



**HAL**  
open science

# Spectroscopie d'ions $H_2^+$ piégés : développement d'un laser à $9.17 \mu\text{m}$ référencé au système international d'unité

Abdessamad Mbardi

► **To cite this version:**

Abdessamad Mbardi. Spectroscopie d'ions  $H_2^+$  piégés : développement d'un laser à  $9.17 \mu\text{m}$  référencé au système international d'unité. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Sorbonne Université, 2023. Français. NNT : 2023SORUS646 . tel-04523608

**HAL Id: tel-04523608**

**<https://theses.hal.science/tel-04523608>**

Submitted on 27 Mar 2024

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

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

# THÈSE DE DOCTORAT DE SORBONNE UNIVERSITÉ .

Ecole doctorale n°564 : Physique en Ile-de-France

réalisée au  
Laboratoire Kastler Brossel

présentée par  
Abdessamad MBARDI

pour obtenir le grade de :  
DOCTEUR DE SORBONNE UNIVERSITÉ

## Sujet de la thèse :

Spectroscopie d'ions  $H_2^+$  piégés :  
développement d'un laser à  $9,17\mu m$  référencé  
au système international d'unité

soutenue le 18 décembre 2023

## Composition du jury

Mme	<b>Catherine SCHWOB</b>	Professeur, INSP, Sorbonne université	Présidente, Examinatrice
Mme	<b>Marie HOUSSIN</b>	Professeur, PIIM, univ Aix-Marseille	Rapporteuse
M.	<b>Hans LIGNIER</b>	Maitre de conférence, LAC, univ/ENS Paris-Saclay	Rapporteur
Mme	<b>Sandrine GALTIER</b>	Maitre de conférence, ILM, univ Lyon	Examinatrice
M.	<b>Laurent HILICO</b>	Professeur, LKB, Sorbonne université	Directeur de thèse



## Remerciements

Aujourd'hui, je suis honoré de présenter ma thèse effectuée au sein du laboratoire Kastler Brossel. C'est avec une immense gratitude que je tiens à remercier les personnes qui ont joué un rôle essentiel dans cette aventure scientifique.

Je tiens à adresser mes remerciements à Antoine Heidmann, le directeur du laboratoire, pour son accueil bienveillant et les conditions de travail exceptionnelles dont j'ai pu bénéficier.

Je tiens à remercier Catherine Schwob, Marie Houssin, Hans Lignier, Sandrine Galtier et Laurent Hilico qui ont accepté de participer au jury.

Un remerciement spécial va à mon directeur de thèse, Laurent Hilico. Je souhaite exprimer ma sincère gratitude envers lui pour son précieux soutien, son accompagnement, ainsi que la confiance qu'il m'a accordée. Je le remercie également pour le temps et l'effort qu'il a consacré à la relecture et à la correction de ce manuscrit.

Je tiens à saluer Bérengère Argence, ingénieur du service optique instrumentation, pour sa contribution précieuse dans ce travail. Votre expertise technique dans le domaine optique, a été indispensable.

Un grand merci au personnel technique du laboratoire, Loic Garcia, Elie Gozlan, David Polizzi et Carounagane Doré pour leur disponibilité et leur soutien inestimable tout au long de mon parcours. Je n'oublie non plus le personnel administratif, Stéphanie Dubois, Laetitia Morel et David Noel pour avoir rendu plus aisée toutes les tâches administratives.

Enfin, une immense merci à ma famille et surtout mes parents pour leur soutien, leurs encouragements et leur compréhension pendant cette période exigeante.





# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction générale</b>	<b>9</b>
1.1	Motivations . . . . .	10
1.2	Les ions moléculaires $\text{H}_2^+$ et $\text{HD}^+$ . . . . .	10
1.3	État de l'art . . . . .	12
1.3.1	L'ion $\text{HD}^+$ . . . . .	12
1.3.2	L'ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	13
1.3.3	État de l'art de $\mu_{pe}$ . . . . .	13
1.4	La spectroscopie de $\text{H}_2^+$ au LKB . . . . .	14
1.5	Structure hyperfine de $\text{H}_2^+$ . . . . .	16
1.5.1	Niveaux hyperfins . . . . .	16
1.5.2	Transitions à deux photons . . . . .	18
1.6	Organisation du manuscrit . . . . .	21
<b>2</b>	<b>Préparation des ions <math>\text{H}_2^+</math> pour la spectroscopie</b>	<b>23</b>
2.1	Piégeage d'ions $\text{H}_2^+$ . . . . .	24
2.1.1	Piège de Paul . . . . .	24
2.1.2	Piège de Paul linéaire . . . . .	25
2.1.2.1	Piégeage dans le plan $xy$ . . . . .	26
2.1.2.2	Approximation adiabatique . . . . .	28
2.1.2.3	Piégeage dans la direction $z$ . . . . .	28
2.1.2.4	Potentiel effectif . . . . .	29
2.2	Création d'ions $\text{H}_2^+/\text{Be}^+$ . . . . .	30
2.2.1	Création d'ions $\text{H}_2^+$ . . . . .	30
2.2.2	Création d'ions $\text{Be}^+$ . . . . .	30
2.3	Photo-dissociation de $\text{H}_2^+$ . . . . .	31
2.4	Refroidissement d'ions $\text{H}_2^+/\text{Be}^+$ . . . . .	32
2.5	L'enceinte à vide . . . . .	33
2.6	Détection des ions . . . . .	34
2.6.1	Système d'imagerie . . . . .	34
2.6.2	Excitation séculaire . . . . .	35
2.6.3	Cristal de Coulomb . . . . .	36

2.7	Couplage entre le nuage d'ion et la cavité de haute finesse . . . . .	37
2.7.1	Le problème . . . . .	37
2.7.2	Optimisation par la géométrie . . . . .	37
2.7.3	Vérification de l'alignement . . . . .	38
2.7.3.1	Théorie du light shift . . . . .	38
2.7.3.2	Théorie du signal de fluorescence . . . . .	40
2.7.3.3	Expérience . . . . .	43
2.7.4	Conclusion . . . . .	45
<b>3</b>	<b>Source laser à 9,166 <math>\mu\text{m}</math> pour la spectroscopie d'ion <math>\text{H}_2^+</math></b>	<b>47</b>
3.1	Introduction . . . . .	48
3.2	Sources laser à 9,166 $\mu\text{m}$ . . . . .	48
3.2.1	Laser à $\text{CO}_2$ . . . . .	48
3.2.2	Laser à cascade quantique (QCL) . . . . .	50
3.2.3	Source laser pour la spectroscopie de $\text{H}_2^+$ . . . . .	53
3.3	Stabilisation du laser à $\text{CO}_2$ sur $\text{HCOOH}$ . . . . .	53
3.3.1	Instabilité d'un oscillateur et caractérisation . . . . .	54
3.3.2	Absorption saturée . . . . .	55
3.3.2.1	Élargissement Doppler . . . . .	55
3.3.2.2	Absorption saturée . . . . .	56
3.3.2.3	Largeur de raie . . . . .	58
3.3.3	Stabilisation du laser à $\text{CO}_2$ sur $\text{HCOOH}$ . . . . .	59
3.4	Stabilisation du QCL sur le laser à $\text{CO}_2$ . . . . .	60
3.5	Performances de stabilité et limitations . . . . .	62
3.6	Conclusion . . . . .	64
<b>4</b>	<b>Mise en place d'un peigne de fréquence</b>	<b>65</b>
4.1	Introduction . . . . .	66
4.2	Laser femtoseconde et peigne de fréquence . . . . .	66
4.2.1	Spectre d'un laser à modes verrouillés . . . . .	66
4.2.2	Peigne de fréquence pour la métrologie . . . . .	68
4.2.3	Notre peigne de fréquence . . . . .	70
4.2.3.1	Suppression de la fréquence d'offset $f_0$ . . . . .	72
4.2.3.2	Contrôle du peigne de fréquence . . . . .	73
4.2.3.3	Extension du peigne à 1895 nm . . . . .	74
4.3	Modèle de photodétection . . . . .	74
4.3.1	Modèle de signal . . . . .	74
4.3.1.1	Champ électrique . . . . .	74
4.3.1.2	Flux d'énergie et signal de photodétection . . . . .	75
4.3.1.3	Battement entre deux peignes . . . . .	76
4.3.2	Mesure de battement à 200 MHz . . . . .	80

---

4.3.2.1	Mesure du rendement de photodétection . . . . .	80
4.3.2.2	Modèle et mesure de bruit . . . . .	81
4.3.2.3	Mesure de la puissance du battement à 200 MHz . . . . .	84
4.4	Asservissement du peigne de fréquence . . . . .	86
4.4.1	Asservissement sur une référence radio-fréquence . . . . .	86
4.4.1.1	Référence RF à 10 MHz . . . . .	87
4.4.1.2	Asservissement de la fréquence de répétition du peigne . . . . .	87
4.4.1.3	Caractérisation de l'asservissement RF . . . . .	88
4.4.2	Stabilisation sur une référence optique . . . . .	91
4.4.2.1	Référence optique . . . . .	91
4.4.2.2	Génération du battement optique . . . . .	93
4.4.2.3	Module PFD200 . . . . .	95
4.4.2.4	Module FALC-110 . . . . .	97
4.4.2.5	Asservissement du peigne . . . . .	99
4.4.2.6	Caractérisation de l'asservissement optique . . . . .	100
4.5	Conclusion . . . . .	102
<b>5</b>	<b>Stabilisation de la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> sur le peigne de fréquence</b>	<b>103</b>
5.1	Introduction . . . . .	104
5.2	Génération de somme de fréquence . . . . .	105
5.2.1	Théorie et simulations . . . . .	105
5.2.1.1	Calcul en ondes planes . . . . .	106
5.2.1.2	Calcul en ondes gaussiennes . . . . .	112
5.2.2	Expérience . . . . .	116
5.2.2.1	Préparation des faisceaux . . . . .	117
5.2.2.2	Alignement des faisceaux . . . . .	119
5.2.2.3	Détection du faisceau somme de fréquence . . . . .	119
5.2.2.4	Efficacité de conversion . . . . .	120
5.2.2.5	Comparaison avec l'efficacité de conversion théorique . . . . .	121
5.3	Génération du battement RF . . . . .	125
5.3.1	Couplage du faisceau somme dans la fibre . . . . .	125
5.3.2	Génération du battement RF . . . . .	125
5.4	Asservissement du laser à CO <sub>2</sub> . . . . .	127
5.5	Spectroscopie de HCOOH et répétabilité . . . . .	130
5.5.1	Dispositif expérimental . . . . .	130
5.5.2	Résultats et formes de raie . . . . .	131
5.5.3	Répétabilité des mesures . . . . .	133
5.6	Conclusion . . . . .	134
<b>6</b>	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>137</b>

<b>7 Annexes</b>	<b>141</b>
7.1 Calcul de l'efficacité de conversion de la SFG . . . . .	142
7.2 Circuit d'asservissement du laser à CO <sub>2</sub> . . . . .	145

# Chapitre 1

## Introduction générale

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Motivations . . . . .</b>	<b>10</b>
<b>1.2</b>	<b>Les ions moléculaires <math>\text{H}_2^+</math> et <math>\text{HD}^+</math> . . . . .</b>	<b>10</b>
<b>1.3</b>	<b>État de l'art . . . . .</b>	<b>12</b>
1.3.1	L'ion $\text{HD}^+$ . . . . .	12
1.3.2	L'ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	13
1.3.3	État de l'art de $\mu_{pe}$ . . . . .	13
<b>1.4</b>	<b>La spectroscopie de <math>\text{H}_2^+</math> au LKB . . . . .</b>	<b>14</b>
<b>1.5</b>	<b>Structure hyperfine de <math>\text{H}_2^+</math> . . . . .</b>	<b>16</b>
1.5.1	Niveaux hyperfins . . . . .	16
1.5.2	Transitions à deux photons . . . . .	18
<b>1.6</b>	<b>Organisation du manuscrit . . . . .</b>	<b>21</b>

---

## 1.1 Motivations

L'objectif principal de l'expérience mise en place par l'équipe "Ions piégés" au LKB est de tester la théorie de l'électrodynamique quantique et d'obtenir une mesure directe de la constante fondamentale  $\mu_{pe} = m_p/m_e$ , le rapport de masse entre le proton et l'électron, en réalisant la spectroscopie ro-vibrationnelle à haute résolution de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  et en combinant les résultats avec les prédictions théoriques.

Le rapport de masse  $\mu_{pe}$  peut être déterminé par deux mesures distinctes effectuées dans des pièges de Penning, l'une pour la masse du proton par spectrométrie de masse [70] et l'autre pour la masse de l'électron par des mesures du facteur  $g$  [69].

Jusqu'à présent, la valeur de ce rapport, recommandée par le Committee on Data for Science and Technology (CODATA), reste la même que celle publiée en 2018, se maintenant à 1836,152 673 43(11) [71], avec une incertitude relative de  $6.10^{-11}$ .

En raison de sa dépendance vis-à-vis des constantes fondamentales, la spectroscopie des ions moléculaires d'hydrogène a été suggérée dès 1976 comme un outil permettant de déterminer avec précision le rapport de masse  $\mu_{pe}$  [53]. A l'heure actuelle, les ions moléculaires  $\text{H}_2^+$  et  $\text{HD}^+$  sont utilisés pour déterminer cette constante fondamentale.

## 1.2 Les ions moléculaires $\text{H}_2^+$ et $\text{HD}^+$

Les ions moléculaires  $\text{H}_2^+$  et  $\text{HD}^+$  font partie des molécules les plus simples de la nature. Ces ions, composés de deux noyaux (proton ou deutéron) et un électron, jouent le rôle des systèmes de référence en physique moléculaire et ont été étudié théoriquement depuis les débuts de la mécanique quantique.

Du fait de leur simplicité en tant que systèmes à un électron, les niveaux d'énergie d' $\text{H}_2^+$  et  $\text{HD}^+$  peuvent être calculés avec une grande précision, ce qui les rend appropriés pour des tests de la théorie et la détermination de constantes fondamentales. Expérimentalement, leurs spectres présentent de nombreuses transitions ro-vibrationnelles extrêmement étroites dans leur état fondamental, ce qui constitue une caractéristique favorable pour la spectroscopie à haute résolution. Cela s'explique par le fait que les transitions dipolaires ro-vibrationnelles à un photon sont interdites dans  $\text{H}_2^+$  et faiblement autorisées dans  $\text{HD}^+$ , ce qui se traduit par une durée de vie naturelle respectivement de l'ordre de  $10^6$  s et 10 ms. La fréquence des transitions peut être exprimée par

$$\nu = cR_\infty \left[ \varepsilon_{nr}(\mu_n) + \alpha^2 F_{QED}(\alpha) + \sum_n A_n^{fs} \left( \frac{r_n}{a_0} \right)^2 \right]. \quad (1.1)$$

où  $\alpha$  est la constante de structure fine,  $R_\infty$  est la constante de Rydberg et  $a_0$  le rayon de Bohr. Le premier terme correspond à la fréquence calculée par l'équation de Schrödinger non relativiste. Cette fréquence dépend de la constante fondamentale  $\mu_n = \mu_{pe}$  dans le cas d' $\text{H}_2^+$  et de  $\mu_n = m_r/m_e$  dans le cas de  $\text{HD}^+$  où  $m_r^{-1} = m_p^{-1} + m_d^{-1}$  est la masse

nucléaire réduite avec  $m_d$  la masse du deutéron. Le deuxième terme prend en compte les corrections relativistes et de la QED. Le dernier terme est une correction due à la taille finie du rayon du proton ou du deutéron.

Dans l'approximation harmonique, les fréquences des transition vibrationnelles d'une molécule sont de l'ordre de

$$\nu_{vib} \sim cR_\infty \frac{1}{\sqrt{\mu_n}}. \quad (1.2)$$

Cela implique qu'une mesure précise des transitions vibrationnelles, combinées à des calculs théoriques précis, permettra de déterminer le rapport  $\mu_{pe}$  dans le cas de  $\text{H}_2^+$  et les rapports  $\mu_{pe}$  et  $\mu_{de} = \frac{m_d}{m_e}$  dans le cas de  $\text{HD}^+$  avec la sensibilité

$$\frac{\Delta\nu_{vib}}{\nu_{vib}} = Q \frac{\Delta\mu_n}{\mu_n}, \quad (1.3)$$

avec  $Q = \frac{1}{2}$ . Dans le tableau 1.2, nous donnons les résultats théoriques les plus récents [59] pour la fréquence de transition  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  de  $\text{H}_2^+$ , exprimés en kHz. La fréquence  $\nu_{nr}$  est calculée en résolvant l'équation de schrodinger non relativiste (équation 1.1). Les termes  $\nu_{\alpha^p}$  correspondent aux corrections relativiste et de QED. Cette fréquence est donnée avec une incertitude relative de  $7,6 \cdot 10^{-12}$ . L'équation 1.2

$\nu_{nr}$	65 412 414 314,5
$\nu_{\alpha^2}$	1 077 263,8
$\nu_{\alpha^3}$	-274 145,4
$\nu_{\alpha^4}$	-1 935,5(1)
$\nu_{\alpha^5}$	120,8(1)
$\nu_{\alpha^6}$	2,3(5)
$\nu_{tot}$	65 413 215 616.1(5)

TABLE 1.1 – La fréquence théorique en kHz, de la transition  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  de l'ion  $\text{H}_2^+$ , calculée en utilisant l'équation 1.1. La fréquence  $\nu_{nr}$  est donnée par l'équation de schrodinger non relativiste. Les termes  $\nu_{\alpha^p}$  correspondent aux corrections relativistes et de QED.

montre que l'obtention d'une seule mesure de la fréquence de cette transition, avec une incertitude relative de  $3 \cdot 10^{-12}$ , permet de déduire la valeur de  $\mu_{pe}$  avec une incertitude relative de  $6 \cdot 10^{-12}$ , soit une amélioration de 10 fois par rapport à la valeur actuellement recommandée par CODATA.



## 1.3 État de l'art

### 1.3.1 L'ion $\text{HD}^+$

En 1976, une avancée significative a été réalisée lorsque Wing et ses collègues [53] ont procédé à la première observation de transitions rovibrationnelles dans les ions  $\text{HD}^+$  en réalisant des mesures dans le domaine infrarouge. Leurs travaux ont porté sur sept transitions rovibrationnelles associées aux états  $v = 0$  à 3 et  $L = 0$  à 3, avec des incertitudes relatives d'environ  $10^{-6}$ . Par la suite, au cours des années 1980 et 1990, l'équipe dirigée par Carrington a poussé plus loin ces recherches en mesurant et calculant plusieurs transitions dans  $\text{HD}^+$  [54, 55, 56], atteignant des incertitudes relatives d'approximativement  $10^{-7}$  pour les mesures et les calculs. En 2007, une avancée majeure a été accomplie par Koelemeij et ses collègues. Ils ont réalisé une mesure de la fréquence de transition de l'état  $v = 0, L = 2$  à l'état  $v = 4, L = 3$  dans l'ion  $\text{HD}^+$  à une longueur d'onde de  $1,39\mu\text{m}$ , avec une incertitude relative remarquable de  $2.10^{-9}$  [57]. Cette amélioration sur la précision expérimentale a été rendue possible grâce à l'utilisation de la technique de refroidissement sympathique, où les ions moléculaires ont été refroidis par des ions atomiques déjà refroidis par un laser. La précision associée aux mesures de transitions ro-vibrationnelles dans  $\text{HD}^+$ , a été encore améliorée, atteignant  $1,1.10^{-9}$  pour la transition de l'état  $v = 0, L = 0$  à l'état  $v = 1, L = 1$  grâce au travail réalisé par Bressel et son équipe en 2012 [58]. Cependant, il est à noter que cette mesure présente une différence significative par rapport aux prédictions théoriques, équivalente  $2,5\sigma$ . En 2006, Biesheuvel et ses collaborateurs [60, 61], ont réalisé une mesure de la fréquence de transition entre les états  $v = 0, L = 2$  et  $v = 8, L = 3$  avec une incertitude relative de  $1,1.10^{-9}$ , démontrant ainsi une concordance avec les prédictions théoriques. En 2018, Alighanbari et al. ont poussé la précision des mesures encore plus loin en réalisant une spectroscopie sans effet Doppler dans le régime Lamb-Dicke sur une transition purement rotationnelle (de  $v = 0, L = 0$  à  $v = 0, L = 1$ ) à une fréquence d'environ 1,3 THz, atteignant une incertitude relative de  $3,8.10^{-10}$  [64]. En 2020, ce groupe a publié une nouvelle valeur de la fréquence de cette transition avec une incertitude relative de  $1,3.10^{-11}$  [65]. Dans la même année, l'équipe de Koelemeij a atteint l'incertitude relative de  $2,9.10^{-12}$  [63] en utilisant cette fois-ci la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler pour mesurer la fréquence de la transition entre les états  $v = 0, L = 3$  et  $v = 9, L = 3$ . En 2021, S. Schiller et I. Kortunov [62] ont également utilisé la spectroscopie sans effet Doppler pour mesurer la fréquence de transition entre les états  $v = 0, L = 0$  et  $v = 1, L = 1$ . La fréquence a été mesurée avec une incertitude relative de  $2,9.10^{-11}$ .

### 1.3.2 L'ion $\text{H}_2^+$

En 1968, les travaux de Hans G. Dehmelt et James R. Jefferts ont ouvert une nouvelle ère dans la spectroscopie de l'ion  $\text{H}_2^+$ . Leur étude a jeté les bases de la compréhension des transitions au sein de cet ion moléculaire. Ils ont observé les transitions entre les différents sous-niveaux Zeeman et les transitions entre les niveaux hyperfins, au sein d'un même état ro-vibrationnel d' $\text{H}_2^+$ . Les ions ont été piégés par un piège de Paul hyperbolique, une méthode révolutionnaire à l'époque. Les fréquences des transitions hyperfines mesurées ont permis de caractériser la structure hyperfine des états ro-vibrationnels pour des valeurs de  $v$  de 0 à 8 et  $L$  de 1 à 2. A. Carrington, dans les années 80, a observé des transitions dipolaires électriques dans le domaine micro-onde. Ces transitions ont eu lieu entre des niveaux ro-vibrationnels à la limite de dissociation de l'état électronique fondamentale  $1\sigma_g$ , notamment le dernier état lié  $v = 19, L = 1$ , et le niveau vibrationnel fondamental du premier état électronique excité  $2p\sigma_u(v = 0, L = 2)$ . En 2001, A.D.J. Critchley et I. McNab [73] ont observé et mesuré une transition purement rotationnelle à la limite de dissociation de l'état électronique fondamental  $1\sigma_g$  entre les niveaux  $(v = 19, L = 1)$  et  $(v = 19, L = 0)$ . La fréquence de cette transition est 14961,7 MHz, elle a été mesurée avec une incertitude relative de  $10^{-7}$ . En 2016, l'équipe de F. Merkt (Zurich) a mesuré les positions des niveaux rotationnels les plus bas de l'état fondamental de l'ion  $\text{H}_2^+$  [72].

### 1.3.3 État de l'art de $\mu_{pe}$

La figure 1.1 montre l'évolution de l'incertitude relative sur le rapport de masse  $\mu_{pe}$ . Actuellement, la valeur recommandée de ce rapport par le CODATA correspond à celle publiée en 2018 et est donnée avec une incertitude relative de  $6.10^{-11}$ . En 2017, la précision de la mesure de la masse du proton a connu une amélioration par l'équipe de Heisse [70], réduisant l'incertitude relative à  $3,2.10^{-11}$ , ce qui a en conséquence réduit l'incertitude relative sur le rapport de masse à  $4,4.10^{-11}$ .

