ cm$ ) pour que la dimension horizontale du faisceau soit parfaitement accordée à celle du mode de cavité. Ceci induit un désaccord sur la dimension verticale du faisceau de  $27 \ \mu m$  sur la taille du waist (soit une erreur de 5%) et un décalage de  $10.5 \ cm$  de sa position (pour une longueur de Rayleigh de  $87 \ cm$ ). Afin de minimiser l'impact de ces désaccords sur l'excitation de modes transverses d'ordres supérieurs, un compromis est cherché expérimentalement entre l'accord parfait sur l'horizontale et celui sur la verticale. Pour cela, les changements de dimension et de position de  $\varpi_{0A}^x$  en fonction des variations de longueurs  $d_1 + \delta d_1$  et  $d_2 + \delta d_2$  sont calculés et tracés fig.A.3.

La dimension horizontale du waist ainsi que l'écart en position par rapport au waist de la cavité sont tracés en fonction (a) de la variation de la distance  $d_1$  sur  $\pm 1 cm$  et



FIGURE A.3: Influence des écarts aux valeurs de  $d_1$  et  $d_2$  sur la dimension et la position du waist final

(b) de la variation de la distance  $d_1$  sur la même plage. Il apparaît que la distance  $d_2$  est beaucoup plus sensible que  $d_1$ , ce qui signifie que, lorsqu'une des deux lentilles est translatée, le changement de waist induit sera principalement dû au changement de  $d_2$  et très peu à celui de  $d_1$ . De même, lorsque la situation de couplage dans les modes transverses d'ordres supérieurs est particulièrement défavorable, il sera nécessaire pour améliorer la situation de faire varier essentiellement  $d_2$ .

## A.3 Modes transverses d'ordres supérieurs

L'accord de mode spatial étant réalisé, intéressons-nous à la position spectrale des différents modes transverses d'ordres autres que le fondamental ainsi qu'à leur excitation. En effet, il est nécessaire pour le Vernier et sa méthode de stabilisation en fréquence qu'aucun mode transverse ne soit présent dans la surface sensible de la photodiode à cadrans afin de ne pas biaiser le signal d'erreur. Il est donc nécessaire que les modes transverses d'ordres les plus petits, notamment les modes paires, soient clairement distincts en position spectrales du mode  $TEM_{00}$ . Pour connaître leur position spectrale, il est possible de calculer la différence de phase accumulée sur un tour de cavité entre un mode  $TEM_{mn}$  quelconque et le mode fondamental  $TEM_{00}$  en utilisant leur description sur la base d'Hermite-Gauss  $\mathcal{E}_{mn}$ . Cette différence de phase entraîne des positions spectrales différentes pour chacun des modes transverses. Elles sont tracées, ramenées





FIGURE A.4: Position des premiers ordres transverses supérieurs dans un ISL du  $TEM_{00}$  en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_i$ 

Ceci permet de s'assurer qu'un léger changement dans la géométrie de la cavité ne change pas la répartition des modes transverses, et que les premiers ordres, les plus susceptibles d'être excités, sont bien distincts du  $TEM_{00}$ .

Enfin, la répartition théorique en intensité dans les différents modes transverses est calculée. Pour cela, nous considérons le mode laser incident  $E_{inc}$  dans son repère cartésien  $\{x_l, y_l, z_l\}$  et nous le décomposons sur la base orthonormée des modes propres de la cavité  $\mathcal{E}_{mn}(x, y, z)$ . La fig.A.5 détaille les différents désaccords qui peuvent exister entre le mode laser et le  $TEM_{00}$  de la cavité. Le faisceau peut arriver avec un waist à la mauvaise dimension (a), décalé dans le plan transverse d'une quantité dx (b) ou désaxé d'un angle  $\theta_x$  par rapport au mode de cavité (c). Les deux derniers décalages peuvent être corrigés en ajustant les directions des deux miroirs d'injection afin de superposer le mode laser à celui de la cavité.

Les coefficients de couplage dans chaque mode de cavité sont donnés par le recouvrement dans le plan transverse entre le champ laser (assimilé à un mode  $TEM_{00}$  dans le repère du laser et exprimé dans le repère de la cavité) et le mode  $TEM_{mn}$ :

$$C_{mn} = \iint E_{inc}^*(x, y, z) \cdot \mathcal{E}_{mn}(x, y, z) \, dxdy \tag{A.9}$$

Pour que le calcul soit le plus réaliste possible, il tient compte de l'ellipticité du faisceau laser ainsi que de celle du mode de cavité, qui conduisent à considérer des dimensions



FIGURE A.5: Différentes sources de désaccord entre mode laser et mode de cavité : (a) le faisceau laser est superposé au mode de cavité mais a une dimension radiale différente, (b) les waists des deux faisceaux sont accordés mais le faisceau laser est translaté d'une quantité dx par rapport au mode de cavité et (c) les waists sont accordés mais les deux faisceaux ne sont pas colinéaires.

de waist différentes sur l'axe vertical et sur l'axe horizontal. En utilisant les propriétés de séparation des variables des champs  $E_{inc}$  et  $\mathcal{E}_{mn}$ , l'intégrale sur la surface tranverse peut aussi se réécrire comme un produit d'intégrales :

$$C_{mn} = \int E^*_{inc,x}(x,z) \cdot \mathcal{E}_{mn,x}(x,z) \, dx \cdot \int E^*_{inc,y}(y,z) \cdot \mathcal{E}_{mn,y}(y,z) \, dy$$
  
=  $C^x_{mn} \cdot C^y_{mn}$  (A.10)

Ensuite, chacun des coefficients  $C_{mn}^{x,y}$  peut s'exprimer avec des polynômes d'Hermite, qui permettent, moyennant une intégration par partie, d'établir une relation de récurrence donnant accès à  $C_{mn}$  pour tous les modes transverses de la cavité.