Des expériences de spectroscopie de l'ion  $\text{HD}^+$ , que j'ai mentionnées précédemment, ont permis de déterminer de nouvelles valeurs de ce rapport avec des incertitudes relatives considérablement améliorées. En 2020, l'équipe de Alighanbari a publié une valeur de ce rapport avec une incertitude relative de  $2,01.10^{-11}$  [65]. Dans la même année, Patra (équipe de Koelmeij) a présenté une valeur de ce rapport avec une incertitude relative de  $3,87.10^{-11}$  [63]. Finalement, Schiller et Kortunov ont rapporté une valeur de rapport avec une incertitude relative de  $3,5.10^{-11}$  [62]. CODATA a récemment convenu d'adopter ces trois nouvelles valeurs de ce rapport. La limite théorique est  $1,52.10^{-11}$  [59].

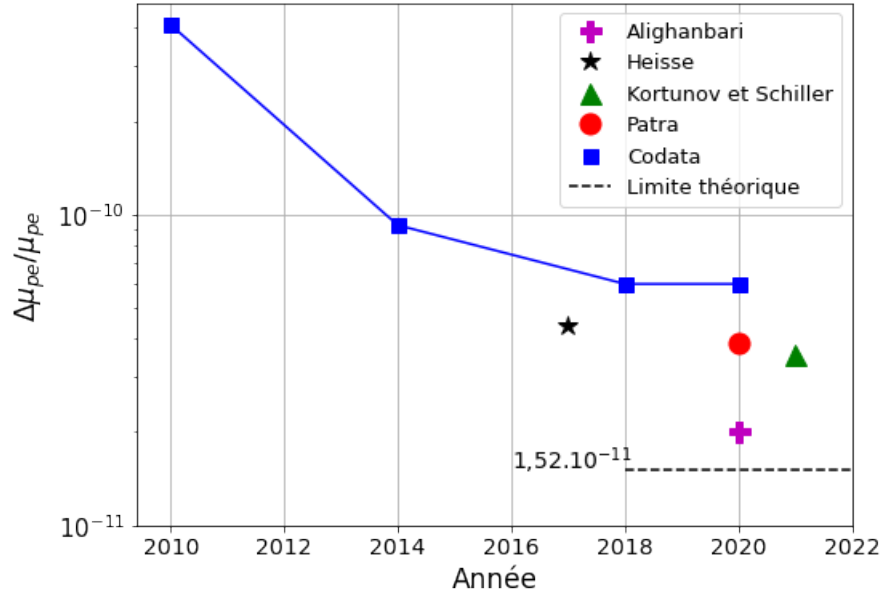


FIGURE 1.1 – Progrès de la précision relative expérimentale sur la rapport de masse  $\mu_{pe} = m_p/m_e$ .

## 1.4 La spectroscopie de $\text{H}_2^+$ au LKB

L'expérience mise en place au LKB vise à réaliser une spectroscopie de haute précision de la transition à deux photons  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  dans  $\text{H}_2^+$ . La figure 1.2 représente les courbes de l'énergie potentielle des états électroniques les plus bas de  $\text{H}_2$  et  $\text{H}_2^+$  calculées dans l'approximation de Born-Oppenheimer. Le schéma expérimental global se déroule comme suit : Tout d'abord, les molécules  $\text{H}_2^+$  sont préparées dans l'état ro-vibrationnel  $v = 0, L = 2$  par ionisation multiphotonique (REMPI : *Resonance Enhanced Multiphoton Ionisation*). Pour cela, nous utilisons une transition à 3+1 photons à 303 nm à partir de l'état électronique fondamental de  $\text{H}_2$ , comme indiqué par les quatre flèches en bleu dans la figure 1.2. Ensuite, nous utilisons une spectroscopie par dissociation multiphotonique (RMPD : *Resonance Enhanced Multiphoton Ionization*). Cette étape consiste à exciter la transition ro-vibrationnelle à deux photons (flèches rouges) avec un laser de spectroscopie à  $9,166\mu\text{m}$  ( $\sim 32,7$  THz) et, en dernière étape, les molécules  $\text{H}_2^+$  excitées vers  $v = 1$  seront dissociées par un laser à 213 nm. Cette dernière étape est cruciale pour vérifier le succès de la transition ro-vibrationnelle, et le signal de spectroscopie est alors une perte d'ions  $\text{H}_2^+$ . Il faut noter que l'ion  $\text{H}_2^+$  est une molécule diatomique homonucléaire, donc les transitions dipolaires électriques à un photon sont presque toutes interdites.

L'un des facteurs limitants que l'on rencontre lors de la réalisation de la spectroscopie de haute précision est le décalage des raies de transition induit par l'effet Doppler. Alors que l'effet Doppler du premier ordre est absent dans les transitions à deux photons avec

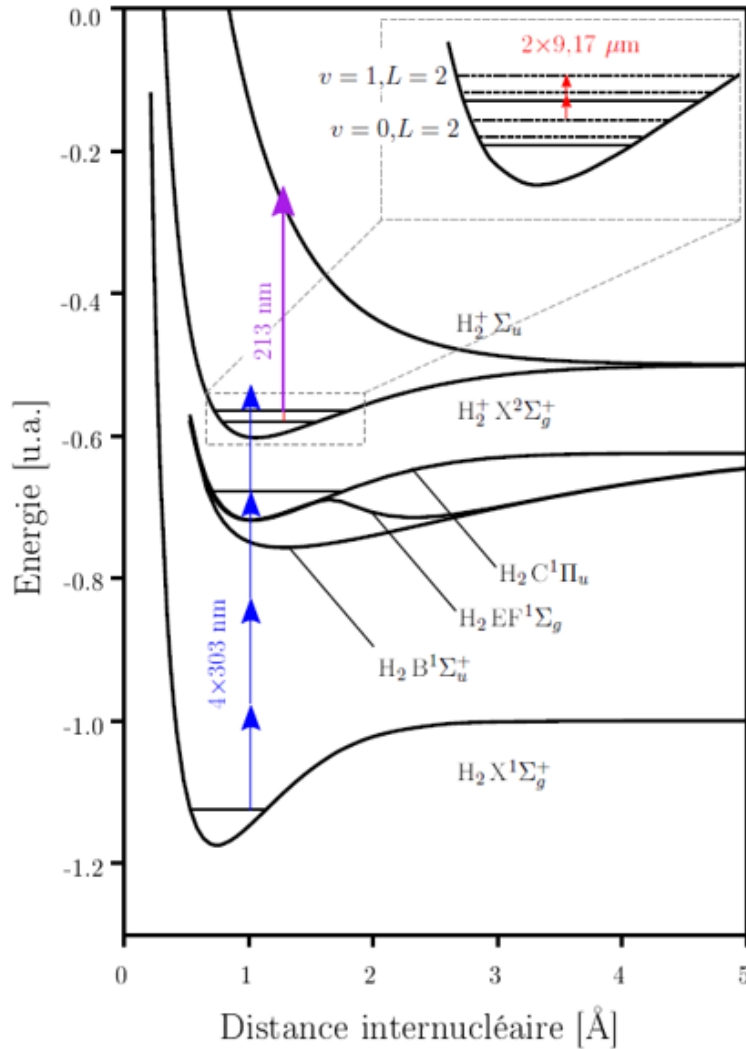


FIGURE 1.2 – Courbes des énergies potentielles de  $\text{H}_2$  et  $\text{H}_2^+$  calculées dans l’approximation de Born-Oppenheimer, et les différents transitions prévues au LKB. Les flèches indiquent la préparations des ions  $\text{H}_2^+$  dans  $v = 0, L = 2$  de l’état électronique fondamentale en utilisant 3+1 photons (REMPI), suivi de la spectroscopie RMPD à 2+1 photons. L’encart montre la transition à deux photons à  $9,166 \mu\text{m}$  entre deux niveaux ro-vibrationnels.

des faisceaux se propageant en sens inverse, l’effet Doppler du deuxième ordre persiste et est donné par

$$\left| \frac{\Delta\nu}{\nu} \right| = \frac{v^2}{2c^2}, \quad (1.4)$$

où  $\nu$  est la fréquence de transition,  $\Delta\nu$  est le décalage par effet Doppler, et  $v$  la vitesse des ions. Les ions piégés dans un piège radiofréquence subissent un échauffement radiofréquence, un phénomène dont l’intensité dépend du nombre d’ions piégés, de la température du nuage d’ions et de l’amplitude de la tension radiofréquence appliquée

[66]. En absence de refroidissement, la thermalisation des ions piégés se produit à environ 10% de la profondeur du piège [67]. La profondeur de piégeage pour  $\text{H}_2^+$  dans un piège RF dépasse facilement les 10 eV. 1 eV correspond à plus de 10 000 K, et à cette température, la vitesse maximale des ions  $\text{H}_2^+$  donnée par la distribution de Maxwell-Boltzmann est d'environ 9100 m/s. Cela entraîne un décalage relatif par effet Doppler du second ordre de  $\left|\frac{\Delta\nu}{\nu}\right| > 2.10^{-10}$ . Ainsi, pour atteindre la précision souhaitée de  $3.10^{-12}$ , le refroidissement des ions  $\text{H}_2^+$  est nécessaire.

Comme nous l'avons dit précédemment, les transitions dipolaires électrique de  $\text{H}_2^+$  ne sont pas permises, donc ces ions ne peuvent pas être refroidis directement par un laser. Cependant, le refroidissement sympathique [68] par le piégeage simultanée d'une seconde espèce refroidie par un laser permet de surmonter cet obstacle. Le refroidissement sympathique fonctionne de manière optimale lorsque les masses des ions sont proches. C'est pourquoi l'ion du Béryllium ( $\text{Be}^+$ ) a été choisi car il est le plus léger de type alcalin possédant une transition adaptée pour le refroidissement laser, à 313 nm.

## 1.5 Structure hyperfine de $\text{H}_2^+$

Dans cette section, nous explorerons la structure hyperfine de l'ion  $\text{H}_2^+$  et celle des transitions à deux photons qui en résulte.

### 1.5.1 Niveaux hyperfins

La structure hyperfine de l'ion  $\text{H}_2^+$  est influencée par les couplages de plusieurs moments cinétiques. Le moment cinétique orbital  $\mathbf{L}$ , caractérisé par le nombre quantique  $L \geq 0$ , le moment cinétique du spin de l'électron  $\mathbf{S}_e$ , quantifié par le nombre quantique  $S_e = \frac{1}{2}$ , et les moments cinétiques des spins nucléaires  $\mathbf{I}_1$  et  $\mathbf{I}_2$ , caractérisés par les nombres quantiques  $I_1=I_2=\frac{1}{2}$ , qui contribuent à la formation d'un moment cinétique nucléaire total  $\mathbf{I}=\mathbf{I}_1+\mathbf{I}_2$ , pouvant prendre les valeurs 0 ou 1.

En raison de la symétrie d'échange des noyaux, le principe de Pauli a une influence importante sur la structure hyperfine de l'ion  $\text{H}_2^+$ . Il existe une relation fondamentale entre la parité totale  $\pi$  et la symétrie d'échange  $P_{12}$ , donnée par

$$\pi = \pi_e P_{12}, \quad (1.5)$$

où  $\pi_e$  est la parité électronique. Le principe de Pauli implique que la fonction d'onde totale est antisymétrique dans l'échange des noyaux. Pour les états ro-vibrationnelles dans l'état électronique  $1s\sigma_g$  de  $\text{H}_2^+$ , on a une parité  $\pi_e=1$  et la parité totale devient alors

$$\pi = P_{12} = (-1)^L. \quad (1.6)$$

On peut alors distinguer deux cas. Lorsque  $L$  est pair, il en résulte une symétrie d'échange spatiale, conduisant à une antisymétrie du spin nucléaire, qui se manifeste sous la forme d'un état singulet  $I=0$ . En revanche, lorsque  $L$  est impair, il induit une antisymétrie de l'échange spatiale, entraînant une symétrie du spin nucléaire, caractérisé par un état triplet  $I=1$ .

Cela entraîne deux conséquences essentielles. Tout d'abord, la structure des niveaux avec un moment cinétique orbital  $L$  pair est moins complexe que celle des niveaux avec un moment cinétique orbital impair. C'est l'une des raisons pour laquelle la transition ( $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$ ) a été choisie. De plus, l'hamiltonien dipolaire électrique donné par  $V = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$  et qui obéit à la règle de sélection  $\Delta L = \pm 1$  et n'affecte pas les variables de spin, interdit les transitions à un photon entre les niveaux ro-vibrationnels appartenant au même état électronique. C'est pourquoi la transition est sondée avec deux photons.

L'hamiltonien de Breit Pauli [76] permet d'obtenir un hamiltonien effectif qui ne tient compte que des variables de spin. La détermination de cet hamiltonien a été effectuée par V.Korobov et al. [77] :

$$\begin{aligned}
H_{hfs} = & b_F(\mathbf{I} \cdot \mathbf{S}_e) + c_e(\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}_e) + c_I(\mathbf{L} \cdot \mathbf{I}) \\
& + \frac{d_1}{(2L-1)(2L+3)} \left( \frac{2}{3} \mathbf{L}^2(\mathbf{I} \cdot \mathbf{S}_e) - (\mathbf{L} \cdot \mathbf{I})(\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}_e) - (\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}_e)(\mathbf{L} \cdot \mathbf{I}) \right) \\
& + \frac{d_2}{(2L-1)(2L+3)} \left( \frac{2}{3} \mathbf{L}^2 \mathbf{I}^2 - \frac{1}{2}(\mathbf{L} \cdot \mathbf{I}) - (\mathbf{L} \cdot \mathbf{I})^2 \right). \quad (1.7)
\end{aligned}$$

Les coefficients  $b_F$ ,  $c_e$ ,  $c_I$ ,  $d_1$  et  $d_2$  ont été calculés pour les niveaux  $v=0$  et 1 de  $L = 1, 2, 3$  et 4 [81]. En général, le couplage spin-spin (premier terme de l'équation 1.7) est de loin le plus grand. Nous utilisons donc le schéma de couplage suivant :

$$\mathbf{F} = \mathbf{S}_e + \mathbf{I} \quad (1.8)$$

et

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{F}, \quad (1.9)$$

où  $\mathbf{F}$  est le spin total caractérisé par le nombre quantique  $F$  et  $\mathbf{J}$  le moment angulaire total quantifié par le nombre  $J$ . Les valeurs possibles de  $F$  et  $J$  sont données dans le tableau 1.2. Lorsque  $I=0$  et que  $L$  est pair, la structure hyperfine est notablement plus simple, se résumant à  $F = \frac{1}{2}$ . De plus, les niveaux avec  $L=0$  ne présentent pas de structure hyperfine. Les déplacements hyperfins correspondants pour les transitions à deux photons sont donnés dans l'article [78] pour les cas de  $L$  pairs et impairs.

Sous l'effet d'un champ magnétique, chaque niveau hyperfin se subdivise en  $2J + 1$  sous niveaux Zeeman notés  $m_J$ . Par exemple, le niveau  $J = 5/2$  se subdivise en 6 niveaux Zeeman ( $m_J = -5/2, -3/2, -1/2, 1/2, 3/2, 5/2$ ). Ces niveaux ne sont pas illustrés dans les figures 1.3 et 1.4.

$L$	$S_e$	$I$	$F$	$J$	$n$
0	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	1
1	$\frac{1}{2}$	1	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}$	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}$	5
pair $\geq 2$	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \dots$	$L - \frac{1}{2}, L + \frac{1}{2}$	2
impair $\geq 3$	$\frac{1}{2}$	1	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \dots$	$L - \frac{1}{2}, L + \frac{1}{2}, L - \frac{3}{2}, L - \frac{1}{2}, L + \frac{1}{2}, L + \frac{5}{2}$	6

TABLE 1.2 – Valeurs possibles de  $F$  et  $J$  en fonction des nombres quantiques  $I$ ,  $S_e$  et  $L$ .  $n$  est le nombre de niveaux de structure hyperfine.

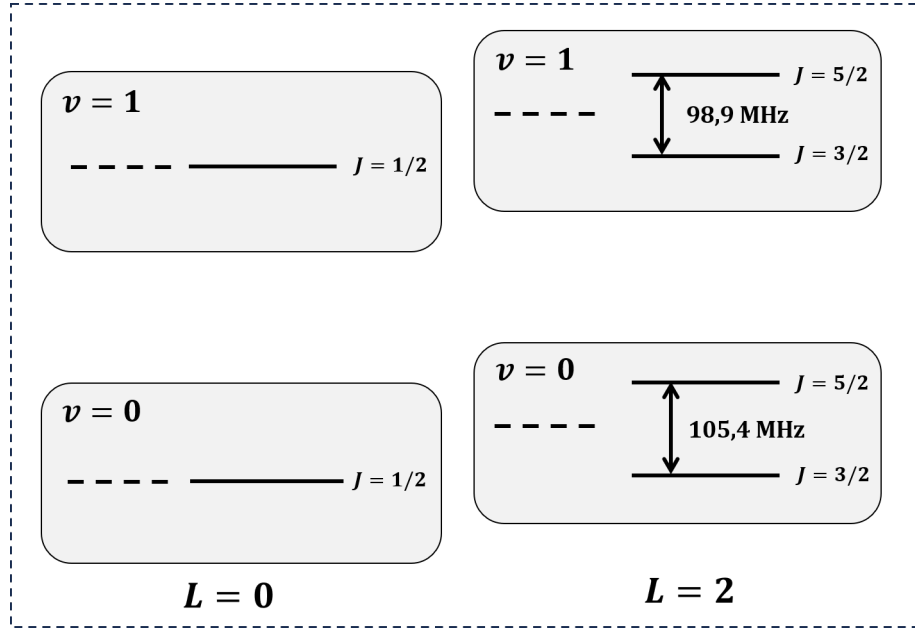


FIGURE 1.3 – Structure hyperfine des niveaux  $v = 0, 1, L = 0, 2$  de  $\text{H}_2^+$ . Les tirets correspondent à la position des niveaux en ne prenant pas en compte la structure hyperfine.

### 1.5.2 Transitions à deux photons

La probabilité de transition à résonance entre deux niveaux hyperfins, lorsque l'ion est éclairé par deux faisceaux contra-propageants, de même fréquence  $\nu$  et de polarisations  $q_1$  et  $q_2$ , est donnée par [78]

$$\Gamma = \left( \frac{4\pi a_0^3}{\hbar c} \right)^2 (1 + \epsilon)^4 \frac{4}{\Gamma_f} I^2 \left( {}^S Q_{q_1, q_2} \right)^2, \quad (1.10)$$

où  $a_0$  est le rayon de Bohr,  $\Gamma_f$  est la largeur instrumentale de la transition,  $\epsilon = \frac{1}{1+2/\mu_{pe}} \simeq 1,001$ ,  $I$  est l'intensité du laser et  ${}^S Q_{q_1, q_2}$  est l'élément de matrice de l'opérateur transition à deux photons. Les valeurs de cet élément pour les transitions entre les niveaux

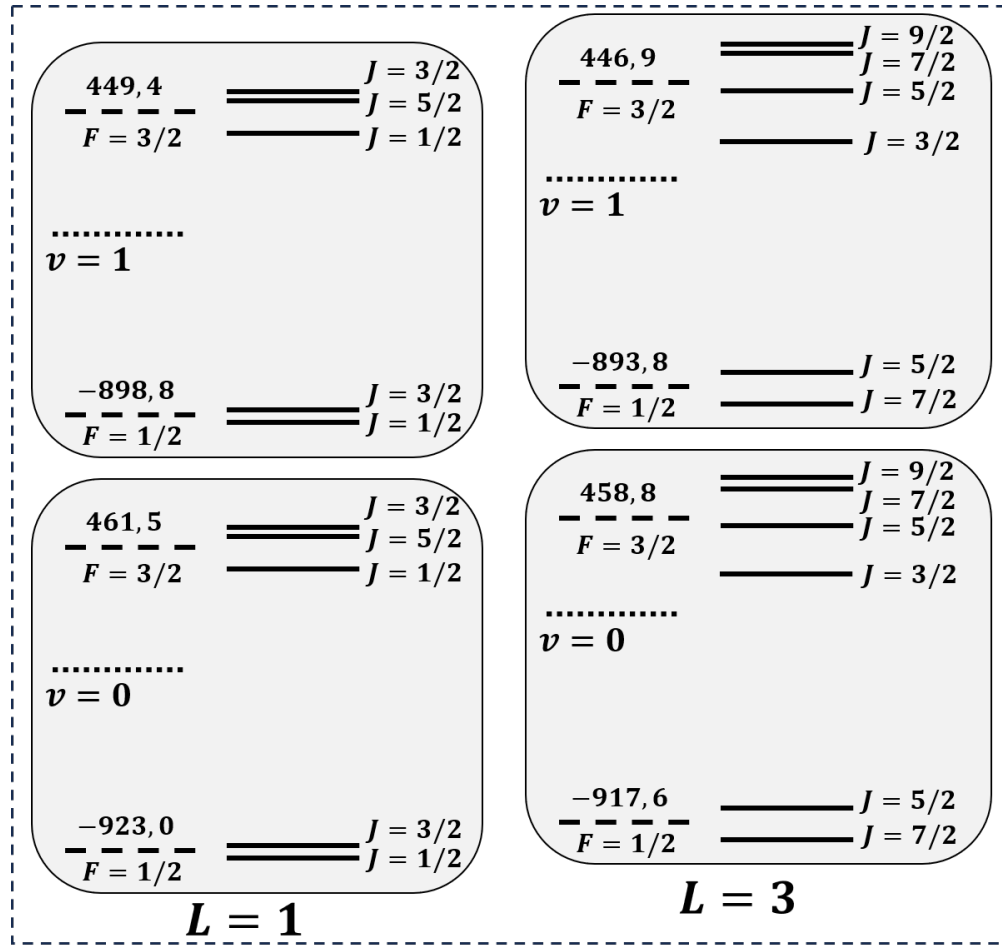


FIGURE 1.4 – Structure hyperfine des niveaux  $v = 0$  et  $v = 1$ ,  $L = 1$  et  $L = 3$  de  $H_2^+$ . Les déplacements des niveaux sont indiqués en MHz. Les pointillés correspondent à la position des niveaux ne prenant pas en compte la structure hyperfine. Les tirets correspondent au spectre simplifié prenant en compte l'interaction spin-spin dominante. Les traits pleins donnent la structure hyperfine complète.

( $v = 0, L$ ) et ( $v = 1, L$ ) pour  $L = 0, 1, 2$  et  $3$ , et pour les polarisations  $\pi\pi$ ,  $\sigma^+\sigma^+$  et  $\sigma^+\sigma^-$  sont données dans la référence [78].

Les règles de sélection pour une transition ro-vibrationnelle dipolaire électrique à deux photons sont :

$$\Delta L = 0, \pm 2 \quad \text{et} \quad \Delta J = 0, \pm 1, \pm 2. \quad (1.11)$$

Les règles de sélection sur  $m_J$  et  $m_{J'}$  dépendent de la polarisation de chaque photon. L'écart  $\Delta M_J = m_J - m_{J'}$  doit être égale à 0 pour  $\pi\pi$  et  $\sigma^+\sigma^-$  et à  $+2(-2)$  pour  $\sigma^+\sigma^+(\sigma^-\sigma^-)$ .