Ce calcul indique un accord de mode entre laser et cavité de plus de 99.7% dans le  $TEM_{00}$ , 0.22% restant couplé dans le mode  $TEM_{20}$ . Cependant, il est très difficile de réaliser expérimentalement un accord de mode injectant à plus de 99% le  $TEM_{00}$ . Cela peut être expliqué, au moins en partie, par le fait que le faisceau laser ne suit pas une propagation parfaitement gaussienne (l'évolution de ses dimensions transverses au cours de sa propagation ne suit pas celle d'un faisceau gaussien) ainsi que par une possible déformation du front d'onde du faisceau au cours de ses multiples transmissions et réflexions empêchant une superposition idéale des faisceaux ayant déjà parcouru un ou plusieurs tours de cavité.

Enfin, ce calcul est réalisé en considérant un faisceau incident monochromatique. Or, la dimension du waist de la cavité étant proportionnelle à la racine carrée de la longueur

d'onde considérée, une variation de 10% de sa valeur peut être attendue sur la totalité de la gamme spectrale couverte par l'oscillateur Ti:Sa (760 à 840 nm). La prise en compte de cette variation n'induit néanmoins qu'une modification négligeable de l'accord de mode (~ 10<sup>-3</sup>). De même, les dimensions du faisceau laser sont considérées constantes pour toutes les longueurs d'ondes le composant. En réalité, nous ne connaissons pas la répartition spatio-spectrale de ce faisceau et elle aussi change la qualité de l'accord de mode selon la longueur d'onde considérée. La fig.A.6 présente trois passages par le point magique mesurés après dispersion de la transmission de la cavité pour trois longueurs d'onde différentes. Il est visible que l'accord de mode est bien meilleur au milieu du



FIGURE A.6: Point magique mesuré après dispersion de la transmission de la cavité pour trois longueurs d'onde. La proportion d'injection du mode transverse d'ordre supérieur le plus intense est indiquée pour chacune des trois.

spectre laser (b) que sur ses bords (a) et (c). Lorsque le spectre est balayé pour cette mesure, l'accord de mode se dégrade de manière symétrique par rapport au centre du spectre où il a été optimisé. De plus, l'existence d'une GDD non nulle au sein de la cavité rend la position du point magique dépendante de la longueur d'onde considérée et nécessite de déplacer le miroir fixé sur la platine de translation de manière à ce qu'il reste au milieu du balayage de la longueur de la cavité. Une dernière cause possible à cette dégradation forte de l'accord de mode est la translation du miroir qui induirait une déformation du mode  $TEM_{00}$  de la cavité suffisante pour affecter le taux de couplage du faisceau laser.

La conséquence directe de ces écarts au modèle  $TEM_{00}$  pris comme mode laser est l'injection de modes transverses pairs et impairs à plus de 10% du mode fondamental qui peuvent être spectralement proche du  $TEM_{00}$ , ce qui rend l'asservissement sensible au passage des raies d'absorption et déforme le spectre mesuré.

## Annexe B

# Mesure de la GDD intracavité

L'objet de cette annexe est de présenter le dispositif de caractérisation de la GDD (Group Delay Dispersion) intracavité développé dans la première partie de mon travail. L'objectif initial de ma thèse était de réaliser des mesures de spectroscopie non linéaire au sein de microgouttes au taux de répétition de l'oscillateur femtoseconde. Il était alors nécessaire d'obtenir des intensités supérieures au seuil d'absorption non linéaire  $(10^{12} W/cm^2)$  dans la microgoutte tout en conservant une dimension de waist considérablement supérieure à celle de la microgoutte de manière à ce que les pertes induites par son passage à travers le faisceau ne bloque pas le processus d'amplification passive de l'impulsion intracavité. Pour une dimension de faisceau au waist de  $450 \,\mu m$ , les pertes liées au passage de la microgoutte sont attendues autour de  $10^{-2}$ , ce qui fixe la transmission du miroir coupleur d'entrée de la cavité utilisée à 1% de manière à réaliser l'accord d'impédance  $(H_{max} = 1)$ avec la microgoutte. Dans ces conditions, il est nécessaire de coupler simultanément au point magique au moins 50 nm du peigne laser, ce qui n'est réalisable qu'avec une GDD intracavité inférieure à  $10 fs^2$  sur cette plage spectrale. Or, la dispersion induite par la propagation de l'impulsion dans 3m d'air (les microgouttes imposent de travailler à pression atmosphérique) est déjà de  $75 fs^2$  (cf section 1.2.2.2). Le succès d'une telle approche repose alors sur la capacité à compenser cette disperison à l'aide de miroirs à GDD négative adaptée. Ceci nous a conduit à développer un dispositif mesurant la GDD intracavité.

Lorsque la cavité est affectée par une dispersion d'ordre supérieur ou égal à 2, il n'est pas possible de faire la correspondance parfaite entre la totalité du peigne de fréquences et les résonances de la cavité. Le pic du point magique résultant a une intensité plus faible que celui sans dispersion, s'élargit et n'est plus l'image des résonances de cavité. Cependant, en ne considérant qu'une petite portion du peigne laser, les effets de la dispersion intracavité sur ces quelques résonances sont négligeables : la forme du point magique observée est celle attendue sans dispersion mais la longueur de la cavité au point magique sera fonction de la longueur d'onde. Dans ces conditions, deux portions différentes du peigne de fréquences ont alors "des" points magiques distincts en longueur de cavité. Notre évaluation de la GDD, selon une méthode proposée dans [83], repose sur la mesure de cet écart en distance.

## **B.1** Aspects théoriques

La fonction de transfert en intensité de la cavité  $H_c$  s'écrit :

$$H_c(\omega) = H_{max} \cdot \frac{1}{1 + 4\frac{F^2}{\pi^2} \cdot \sin^2\left[\frac{1}{2}\left(\omega\frac{L}{c} - \phi(\omega)\right)\right]}$$
(B.1)

où l'expression de la dispersion intracavité  $\phi(\omega)$  est exprimée avec un développement de Taylor autour d'une pulsation de référence :

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_1 \cdot (\omega - \omega_{ref}) + \frac{1}{2} \cdot \phi_2 \cdot (\omega - \omega_{ref})^2 + \frac{1}{6} \cdot \phi_3 \cdot (\omega - \omega_{ref})^3 + \cdots$$
(B.2)

La GDD est traditionnellement définie comme étant égale à  $\phi_2$  mais cette définition peut être étendue si on considère les variations spectrales de la GDD à :

$$GDD(\omega) = \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \tag{B.3}$$

Le déphasage accumulé sur un tour de cavité peut alors s'écrire :

$$\Phi(\omega) = \frac{1}{2} \cdot \omega \frac{L}{c} - \frac{1}{2}\phi(\omega)$$
(B.4)

La longueur de la cavité au point magique est ensuite déduite de la condition de bouclage  $\Phi(\omega_n) = n \cdot 2\pi$  pour une fréquence  $\omega_n$  quelconque du peigne :

$$L_n = \frac{c}{\omega_n} \cdot \left[ n \cdot 2\pi + \phi(\omega_n) \right]$$
(B.5)

puis pour la pulsation de référence :

$$L_{ref} = \frac{c}{\omega_{ref}} \cdot [n_{ref} \cdot 2\pi + \phi(\omega_{ref})]$$
(B.6)

La mesure repose sur la détermination de l'écart en distance  $L_n - L_{ref}$  qui est ensuite multiplié par  $\omega_n/c$ :

$$\frac{\omega_n}{c} \cdot (L_n - L_{ref}) = n \cdot 2\pi + \phi(\omega_n) - \frac{\omega_n}{\omega_{ref}} \cdot [n_{ref} \cdot 2\pi + \phi(\omega_{ref})]$$
(B.7)

En dérivant deux fois cette expression, elle devient :

$$\frac{d^2}{d\omega_n^2} \left[ \frac{\omega_n}{c} \cdot (L_n - L_{ref}) \right] = 2\pi \frac{d^2 n}{d\omega_n^2} + \frac{1}{2} \cdot \frac{d^2 \phi}{d\omega_n^2}$$
(B.8)

Comme la mesure est réalisée au point magique, l'indice n est à la fois l'ordre de la résonance de cavité considérée et l'ordre de la fréquence laser. Il peut s'exprimer en fonction du peigne de fréquences :

$$n = \frac{\omega_n - \omega_{CEO}}{\omega_{rep}} \quad \Leftrightarrow \quad \frac{d^2 n}{d\omega_n^2} = 0 \tag{B.9}$$

Alors, dans le cas d'une cavité n'étant affectée que d'une dispersion d'ordre 2 ( $\phi_3$ ,  $\phi_4$ ,  $\cdots$  sont nuls), la mesure de l'écart en fréquence donne directement accès à la GDD, qui est une constante égale à  $\phi_2$ . Dans le cas d'une cavité affectée par une dispersion plus complexe, la GDD mesurée est une combinaison linéaire des différents ordres de dispersion.

## B.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental de mesure de GDD est présenté fig.B.1. Le train d'impulsions femtosecondes est injecté dans une cavité composée de cinq miroirs, trois à incidence normale (M1,M2 et M5) et deux à 45° (M3 et M4). Seul M1 a une transmission significative égale à 1%, les autres ont des coefficients de réflexion les plus élevés possible, de manière à réaliser l'accord d'impédance sur la microgoutte. Un des deux miroirs courbes (M5) est collé sur un actuateur piezoélectrique utilisé pour balayer la longueur de la cavité autour du point magique. Précisons ici que la forme particulière de cette cavité avait été choisie pour s'adapter au système de collection de la fluorescence induite par l'absorption multi-photonique au sein de la microgoutte.

La mesure est réalisée en utilisant le faisceau réfléchi par le coupleur d'entrée de la cavité, somme de la réflexion du faisceau incident et de la portion du faisceau intracavité transmis par ce miroir. Celui-ci est ensuite séparé en deux faisceaux dirigés vers deux réseaux de diffraction. Des diaphragmes placés derrière les réseaux isolent ensuite une petite portion du spectre larges de quelques nanomètres, dont les intensités respectives sont détectées par deux photodiodes. Les signaux observés lors du balayage de la longueur de la cavité sont des points magiques inversés, c'est-à-dire qu'ils créent des creux



FIGURE B.1: Dispositif expérimental de la mesure de GDD intracavité

dans les 99% de l'intensité incidente réfléchie sur M1. Une fois l'intensité maximale soustraite puis multipliée par -1, les signaux obtenus sont tracés (fig.B.1). La longueur d'onde est déterminée en envoyant le faisceau filtré dans un spectromètre USB et elle est fixée pour le reste de la mesure. Le spectromètre est alors remplacé par la photodiode 1. Simultanément, la photodiode 2 collecte l'intensité à une longueur d'onde inconnue. Le spectre est balayé en montant le second réseau sur une platine de rotation tournant cependant suffisamment lentement pour que chaque balayage de la longueur de la cavité puisse être considéré comme fixe en longueur d'onde.