La figure 1.5 montre les éléments de matrice  ${}^S Q_{q_1, q_2}$  pour les transitions à deux photons entre les états  $v = 0$  et  $v = 1$  pour  $L = 0$  et  $L=2$ . Le cas  $L=0$  présente la structure la plus simple où il n'y a pas de structure hyperfine. La probabilité de transition a été évaluée



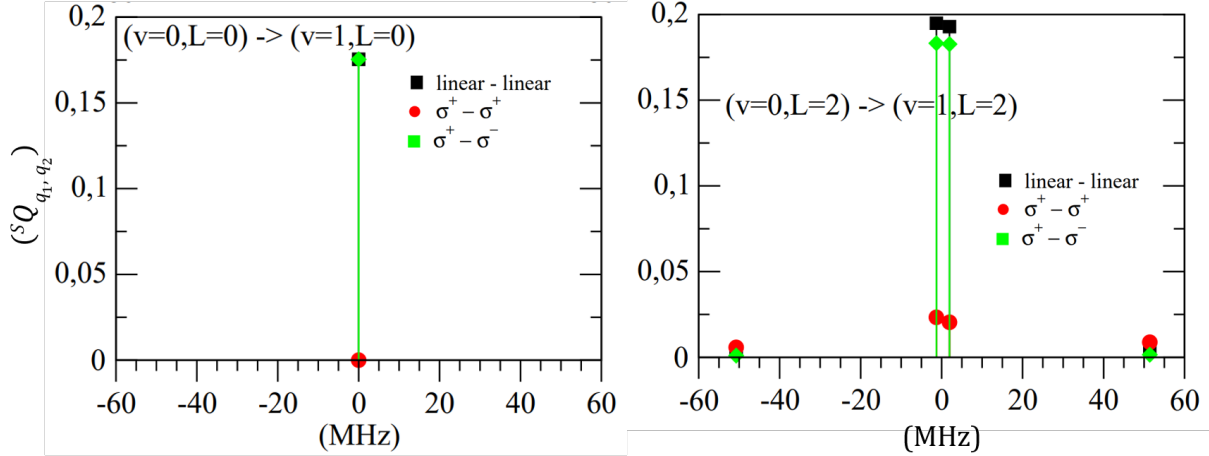


FIGURE 1.5 – Éléments de matrice  ${}^S Q_{q_1, q_2}$  pour les transitions à deux photons en unités atomiques entre les états  $(v = 0, L)$  et  $(v = 1, L)$  pour  $L=0$  et  $L=2$ . Les carrés correspondent aux polarisations  $\pi\pi$  (linear-linear), les cercles aux polarisations  $\sigma^+\sigma^+$  et les diamants aux polarisations  $\sigma^+\sigma^-$ .

dans l'article [80] pour les polarisation  $\pi\pi$ . Pour les polarisation  $\sigma^+\sigma^+$ , la transition est interdite à cause de la règle de sélection  $\Delta M_J = 2$ . Le cas  $L=2$  présente deux transitions  $\Delta J = 0$  intenses et deux transitions  $\Delta J = \pm 1$  plus faibles. Les spectres deviennent plus complexes lorsque  $L$  est impair. Ils comprennent un total de 25(34) transitions pour  $L = 1(L \geq 3)$ . Ces transitions sont généralement moins intenses que celles observées lorsque  $L$  est pair [78].

Les transitions les plus appropriées pour déterminer le rapport de masse  $\mu_{pe}$  sont donc  $(v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2)$  à  $9,166 \mu\text{m}$  et  $(v = 0, L = 0 \rightarrow v = 1, L = 0)$  à  $9,128 \mu\text{m}$ . Nous utilisons celle à  $L=2$  car notre laser de spectroscopie opère à  $9,166 \mu\text{m}$ .

Notre expérience se concentre principalement sur les deux raies intenses correspondant

$J = J'$	$\nu_{2ph}$
3/2	32 706 609.751
5/2	32 706 606.512

TABLE 1.3 – Fréquences des transitions à deux photons  $(v = 0, L = 2, J) \rightarrow (v = 1, L = 2, J')$  où  $J=J'=3/2$  ou  $5/2$ .

à  $\Delta J = 0$  où  $J=3/2$  ou  $5/2$ . Comme le spin nucléaire est nul, le moment angulaire total s'écrit

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}_e, \quad (1.12)$$

et l'hamiltonien effectif de l'équation 1.7 se réduit à

$$H_{hfs} = \frac{c_e}{2} (\mathbf{J}^2 - \mathbf{L}^2 - \mathbf{S}_e^2), \quad (1.13)$$

avec des valeurs propres  $\nu_{hfs} = \frac{c_e}{2} (J(J+1) - L(L+1) - S_e(S_e+1))$ . Le coefficient  $c_e$  vaut 42,1625(20) MHz pour le niveau ( $v=0, L=2$ ) et 39,5716(20) MHz pour le niveau ( $v=1, L=2$ ). Les déplacements en fréquence des niveaux hyperfins sont alors  $-\frac{3}{2}c_e$  pour  $J=3/2$  et  $c_e$  pour  $J=5/2$ . Les fréquences des transitions à deux photons intenses  $\Delta J = 0$  sont décalées de la moitié de la fréquence de transition sans structure hyperfine, donnée dans le tableau 1.1, de la quantité

$$\Delta\nu_{hfs} = -\frac{3}{4}(c_e(v=1) - c_e(v=0))$$

dans le cas  $J = 3/2$  et de la quantité

$$\Delta\nu_{hfs} = \frac{1}{2}(c_e(v=1) - c_e(v=0))$$

pour le cas  $J = 5/2$ . Les fréquences de ces transitions sont données dans le tableau 1.3. L'écart en fréquence entre les deux transitions est d'environ 3,2 MHz.

## 1.6 Organisation du manuscrit

**Le chapitre 2** présente la théorie du piégeage d'ions et le piège utilisé pour confiner les ions  $\text{H}_2^+$  et  $\text{Be}^+$ . Ensuite, il présente les différents lasers utilisés à des fins de création, de refroidissement et de dissociation des ions.

**Le chapitre 3** est consacré à la description des sources lasers à 9,166  $\mu\text{m}$  dont nous disposons pouvant exciter la transition vibrationnelle de  $\text{H}_2^+$ . Dans un premier temps, je présenterai le laser à  $\text{CO}_2$  et le laser à cascade quantique et leurs caractéristiques, en mettant en évidence les raisons pour lesquelles ce dernier est choisi pour exciter la transition vibrationnelle de  $\text{H}_2^+$ . Par la suite, je passe en revue la méthode utilisée avant mon arrivée pour asservir le laser à cascade quantique, permettant de contrôler sa fréquence avec la précision relative souhaitée à l'époque, environ  $10^{-10}$ , qui nous a conduit à changer la méthode d'asservissement et d'utiliser un peigne de fréquence.

**le chapitre 4** est consacré au peigne de fréquence que j'ai mis en place. Je commence par donner une brève définition d'un peigne de fréquence, puis je décris en détail le dispositif expérimental qui nous permet de stabiliser notre peigne de fréquence centré à 1565 nm sur un signal optique de référence à 1,542  $\mu\text{m}$  provenant du LNE-SYRTE.

Dans **le chapitre 5**, je décris la stabilisation d'un laser à  $\text{CO}_2$  à 9,166  $\mu\text{m}$  sur les modes optiques du peigne, eux-mêmes asservis sur la référence optique à 1,542  $\mu\text{m}$ . Cela comprend la description du processus non linéaire entre le faisceau du laser à  $\text{CO}_2$  et une sortie supplémentaire du peigne de fréquence à 1895 nm dans un cristal  $\text{AgGaSe}_2$ , composant essentiel du dispositif de stabilisation.



# Chapitre 2

## Préparation des ions $\text{H}_2^+$ pour la spectroscopie

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Piégeage d'ions <math>\text{H}_2^+</math></b>	<b>24</b>
2.1.1	Piège de Paul	24
2.1.2	Piège de Paul linéaire	25
<b>2.2</b>	<b>Création d'ions <math>\text{H}_2^+/\text{Be}^+</math></b>	<b>30</b>
2.2.1	Création d'ions $\text{H}_2^+$	30
2.2.2	Création d'ions $\text{Be}^+$	30
<b>2.3</b>	<b>Photo-dissociation de <math>\text{H}_2^+</math></b>	<b>31</b>
<b>2.4</b>	<b>Refroidissement d'ions <math>\text{H}_2^+/\text{Be}^+</math></b>	<b>32</b>
<b>2.5</b>	<b>L'enceinte à vide</b>	<b>33</b>
<b>2.6</b>	<b>Détection des ions</b>	<b>34</b>
2.6.1	Système d'imagerie	34
2.6.2	Excitation séculaire	35
2.6.3	Cristal de Coulomb	36
<b>2.7</b>	<b>Couplage entre le nuage d'ion et la cavité de haute finesse</b>	<b>37</b>
2.7.1	Le problème	37
2.7.2	Optimisation par la géométrie	37
2.7.3	Vérification de l'alignement	38
2.7.4	Conclusion	45

---

## 2.1 Piégeage d'ions $\text{H}_2^+$

### 2.1.1 Piège de Paul

Pour confiner une particule chargée, il est nécessaire d'établir une force de rappel dans les trois dimensions de l'espace. Pour des particules chargées, un champ électrique  $\mathbf{E}$  statique, décrit par un potentiel harmonique de la forme

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0}(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2), \quad (2.1)$$

semble permettre de créer une force de rappel dans les trois directions de l'espace. Pour satisfaire l'équation de Laplace

$$\Delta\Phi = 0, \quad (2.2)$$

les coefficients  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  doivent satisfaire

$$\alpha + \beta + \gamma = 0. \quad (2.3)$$

Pour satisfaire l'équation 2.3, au moins un des coefficients doit être négatif, et le potentiel électrostatique sera toujours répulsif dans au moins une direction de l'espace. Deux solutions simples pour les coefficients sont

$$\alpha = \beta = 1 \quad \text{et} \quad \gamma = -2, \quad (2.4)$$

$$\alpha = -\beta = 1 \quad \text{et} \quad \gamma = 0. \quad (2.5)$$

Prenons par exemple la condition donnée par l'équation 2.4. Le potentiel correspondant est donnée par

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0}(x^2 + y^2 - 2z^2). \quad (2.6)$$

En observant la différence de signes entre les termes radiaux et le terme axial, on peut constater que le potentiel présente un point de selle à l'origine, avec un minimum le long d'une coordonnée, mais un maximum le long de l'autre. C'est la base du théorème d'Earnshaw [38] que de générer un minimum du potentiel électrostatique dans l'espace libre est impossible. Cependant, il est possible d'atteindre un confinement tridimensionnel soit en combinant ce champ statique avec un champ magnétique axial pour créer un piège de *Penning* [39], soit en utilisant un champ électrique quadrupolaire alternatif à haute fréquence [40, 41] pour former le piège de *Paul*.

La première mise en oeuvre d'un piège de Paul en 3D a reposé sur une configuration géométrique où les valeurs  $\alpha = \beta = 1$  et  $\gamma = -2$  de l'équation 2.4 sont satisfaites. Les électrodes adoptent une forme d'hyperboloïde de révolution comme montré dans la figure 2.1. Ce type de piège est communément appelé "**piège hyperbolique**". L'un des principaux inconvénients de ce type de piège réside dans l'absence d'un accès optique

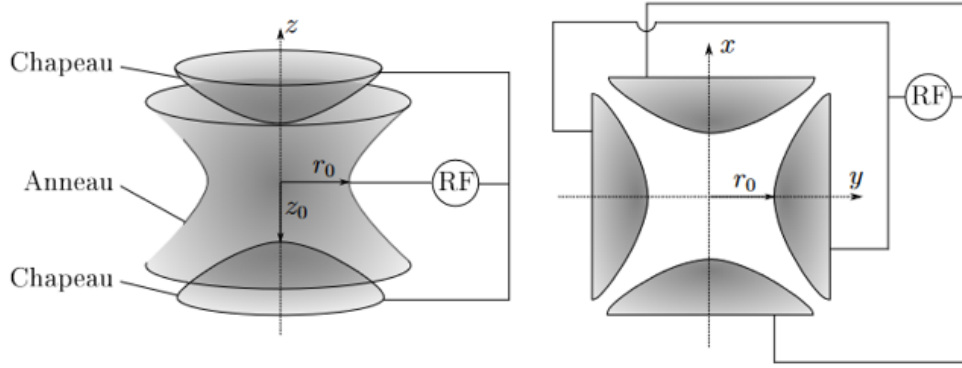


FIGURE 2.1 – Droite : piège hyperbolique. Gauche : piège linéaire d'axe  $z$  (Les électrodes sont orthogonales à la page).

direct au cœur du piège. Pour introduire un laser dans le piège, il est nécessaire de percer un trou dans l'électrode anneau. En conséquence, l'imagerie des ions à l'intérieur du piège s'avère complexe et présente un faible taux de collecte de photons. L'expérience de spectroscopie de  $\text{H}_2^+$  se déroule alors dans un piège linéaire, que nous détaillerons dans la section à venir.

### 2.1.2 Piège de Paul linéaire

Dans l'équation 2.5, un potentiel alternatif entre les électrodes dans les directions  $x$  et  $y$  permet d'établir un confinement dans le plan  $xy$ . Pour confiner des particules le long de la direction  $z$ , des électrodes supplémentaires sont nécessaires. La figure 2.2 montre un exemple de piège de Paul linéaire que j'ai utilisé avec les électrodes RF, les électrodes centrales et les électrodes d'extrémité. Les électrodes centrales sont alimentées avec une tension de la forme  $V_{RF} = U_0 + V_0 \cos(\Omega t)$ , tandis que les électrodes d'extrémité sont alimentées avec une tension constante  $U_1$ . Le potentiel total est alors donné par

$$\Phi(x, y, z, t) = \Phi_{RF}(x, y, t) + \Phi_{endcap}(x, y, z). \quad (2.7)$$

Idéalement, la forme des barreaux créant le champ  $RF$  quadrupolaire devrait être conforme à la forme des équipotentielles. C'est pourquoi il faudrait que les électrodes aient une section hyperbolique. En raison de contraintes liées à la facilité de fabrication, notre piège utilise des électrodes cylindriques de rayon  $r_e = 4$  mm et une séparation centrale  $R = 3,5$  mm de rapport  $r_e/R = 1,14$  très proche du rapport 1,15 qui minimise les anharmonicités du potentiel radial [75, 74].

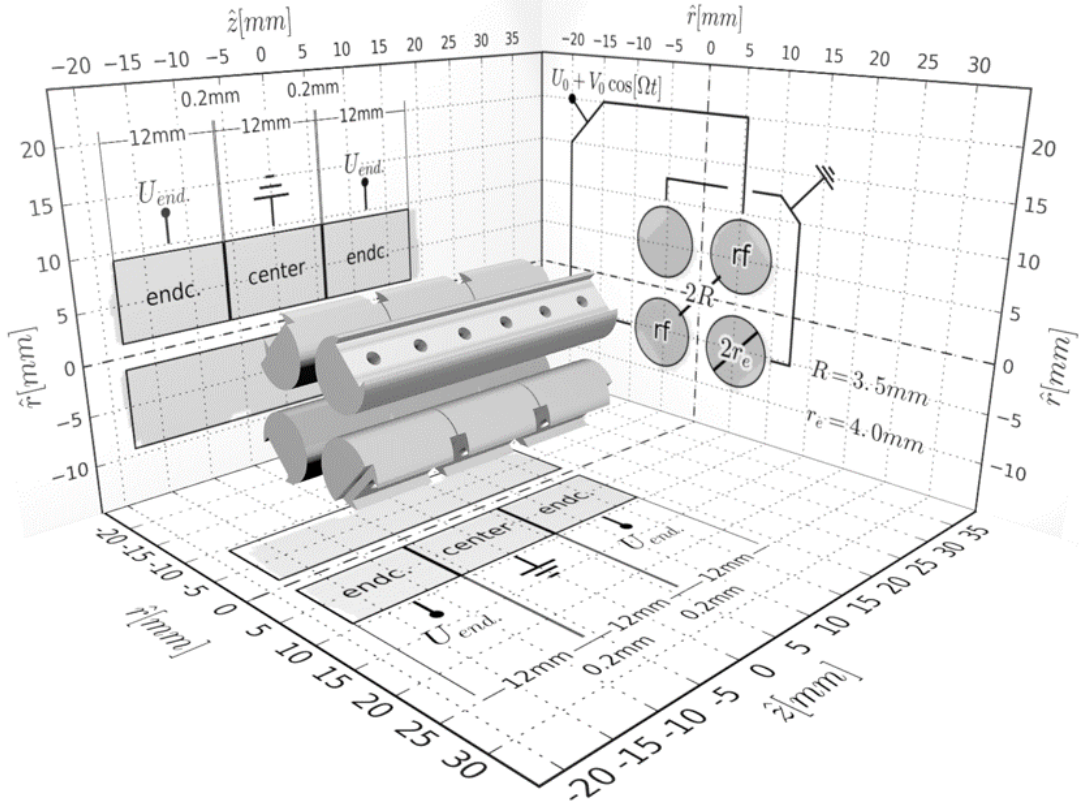


FIGURE 2.2 – Piège de Paul linéaire avec ses 8 électrodes et les connexions électriques correspondantes (figure extraite de [44]).

### 2.1.2.1 Piégeage dans le plan $xy$

Afin de réaliser le confinement des particules dans le plan  $xy$ , les électrodes hyperboliques génèrent un champ en deux dimensions qui est donné, au voisinage de l'axe du piège, par

$$\Phi_{RF}(x, y, t) = \frac{U_0 + V_0 \cos(\Omega t)}{2r_0^2} (x^2 - y^2 + r_0^2). \quad (2.8)$$

où  $r_0 = 0,9966R$  [44], une valeur légèrement différente de  $R$  car le potentiel n'est pas parfaitement quadrupolaire. Elle a été calculée à l'aide du logiciel SIMION 8.0. La force électrique est donnée par  $F = -\nabla\Phi$ , donc les équations de mouvement pour un ion de masse  $m$  et de charge  $q$  sont données par

$$\ddot{x} - \frac{q}{mr_0^2} (U_0 + V_0 \cos(\Omega t)) x = 0, \quad (2.9)$$

$$\ddot{y} + \frac{q}{mr_0^2} (U_0 + V_0 \cos(\Omega t)) y = 0. \quad (2.10)$$

En introduisant de nouveaux paramètres sans dimension  $a_x$ ,  $a_y$ ,  $q_x$  et  $q_y$ , ainsi qu'un temps réduit  $\tau$  définis par

$$a_x = -a_y = \frac{4qU_0}{m\Omega^2 r_0^2} \quad (2.11)$$

$$q_x = -q_y = \frac{2qV_0}{m\Omega^2 r_0^2} \quad (2.12)$$

$$\tau = \frac{\Omega t}{2}, \quad (2.13)$$

les équations de mouvement peuvent être transformées en une équation de Mathieu pour les deux directions  $x, y$  notées  $u$  :

$$\frac{d^2 u}{d\tau^2} + (a_u + 2q_u \cos(2\tau))u = 0. \quad (2.14)$$

Les solutions de cette équation peuvent être classées en deux catégories selon les va-

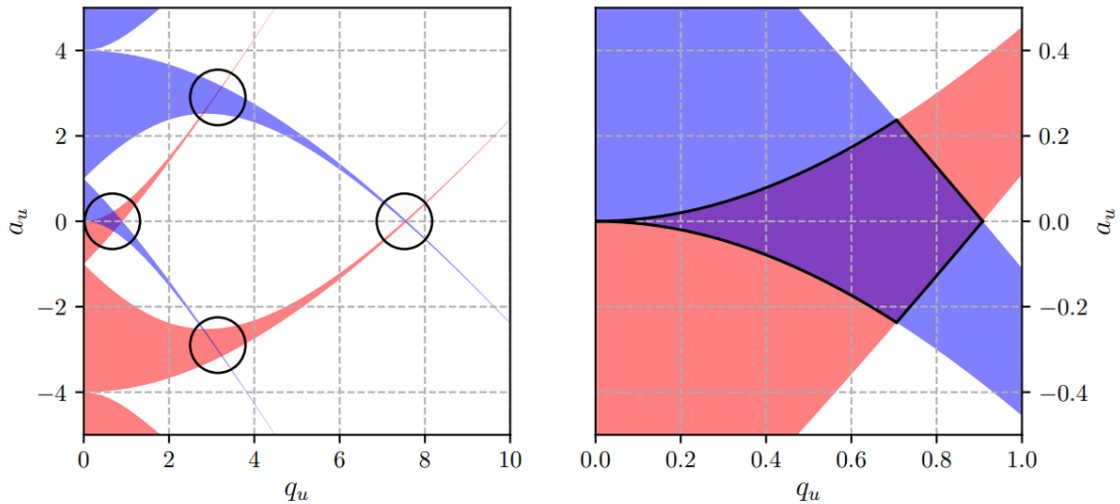


FIGURE 2.3 – Diagramme de stabilité des solutions de l'équation de Mathieu. Les solutions suivant  $x$  sont en bleu et les solutions suivant  $y$  sont en rose. À gauche : Seules les régions de chevauchement conduisent à des solutions stables. À droite : La première région de stabilité.

leurs de  $a_u$  et  $q_u$ , les solutions stables et solutions instables. Dans le cas des solutions instables, les particules ont une trajectoire divergente et finissent par entrer en collision avec les électrodes, tandis que pour les solutions stables, la trajectoire est confinée dans une zone finie de l'espace. La figure 2.3 donne les zones de stabilité du piège qui peuvent être tracées avec la fonction  $\text{mathieu}(m, q)$  de la bibliothèque *scipy.special* de Python. Pour confiner une particule chargée, la trajectoire doit être stable dans les direction  $x$  et  $y$ . Ainsi, seules les régions de chevauchement dans la figure 2.3 sont pertinentes. Sur le plan expérimental, la région avec un paramètre  $q_u$  plus petit, et donc une tension



alternative basse, est plus facilement accessible. C'est pourquoi les pièges de Paul linéaires sont généralement exploités dans la première zone de stabilité.

### 2.1.2.2 Approximation adiabatique

L'approximation adiabatique est appliquée lorsque nous nous trouvons dans un régime où  $a_u < 1$  et  $|q_u|^2 \ll 1$ . Dans cette approximation, la trajectoire de la particule peut être divisée en deux composantes distinctes [45], un mouvement avec une grande amplitude et une faible fréquence appelé macromouvement, et un deuxième, appelé micromouvement, de faible amplitude à la fréquence élevée  $\Omega$  des champs de piégeage. Le mouvement de la particule est alors donné par

$$x(t) \simeq x_0 \cos(\omega_{x,r}t) \left[ 1 + \frac{q_x}{2} \cos(\Omega t) \right] \quad (2.15)$$

$$y(t) \simeq y_0 \cos(\omega_{y,r}t) \left[ 1 + \frac{q_y}{2} \cos(\Omega t) \right] \quad (2.16)$$

où

$$\omega_{x,r} = \frac{\Omega}{2} \sqrt{\frac{q_x^2}{2} + a_x}, \quad (2.17)$$

$$\omega_{y,r} = \frac{\Omega}{2} \sqrt{\frac{q_y^2}{2} + a_y} \quad (2.18)$$

sont les fréquences séculaires. En moyennant sur une période du micromouvement, le potentiel de confinement radial peut être représenté par un pseudopotentiel électrique donné par

$$\Phi_{eff}(x, y) = \frac{m}{2q} (\omega_{x,r}^2 x^2 + \omega_{y,r}^2 y^2) \quad (2.19)$$

Il faut noter que, pour des particules de charge identique, la fréquence séculaire augmente à mesure que la particule devient plus légère correspondant à un confinement plus fort. Par conséquent, lorsqu'on piège différentes espèces ioniques de charge égale, les espèces les plus légères tendent à se concentrer au centre du piège.

### 2.1.2.3 Piégeage dans la direction $z$

Le confinement le long de la direction  $z$  est réalisé en appliquant des potentiels continus (DC) aux électrodes d'extrémité (*endcaps*). On voit qu'avec une tension positive, le potentiel assure le confinement suivant  $z$  mais déconfiné suivant  $x$  et  $y$ . Le potentiel, près du centre du piège, présente un comportement quadrupolaire donné par

$$\Phi_{endcap}(x, y, z) = \frac{U_1}{2z_{eff}^2} \left( z^2 - \frac{x^2}{2} - \frac{y^2}{2} \right) + U_{centre}, \quad (2.20)$$

où  $U_1$  est la tension appliquée aux électrodes endcaps et  $z_{eff}$  est un paramètre effectif pour la géométrie spécifique illustrée dans la figure 2.2. A l'aide du logiciel SIMION, la valeur  $z_{eff}$  a été estimée à 11,7 mm et  $U_{centre}$  à 0,021 V [44].

Le mouvement de la particule dans un tel potentiel est celui d'un oscillateur harmonique de fréquence d'oscillation  $\omega_z = \sqrt{\frac{qU_1}{mz_{eff}^2}}$ . Le potentiel peut être reformulé comme suit

$$\Phi_{endcap}(x, y, z) = \frac{m}{2q}\omega_z^2 \left( z^2 - \frac{x^2}{2} - \frac{y^2}{2} \right). \quad (2.21)$$

#### 2.1.2.4 Potentiel effectif

Le potentiel effectif de piégeage est exprimé en additionnant les équations 2.19 et 2.21, ce qui donne

$$\Phi_{eff}(x, y, z) = \frac{m}{2q} \left( (\omega_{x,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2)x^2 + (\omega_{y,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2)y^2 + \omega_z^2z^2 \right) \quad (2.22)$$

qui peut être exprimé sous la forme

$$\Phi_{eff}(x, y, z) = \frac{1}{2q}m(\omega_x x^2 + \omega_y y^2 + \omega_z z^2) \quad (2.23)$$

Les fréquences séculaires sont données en fonction des paramètres de stabilité ou en fonction des tensions appliquées au piège par :

$$\omega_x^2 = \omega_{x,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2 = \frac{\Omega^2}{4} \left( \frac{q_x^2}{2} + a_x \right) - \frac{1}{2} \frac{qU_1}{mz_{eff}^2} = \frac{q^2V_0^2}{2m^2\Omega^2r_0^2} + \frac{qU_0}{2mr_0^2} - \frac{1}{2} \frac{qU_1}{mz_{eff}^2} \quad (2.24)$$

$$\omega_y^2 = \omega_{y,r}^2 - \frac{1}{2}\omega_z^2 = \frac{\Omega^2}{4} \left( \frac{q_y^2}{2} + a_y \right) - \frac{1}{2} \frac{qU_1}{mz_{eff}^2} = \frac{q^2V_0^2}{2m^2\Omega^2r_0^2} + \frac{qU_0}{2mr_0^2} - \frac{1}{2} \frac{qU_1}{mz_{eff}^2} \quad (2.25)$$

$$\omega_z^2 = \frac{qU_1}{mz_{eff}^2}. \quad (2.26)$$

Dans le tableau 2.1, nous donnons les valeurs des paramètres  $a_u$  et  $q_u$  et les fréquences séculaires pour différentes valeurs de la tension  $RF$   $V_0$  et les deux espèces  $\text{H}_2^+$  et  $\text{Be}^+$ .

Espèce	$V_0$	$a_x = -a_y$	$q_x = -q_y$	$\omega_x$ (kHz)	$\omega_y$ (kHz)	$\omega_z$ (kHz)
$\text{H}_2^+$	200 V	$2,26 \cdot 10^{-4}$	0,226	1069,5	1060,0	94,5
$\text{Be}^+$	200 V	$5,02 \cdot 10^{-5}$	0,050	239,7	230,2	44,5
$\text{H}_2^+$	518 V	$2,26 \cdot 10^{-4}$	0,585	2674,2	2760,5	94,5
$\text{Be}^+$	518 V	$5,02 \cdot 10^{-5}$	0,130	615,1	611,4	44,5

TABLE 2.1 – Fréquences pour différentes valeurs de la tension  $RF$ .  $U_0=0,1$  V,  $U_1=1$  V et  $\Omega=2\pi \times 13$  MHz.

## 2.2 Création d'ions $\text{H}_2^+/\text{Be}^+$

### 2.2.1 Création d'ions $\text{H}_2^+$

Pour créer les ions  $\text{H}_2^+$ , on utilise une méthode qui consiste à ioniser un jet moléculaire d' $\text{H}_2$  traversant le piège (création "*in-situ*"). Cette méthode permet de créer directement les ions  $\text{H}_2^+$  dans l'état qui nous intéresse ( $v=0, L=2$ ) à l'aide d'une méthode de photo-ionisation résonante sélective connue sous le nom de REMPI (*Resonance Enhanced Multiphoton Ionization*). Dans le cas des ions  $\text{H}_2^+$ , la méthode REMPI consiste en une excitation à 3+1 photons à une longueur d'onde de 303 nm. Pour cela, nous utilisons un laser pulsé à 303 nm avec une fréquence de répétition de 20 Hz. Le laser est pulsé car la probabilité de transition, à 3+1 photons, est proportionnelle à la troisième puissance de l'intensité  $I$  du laser pour le processus résonant à 3 photons. De ce fait, les molécules d' $\text{H}_2$  ne sont pas injectées de manière continue dans le piège, mais plutôt sous forme de paquets synchronisés avec l'arrivée de la lumière du laser dans le piège, avec le même taux de répétition. Ces paquets sont générés à l'aide d'une vanne pulsée de la marque Amsterdam piezo valve (modèle ACPV2) connectée à un réservoir d' $\text{H}_2$  à une pression de 1,5 bar. Cette valve pulsée peut être ouverte et fermée très rapidement avec un temps d'ouverture ajustable à partir de 5  $\mu\text{s}$ .

Les impulsions à 303 nm sont générées grâce à un système comprenant deux lasers commerciaux, un laser Nd :YAG pulsé, doublé en fréquence (de chez Quantel) en tant que laser de pompage, et un laser à colorant pulsé (de chez Sirah) à 606 nm, qui est ensuite également soumis à un processus de doublage de fréquence dans un cristal BBO en simple passage. Le laser Nd :YAG émet des impulsions lumineuses de 5 ns à 532 nm avec une fréquence de répétition de 20 Hz, produisant jusqu'à 160 mJ par impulsion. La sortie du Nd :YAG doublée en fréquence est utilisée pour pomper optiquement le laser à colorant, générant ainsi 16 mJ de lumière à 606 nm pour le laser à colorant, et environ 4 mJ à 303 nm après le processus de doublage en fréquence.

La méthode REMPI nous permet de créer des ions  $\text{H}_2^+$  dans l'état  $L=2, v=0$  avec une sélectivité qui a été estimée à  $\sim 87\%$  [48].

### 2.2.2 Création d'ions $\text{Be}^+$

Les ions  $\text{Be}^+$  sont également créés à l'intérieur du piège (création "*in-situ*"). Un four est utilisé pour produire de la vapeur de Béryllium à proximité du centre du piège. Pour créer les ions  $\text{Be}^+$ , nous disposons de deux méthodes. La première consiste à ioniser les atomes Be par impact électronique en utilisant un canon à électrons de la marque Kimball (modèle FRA-2X1-2), monté proche du piège et faisant un angle d'environ  $45^\circ$  avec le four. Cette méthode présente plusieurs inconvénients, notamment le fait que l'utilisation du canon à électron entraîne le dépôt de charges sur les électrodes du piège et donc des perturbations des champs statiques de piégeage.

Il existe une autre méthode, celle de la photo-ionisation pour créer les ions  $\text{Be}^+$ . L'ionisation du Béryllium peut être effectuée de manière résonante en utilisant un laser continu ou pulsé à 235 nm. L'utilisation d'un laser impulsionnel est privilégiée car elle s'avère plus efficace, étant donnée que la largeur du laser est comparable à la largeur Doppler, ce qui permet d'ioniser toutes les classes de vitesses des atomes Be du jet [87]. Le diagramme d'énergie de l'atome de Béryllium est représenté dans la figure 2.4. Dans ce processus, un premier photon provoque la transition de l'état  $[1s^2 2s 2p]^1 P_1$  à l'état  $[1s^2 2s^2]^1 S_0$  à une longueur d'onde proche de 235 nm. Ensuite, le deuxième photon excite l'atome vers le continuum et l'ionise.

Cependant, la source laser à 235 nm (laser à 940 nm quadruplé) est très couteuse. Par

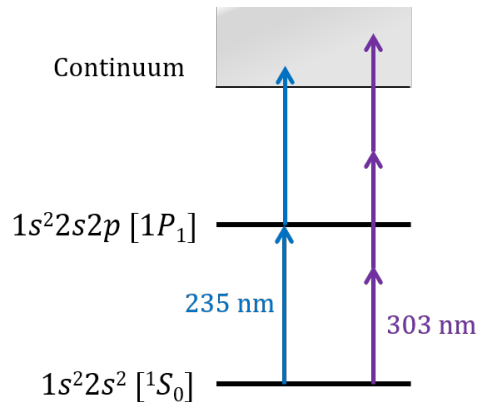


FIGURE 2.4 – Diagramme d'énergie et transitions associées pour la photo-ionisation non résonante à 303 nm de l'atome de Béryllium.

conséquent, nous utilisons une source à une longueur d'onde différente pour effectuer la photo-ionisation du Béryllium de manière non résonante. Le laser à 303 nm, que nous avons précédemment présenté, remplit cette fonction. Cette méthode permet de créer quelques centaines d'ions  $\text{Be}^+$  pendant un temps de 30 s, ce qui est suffisant.

### 2.3 Photo-dissociation de $\text{H}_2^+$

Pour vérifier si l'excitation des ions  $\text{H}_2^+$  par le laser de spectroscopie a été effectuée, nous utilisons une méthode de détection optique basée sur la forte dépendance des sections efficaces de photo-dissociation des ions  $\text{H}_2^+$ , couramment employée dans les projets de spectroscopie vibrationnelle d'ions hydrogène moléculaire, tels que  $\text{HD}^+$  et  $\text{H}_2^+$ . Cette méthode, connue sous le nom de REMPD (*Resonance Enhanced Multiphoton Dissociation*), permet de sonder ces ions de manière sélective. En particulier, la spectroscopie REMPD vise à détecter la transition  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  en dissociant de manière sélective les ions  $\text{H}_2^+$  présents dans l'état  $v = 1, L = 2$  en ions  $\text{H}^+$  (protons) et atomes H en utilisant un laser impulsionnel à 213 nm. Le signal de spectroscopie est alors une perte d'ions  $\text{H}_2^+$  en fonction de la fréquence du laser de spectroscopie.

Le laser de dissociation à 213 nm est un laser commercial fourni par Xiton Photonics (Modèle Impress 213). Il est composé d'un laser Nd :YVO4 à 1064 nm pulsé et quintuplé en fréquence, qui est pompé par une diode laser et est fourni dans un ensemble compact. Il produit jusqu'à 170 mW de puissance en sortie à une fréquence de répétition de 12,5 kHz.

La photo-dissociation d'ions  $\text{H}_2^+$  à 213 nm a été étudiée dans la thèse de N.Silitoe [49]. Il y a démontré qu'une application du laser de dissociation pendant 2 secondes entraîne une dissociation de 74% des ions  $\text{H}_2^+$  dans l'état  $v=1$ , tandis que seuls 2% des ions dans l'état  $v=0$  sont dissociés, soulignant la très bonne sélectivité du processus de dissociation.

## 2.4 Refroidissement d'ions $\text{H}_2^+/\text{Be}^+$

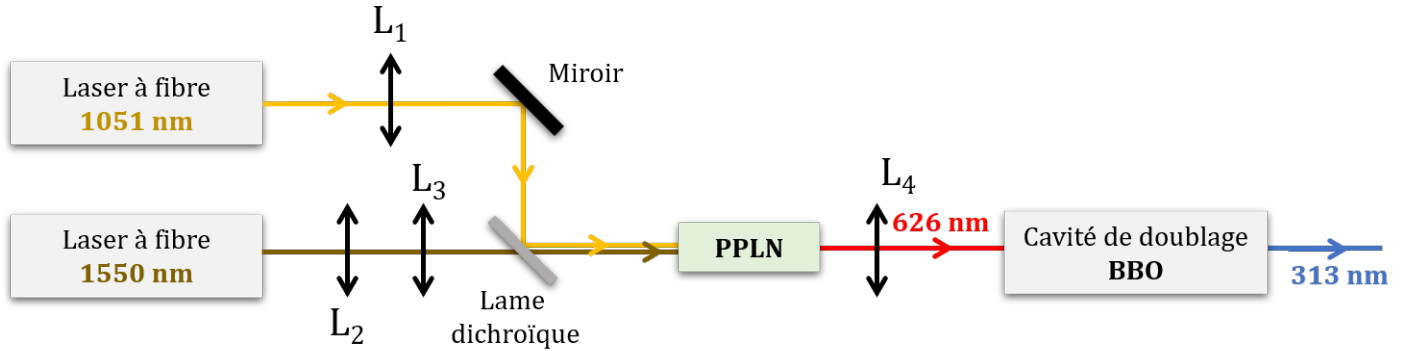


FIGURE 2.5 – Génération d'un faisceau laser à 313 nm pour refroidir sympathiquement les ions  $\text{Be}^+$ .  $L_1, L_2, L_3, L_4$  : lentilles.

Comme nous l'avons évoqué en introduction, le refroidissement des ions  $\text{H}_2^+$  piégés est indispensable. Étant donnée que les ions  $\text{H}_2^+$  ne peuvent pas être refroidis directement par un laser, nous utilisons le refroidissement sympathique par les ions  $\text{Be}^+$ . Les ions  $\text{Be}^+$  sont eux-mêmes refroidis par un laser à 313 nm via le refroidissement Doppler [50]. La source à 313 nm consiste à doubler en fréquence une source laser à 626 nm. Le faisceau à 626 nm est généré à partir du processus de somme de fréquence de deux lasers à fibre à 1050 nm et 1550 nm dans un cristal non-linéaire de PPLN (*Periodically Poled Lithium Niobate*) contrôlé en température. A la sortie du cristal, on obtient jusqu'à 1,8 W à 626 nm à partir de 4 W à 1550 nm et 4 W à 1050 nm à l'entrée du PPLN, soit une efficacité de conversion de  $11,3 \cdot 10^{-2} \text{W/W}^2$ . Ce laser a été construit par A. Douillet.

Enfin, le faisceau à 313 nm est généré en doublant la fréquence de la source à 626 nm dans un cristal non-linéaire de BBO (Bêta-Borate de Baryum) placé dans une cavité de surtension, conçue par F.M.J. Cozijn et al. à Amsterdam, similaire à celles

utilisées dans [51, 52]. A la sortie de cette cavité, on dispose jusqu'à 26 mW à 313 nm à partir de 380 mW de 626 nm, soit une efficacité de conversion de  $6,8 \cdot 10^{-2} \text{W/W}^2$  du système (BBO dans la cavité). En pratique, on fait fonctionner le laser pour obtenir quelque mW à 313 nm.

## 2.5 L'enceinte à vide

La manipulation des ions piégés s'effectue dans une enceinte à vide comme illustré dans la figure 2.6. Étant donné que le nombre d'ions qu'on veut manipuler est très faible, l'enceinte doit être maintenue en ultravide, avec une pression inférieure à  $10^{-10}$  mbar, afin de minimiser les collisions avec les le gaz résiduel, essentiellement d' $\text{H}_2$ , et ainsi de réduire les pertes d'ions dues aux réactions  $\text{H}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_3^+ + \text{H}$  ou  $\text{Be}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{BeH}^+ + \text{H}$ .

L'enceinte est conçue en titane en raison de ses propriétés amagnétiques et présente une forme cylindrique. Le diamètre de l'enceinte est choisi de manière à permettre l'installation d'une cavité Fabry-Pérot nécessaire à la spectroscopie à deux photons contrapropageants des ions  $\text{H}_2^+$ . L'enceinte est équipée de fenêtres conçues pour per-

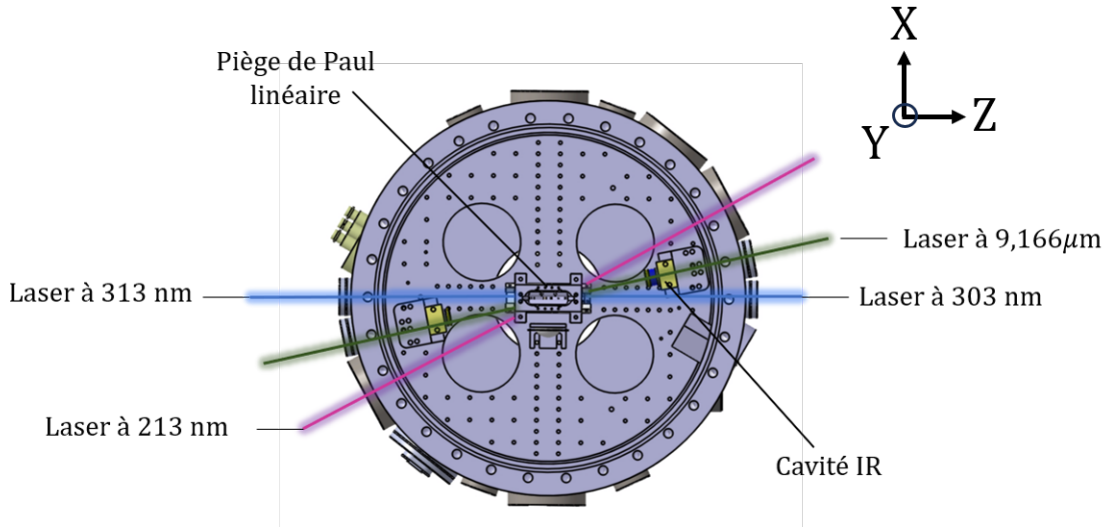


FIGURE 2.6 – L'enceinte à vide.

mettre le passage des différents lasers que nous avons présentés précédemment. Il y a deux fenêtres CF16 alignées avec l'axe du piège (l'axe  $\mathbf{Z}$ ) pour l'injection des faisceaux laser de refroidissement à 313 nm et de photo-ionisation à 303 nm. Deux autres fenêtres CF16 sont positionnées de manière à former un angle de  $11,5^\circ$  par rapport à l'axe du piège, destinées à l'injection du laser de spectroscopie à  $9,166 \mu$ . De plus, deux fenêtres CF40 sont utilisées pour le laser de photodissociation à 213 nm, placées dans l'axe faisant un angle de  $28,5^\circ$  avec l'axe du piège. Une fenêtre est placée le long de l'axe

**X** pour la mesure de la fluorescence des ions  $\text{Be}^+$ , tandis qu'une fenêtre positionnée le long de l'axe vertical **Y** pour observer les cristaux de coulomb à l'aide d'une caméra EMCCD de la marque Andor (modèle Ixon 888) (voir section 2.6). Toutes les fenêtres sont traitées avec des revêtements antireflets afin de minimiser les pertes par réflexion. Afin de garantir un environnement ultravide avec une pression inférieure à  $10^{-10}$  mbar, une série d'étape est suivie dans le traitement de l'enceinte. Cela comprend un traitement électrochimique pour obtenir un état de surface peu rugueux, un nettoyage des composants à l'éthanol et à l'acétone, suivi d'une période d'étuvage à  $120^\circ$  pendant quelques jours pour éliminer les molécules d'eau absorbées. Le pompage est effectué avec une pompe turbomoléculaire allumée durant la phase d'étuvage puis isolée par une vanne tout métal, une pompe ionique, une pompe à sublimation de titane ainsi qu'une pompe getter. La pression atteinte est  $6.10^{-12}$  mbar d'après la mesure de la pompe ionique.

## 2.6 Détection des ions

La détection des ions représente une étape cruciale au sein de toute expérience impliquant des ions piégés. Deux méthodes distinctes sont mises en place pour confirmer la présence des ions dans le piège et ainsi le bon fonctionnement de la création et du piégeage des ions. La première méthode repose sur l'imagerie et implique l'utilisation d'une caméra EMCCD (*Electron Multiplying Charge-Coupled Device*) pour la détection de la fluorescence émise par les ions  $\text{Be}^+$ . En outre, lorsque ces ions forment un cristal de Coulomb, il devient possible de détecter d'autres espèces ioniques dans le piège. La deuxième méthode utilise le principe de l'excitation séculaire et de la perturbation induite sur la fluorescence globale du nuage.

### 2.6.1 Système d'imagerie

La figure 2.7 montre le système d'imagerie utilisé. Une caméra EMCCD (*Electron Multiplying Charge-Coupled Device*) de la marque Andor, modèle Ixon 888, a été positionnée verticalement au-dessus du piège. Son rôle est de détecter les photons émis à 313 nm par les ions  $\text{Be}^+$  pendant le processus de refroidissement. Cette caméra présente une dimension de  $13\mu\text{m} \times 13\mu\text{m}$  et une résolution de  $1024 \times 1024$  pixels. De plus, elle est équipée d'un module Peltier intégré pour refroidir le capteur, réduisant ainsi le courant d'obscurité et améliorant le signal. Sa température de fonctionnement minimale peut atteindre  $-80^\circ$ . Étant donné la faible efficacité du capteur CCD à 313 nm, le capteur est revêtu d'un matériau qui absorbe les photons UV et qui émet à une longueur d'onde différente, augmentant ainsi l'efficacité à 30%. Pour minimiser la lumière parasite et permettre un travail en lumière du jour, un filtre optique passe bande (modèle FGUV11) centré à 313 nm, avec une transmission de 80%, est monté sur la caméra.

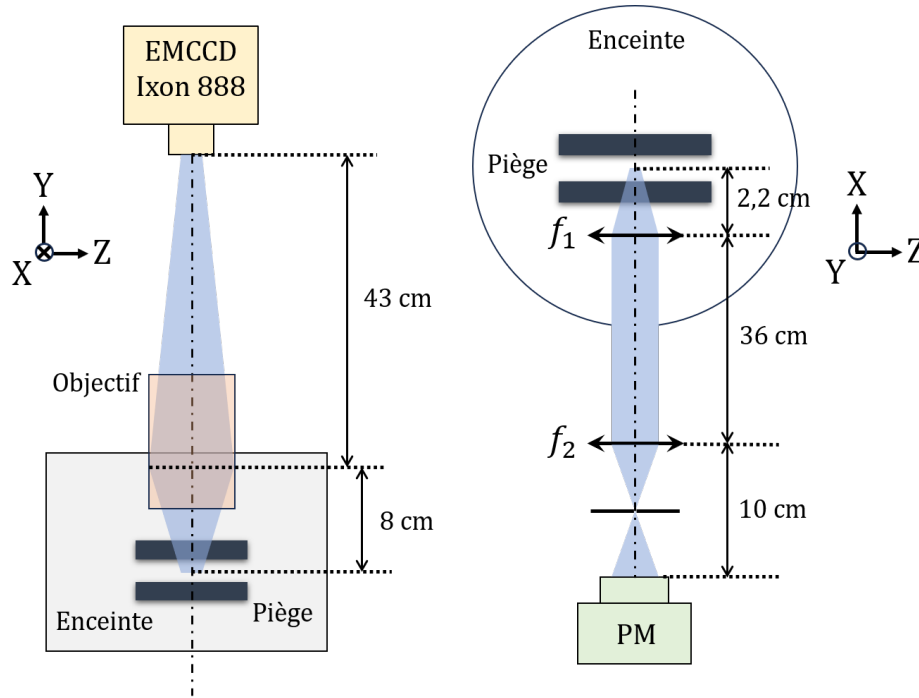


FIGURE 2.7 – A droite : Observation par le dessus de l’enceinte avec un objectif. A gauche : Détection de la fluorescence par un photo-multiplicateur.  $f_1, f_2$  : lentilles.