Pour chaque balayage de la longueur de la cavité, le déplacement de l'actuateur est calibré de manière relative en détectant les pics de transmission successifs de la voie de référence, tous distants de  $\lambda_{ref}$ , et l'origine de ce déplacement est prise au point magique de référence, le pic de transmission le plus intense. La calibration est effectuée sur cinq ou sept pics mais le balayage de l'actuateur piezoélectrique couvre plus d'une dizaine de fois  $\lambda_{ref}$  de manière à pouvoir faire cette calibration par un ajustement polynomial des positions de ces pics. En parallèle, les variations d'intensité de la photodiode 2 sont enregistrées et font l'objet d'un traitement similaire (soustraction de la valeur maximale et multiplication par -1). Les positions des pics de transmission successifs sont relevées et converties en écart au point magique de référence. L'écart entre le point magique de référence et le pic de transmission le plus proche de la voie balayée est directement égal à  $\Delta L(\lambda)$  tandis que la longueur d'onde de mesure  $\lambda$  est déduite de l'écart entre les deux pics de transmission suivants. Celui-ci est égal à  $\Delta L + \Delta \lambda$ , où  $\Delta \lambda$  est la différence entre la longueur d'onde de mesure et celle de référence. Ainsi pour chaque balayage de la longueur de la cavité, un point est ajouté à la courbe présentée fig.B.2(a). Lorsque la rotation du réseau du bras de mesure est activée, la courbe  $\Delta L(\lambda)$  est obtenue et la précision de cette mesure présentée dans l'encart bas de cette figure est déduite de la déviation standard des nuages de points compris dans une fenêtre correspondant à la résolution de la mesure, soit 1 nm ici. Il est visible que la précision de la mesure de  $\Delta L$  est la meilleure lorsque la partie du spectre sondée est proche de la longueur d'onde de référence, ce qui nous a parfois amené à utiliser plusieurs longueurs d'onde de référence pour évaluer la GDD sur la totalité du spectre laser. En appliquant les



FIGURE B.2: (a) Ecarts en distance entre les points magiques des deux voies de mesure et précision de la mesure - (b) GDD obtenue à partir de la mesure de  $\Delta L(\lambda)$  pour  $\lambda_{ref} = 795 \, nm$ 

opérations dérivées dans la partie précédente, la GDD intracavité est déduite de la mesure de  $\Delta L$ . A titre d'exemple, celle que nous avons déduite des données tracées fig.B.2(a) est présentée en (b). La courbe obtenue est très structurée, en partie par la présence de bandes d'absorption de l'oxygène et de la vapeur d'eau (la cavité est toujours à l'air libre) mais aussi parce que le traitement mathématique conduisant à prendre la dérivée seconde de la courbe mesurée rend le résultat extrêmement sensible au moindre bruit présent lors de l'acquisition.

### B.3 Résultats

Deux sets de cinq miroirs ont été testés, dont la combinaison des GDD est proche d'une compensation de celle de l'air.

Le premier set est constité de quatre miroirs à faible GDD ( $< 20 fs^2$ ) Layertec (n°106927 pour les miroirs sphériques M2 et M5 - n°100838 pour les miroirs à 45° M3 et M4). Le coupleur d'entrée est un miroir Layertec (n°100889) présentant une GDD avec de fortes variations spectrales qui atteint notamment  $-65 fs^2$  vers 820 nm. La GDD attendue pour cette cavité est calculée en prenant en compte les spécifications fournies par le constructeur pour chacun des miroirs utilisés (numérisées et tracées dans l'encart haut de la fig.B.3) et la dispersion induite par la propagation dans la cavité, déduite des coefficients de Sellmeier (cf section 1.2.2.2). Ainsi, la GDD intracavité mesurée (courbe



FIGURE B.3: GDD mesurée (encart bas) pour une cavité constituée des miroirs dont les courbes de GDD spécifiées par le constructeur sont données dans l'encart haut

rouge dans l'encart bas) est comparée à la valeur attendue; et malgré un accord global plutôt bon, il existe une différence entre les pentes des deux courbes de GDD (calculée et mesurée). Cependant, la GDD obtenue expérimentalement est très loin des valeurs nécessaires pour réussir à coupler 50 nm du peigne de fréquences dans la cavité.