L’image des ions est obtenue à l’aide d’un objectif de la marque Sill de 70 mm de focale et d’une ouverture de 1,6. Cet objectif est doté d’un traitement anti-reflet spécifique pour 313 nm. Il est positionné dans une fenêtre ré-entrante située au-dessus du piège, le plus près possible des ions. Le grandissement de ce système d’imagerie a été estimée à 9,7 [48].

## 2.6.2 Excitation séculaire

La détection de la présence des espèces ioniques dans le piège peut également être réalisée à travers la méthode d’excitation séculaire en utilisant la fluorescence des ions  $\text{Be}^+$ . Comme expliqué précédemment, le potentiel de piégeage, dans l’approximation adiabatique, peut être exprimé sous la forme d’un potentiel harmonique dans les trois directions de l’espace, avec les fréquences séculaires  $\omega_x$ ,  $\omega_y$  et  $\omega_z$ , telles que définies dans les équations 2.24, 2.25 et 2.26. Ces fréquences séculaires dépendent de la quantité  $q/m$  de l’ion piégé. Les ions de masse  $m$  peuvent être excités en appliquant, sur une électrode centre du piège, une tension alternative à la fréquence séculaire  $\omega_x(m)$  (ou  $\omega_y(m)$ ). Dans notre cas, on excite soit les ions  $\text{Be}^+$  eux-mêmes, soit une autre espèce d’ions qui excitent à leur tour les ions  $\text{Be}^+$  via l’interaction coulombienne. L’excitation de ces ions engendre un changement au niveau de la fluorescence des ions  $\text{Be}^+$  piégés. La fluorescence est enregistrée par un photo-multiplicateur comme montré dans la fi-



gure 2.7, avec une efficacité de collection des photons d'environ 2%. En mesurant la fluorescence en fonction de la fréquence de l'excitation, on peut observer des pics aux fréquences  $\omega_x(m)$  indiquant la présence d'ion de masse  $m$ .

### 2.6.3 Cristal de Coulomb

La séquence expérimentale visant à créer des ions  $\text{H}_2^+$  pour la spectroscopie RMPD, commence par la création d'un cristal de Coulomb composé d'un certain nombre d'ions  $\text{Be}^+$ . Cette procédure implique l'application de tensions au piège permettant de se placer dans la zone de stabilité du  $\text{Be}^+$ , puis l'activation du four à Béryllium ainsi que du laser à 303 nm, pendant durée de 30 s, pour ioniser les atomes Be.

Lors de la création des ions  $\text{Be}^+$ , le faisceau laser de refroidissement à 313 nm est injecté. Au début du processus de chargement, ce laser est délibérément très désaccordé afin de refroidir les ions  $\text{Be}^+$  les plus énergétiques, c'est à dire les plus chauds. A la fin de la phase de chargement, la fréquence du laser est ajustée pour se rapprocher de la fréquence de transition des ions  $\text{Be}^+$ , permettant ainsi de refroidir l'ensemble des classes de vitesses des ions.

Afin de purifier le nuage d'ions  $\text{Be}^+$  créés, qui peut contenir des espèces ioniques de masse  $m > 9$  amu non pertinentes pour notre expérience, nous nous déplaçons dans le diagramme de stabilité du piège. En ajustant les tensions  $U_0$  et  $V_0$ , nous positionnons le système dans une zone du diagramme où les paramètres  $a_u(m)$  et  $q_u(m)$  correspondent à une trajectoire instable pour cette espèce ionique, qui est ensuite éjectée du piège.

Finalement, les ions  $\text{H}_2^+$  créés par l'ionisation d'un jet moléculaire d' $\text{H}_2$  par le laser de REMPI à 303 nm, sont injectés dans le nuage.

La figure 2.8 illustre une image d'un nuage d'ions  $\text{H}_2^+$  dans l'état vibrationnel ( $v =$

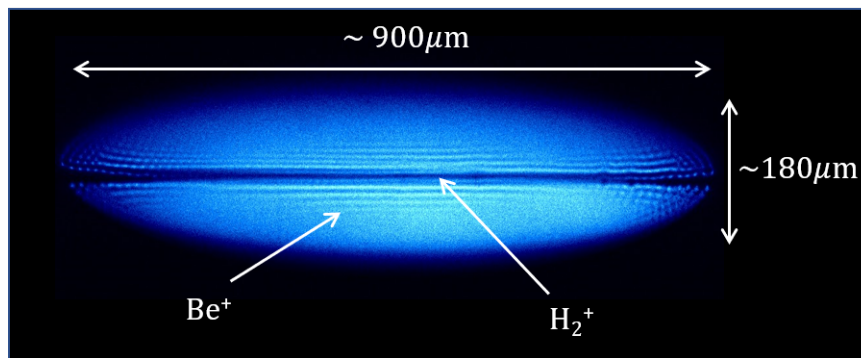


FIGURE 2.8 – Cristal de Coulomb composé d'environ  $2500 \pm 500$  ions  $\text{Be}^+$  et  $80 \pm 20$  ions  $\text{H}_2^+$  (image en fausses couleurs).

$0, L = 2$ ) et  $\text{Be}^+$  piégés et refroidis. Cette image a été capturée par la caméra EMCCD du système d'imagerie illustré dans la figure 2.7. Elle montre un cristal de Coulomb composé d'environ  $2500 \pm 500$  ions  $\text{Be}^+$  qui fluorescent (indiqué en bleu sur l'image de

fausses couleurs), et d'environ  $80 \pm 20$  ions  $H_2^+$ , qui contrairement aux précédents, ne fluorescent pas et qui sont confinés dans la ligne centrale du cristal.

## 2.7 Couplage entre le nuage d'ion et la cavité de haute finesse

### 2.7.1 Le problème

La spectroscopie de l'ion  $H_2^+$  s'effectue dans une cavité Fabry-Pérot de haute finesse installée dans l'enceinte à vide comme montré dans la figure 2.9. Le laser de spectroscopie à  $9,166 \mu\text{m}$ , à savoir le laser à cascade quantique, est couplé avec le mode longitudinal  $TEM_{00}$  de la cavité. La position du waist est alors fixée par les positions des miroirs de la cavité. Les paramètres de la cavité sont choisis de façon à ce que le waist, situé au centre de la cavité, soit égal à  $w_0 = 300 \mu\text{m}$ , une taille plus grande que la taille transverse du nuage d'ions ( $\sim 160 \mu\text{m}$ ).

La position du mode du laser de spectroscopie est déterminée par la position des miroirs et ne peut pas être ajustée. Pour cela, le piège est monté sur un système de deux translations sous vide, et pilotables suivant  $X$  et  $Y$ . La problématique consiste à trouver un indicateur nous permettant de s'assurer d'avoir le maximum de recouvrement entre le faisceau de spectroscopie et le nuage d'ions.

### 2.7.2 Optimisation par la géométrie

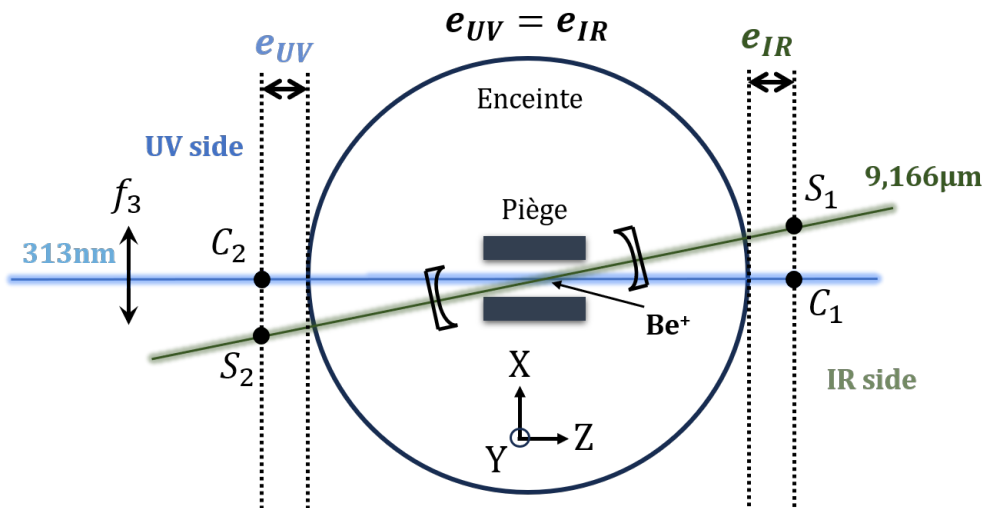


FIGURE 2.9 – Optimisation du recouvrement entre le nuage d'ions et le mode de la cavité de haute finesse.

Pour aligner le faisceau de spectroscopie sur le nuage d'ions piégés, le faisceau de refroidissement à  $313 \text{ nm}$  est utilisé comme un indicateur de position du nuage d'ions

piégés. La procédure d'alignement débute par l'optimisation de la position du faisceau de refroidissement en maximisant la fluorescence mesurée par le photo-multiplicateur à l'aide d'une lentille  $f_3$  placée dans le chemin du faisceau comme montré dans la figure 2.9. Ensuite, pour estimer les positions des centres des faisceaux de refroidissement et de spectroscopie, nous utilisons un système de lames à mouvement corrélé pour mesurer les coordonnées  $\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}$  des points  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $S_1$  et  $S_2$ . Ces mesures permettent de calculer le barycentre des deux faisceaux, fournissant ainsi une estimation de la distance entre le centre du piège et la position du waist du faisceau de spectroscopie et permettant de savoir de combien il faut déplacer le piège. Après avoir répété plusieurs fois cette procédure d'optimisation, nous arrivons à un cas où le piège, et alors le faisceau de refroidissement, sont positionnés de façon à ce que les coordonnées, en mm, des points sont les suivantes :

$$C_1 \begin{pmatrix} 6,27 \\ 19,44 \end{pmatrix}, \quad C_2 \begin{pmatrix} 21,53 \\ 17,42 \end{pmatrix}, \quad S_1 \begin{pmatrix} 22,26 \\ 15,06 \end{pmatrix}_{\text{fixe}}, \quad S_2 \begin{pmatrix} 5,58 \\ 21,77 \end{pmatrix}_{\text{fixe}},$$

Les barycentres de  $C_1$  et  $C_2$  (noté  $C$ ) et de  $S_1$  et  $S_2$  (noté  $S$ ) ont une position relative donnée par

$$\mathbf{CS} = \frac{\mathbf{C}_1\mathbf{S}_1 + \mathbf{C}_2\mathbf{S}_2}{2} = \begin{pmatrix} 0,02 \\ 0,015 \end{pmatrix}. \quad (2.28)$$

La distance entre  $C$  et  $S$  est  $\sqrt{0,02^2 + 0,015^2} = 25 \mu\text{m}$ . Elle indique qu'il existe un recouvrement, compte tenu de la taille du nuage d'ions et du waist du faisceau de spectroscopie.

### 2.7.3 Vérification de l'alignement

Pour évaluer et confirmer l'alignement, une méthode consiste à exploiter le light shift généré par le faisceau de spectroscopie à  $9,166 \mu\text{m}$  sur les niveaux d'énergie des ions  $\text{Be}^+$ . Ce light shift induit peut être observé à travers la fluorescence des ions  $\text{Be}^+$  résultant du processus de refroidissement Doppler par le laser à  $313 \text{ nm}$ . Lorsqu'une modulation est appliquée à la longueur de la cavité, cela engendre une modulation du light shift, créant ainsi une variation similaire dans la fluorescence émise par les ions. Finalement, l'utilisation de la méthode de détection synchrone peut permettre alors de détecter ce light shift.

#### 2.7.3.1 Théorie du light shift

Le light shift, effet induit par l'interaction d'un faisceau laser avec un atome ou un ion, joue un rôle crucial dans de nombreuses applications de la physique atomique. Lorsque l'ion  $\text{Be}^+$  est soumis à l'action d'un faisceau laser, cet effet modifie les niveaux

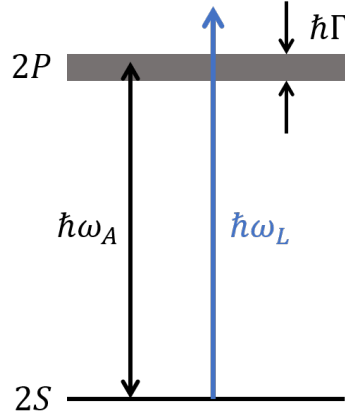


FIGURE 2.10 – Modélisation de la transition entre les états  $2S$  et  $2P$  impliquée dans le processus de refroidissement Doppler.  $\omega_A/2\pi$  : fréquence de résonance,  $\omega_L/2\pi$  : fréquence du laser de refroidissement à 313 nm.

d'énergie atomique, créant ainsi un déplacement de ces niveaux. Ce déplacement est donné par

$$\Delta E = -\frac{1}{2}\alpha\frac{I}{c}. \quad (2.29)$$

Dans cette équation,  $\Delta E$  représente l'énergie du light shift,  $\alpha$  correspond à la polarisabilité des niveaux d'énergie,  $c$  est la vitesse de la lumière et  $I$  est l'intensité du champ électrique du faisceau laser.

Pour la transition entre les niveaux  $2S$  et  $2P$  de l'ion  $\text{Be}^+$ , comme montré dans la figure 2.10, impliquées dans le processus de refroidissement Doppler, l'énergie du light shift est alors donnée par

$$\Delta E_{2S-2P} = -\frac{1}{2}(\alpha_{2P} - \alpha_{2S})\frac{I}{c}, \quad (2.30)$$

où  $\alpha_{2S}$  et  $\alpha_{2P}$  sont respectivement les polarisabilités des niveaux  $2S$  et  $2P$ . Il faut noter que le niveau  $2P$  est subdivisé en trois états magnétiques distincts,  $M = 0$  et  $M = \pm 1$ . Chacun de ces niveaux magnétiques possède sa propre polarisabilité qui est donné par

$$\alpha_{2P} = \begin{cases} \alpha_1 + \alpha_1^T & \text{si } M = 0 \\ \alpha_1 - 2\alpha_1^T & \text{si } M = \pm 1, \end{cases}$$

où les valeurs des polarisabilités  $\alpha_1$  et  $\alpha_1^T$ , en fonction de la fréquence du faisceau laser, ont été calculées dans l'article [86]. A  $9,166 \mu\text{m}$  ( $\sim 32,7 \text{ THz}$ ),  $\alpha_1 = 2,01 \text{ u.a}$  et  $\alpha_1^T = 5,87 \text{ u.a}$ . La polarisabilité du niveau  $2P$  est alors égale à  $7,88 \text{ u.a}$  pour  $M=0$  et  $-9,73 \text{ u.a}$  pour  $M = \pm 1$ . La polarisabilité du niveau  $2S$  est égale à  $\alpha_{2S} = 24,55 \text{ u.a}$ . Ici,  $\text{u.a}$  est en  $4\pi a_0^3$ , où  $a_0 = 5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m}$  est le rayon de Bohr.

Le décalage en fréquence  $\Delta\nu_{2S-2P} = \Delta E_{2S-2P}/h$ , où  $h = 6,63 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$  est la constante

de Planck, est donné dans SI par

$$\Delta\nu_{2S-2P} = -\frac{1}{2} \left( 4\pi a_0^3 \alpha_{2S-2P}(M) \right) \frac{I}{hc}, \quad (2.31)$$

où  $\alpha_{2S-2P} = \alpha_{2P}(M) - \alpha_{2S}$  est égale à -16,67 u.a pour  $M = 0$  et -34,28 u.a pour  $M = \pm 1$ .

Lorsqu'on couple une puissance de 17,5 mW dans la cavité, prenant en considération sa surtension  $S=160$ , la puissance intracavité résultante est alors évaluée à  $P_{intr}=2,7$  W. Cette puissance, focalisée sur un waist de  $w=300$   $\mu\text{m}$ , correspond à une intensité lumineuse calculée selon la formule  $I = 2P_{intr}/(\pi w^2)$ , de 3,5 W/mm<sup>2</sup>. Par conséquent, le décalage en fréquence  $\Delta\nu_{2S-2P}$ , induit par le light shift, est égal à environ 1,55 kHz pour  $M = 0$  et 3,2 kHz pour  $M = \pm 1$ .

Pour évaluer notre capacité à détecter ce light shift sur la fluorescence des ions Be<sup>+</sup>, nous procédons à une démarche consistant à moduler la fréquence du faisceau de refroidissement à 313 nm. Cette modulation vise à estimer la sensibilité de la fluorescence résultante par rapport à ce light shift.

### 2.7.3.2 Théorie du signal de fluorescence

Le profil du taux de fluorescence d'un atome, dans le modèle des atomes à deux niveaux comme montré dans la figure 2.10 refroidi par un laser de fréquence  $\omega_L/2\pi$  est donnée par [85]

$$F = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{s + 1} \quad (2.32)$$

avec

$$s = \frac{\Omega_R^2/2}{\delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2.33)$$

le paramètre de saturation.  $\delta = \omega_L/2\pi - \omega_A/2\pi$  est le désaccord entre la fréquence du laser de refroidissement et l'écart en fréquence entre les niveaux  $2S$  et  $2P$  de l'ion Be<sup>+</sup>,  $\Gamma$  est la largeur du niveau excité  $2P$  et  $\Omega_R$  est la fréquence de Rabi donné par

$$\Omega_R^2 = \Gamma^2 \frac{I}{2I_{sat}}, \quad (2.34)$$

où  $I$  est l'intensité du laser,  $I_{sat} = \frac{\hbar\Gamma\omega_A^3}{12\pi c^2}$ , où  $\omega_A/2\pi$  est la fréquence de résonance, est l'intensité de saturation. Pour l'ion Be<sup>+</sup>,  $\Gamma \simeq 19,4$  MHz et la longueur d'onde de résonance  $\lambda_A \simeq 313$  nm, dans ce cas  $I_{sat}$  est de l'ordre de 0,85 mW/mm<sup>2</sup>. En combinant les équations (2.33) et (2.32), le profil du taux de fluorescence est alors donné par

$$F(\delta) = \frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega_R^2/2}{\delta^2 + \Gamma_{eff}^2} \quad (2.35)$$

avec  $\Gamma_{eff}^2 = \frac{\Gamma^2}{4} + \frac{\Omega_R^2}{2}$ . L'énergie thermique de l'ion  $E_{lim} = k_b T$  est reliée au désaccord  $\delta$  par [88]

$$E_{lim}(\delta, I) = \hbar \frac{(4\delta^2 + \Gamma^2(1 + \frac{I}{I_{sat}}))}{16|\delta|}. \quad (2.36)$$

La température limite est atteinte lorsque l'intensité du laser est nulle et le désaccord  $\delta$  égal à  $\Gamma/2$ . Elle vaut  $T_{lim} \simeq 0,47$  mK.

Pour une température donnée, la distribution des probabilités des vitesses est donnée par une gaussienne :

$$G_v(v, T) = N e^{-\frac{1}{2} \frac{mv^2}{k_b T}}, \quad (2.37)$$

où  $N$  est le facteur de normalisation de la distribution. Si l'atome est en mouvement à vitesse  $\mathbf{v}$ , le décalage par effet Doppler de la fréquence de résonance s'écrit sous la forme :

$$\delta\nu = \frac{\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v}}{2\pi}, \quad (2.38)$$

où  $\mathbf{k}_L$  est le vecteur d'onde du laser. L'expression (2.35) reste valable pourvu qu'on remplace le désaccord  $\delta$  par  $\delta - \delta\nu$ . La distribution (2.37) peut s'exprimer aussi en terme de fréquence par

$$G(\delta\nu) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\delta\nu)^2}{2\sigma^2}} \quad (2.39)$$

avec  $\sigma = \sqrt{\frac{k_b T}{m\lambda^2}}$ . Finalement, le taux de fluorescence de l'ion  $\text{Be}^+$  peut être calculée en moyennant l'expression (2.35) sur toute la distribution  $G(\delta\nu)$ . L'expression du taux de fluorescence devient

$$F(\delta) = \int F(\delta - \delta\nu) G(\delta\nu) d(\delta\nu). \quad (2.40)$$

Cette expression peut se voir aussi comme produit de convolution entre une lorentzienne  $F(\delta)$  et une gaussienne  $G(\delta)$ ,  $(F \otimes G)(\delta)$ . Ce produit correspond au profil de Voigt donné, en normalisant l'expression (2.35), par

$$V(\delta, \Gamma_{eff}, \sigma) = \frac{Re[w(t)]}{\sigma\sqrt{2\pi}}, \quad (2.41)$$

avec  $Re[w(t)]$  est la partie réelle de la fonction de Faddeeva donné par

$$w(t) = e^{-t^2} \text{erfc}(-it), \quad (2.42)$$

où  $\text{erfc}$  est la fonction erreur et  $t = \frac{\delta + i\Gamma_{eff}}{\sigma\sqrt{2}}$ . Le profil du taux fluorescence s'écrit alors

$$\begin{aligned} F(\delta, \Gamma_{eff}, \sigma) &= \frac{\pi\Gamma\Omega_R^2}{4\Gamma_{eff}} V(\delta, \Gamma_{eff}, \sigma) \\ &= \frac{\pi\Gamma^2}{4} \frac{I/I_{sat}}{\sqrt{1 + I/I_{sat}}} V(\delta, \Gamma_{eff}, \sigma). \end{aligned} \quad (2.43)$$

En mettant le désaccord  $\delta$ , l'écart type  $\sigma$  et  $\Gamma_{eff}$  en unité de  $\Gamma$  et l'intensité  $I$  en unité de  $I_{sat}$ , l'équation (2.43) devient :

$$F(x, y, z) = \frac{\pi\Gamma}{4} \frac{w}{\sqrt{1+w}} V(x, y, z), \quad (2.44)$$

où  $x = \delta/\Gamma$ ,  $y = \Gamma_{eff}/\Gamma$ ,  $z = \sigma/\Gamma$  et  $w = I/I_{sat}$ . La figure 2.11 montre l'évolution

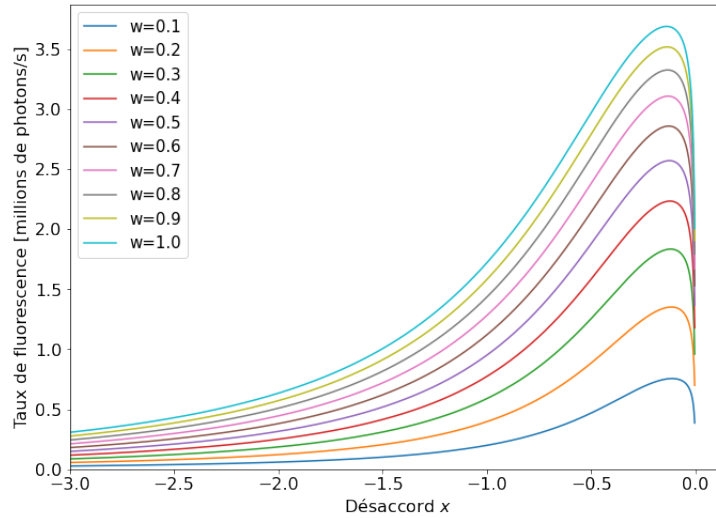


FIGURE 2.11 – Variation du taux de fluorescence en fonction du désaccord  $x$  en unité de  $\Gamma$ , tracée pour plusieurs valeurs de  $w$  qui est l'intensité du laser en unité de  $I_{sat}$ .