Par la suite, nous avons tenté d'utiliser une paire de miroirs à dispersion négative obtenue par des oscillations compensées (opposition de phase de la GDD de chaque miroir), espérant ainsi compenser la GDD induite par l'air et les autres miroirs de la cavité. Les miroirs utilisés sont des miroirs Layertec n°108897 dont les spécifications donnent les GDD tracées fig.B.4. Les oscillations de chacun des miroirs se compensent globalement



FIGURE B.4: GDD spécifiée par Layertec pour les miroirs à compensation de dispersion (n°108897) utilisés et moyenne des deux miroirs

et la GDD attendue pour la paire de miroirs est égale à deux fois celle donnée par la courbe noire proche de  $-120 f s^2$ . Ils sont montés dans une cavité composée par ailleurs des mêmes miroirs sphériques Layertec n°100838 à faible dispersion ( $< 20 f s^2$ ) et d'un coupleur d'entrée possédant une GDD positive d'environ  $50 f s^2$  (tracée fig.B.5(a)). Prenant en compte celle de l'air, la GDD intracavité doit s'approcher de zéro. La GDD mesurée résultant de ce montage est tracée fig.B.5(b), où elle est comparée à la GDD calculée à partir des spécifications. Les oscillations de la GDD mesurée sont considérablement plus marquées que celles que nous avons calculées à partir des données Layertec, ce qui nous a conduit à évaluer l'influence de l'angle d'incidence sur les miroirs à compensation de dispersion de manière à translater spectralement les oscillations d'un des miroirs par rapport à l'autre. Pour ce faire, les supports des miroirs à 45° ont été montés sur des platines de translation telles que représentées sur la fig.B.1

Les courbes résultantes sont présentées fig.B.6 et montrent que le minimum d'oscillations correspond bien à une incidence de 45°, les écarts de part et d'autre ne faisant qu'augmenter l'amplitude des oscillations.



FIGURE B.5: GDD spécifiée par Layertec pour les miroirs à compensation de dispersion  $(n^{\circ}108897)$  utilisés et moyenne des deux miroirs



FIGURE B.6: GDD mesurée avec la cavité compensée en dispersion pour trois angles d'incidence différents sur le miroir M3

# Bibliographie

- Long-Sheng Ma, Zhiyi Bi, Albrecht Bartels, Lennart Robertsson, Massimo Zucco, Robert S. Windeler, Guido Wilpers, Chris Oates, Leo Hollberg, and Scott A. Diddams. Optical frequency synthesis and comparison with uncertainty at the 10-19 level. *Science*, 303(5665) :1843–1845, 2004.
- [2] A. Bartels, C. W. Oates, L. Hollberg, and S. A. Diddams. Stabilization of femtosecond laser frequency combs with subhertz residuallinewidths. *Opt. Lett.*, 29(10): 1081–1083, May 2004.
- [3] Scott A. Diddams, David J. Jones, Jun Ye, Steven T. Cundiff, John L. Hall, Jinendra K. Ranka, Robert S. Windeler, Ronald Holzwarth, Thomas Udem, and T. W. Hänsch. Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 thz femtosecond laser comb. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :5102–5105, May 2000.
- [4] Theodor Hänsch. Nobel Lecture : Passion for precision. Rev. Mod. Phys., 78(4) : 1297–1309, November 2006.
- [5] John Hall. Nobel Lecture : Defining and measuring optical frequencies. *Rev. Mod. Phys.*, 78(4) :1279–1295, November 2006.
- [6] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch. Absolute optical frequency measurement of the cesium  $d_1$  line with a mode-locked laser. *Phys. Rev. Lett.*, 82 : 3568–3571, May 1999.
- [7] I. Galli, S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, D. Mazzotti, P. De Natale, and G. Giusfredi. Molecular gas sensing below parts per trillion : Radiocarbon-dioxide optical detection. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :270802, Dec 2011.
- [8] Matthew C. Stowe, Michael J. Thorpe, Avi Pe'er, Jun Ye, Jason E. Stalnaker, Vladislav Gerginov, and Scott A. Diddams. Direct frequency comb spectroscopy. volume 55 of Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics, pages 1 – 60. Academic Press, 2008.

- [9] Lisheng Chen, Wang-Yau Cheng, and Jun Ye. Hyperfine interactions and perturbation effects in the b0u+(3πu) state of 127i2. J. Opt. Soc. Am. B, 21(4) :820–832, Apr 2004.
- [10] Adela Marian, Matthew C. Stowe, John R. Lawall, Daniel Felinto, and Jun Ye. United time-frequency spectroscopy for dynamics and global structure. *Science*, 306(5704) :2063–2068, 2004.
- [11] Adela Marian, Matthew C. Stowe, Daniel Felinto, and Jun Ye. Direct frequency comb measurements of absolute optical frequencies and population transfer dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :023001, Jul 2005.
- [12] Matthew C. Stowe, Flavio C. Cruz, Adela Marian, and Jun Ye. High resolution atomic coherent control via spectral phase manipulation of an optical frequency comb. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :153001, Apr 2006.
- [13] Anthony O'Keefe and David A. G. Deacon. Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources. *Review of Scientific Instruments*, 59(12) :2544–2551, 1988.
- [14] D. Romanini, A.A. Kachanov, and F. Stoeckel. Diode laser cavity ring down spectroscopy. *Chemical Physics Letters*, 270(5–6):538 – 545, 1997.
- [15] B. A. Paldus, C. C. Harb, T. G. Spence, B. Wilke, J. Xie, J. S. Harris, and R. N. Zare. Cavity-locked ring-down spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 83(8): 3991–3997, 1998.
- [16] Jun Ye, Long-Sheng Ma, and John L. Hall. Ultrasensitive detections in atomic and molecular physics : demonstration in molecular overtone spectroscopy. J. Opt. Soc. Am. B, 15(1) :6–15, Jan 1998.
- [17] J. Morville, S. Kassi, M. Chenevier, and D. Romanini. Fast, low-noise, mode-bymode, cavity-enhanced absorption spectroscopy by diode-laser self-locking. *Applied Physics B*, 80(8) :1027–1038, 2005. ISSN 0946-2171.
- [18] R. Jason Jones, Jean-Claude Diels, Jayesh Jasapara, and Wolfgang Rudolph. Stabilization of the frequency, phase, and repetition rate of an ultra-short pulse train to a fabry-perot reference cavity. *Optics Communications*, 175(4–6) :409 – 418, 2000.
- [19] Titus Gherman and Daniele Romanini. Modelocked cavity-enhanced absorption spectroscopy. Opt. Express, 10(19) :1033–1042, Sep 2002.
- [20] Michael J. Thorpe, Kevin D. Moll, R. Jason Jones, Benjamin Safdi, and Jun Ye. Broadband cavity ringdown spectroscopy for sensitive and rapid molecular detection. *Science*, 311(5767) :1595–1599, 2006.

- [21] Christoph Gohle, Björn Stein, Albert Schliesser, Thomas Udem, and Theodor W. Hänsch. Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, highsensitivity absorption and dispersion spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :263902, Dec 2007.
- [22] A. Foltynowicz, P. Masłowski, T. Ban, F. Adler, K. C. Cossel, T. C. Briles, and J. Ye. Optical frequency comb spectroscopy. *Faraday Discuss.*, 150 :23, 2011.
- [23] R. Grilli, G. Méjean, C. Abd Alrahman, I. Ventrillard, S. Kassi, and D. Romanini. Cavity-enhanced multiplexed comb spectroscopy down to the photon shot noise. *Phys. Rev. A*, 85 :051804, May 2012.
- [24] Amir Khodabakhsh, Chadi Abd Alrahman, and Aleksandra Foltynowicz. Noiseimmune cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy. Opt. Lett., 39(17): 5034–5037, Sep 2014.
- [25] F. Zhu, J. Bounds, A. Bicer, J. Strohaber, A. A. Kolomenskii, C. Gohle, M. Amani, and H. A. Schuessler. Frequency comb vernier spectroscopy in the near infrared. *arXiv*, 2014.
- [26] Roberto Grilli, Michel Legrand, Alexandre Kukui, Guillaume Méjean, Suzanne Preunkert, and Daniele Romanini. First investigations of io, bro, and no2 summer atmospheric levels at a coastal east antarctic site using mode-locked cavity enhanced absorption spectroscopy. *Geophysical Research Letters*, 40(4) :791–796, 2013.
- [27] Chadi Abd Alrahman, Amir Khodabakhsh, Florian M. Schmidt, Zhechao Qu, and Aleksandra Foltynowicz. Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy of high-temperature h20 in a flame. *Opt. Express*, 22(11) :13889–13895, Jun 2014.
- [28] M.J. Thorpe and J. Ye. Cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy. Applied Physics B, 91(3-4) :397–414, 2008.
- [29] Michael J. Thorpe, Florian Adler, Kevin C. Cossel, Marcio H.G. de Miranda, and Jun Ye. Tomography of a supersonically cooled molecular jet using cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy. *Chem. Phys. Lett.*, 468(1-3) :1–8, January 2009.
- [30] Kevin C. Cossel, Daniel N. Gresh, Laura C. Sinclair, Tyler Coffey, Leonid V. Skripnikov, Alexander N. Petrov, Nikolai S. Mosyagin, Anatoly V. Titov, Robert W. Field, Edmund R. Meyer, Eric A. Cornell, and Jun Ye. Broadband velocity modulation spectroscopy of hff+ : Towards a measurement of the electron electric dipole moment. *Chemical Physics Letters*, 546(0) :1 – 11, 2012.

- [31] A. E. Siegman. LASERS. University Science Books, 1986.
- [32] A. Yariv. Quantum Electronics. John Wiley & Sons, 1987.
- [33] B. Cagnac and J.-P. Faroux. LASERS Interaction lumière-atomes. CNRS Editions, EDP Sciences, 2002.
- [34] P. Masłowski, K.C. Cossel, A. Foltynowicz, and J. Ye. Cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy. In Gianluca Gagliardi and Hans-Peter Loock, editors, *Cavity-Enhanced Spectroscopy and Sensing*, volume 179 of *Springer Series in Optical Sciences*, pages 271–321. Springer Berlin Heidelberg, 2014.
- [35] Jie Jiang, Christian Mohr, Jens Bethge, Martin Fermann, and Ingmar Hartl. Fully stabilized, self-referenced thulium fiber frequency comb. In *CLEO/Europe and EQEC 2011 Conference Digest*, page *PDB*<sub>1</sub>. Optical Society of America, 2011.
- [36] M.N. Cizmeciyan, H. Cankaya, A. Kurt, and A. Sennaroglu. Operation of femtosecond kerr-lens mode-locked cr :znse lasers with different dispersion compensation methods. *Applied Physics B*, 106(4) :887–892, 2012.
- [37] Andreas Hugi, Gustavo Villares, Stephane Blaser, H. C. Liu, and Jerome Faist. Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser. *Nature*, 492(7428): 229–233, 2012.
- [38] Axel Ruehl, Alessio Gambetta, Ingmar Hartl, Martin E. Fermann, Kjeld S. E. Eikema, and Marco Marangoni. Widely-tunable mid-infrared frequency comb source based on difference frequency generation. Opt. Lett., 37(12) :2232–2234, Jun 2012.
- [39] Tyler W. Neely, Todd A. Johnson, and Scott A. Diddams. High-power broadband laser source tunable from 3.0 μm to 4.4 μmbased on a femtosecond yb :fiber oscillator. Opt. Lett., 36(20) :4020–4022, Oct 2011.
- [40] Florian Adler, Kevin C. Cossel, Michael J. Thorpe, Ingmar Hartl, Martin E. Fermann, and Jun Ye. Phase-stabilized, 1.5 w frequency comb at 2.8–4.8 μm. Opt. Lett., 34(9) :1330–1332, May 2009.
- [41] Nick Leindecker, Alireza Marandi, Robert L. Byer, Konstantin L. Vodopyanov, Jie Jiang, Ingmar Hartl, Martin Fermann, and Peter G. Schunemann. Octavespanning ultrafast opo with 2.6-6.1µm instantaneous bandwidth pumped by femtosecond tm-fiber laser. Opt. Express, 20(7):7046–7053, Mar 2012.
- [42] Axel Ruehl, Michael J. Martin, Kevin C. Cossel, Lisheng Chen, Hugh McKay, Brian Thomas, Craig Benko, Liang Dong, John M. Dudley, Martin E. Fermann, Ingmar Hartl, and Jun Ye. Ultrabroadband coherent supercontinuum frequency comb. *Phys. Rev. A*, 84 :011806, Jul 2011.