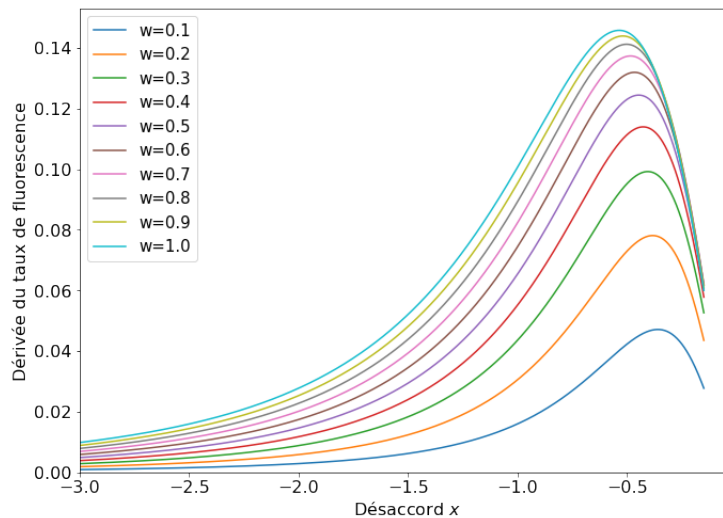


FIGURE 2.12 – Variation de la dérivée du taux de fluorescence en fonction du désaccord  $x$  en unité de  $\Gamma$ , tracée pour plusieurs valeurs de  $w$  qui est l'intensité du laser en unité de  $I_{sat}$ .

du taux de fluorescence en fonction du désaccord  $x$ , tracée pour plusieurs valeurs de

l'intensité  $w$ .

Expérimentalement, le light shift de l'ion  $\text{Be}^+$  est détecté à l'aide d'une détection synchrone configurée pour détecter l'harmonique d'ordre 1 de la fluorescence. Nous nous intéressons alors à la dérivée première de l'expression 2.43. Elle est donné par

$$\frac{\partial F}{\partial \delta} = \frac{\pi \Gamma^2}{4} \frac{I/I_{sat}}{\sqrt{1 + I/I_{sat}}} \left( -\frac{\delta}{\sigma^2} \frac{\text{Re}[w(t)]}{\sigma \sqrt{2\pi}} + \frac{\Gamma}{\sigma^2} \frac{\text{Im}[w(t)]}{\sigma \sqrt{2\pi}} \right). \quad (2.45)$$

En unité de  $\Gamma$ , cette dérivée devient

$$F'(x, y, z) = \frac{\pi}{4} \frac{y}{\sqrt{1 + y}} \left( -\frac{x}{z^2} \frac{\text{Re}[w(z)]}{z \sqrt{2\pi}} + \frac{y}{z^2} \frac{\text{Re}[w(z)]}{z \sqrt{2\pi}} \right). \quad (2.46)$$

La figure 2.12 montre l'évolution de la dérivée du taux de fluorescence en fonction du désaccord  $x$ . Elle montre que, pour chaque valeur de  $w$ , il existe un optimum. En pratique, nous nous mettons à l'optimum expérimental pour avoir le maximum de sensibilité lorsque la fréquence du laser de refroidissement est modulée.

### 2.7.3.3 Expérience

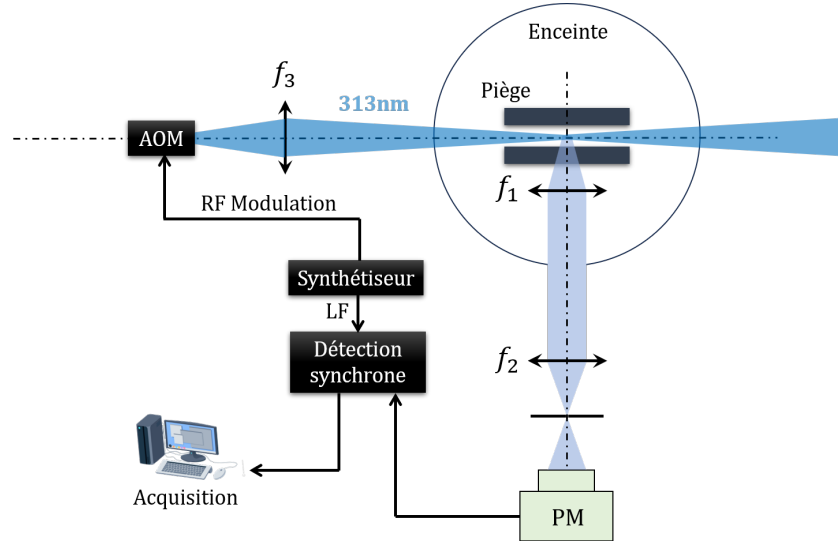


FIGURE 2.13 – Dispositif expérimental pour évaluer la sensibilité de la fluorescence à la fréquence du laser de refroidissement. PM : photo-multiplicateur, AOM : modulateur acousto-optique.

La figure 2.13 montre le schéma expérimental permettant de quantifier la variation de la fluorescence en réponse aux changements de la fréquence du laser de refroidissement à 313 nm. Cette variation de fluorescence étant minime, nous avons mis en place un système de détection synchrone. Pour cela, nous utilisons un modulateur acousto-optique, déjà intégré dans le chemin du faisceau de refroidissement, fonctionnant à la



fréquence de 312 MHz, pour moduler la fréquence du faisceau de refroidissement à l'aide d'un signal radio-fréquence généré par un synthétiseur. Pour comprendre l'utilité du modulateur acousto-optique dans le refroidissement des ions  $\text{Be}^+$ , il faut se référer à la thèse de T.Louvradox [48].

Le signal de fluorescence collecté par le photo-multiplicateur, résultant de l'interaction entre le faisceau de refroidissement et les ions  $\text{Be}^+$ , est ensuite envoyé vers la détection synchrone. Cette dernière est configurée pour détecter le signal de fluorescence à sa première harmonique et en phase avec la modulation.

Nous avons réglé la puissance du faisceau de refroidissement à  $P_{313}=0,57$  mW et la

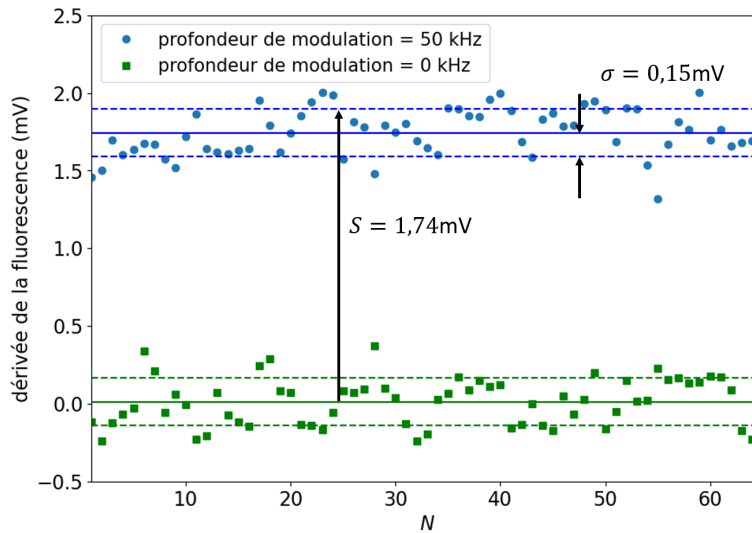


FIGURE 2.14 – Enregistrement de 64 points du signal de sortie de la détection synchrone pour deux valeurs de la profondeur de modulation, 0 (carrés) et 50 kHz (ronds).

fréquence de modulation à 308 Hz et à un désaccord qui maximise le signal de sortie de la détection synchrone. Dans cette configuration, nous procédons à des mesures à deux profondeurs de modulation distinctes. Dans un premier temps, à une profondeur de modulation de 0 kHz, une série d'enregistrements comprenant 64 points a été réalisée comme montré dans la figure 2.14. La constante de temps de la détection synchrone est réglée à 1s.

À cette profondeur de modulation minimale, le signal obtenu présente des fluctuations autour de 0 mV avec un écart-type  $\sigma=0,15$  mV. En augmentant la profondeur de modulation à 50 kHz, le signal continue à afficher des fluctuations similaires, avec un écart-type identique et une moyenne  $S=1,74$  mV. Le rapport signal à bruit (SNR), défini comme  $S/\sigma$ , est calculé à 11,6 dans cette configuration.

Cette valeur du SNR nous permet de déduire une limite de détection ( $\text{SNR}_{lim}=1$ ) d'environ 4 kHz (en pic à pic), correspondant à 2 kHz en amplitude, calculée en divisant la profondeur de modulation par le SNR. Cette limite de résolution en désaccord correspond à un dix-millième de la largeur naturelle de la raie de  $\text{Be}^+$ .

### 2.7.4 Conclusion

La proximité entre la limite de résolution sur la fluorescence et le light shift théorique induit par le faisceau de spectroscopie (1,55 kHz) montre la possibilité de détecter ce light shift.

Il est possible d'améliorer la limite de résolution en augmentant la constante de temps de la détection synchrone ( $\sigma$  diminue comme  $1/\sqrt{\tau}$ ).

Nous avons vu précédemment que le light shift est proportionnel à l'intensité du laser. En envisageant une puissance de 200 mW couplée dans la cavité, cela pourrait engendrer un light shift d'environ 17,7 kHz, dépassant ainsi la limite de détection. Envisager l'utilisation d'un puissant laser à  $\text{CO}_2$ , dont nous disposons, pourrait aussi représenter une solution prometteuse pour vérifier le bon alignement du piège sur le mode du laser de spectroscopie.



# Chapitre 3

## Source laser à 9,166 $\mu\text{m}$ pour la spectroscopie d'ion $\text{H}_2^+$

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>48</b>
<b>3.2</b>	<b>Sources laser à 9,166 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>48</b>
3.2.1	Laser à $\text{CO}_2$	48
3.2.2	Laser à cascade quantique (QCL)	50
3.2.3	Source laser pour la spectroscopie de $\text{H}_2^+$	53
<b>3.3</b>	<b>Stabilisation du laser à <math>\text{CO}_2</math> sur <math>\text{HCOOH}</math></b>	<b>53</b>
3.3.1	Instabilité d'un oscillateur et caractérisation	54
3.3.2	Absorption saturée	55
3.3.3	Stabilisation du laser à $\text{CO}_2$ sur $\text{HCOOH}$	59
<b>3.4</b>	<b>Stabilisation du QCL sur le laser à <math>\text{CO}_2</math></b>	<b>60</b>
<b>3.5</b>	<b>Performances de stabilité et limitations</b>	<b>62</b>
<b>3.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>64</b>

---

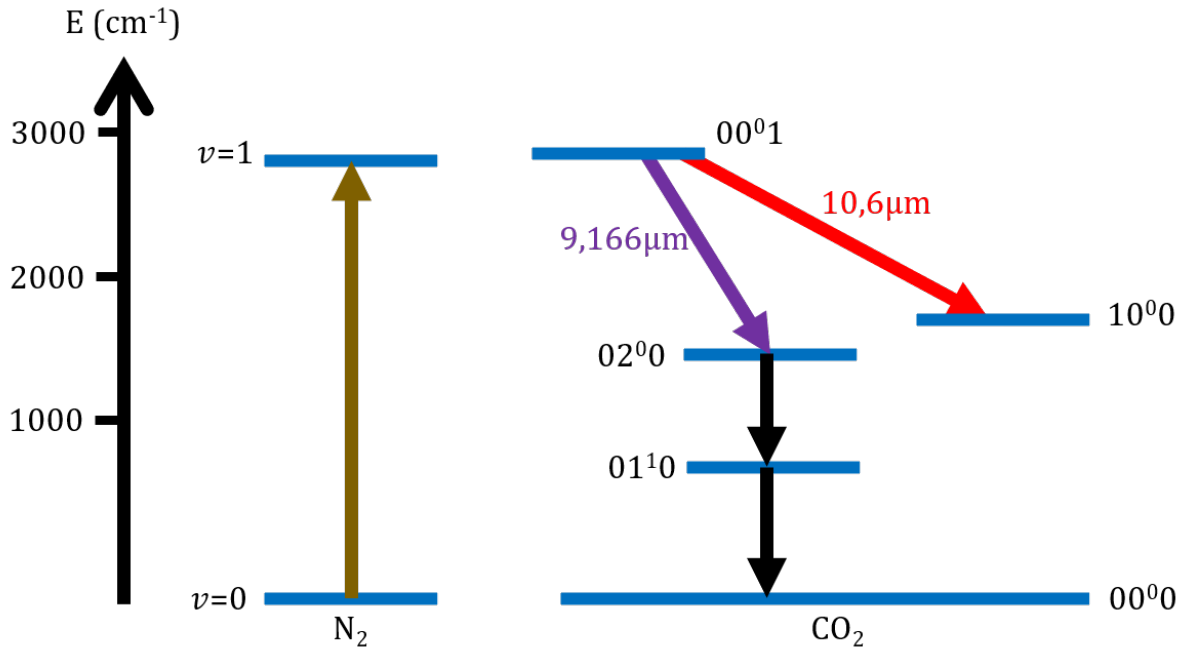
## 3.1 Introduction

Ce chapitre se concentre sur notre source laser, utilisée pour exciter la transition à deux photons. Dans un premier temps, je procède à une présentation approfondie des lasers que nous avons à notre disposition, opérant à une longueur d'onde de  $9,166\mu\text{m}$ . Ces lasers revêtent une importance particulière car ils sont directement impliqués dans l'excitation de la transition vibrationnelle à deux photons à partir de l'état fondamental de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ . Par la suite, nous présentons en détail le système qui a été précédemment mis en place, ainsi que les divers équipements utilisés pour asservir cette source laser.

## 3.2 Sources laser à $9,166\mu\text{m}$

### 3.2.1 Laser à $\text{CO}_2$

Les lasers à  $\text{CO}_2$  sont des lasers à gaz qui émettent un spectre comprenant plus de 80 raies entre 9 et 11  $\mu\text{m}$ . Il existe plusieurs méthodes de construction des lasers à  $\text{CO}_2$  qui conduisent à des caractéristiques différents. Le laser dont nous disposons utilise un pompage par décharge électrique dans un gaz à basse pression (10 à 15 Torr). Il est sous forme d'une cavité optique constitué d'un miroir ayant un coefficient de réflexion  $R_{max}$  à 9,2  $\mu\text{m}$  et un rayon de courbure de 4 m. L'autre coté de la cavité est fermé par un réseau de diffraction de 150 traits/mm blazé à 10,6  $\mu\text{m}$  et placé en position de Littrow. Ce laser peut délivrer des puissances optiques de quelques Watts sur une plage d'émission d'environ 100 MHz pour chaque raie. Le principe de fonctionnement du laser à  $\text{CO}_2$  est représenté dans la figure 3.1. Le mélange gazeux est composé de différents gaz avec les proportions suivantes : 17% de  $\text{CO}_2$ , 12,5% de  $\text{N}_2$ , 1% de  $\text{O}_2$ , 4,5% de Xe et 65% de  $\text{H}_e$ . La pression du mélange est d'environ 17 mbar (13,5 Torr). Le gaz  $\text{N}_2$  (diazote) est excité dans un état vibrationnel en appliquant une double décharge électrique générée par une alimentation haute tension à environ 7 kV et un courant de fonctionnement de 19,3 mA. Ce courant passe à travers des résistances ballast de 240 k $\Omega$  dont le rôle et de stabiliser la décharge dont la résistance dynamique est de -180 k $\Omega$ . La molécule  $\text{CO}_2$  présente trois modes de vibrations avec des fréquences propres :  $\nu_1 = 1388\text{ cm}^{-1}$ ,  $\nu_2 = 667\text{ cm}^{-1}$  et  $\nu_3 = 2349\text{ cm}^{-1}$ . Ces niveaux vibrationnels peuvent être présentés sous la forme  $(n_1, n_2^l, n_3)$  correspondant respectivement aux nombres d'excitation associés à l'étirement symétrique, la déformation et l'étirement asymétrique. L'exposant  $l$  correspond à la projection du moment cinétique associé à la déformation de la molécule sur l'axe de la molécule. Lorsqu'elle rentre en collision avec le diazote, la molécule de  $\text{CO}_2$  est excitée vers les niveaux d'énergie (001) provoquant une inversion de population. Cette inversion de population permet au laser de réaliser des transitions vers les niveaux d'énergie (100) pour émettre un rayonnement à une longueur d'onde de 10  $\mu\text{m}$ , et vers les niveaux (020) pour produire un rayonnement à 9  $\mu\text{m}$ . Les niveaux inférieurs

FIGURE 3.1 – Principe du pompage et du fonctionnement du laser à  $\text{CO}_2$  [13].

de la molécule de  $\text{CO}_2$  relaxent vers les niveaux (010) suite à des collisions avec d'autres molécules de  $\text{CO}_2$ . Ensuite, elle retourne à son état fondamental grâce aux collisions avec l'hélium. Ce dernier se thermalise ensuite avec les parois de l'enceinte de verre qui contient le mélange gazeux. Pour optimiser le gain du laser, l'enceinte est refroidie à environ  $15^\circ$  en faisant circuler de l'eau. Un travail a été fait pour optimiser la gain du laser et minimiser les pertes de la cavité laser en ajustant la composition et la pression du gaz, la longueur d'onde de blaze du réseau, le coefficient de réflexion du miroir et la température de l'eau pour faire osciller le laser à  $\text{CO}_2$  sur des raies de J élevés surtout la 9R(42) puisque la fréquence de son centre est la plus proche de l'une des raies de la molécule  $\text{H}_2^+$  correspondante à la transition  $(L = 2, v = 0) \rightarrow (L = 2, v = 1)$  comme montré dans le tableau 3.1. La puissance dont nous disposons sur la raie 9R(42) est d'environ 1 W. La largeur de raie du laser à  $\text{CO}_2$  en fonctionnement libre est d'environ 3 kHz [13].

Comme nous l'avons vu, l'accordabilité intrinsèque du laser à  $\text{CO}_2$  est limitée par la largeur Doppler de la raie d'émission, et ne dépasse pas 100 MHz tandis que l'écart en fréquence entre la raie 9R(42) du laser et celle de la molécule  $\text{H}_2^+$  est 1,655 GHz (Tableau 3.1). Par conséquent, il est nécessaire d'effectuer un décalage de fréquence pour mettre à résonance le laser sur cette transition. Pour cela, plusieurs méthodes sont disponibles. L'une d'entre elles, consiste à augmenter l'accordabilité du laser en utilisant des pressions du gaz d'environ 20 mbar pour élargir la raie d'émission du laser. Cette méthode permet d'atteindre une accordabilité de 1 GHz qui n'est malheureusement pas suffisante pour atteindre la raie de  $\text{H}_2^+$ . Une autre approche consiste à utiliser

transition $\text{H}_2^+$ (L,v)	raie $\text{CO}_2$	écart ( $f(\text{H}_2^+)-f(\text{CO}_2)$ )
(0,0)→(0,1)	9R(52)	-3,080 GHz
(1,0)→(1,1)	9R(48)	4,37 GHz
(2,0)→(2,1)	9R(42)	-1,655 GHz
(3,0)→(3,1)	9R(34)	-13,616 GHz

TABLE 3.1 – Écart entre les transitions de  $\text{H}_2^+$ , et la raie la plus proche du laser à  $\text{CO}_2$  en se limitant à l'isotope standard  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  (extraite de [13]).

des méthodes externes, telles que la modulation acousto-optique ou électro-optique. Les modulateurs électro-optiques exploitant l'effet pockels offrent la possibilité de décaler la fréquence d'un laser de plusieurs GHz. Cependant, leur efficacité reste faible, ne dépassant pas  $10^{-4}$ , quelle que soit la fréquence appliquée. Il faudrait alors avoir recours à un laser délivrant une puissance de plusieurs centaines de Watts pour obtenir les quelques dizaines de milliwatts nécessaires à notre expérience. Par conséquent, ce type de modulateur ne peut pas être utilisé.

L'efficacité des modulateurs acousto-optiques décroît rapidement à mesure que la fréquence de modulation augmente. Par exemple, l'efficacité d'un modulateur acousto-optique, fonctionnant à la fréquence de 40 MHz et une puissance électrique de 16 W, est supérieure à 90%. A 120 MHz, cette efficacité chute à environ 60% pour une puissance électrique de l'ordre de 35 W. En combinant une série de  $n$  modulateurs acousto-optiques utilisés en double passage, on peut calculer le rendement global du décalage de fréquence, en excluant toutefois les pertes d'insertion, qui demeurent significatives à ces longueurs d'onde, de la manière suivante :

$$\eta_n = \frac{1}{4}\eta^{2n}. \quad (3.1)$$

Dans cette équation,  $\eta$  représente l'efficacité de diffraction en un seul passage. Selon les données du tableau 3.1, le décalage de fréquence minimum requis pour sonder une raie de  $\text{H}_2^+$  est 1,655 GHz. Cela équivaut à environ l'utilisation d'un système de 20 modulateurs acousto-optiques, fonctionnant à 40 MHz, et d'un rendement global de  $3,7 \cdot 10^{-3}$ . Il y a aussi la possibilité d'utiliser 6 modulateurs fonctionnant à 120 MHz. Ce système a un rendement global de  $5 \cdot 10^{-4}$ . Par conséquent, l'utilisation de modulateurs acousto-optiques pour décaler, de plusieurs GHz, la fréquence d'un laser à  $\text{CO}_2$  est complètement exclue.

En conclusion, le laser à  $\text{CO}_2$  ne peut pas être utilisé directement pour la spectroscopie de  $\text{H}_2^+$ .

### 3.2.2 Laser à cascade quantique (QCL)

Un laser à cascade quantique est un laser à semi-conducteur dont le coeur actif est une structure à puits quantiques multiples. La technologie que je vais décrire

a été étudiée dès les années 70. Cependant, sa première mise en oeuvre expérimentale n'a eu lieu qu'en 1994 par J.Faist et ses collaborateurs au laboratoire Bell-labs [14] en raison des difficultés technique liées à sa fabrication. Contrairement aux diodes lasers classiques qui utilisent des transitions entre la bande de valence et la bande de conduction (transitions inter-bande) dont l'énergie de gap ( $E_g$ ) est en général supérieure à 0,3 eV correspondant à des longueurs d'onde  $\lambda$  inférieures à 3  $\mu\text{m}$ , les QCL exploitent des transitions entre différents états quantiques dans une seule bande de conduction (transition intra-bande). Cela permet d'avoir une flexibilité accrue dans la conception de la structure de bande et leur permet de couvrir un large éventail de longueur d'onde dans le domaine de l'infrarouge. De plus, la faible puissance des diodes lasers limite leur pertinence pour la spectroscopie à deux photons de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ . C'est pourquoi nous optons pour l'utilisation d'un laser à cascade quantique, car il est en mesure de générer des niveaux de puissance d'émission suffisamment élevés pour garantir une excitation efficace de l'ion.