- [43] K.C. Cossel, F. Adler, K.A. Bertness, M.J. Thorpe, J. Feng, M.W. Raynor, and J. Ye. Analysis of trace impurities in semiconductor gas via cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy. *Applied Physics B*, 100(4) :917–924, 2010.
- [44] Albrecht Bartels, Dirk Heinecke, and Scott A. Diddams. 10-ghz self-referenced optical frequency comb. Science, 326(5953) :681, 2009.
- [45] T. M. Fortier, A. Bartels, and S. A. Diddams. Octave-spanning ti :sapphire laser with a repetition rate >1 ghz for optical frequency measurements and comparisons. Opt. Lett., 31(7):1011–1013, Apr 2006.
- [46] Armand Cingöz, Dylan C. Yost, Thomas K. Allison, Axel Ruelh, Martin E. Fermann, Ingmar Hartl, and Jun Ye. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet. *Nature*, 482 :68–71, 2012.
- [47] J.J. McFerran, W.C. Swann, B.R. Washburn, and N.R. Newbury. Suppression of pump-induced frequency noise in fiber-laser frequency combs leading to sub-radian f ceo phase excursions. *Applied Physics B*, 86(2) :219–227, 2007.
- [48] W.-Y. Cheng, T.-H. Wu, S.-W. Huang, S.-Y. Lin, and C.-M. Wu. Stabilizing the frequency of femtosecond Ti :sapphire comb laser by a novel scheme. *Appl. Phys.* B, 92(1) :13–18, June 2008.
- [49] Andreas Vernaleken, Bernhard Schmidt, Theodor W. Hänsch, Ronald Holzwarth, and Peter Hommelhoff. Carrier-envelope frequency stabilization of a Ti :sapphire oscillator using different pump lasers : part II. Appl. Phys. B, March 2014.
- [50] Didier Dangoisse, Daniel Hennequin, and Zehnlé-Dhaoui. Les Lasers. Dunod, 1998.
- [51] Jérôme Morville, Daniele Romanini, Marc Chenevier, and Alexander Kachanov.
   Effects of laser phase noise on the injection of a high-finesse cavity. Appl. Opt., 41 (33) :6980–90, November 2002.
- [52] Jérôme Poirson, Fabien Bretenaker, Marc Vallet, and Albert Le Floch. Analytical and experimental study of ringing effects in a fabry-perot cavity. application to the measurement of high finesses. J. Opt. Soc. Am. B, 14(11) :2811–2817, Nov 1997.
- [53] A. Bideau-Mehu, Y. Guern, R. Abjean, and A. Johannin-Gilles. Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton and xenon in the 253.7–140.4 nm wavelength range. dispersion relations and estimated oscillator strengths of the resonance lines. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 25(5):395–402, 1981.
- [54] C. R. Mansfield and E. R. Peck. Dispersion of helium. J. Opt. Soc. Am., 59(2): 199–203, Feb 1969.

- [55] Jérôme Morville, Daniele Romanini, and Erik Kerstel. Cavity enhanced absorption spectroscopy with optical feedback. In Gianluca Gagliardi and Hans-Peter Loock, editors, *Cavity-Enhanced Spectroscopy and Sensing*, volume 179 of *Springer Series* in Optical Sciences, pages 163–209. Springer Berlin Heidelberg, 2014.
- [56] A. Foltynowicz, P. Masłowski, A. J. Fleisher, B. J. Bjork, and J. Ye. Cavityenhanced optical frequency comb spectroscopy in the mid-infrared application to trace detection of hydrogen peroxide. *Appl. Phys. B*, 110(2) :163–175, May 2012.
- [57] Brigitta Bernhardt, Akira Ozawa, Patrick Jacquet, Marion Jacquey, Yohel Kobayashi, Thomas Udem, Ronald Holzwarth, Guy Guelachvili, Theodor W. Hänsch, and Nathalie Picqué. Cavity–enhanced dual-comb spectroscopy. *Nat. Photon.*, 4(4) : 55–57, Jan 2009.
- [58] T.W. Hansch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Optics Communications*, 35(3):441 – 444, 1980.
- [59] 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. *Applied Physics B*, 31(2) :97–105, 1983.
- [60] Wolfgang Demtröder. Laser Spectroscopy. Springer, 1981.
- [61] Michael J. Thorpe, David Balslev-Clausen, Matthew S. Kirchner, and Jun Ye. Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy : application to human breath analysis. *Opt. Express*, 16(4) :2387–2397, Feb 2008.
- [62] Laura C. Sinclair, Kevin C. Cossel, Tyler Coffey, Jun Ye, and Eric A. Cornell. Frequency Comb Velocity-Modulation Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 107(9) :093002, August 2011.
- [63] Michael J. Thorpe, Darren D. Hudson, Kevin D. Moll, Jacob Lasri, and Jun Ye. Cavity-ringdown molecular spectroscopy based on an optical frequency comb at 1.45-1.65 μm. Opt. Lett., 32(3) :307–309, Feb 2007.
- [64] Olivier Pinel. Optique quantique multimode avec des peignes de fréquences. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2010.
- [65] A.A. Ruth, S. Dixneuf, and R. Raghunandan. Broadband cavity-enhanced absorption spectroscopy with incoherent light. In Gianluca Gagliardi and Hans-Peter Loock, editors, *Cavity-Enhanced Spectroscopy and Sensing*, volume 179 of *Springer Series in Optical Sciences*, pages 485–517. Springer Berlin Heidelberg, 2014.