Le principe de fonctionnement du laser à cascade quantique est représenté dans la figure

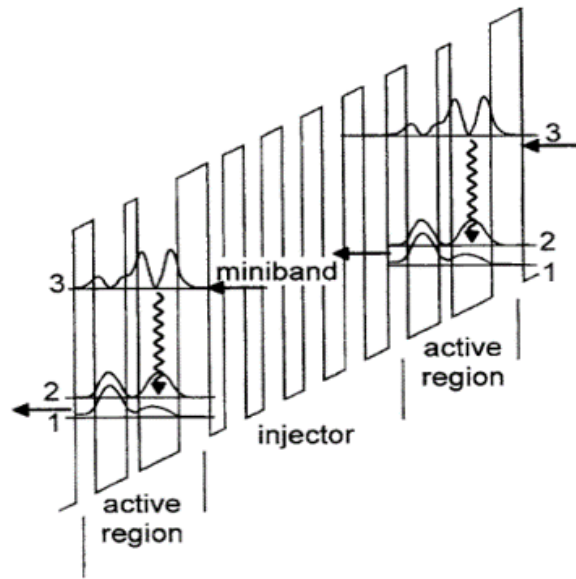


FIGURE 3.2 – Diagramme d'énergie de la bande de conduction de deux régions actives du laser à cascade quantique avec une région d'injection intermédiaire. Les courbes représentent les modules au carré des fonctions d'onde impliquées dans la transition laser (états 1, 2 et 3). La transition laser est indiquée avec une flèche ondulée et le flux d'électrons par les flèches droites (Extraite de [15]).

3.2. Ce laser est composé d'une série d'étages identiques. Chaque étage est constitué d'une région active et d'une région d'injection d'électrons. Chaque injecteur est composé de plusieurs puits quantiques répétés et séparés avec des barrières minces. Chaque région active est constituée de trois puits quantiques répétés avec des barrières plus épaisses qui empêchent le couplage entre ces puits adjacents. Cela s'appelle une struc-



ture de puits quantiques multiples. Un champ électrique externe est appliqué pour injecter des électrons depuis l'injecteur vers l'état 3 de la région active via l'effet tunnel. Une transition optique entre le niveau 3 et 2 émet un photon symbolisé par une flèche ondulée dans la région active (Figure 3.2). La durée de vie de l'état 3 est conçue pour être plus longue que celle de l'état 2. Finalement, l'état 1 de plus basse énergie est positionné approximativement à une énergie phononique optique en dessous de l'état 2, ce qui permet aux électrons de ce niveaux de se dissiper rapidement vers l'état 1 via des transitions non radiatives. Les électrons se déplacent rapidement vers la région d'injection voisine permettant la transition de l'électron du niveau bas vers le niveau haut de la région active suivante où les transitions optique se répètent. Contrairement à une diode laser, dans un laser à cascade quantique, de nombreux photons peuvent être émis par le même électron.

La plage de longueurs d'onde pour lesquelles il est possible de réaliser des QCL est extrêmement large, allant de 100  $\mu\text{m}$  (QCL THz) à moins de 3  $\mu\text{m}$ .

Il existe deux principales configurations de résonateurs pour les lasers à cascade quantique : des QCL à miroir de Bragg (DFB : distributed feedback) et des QCL en Fabry-Pérot. Ces derniers ont un spectre d'émission qui est généralement multimode et ne conviennent pas aux nombreuses applications nécessitant une source à fréquence unique et une largeur de raie étroite, telles que la spectroscopie à haute résolution (exemple d' $\text{H}_2^+$ ) ou la métrologie. Dans un DFB QCL, un réseau de Bragg intégré dans le guide d'onde le long de la direction de propagation de la lumière permet d'obtenir un fonctionnement monomode longitudinal et de fixer la longueur d'onde d'émission.

Nous utilisons un prototype de laser à cascade quantique de la marque Alpes laser (modèle SBCW496DN). Ce laser qui est monomode, fonctionne en régime continu. Il est installé dans un cryostat à azote liquide à une température de 77 K. A cette température, le laser s'allume à partir d'un courant de 400 mA (courant de seuil) et il peut fournir jusqu'à 140 mW de puissance sur une plage de longueur d'onde allant de 9,16  $\mu\text{m}$  et 9,24  $\mu\text{m}$  correspondant à une accordabilité d'environ 300 GHz. La fréquence du laser à cascade quantique peut être accordée en agissant sur sa température (3 GHz/K) et son courant d'alimentation (150 MHz/mA) [13]. Il est important de noter que le cryostat n'est pas stabilisé en température. La température de fonctionnement du QCL est obtenue par un équilibre entre le chauffage généré par le courant d'injection et le refroidissement par l'azote liquide. Lorsque le courant d'alimentation est d'environ 700 mA, la température du QCL se stabilise autour de 81 K et il émet une puissance de 100 mW à une longueur d'onde de 9,166  $\mu\text{m}$  qui est la longueur d'onde spécifique que nous utilisons pour la spectroscopie de l'ion  $\text{H}_2^+$ .

En fonctionnement libre, le spectre du QCL présente un jitter sur plusieurs MHz sur des temps de quelques ms [13]. Il doit donc être activement stabilisé.

### 3.2.3 Source laser pour la spectroscopie de $\text{H}_2^+$

Comme sources lasers, nous disposons donc d'un laser à  $\text{CO}_2$  qui est stable avec une puissance importante mais une accordabilité limitée ( $\sim 100$  MHz), et un laser à cascade quantique qui est puissant et d'une accordabilité importante ( $\sim 300$  GHz) mais très instable. Si ces sources lasers sont prises individuellement, elles ne sont pas adaptées pour la spectroscopie vibrationnelle de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  en raison des limitations spécifiques de chacune. Franck Bielsa, dans ses travaux présentés dans son article [33], a démontré que les caractéristiques du laser à  $\text{CO}_2$  pouvaient être exploitées pour en faire une référence de fréquence en le stabilisant sur une raie d'absorption saturée de l'acide formique ( $\text{HCOOH}$ ). Parallèlement, il a réussi à transférer la stabilité et la largeur spectrale du laser à  $\text{CO}_2$  au laser à cascade quantique (QCL), tout en préservant la flexibilité de ce dernier en terme d'accordabilité en fréquence. Cela a été réalisé en synchronisant en phase le QCL avec le laser à  $\text{CO}_2$ . Par conséquent, le QCL est devenu une source stable, avec une largeur spectrale étroite (inférieure à 10 kHz), tout en maintenant sa puissance et son accordabilité. Sur la figure 3.3, nous illustrons les positions relatives en fréquence des différents éléments qui ont été introduits précédemment.

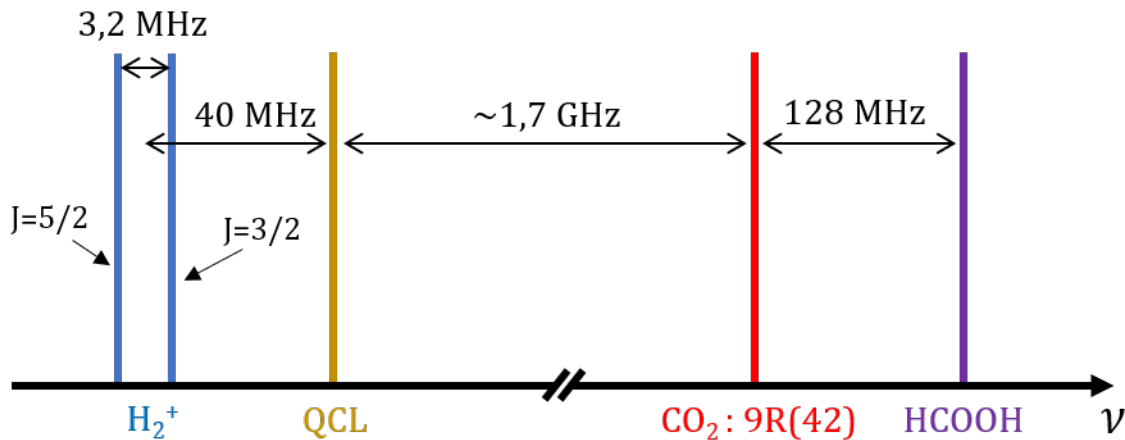


FIGURE 3.3 – Les fréquences relatives des transitions vibrationnelles ( $v = 0, L = 2, J \rightarrow v = 1, L = 2, J'$ ) avec  $J'=3/2$  ou  $5/2$  de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ , du laser à cascade quantique (QCL), de la raie  $9\text{R}(42)$  du laser à  $\text{CO}_2$  et celle de la raie  $9\text{R}(42)$  de l'acide formique ( $\text{HCOOH}$ ).

## 3.3 Stabilisation du laser à $\text{CO}_2$ sur $\text{HCOOH}$

Le signal de sortie d'un oscillateur idéal sans bruit ni dérive est une onde sinusoïdale pure, mais tous les dispositifs réels comme le laser à  $\text{CO}_2$  et le laser à cascade quantique et même les dispositifs les plus stables, sont perturbés par des processus in-

évitables tels que des bruits aléatoire et des effets environnementaux comme le bruit thermique, bruits des alimentations et des bruits acoustiques.

### 3.3.1 Instabilité d'un oscillateur et caractérisation

Dans cette partie, je présente un modèle mathématique abordable de signal de sortie quasi-sinusoidal d'un oscillateur [21]. Comme nous l'avons dit, la fréquence d'un oscillateur est généralement instable. Cette instabilité peut être décrit sous la forme d'un bruit de phase  $\phi(t)$ , lié à un processus aléatoire, introduit dans l'expression du champ de l'oscillateur

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos(2\pi\nu_0 t + \phi(t)). \quad (3.2)$$

La fréquence instantanée de ce signal quasi-sinusoidal est donnée par

$$\begin{aligned} \nu(t) &= \frac{1}{2\pi} \frac{d}{dt} (2\pi\nu_0 t + \phi(t)) \\ &= \nu_0 + \frac{1}{2\pi} \dot{\phi}(t). \end{aligned} \quad (3.3)$$

Le bruit de fréquence est un processus aléatoire défini par

$$\Delta\nu(t) = \nu(t) - \nu_0 = \frac{1}{2\pi} \dot{\phi}(t). \quad (3.4)$$

Il est souvent utile d'introduire la fluctuation relative de fréquence  $y(t)$  des oscillateurs, c'est à dire la fluctuation instantanée de fréquence normalisée à la fréquence porteuse  $\nu_0$ . Elle est définie comme suit

$$y(t) = \frac{\Delta\nu(t)}{\nu_0} = \frac{\dot{\phi}(t)}{2\pi\nu_0}. \quad (3.5)$$

Il existe deux types de paramètres utilisés comme outils pour la caractérisation de l'instabilité d'un oscillateur, c'est à dire les fluctuations de sa fréquence. Le premier type concerne les caractéristiques spectrales liées à la distribution de l'énergie du signal dans l'espace de fréquence de Fourier telles que la densité spectrale de puissance du bruit de phase et la densité spectrale de puissance du bruit de fréquence. Le deuxième type est lié aux caractéristiques temporelles du signal telles que la variance d'Allan et la variance d'Allan modifiée pour évaluer la stabilité sur un temps de moyennage donné. Nous utiliserons la variance d'Allan (ou deviation d'Allan) pour caractériser la stabilité de la fréquence de notre laser à CO<sub>2</sub> sur la raie de l'acide formique.

#### Variance d'Allan

La variance d'Allan est une mesure statistique utilisée pour évaluer la stabilité de fréquence d'un oscillateur. Elle est obtenue à partir de la fréquence mesurée par un

compteur de fréquence. Pour calculer la variance d'Allan, on effectue une série de mesures de fréquence  $\bar{\nu}_k(t)$  de la fréquence  $\nu(t)$  à des intervalles de temps réguliers. Chaque valeur est obtenue sur une durée de porte (temps de moyennage)  $\tau_0$  du compteur, puis convertie en une fréquence normalisée

$$\bar{y}_k = \frac{\bar{\nu}_k - \nu_0}{\nu_0}. \quad (3.6)$$

Ensuite, on calcule les différences entre les valeurs de  $\bar{y}_k$  mesurées successivement et on les élève au carré. Ces différences sont ensuite moyennées sur différentes périodes d'intégration pour obtenir la variance d'Allan à chaque intervalle de temps. Son expression est donnée par [21]

$$\sigma_y^2(\tau) = \frac{1}{2(M-1)} \sum_{k=1}^{M-1} [\bar{y}_{k+1}(\tau) - \bar{y}_k(\tau)]^2, \quad (3.7)$$

où  $\bar{y}_{k+1}(\tau)$  est la  $i^{\text{ème}}$  des  $M$  valeurs des fréquence normalisées qui sont moyennées sur une période  $\tau$ , avec  $\tau = m\tau_0$  où  $m$  est un entier.

### 3.3.2 Absorption saturée

La mesure des spectres d'énergie atomique et moléculaire est très utile pour de nombreux domaines de la chimie et de la physique atomique, mais aussi en ce qui concerne la stabilisation de la fréquence des lasers. La résolution des spectres mesurés est généralement limitée par plusieurs phénomènes, principalement par l'effet Doppler dû au décalage de fréquence quand la molécule est en mouvement. Les molécules d'un gaz se déplacent en permanence et leur vitesse suit une distribution gaussienne, ce qui implique un élargissement des raies spectrales. Cet élargissement constitue une réelle limitation pour l'asservissement des lasers. En effet, la fréquence du laser peut être réglée sur une transition spécifique (transition de référence) au moyen de différentes méthodes et donc la largeur du laser asservi est déterminée par la largeur de la raie de transition.

La spectroscopie d'absorption saturée peut améliorer cette résolution en diminuant fortement la largeur expérimentale. Dans ce cas, le paramètre limitant principal est l'élargissement dû à la puissance. Une bonne estimation de la résolution est donnée par le facteur de qualité  $Q$  qui est, par définition, le rapport entre la largeur de la raie spectrale  $\Delta\omega$  et sa fréquence centrale  $\omega_0$ .

#### 3.3.2.1 Élargissement Doppler

Lorsque les molécule sont en mouvement, elles ne perçoivent pas la même radiation que lorsqu'elles sont immobiles. La fréquence perçue par les molécules dépend de leur vitesse, et donc de leur température  $T$ . Cet effet se présente sous la forme d'un

élargissement gaussien, dont le profil est donné par [17]

$$g_D(\omega - \omega_0, \Delta\omega_D) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{1}{\Delta\omega_D} e^{-\ln 2 \left( \frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_D} \right)^2}. \quad (3.8)$$

avec  $\Delta\omega_D$  est la largeur à mi-hauteur de la raie élargie par effet Doppler, telle que :

$$\Delta\omega_D = \frac{\sqrt{\ln 2}}{c} \omega_0 u \quad (3.9)$$

où

$$u = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (3.10)$$

est la vitesse la plus probable des molécules dans le gaz,  $m$  est la masse d'une molécule et  $k_B = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$  la constante de Boltzmann. A une température ambiante de 300 K, la molécule HCOOH, de masse molaire de 46 g/mol, se déplace avec une vitesse d'environ 330 m/s. Pour la raie de l'acide formique à 32,7 THz, utilisée pour asservir la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>, l'élargissement est de l'ordre de 61 MHz. Une telle largeur ne permet pas de contrôler la fréquence d'un laser au niveau du kHz.

### 3.3.2.2 Absorption saturée

Il est possible de surmonter l'effet d'élargissement Doppler en recourant à une technique de spectroscopie sub-Doppler. L'une des approches couramment employées à cet effet est la spectroscopie d'absorption saturée.

#### Principe

Un schéma simplifié du principe expérimental d'absorption saturée est illustré dans la figure 3.4(a). Considérons un faisceau laser de fréquence angulaire  $\omega$ , divisé en deux faisceaux, de pompe et de sonde, supposés contre-propageants suivant un axe  $z$ , et qui sondent un gaz moléculaire dans une cellule. L'idée de base consiste à sélectionner uniquement les molécules ne présentant aucun décalage Doppler pour le signal de spectroscopie, c'est à dire les molécules de vitesse  $v_z$  nulle. Si on considère un système à deux niveaux, les molécules dans l'état fondamental peuvent être excitées vers l'état supérieur par une radiation ayant une fréquence angulaire  $\omega_0$  dans leur référentiel au repos. Les densités de population moléculaire  $N_1(v_z)$  et  $N_2(v_z)$  correspondent respectivement aux niveaux fondamental et excité pour les molécules appartenant à la classe de vitesses entre  $v_z$  et  $v_z + dv_z$ . Le faisceau pompe excite la majorité des molécules vers l'état excité. La figure 3.4(c) montre les distributions de vitesses pour l'état fondamental et l'état excité des molécules du gaz lorsque la cellule est traversée par le faisceau de pompe et le faisceau de sonde dans les trois cas : fréquence du laser inférieure, égale et supérieure à la fréquence de résonance  $\omega_0$ . On note que l'intégration de la densité  $N_i(v_z)$

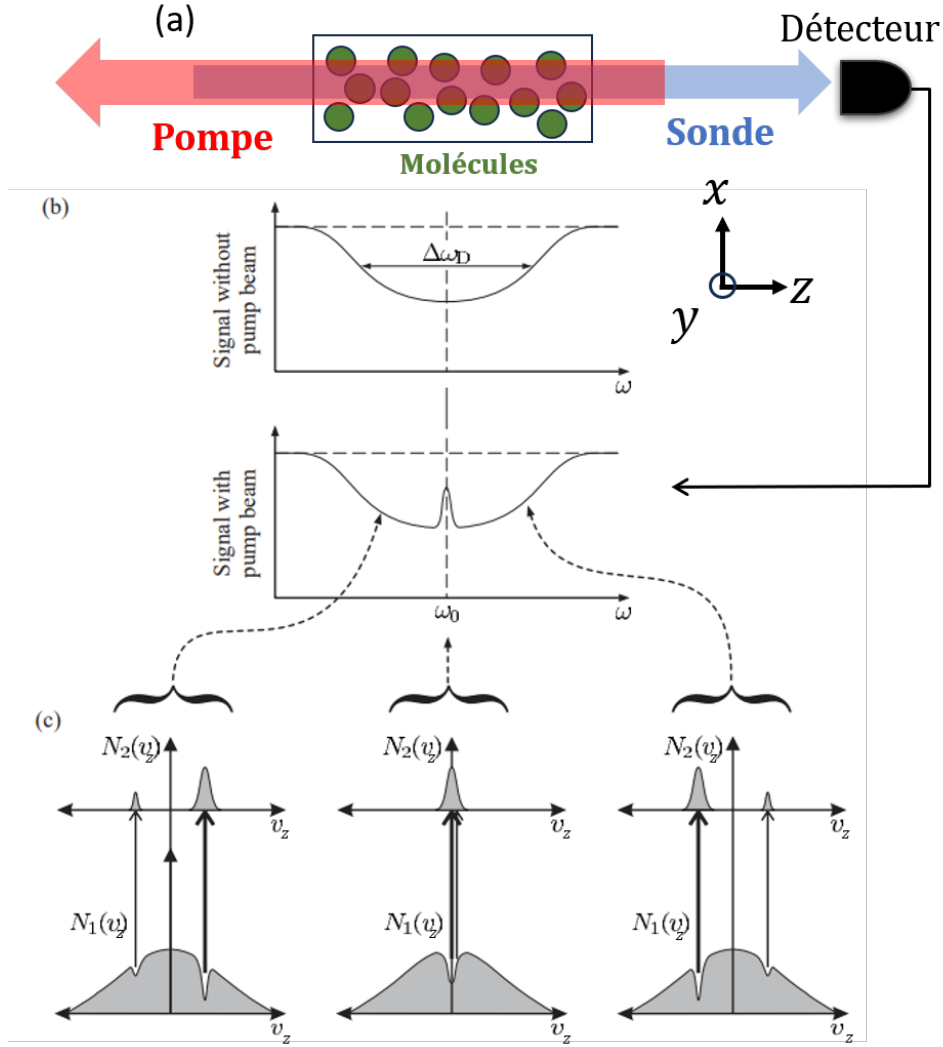


FIGURE 3.4 – (a) Principe expérimental de l'absorption saturée. (b) : intensité transmise du faisceau sonde en fonction de la fréquence angulaire  $\omega$ . Lorsque le faisceau pompe est bloqué, le spectre d'absorption (en haut) à basse pression présente une largeur de raie  $\Delta\omega_D$  correspondant à l'élargissement Doppler. Dans le cas contraire, il apparaît un pic fin au centre du spectre d'absorption directe (en bas). (c) Tracés des densités de population moléculaire des deux niveaux  $N_1(v_z)$  et  $N_2(v_z)$  en fonction de la vitesse  $v_z$  dans les trois cas : fréquence du laser inférieure, égale et supérieure à la fréquence de résonance (les figures (b) et (c) sont extraites de la référence [17]).

sur toutes les classes de vitesses est égale au nombre total de molécule dans l'état  $i$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} N_i(v_z) dv_z, \quad (3.11)$$

où  $i=1,2$ . Cela est vrai quelque soit la puissance des faisceaux. Lorsque le laser émet une radiation avec une fréquence angulaire loin de résonance, le faisceau pompe interagit

avec un groupe de molécules de vitesse  $v_z$  tandis que le faisceau de sonde interagit avec des molécules de vitesse  $-v_z$  où  $v_z = \frac{c\Delta\omega}{\omega_0}$ . Par conséquent, l'interaction du faisceau pompe n'affecte pas l'interaction du faisceau de sonde et donc l'élargissement par effet Doppler est obtenu lorsqu'on mesure le spectre de transmission du faisceau de sonde après avoir traversé la cellule de vapeur comme on peut le voir dans la figure 3.4(b). Lorsque la fréquence du laser est accordée exactement à la fréquence de résonance  $\omega_0$ , le faisceau de pompe et le faisceau de sonde interagissent avec le même groupe de molécules de vitesse  $v_z \sim 0$  et le faisceau de pompe excite la plupart de ces molécules vers le niveau supérieur. Par conséquent, il y a moins de molécules qui peuvent être excitées par le faisceau de sonde et donc l'absorption est réduite, et la transmission est plus élevée. Un pic apparaît sur le spectre de transmission à la fréquence de résonance  $\omega_0$  (Figure 3.4). Ce pic est utilisé pour stabiliser la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> sur cette raie.

### 3.3.2.3 Largeur de raie

Nous nous intéressons maintenant aux différents mécanismes d'élargissement de la raie d'absorption saturée de l'acide formique.

Le premier mécanisme est **l'élargissement naturel** qui est dû à la durée de vie finie des niveaux rovibrationnels qu'on trouve dans la relation d'incertitude temps-énergie. Le profil spectral du pic centré à la fréquence de résonance  $\omega_0$  (Figure 3.4) est lorentzien. La durée de vie est liée au coefficient d'Einstein  $A_{12}$  correspondant à la transition entre le niveau inférieur 1 et le niveau supérieur 2. Ce coefficient vaut  $7,465 \text{ s}^{-1}$  dans le cas de la transition utilisée de l'acide formique (HCOOH) correspondant à une largeur naturelle très petite  $\Gamma_{nat}=1,2 \text{ Hz}$ .

**Élargissement par collisions**, appelé également élargissement par pression, il se produit lorsque des molécules dans le gaz entrent en collision avec la molécule en interaction avec le rayonnement, ce qui entraîne une perte de cohérence et donc un élargissement et un décalage de fréquence des raies spectrales observées. Ce mécanisme d'élargissement provoque une augmentation de la largeur de la raie qui dépend du taux de collision  $1/\tau_{coll}$  [18] (contribution en demi largeur), où  $\tau_{coll}$  est le temps moyen entre les collisions. Ce facteur dépend essentiellement de la densité de molécules dans la cellule qui est proportionnelle à la pression. Pour l'acide formique, l'élargissement par pression est estimée à  $0,32 \text{ cm}^{-1}/\text{atm}$  [19] correspondant à un élargissement de  $\Gamma_{coll} 13,1 \text{ kHz}$  pour une pression de l'ordre du mTorr.