- [66] Deirdre M. O'Leary, Albert A. Ruth, Sophie Dixneuf, Johannes Orphal, and Ravi Varma. The near infrared cavity-enhanced absorption spectrum of methyl cyanide. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113(11) :1138 – 1147, 2012.
- [67] Christian Hill, Iouli E. Gordon, Laurence S. Rothman, and Jonathan Tennyson. A new relational database structure and online interface for the {HITRAN} database. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 130(0) :51 – 61, 2013.
- [68] C. Abd Alrahman, G. Méjean, R. Grilli, and D. Romanini. Note : Simple and compact piezoelectric mirror actuator with 100 khz bandwidth, using standard components. *Review of Scientific Instruments*, 84(5) :056112, 2013.
- [69] Travis C. Briles, Dylan C. Yost, Arman Cingöz, Jun Ye, and Thomas R. Schibli. Simple piezoelectric-actuated mirror with 180 khz servo bandwidth. Opt. Express, 18(10) :9739–9746, May 2010.
- [70] Paul Horowitz and Winfield Hill. The Art of Electronics. Cambridge University Press, 1989.
- [71] C.G. Ryan, E. Clayton, W.L. Griffin, S.H. Sie, and D.R. Cousens. Snip, a statisticssensitive background treatment for the quantitative analysis of {PIXE} spectra in geoscience applications. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 34(3) :396 - 402, 1988.
- [72] Miroslav Morháč and Vladislav Matoušek. Peak clipping algorithms for background estimation in spectroscopic data. *Appl. Spectrosc.*, 62(1) :91–106, Jan 2008.
- [73] H.R. Telle, B. Lipphardt, and J. Stenger. Kerr-lens, mode-locked lasers as transfer oscillators for optical frequency measurements. *Applied Physics B*, 74(1):1–6, 2002.
- [74] D.R. Walker, Th. Udem, Ch. Gohle, B. Stein, and T.W. Hänsch. Frequency dependence of the fixed point in a fluctuating frequency comb. *Applied Physics B*, 89(4): 535–538, 2007.
- [75] K.W. Holman, R.J. Jones, A Marian, S.T. Cundiff, and J. Ye. Detailed studies and control of intensity-related dynamics of femtosecond frequency combs from modelocked ti :sapphire lasers. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal* of, 9(4) :1018–1024, July 2003.
- [76] J. J. McFerran, W. C. Swann, B. R. Washburn, and N. R. Newbury. Elimination of pump-induced frequency jitter on fiber-laser frequency combs. *Opt. Lett.*, 31(13) : 1997–1999, Jul 2006.

- [77] K. Moll, R. Jones, and Jun Ye. Nonlinear dynamics inside femtosecond enhancement cavities. Opt. Express, 13(5) :1672–1678, Mar 2005.
- [78] Curtis R. Menyuk, Jared K. Wahlstrand, John Willits, Ryan P. Smith, Thomas R. Schibli, and Steven T. Cundiff. Pulse dynamics in mode-locked lasers : relaxation oscillations and frequency pulling. *Opt. Express*, 15(11) :6677–6689, May 2007.
- [79] Patrick Crozet, Georgi Dobrev, Cyril Richard, and Amanda J. Ross. Determination of landé factors in the f  $4\delta 5/2,7/2$  state of 56feh by laser excitation spectroscopy. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 303(0):46-53, 2014.
- [80] D. Wang, J. Qi, M.F. Stone, O. Nikolayeva, B. Hattaway, S.D. Gensemer, H. Wang, W.T. Zemke, P.L. Gould, E.E. Eyler, and W.C. Stwalley. The photoassociative spectroscopy, photoassociative molecule formation, and trapping of ultracold <sup>39</sup>k <sup>8</sup>5rb. The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, 31(2) :165–177, 2004.
- [81] A. Arbouet, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, J. R. Huntzinger, L. Arnaud, P. Billaud, and M. Broyer. Direct measurement of the single-metal-cluster optical absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :127401, Sep 2004.
- [82] Jérôme Morville. Injection des cavités optiques de haute finesse par laser à diode -Application à la CW-CRDS et à la détection de traces atmosphériques. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2001.
- [83] T. J. Hammond, Arthur K. Mills, and David J. Jones. Simple method to determine dispersion of high-finesse optical cavities. *Opt. Express*, 17(11) :8998–9005, May 2009.