**L'élargissement par temps de transit** se produit en raison de la durée d'interaction limitée entre le faisceau laser dans la cellule et la molécule. Il dépend alors de la taille du faisceau laser  $w$  et de la vitesse transverse des molécules elle-même reliée de la température du gaz. Une estimation de cet élargissement HWHM est donnée par [79]

$$\Gamma_{tt} \simeq \frac{u}{8w}, \quad (3.12)$$

où  $u$  est la vitesse quadratique moyenne donnée par l'équation 3.10 et  $w$  le rayon à  $1/e^2$  de l'intensité du faisceau. A  $T=300$  K et  $w=3$  mm, l'élargissement est de l'ordre de 14 kHz.

Enfin, **l'élargissement par puissance** devient significatif lorsque la puissance du laser dépasse la puissance de saturation. Cet élargissement se produit car la saturation réduit l'absorption près de la résonance du faisceau de sonde, tandis que loin de la résonance, l'absorption change peu, ce qui provoque un élargissement de la raie moléculaire.

Si on suppose que la raie d'absorption saturée a une forme lorentzienne et que le faisceau de sonde et le faisceau de pompe ont la même puissance, la largeur de la raie est obtenue par le produit d'une contribution homogène  $\Gamma_0 = \Gamma_{coll} + \Gamma_{tt}$  et d'une contribution associée à l'élargissement par puissance :

$$\Gamma_p = \Gamma_0 \sqrt{1 + s}, \quad (3.13)$$

avec  $s = P/P_{sat}$  le paramètre de saturation où  $P$  est la puissance du laser et  $P_{sat}$  la puissance de saturation définie de manière à ce que si  $P = P_{sat}$ , la moitié des molécules de la classe de vitesse sont excitées.

### 3.3.3 Stabilisation du laser à $\text{CO}_2$ sur $\text{HCOOH}$

Nous nous intéressons maintenant à l'asservissement du laser à  $\text{CO}_2$  sur la raie de l'acide formique dont le schéma est présenté sur la figure 3.5. Il utilise le principe de l'absorption saturée de l'acide formique sondée à l'intérieur d'une cavité Fabry-Pérot de longueur  $d=1,047$  m et une finesse de 120 à vide et 153 avec une pression de 1  $\mu\text{bar}$ . Elle est constituée de deux miroirs plans-concaves de rayon de courbure  $R=50$  m. Les miroirs sont fixés sur des céramiques piézo-électriques, ce qui permet d'ajuster précisément, via un système d'asservissement, la longueur de la cavité et d'optimiser et maintenir le couplage entre le mode de la cavité et le faisceau du laser à  $\text{CO}_2$ . Dans notre cas, nous utilisons des pressions de l'ordre du mTorr ( $\mu\text{bar}$ ) et une puissance intracavité d'environ 400  $\mu\text{W}$ .

Expérimentalement, le laser à  $\text{CO}_2$  est introduit dans la cavité à l'aide d'un modulateur acousto-optique à 64MHz utilisé en double passage. Ce dispositif permet de décaler la fréquence du laser (raie 9R(42)) de +128 MHz afin de le faire coïncider avec la raie d'absorption de l'acide formique. Un télescope composé de deux lentilles  $L_1$  de focale 50 mm et  $L_2$  de focale 75 mm adapte le mode du faisceau issu de l'AOM avec la cavité. Le signal de transmission du faisceau de sonde par la cavité est détecté avec un détecteur refroidi MCT (HgCdTe) puis amplifié avec un amplificateur opérationnel. La partie DC est extraite de ce signal puis visualisée sur un oscilloscope pour déduire la puissance intra-cavité.

Pour asservir la longueur de la cavité à résonance sur le laser à  $\text{CO}_2$ , sa longueur est modulée en appliquant un signal à la fréquence de 33 kHz sur la petite céramique piézo-



électrique. Une partie du signal amplifié est filtré avec un filtre passe bande centré à 33 kHz et est envoyé à la détection synchrone qui est configurée pour détecter la résonance de la cavité en première harmonique. Le signal d'erreur correspondant à la dérivée première du signal de transmission est utilisé pour asservir la cavité en agissant sur la grosse céramique piézo-électrique avec une bande passante de l'ordre de quelques centaines de Hz.

Le même principe de détection du signal d'erreur est utilisé pour asservir la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>. Un signal à la fréquence 5,667 kHz et une amplitude de 1 V (correspondant à 100 kHz de profondeur de modulation) délivré par une deuxième détection synchrone (SRS 810) est utilisé pour moduler la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> en agissant sur la petite céramique piézo-électrique du laser. Le signal de transmission de la cavité est filtré cette fois-ci avec un filtre passe bande centré à 17 kHz puisque le module de la détection synchrone est configuré pour détecter le signal d'absorption saturée en troisième harmonique. Le signal d'erreur est utilisé pour asservir le laser à CO<sub>2</sub> sur le centre de la raie d'acide formique en appliquant les corrections sur la grosse céramique piézo-électrique du laser avec une bande passante de l'ordre de 1 kHz.

### 3.4 Stabilisation du QCL sur le laser à CO<sub>2</sub>

La fréquence du laser à cascade quantique est stabilisée sur celle du laser à CO<sub>2</sub>. Le schéma d'asservissement est représenté dans la figure 3.6 [13]. Compte tenu que la spectroscopie de H<sub>2</sub><sup>+</sup> est réalisée dans une cavité de haute finesse, un isolateur optique est placé à la sortie du QCL. Afin de réaliser le battement entre le QCL et le laser à CO<sub>2</sub>, un modulateur acousto-optique fonctionnant à 40 MHz est utilisé pour prélever 5 mW de la puissance totale du QCL. Consacrer peu de puissance du laser à cascade quantique pour le battement revient au fait que la transition à deux photons entre les niveaux vibrationnels  $v=0$  et  $v=1$  de l'ion moléculaire H<sub>2</sub><sup>+</sup> est proportionnel au carré de l'intensité lumineuse du laser. L'utilisation du modulateur acousto-optique apporte une isolation supplémentaire. La puissance du signal de battement entre le laser à CO<sub>2</sub> de puissance  $P_1$  et le QCL de puissance  $P_2$  est de la forme

$$P_{\text{battement}} \propto \sqrt{P_1 P_2}. \quad (3.14)$$

Pour augmenter la puissance du signal de battement, on exploite alors la puissance issue du laser à CO<sub>2</sub>. Le faisceau d'ordre 0 issu de l'AOM de puissance de 5 mW est combiné avec une puissance de 500 mW du faisceau laser à CO<sub>2</sub> via une lame séparatrice (T=90% pour le laser à cascade quantique et R=10% pour le laser à CO<sub>2</sub>). Le signal de battement est détecté par un détecteur de type HgCdZnTe et amplifié par un enchainement de deux amplificateurs radio-fréquences de gains 11 dB à 1700 MHz pour le premier et 21 dB à 1700 MHz pour le deuxième. Il est ensuite filtré par un filtre passe haut

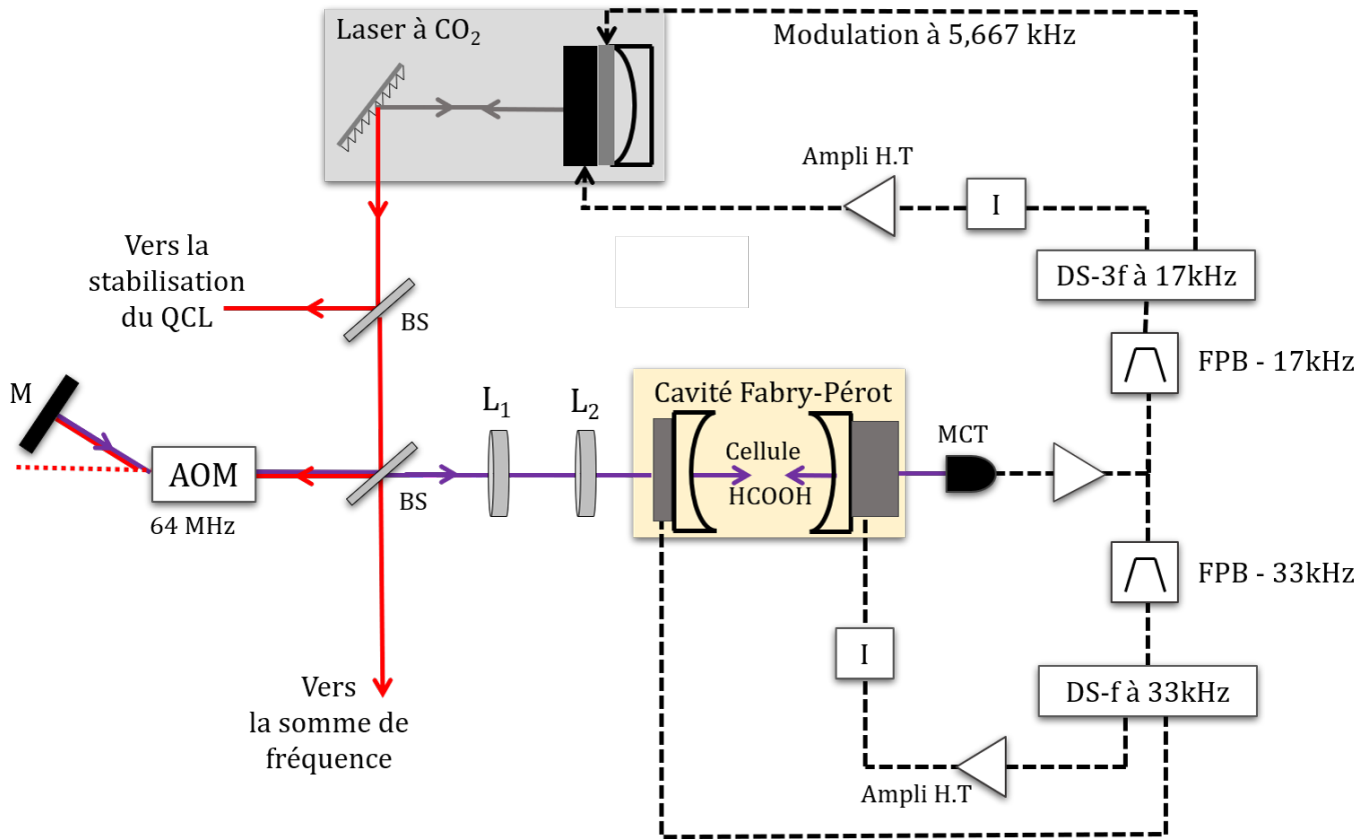


FIGURE 3.5 – Schéma de stabilisation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  sur une raie de l'acide formique via l'absorption saturée en cavité Fabry-Pérot. L : lentille, FPB : filtre passe bande, MCT : détecteur HgCdTe, AOM : modulateur acousto-optique, BS : séparateur de faisceaux, I : intégrateur. M : miroir, DS : détection synchrone.

(minicircuits :VHF-1300+) puis par un filtre passe bas (minicircuits :SLP-1650+) et divisé en fréquence par 8 par un diviseur de type Hittite HMC365. Pour générer un signal d'erreur, un comparateur de phase/fréquence est utilisé pour comparer la phase du signal de battement divisé par 8 avec celle d'un signal de référence généré par un synthétiseur Rhode et Schwarz. La division par 8 permet d'avoir une grande plage de  $32\pi$  pour la comparaison de phase, avec le but de limiter les sauts de cycle par l'asservissement. Enfin, la boucle de rétroaction est fermée par un circuit constitué d'un étage proportionnel intégrateur de gain ajustable. La figure 3.7 montre le signal de battement asservi entre le laser à cascade quantique et le laser à  $\text{CO}_2$  stabilisé sur la raie d'absorption saturée d'acide formique. La forme du spectre asservi indique que la bande passante de la boucle d'asservissement est d'environ 2 MHz.

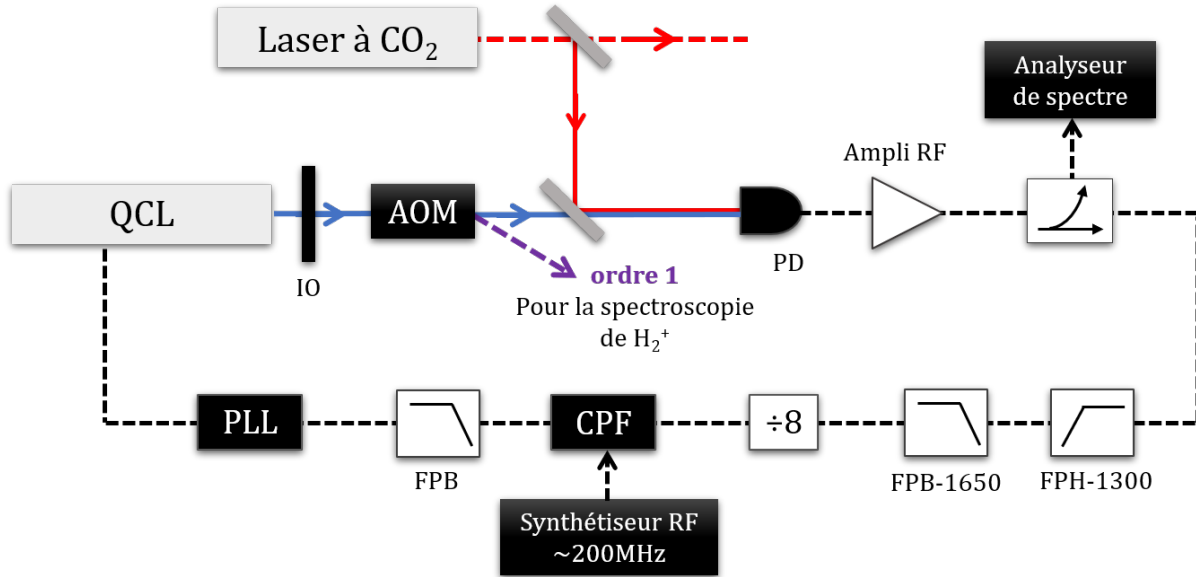


FIGURE 3.6 – Schéma d’asservissement du laser à cascade quantique (QCL) sur le laser à  $\text{CO}_2$ . FPB : filtre passe bas, FPH : filtre passe haut, PD : photo-détecteur, PLL : *Phase Lock Loop*, IO : isolateur optique.

### 3.5 Performances de stabilité et limitations

Afin d’évaluer la stabilité du laser  $\text{CO}_2$  asservi sur la raie d’absorption saturée de l’acide formique, j’ai effectué des mesures de la déviation d’Allan de la fréquence du signal de battement entre le laser  $\text{CO}_2$  et un peigne de fréquence ultrastable. Les détails sur la génération de ce signal de battement seront exposés dans le chapitre 4. Dans la figure 3.8, la courbe rouge représente la déviation d’Allan du signal de battement lorsque la modulation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  s’effectue en modulant la longueur de la cavité laser via la petite céramique piézo-électrique. La déviation calculée est de l’ordre de  $3 \cdot 10^{-13}$  à un temps d’intégration de 1s. L’inconvénient de cette méthode réside dans le fait que la modulation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  (à 5,667 kHz) est intégralement recopiée sur la fréquence du QCL car la bande de la boucle d’asservissement (2 MHz) est très supérieure à 5,667 kHz. Avoir un QCL modulé est inapproprié pour l’exploration de la transition de l’ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ .

Afin de résoudre ce problème, Franck Bielsa a opté pour une nouvelle approche visant à moduler la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  grâce au modulateur acousto-optique utilisé pour décaler la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  de 128 MHz. Dans ce cas, le faisceau employé pour la stabilisation du laser à cascade quantique ne subit pas la modulation (voir la figure 3.5). Cependant, cette méthode présente également un inconvénient majeur et inattendu. L’offset du signal d’erreur, obtenu en dérivée troisième de la raie d’absorption saturée, connaît une dérive significative dont l’origine n’est pas encore identifiée, ce qui se traduit par une dérive de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  asservi. Cette dérive est

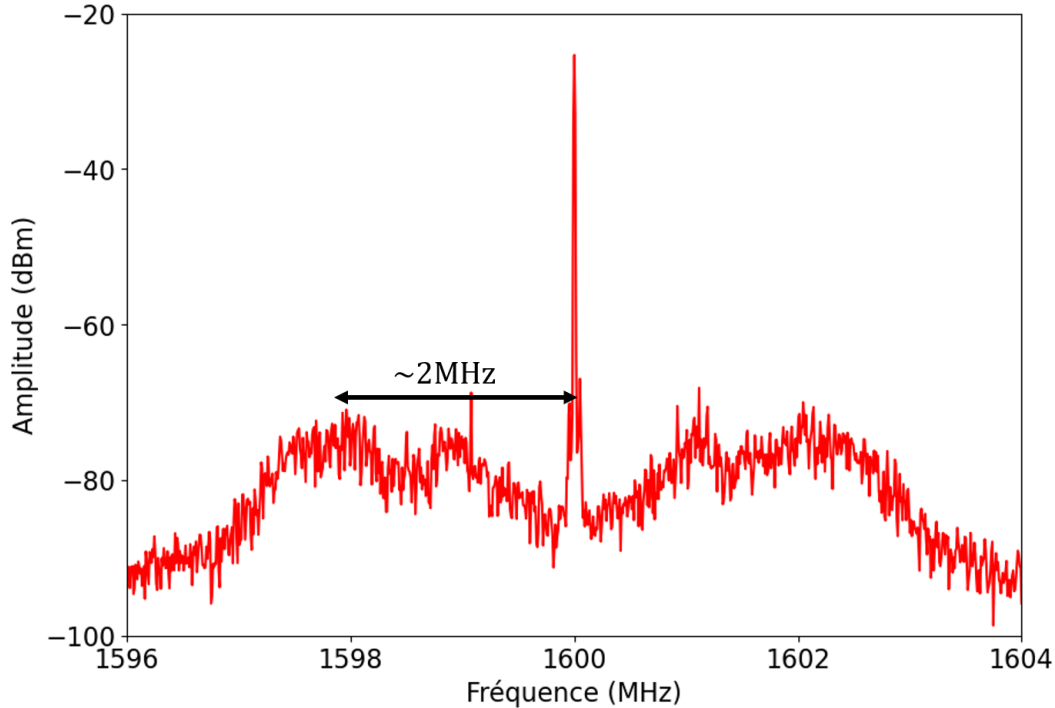


FIGURE 3.7 – Battement asservi entre le laser à cascade quantique et le laser à  $\text{CO}_2$  stabilisé sur une raie d'absorption d'acide formique. RBW (Résolution Bandwidth)=10 kHz, VBW (Vidéo Bandwidth)=1 kHz.

clairement illustrée par la courbe en bleu dans la figure 3.8, qui représente la déviation d'Allan du même signal de battement entre le laser à  $\text{CO}_2$  et le peigne de fréquence, à un niveau supérieur à  $10^{-12}$  voire  $10^{-11}$ , et donc inutilisable pour la spectroscopie de  $\text{H}_2^+$ .

Pendant sa thèse, F.Bielsa a déplacé le laser à  $\text{CO}_2$  et la cavité de l'acide formique vers le laboratoire de physique des lasers de l'université de Paris Nord (anciennement Paris 13) pour utiliser un banc de mesure des fréquences optiques absolues par un laser titane saphir femtoseconde, qui avait été développé au sein de l'équipe dirigée par Anne Amy-Klein. Pour des informations plus détaillées sur le principe de mesure de la fréquence absolue du laser à  $\text{CO}_2$ , il convient de se référer à la thèse de F.Bielsa [13]. Il a réalisé des mesures de répétabilité de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$ . Dans son article [33], il a rapporté une valeur de la fréquence avec une incertitude conservatrice de 1 kHz, ce qui correspond à une incertitude relative de  $3 \cdot 10^{-11}$ . Cependant, il est important de noter que cette précision s'avère nettement insuffisante pour mesurer, avec le laser à cascade quantique asservi sur le laser à  $\text{CO}_2$ , la fréquence de la transition vibrationnelle de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  avec une exactitude relative de  $10^{-12}$ .

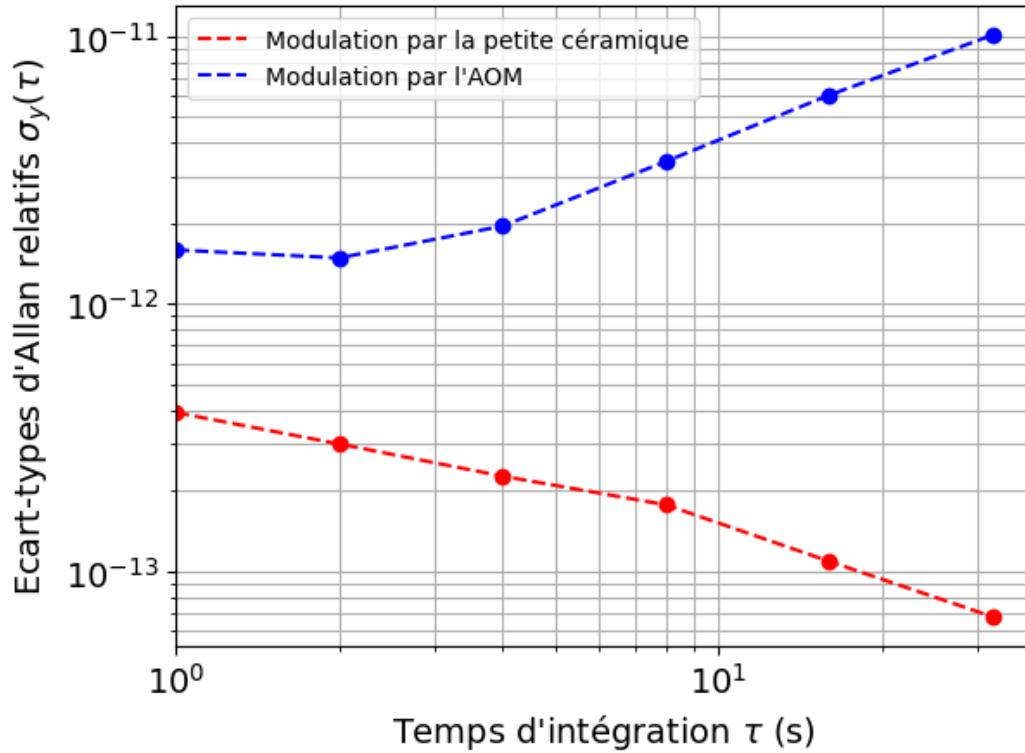


FIGURE 3.8 – La déviation d’Allan de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  lorsque la modulation, par la détection synchrone, s’applique sur la petite céramique piézo-électrique (en rouge) et lorsque la modulation s’applique sur le modulateur acousto-optique (en bleu).

## 3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, j’ai décrit les sources lasers dont nous disposons à une longueur d’onde de  $9,166\mu\text{m}$ . J’ai également exposé le système d’asservissement précédant qui reposait sur l’utilisation d’un laser à  $\text{CO}_2$  asservi à une raie d’absorption saturée de l’acide formique pour stabiliser la fréquence du laser à cascade quantique permettant d’exciter la transition  $(v = 0, L = 2) \rightarrow (v = 1, L = 2)$  de l’ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ . L’asservissement sur le laser à  $\text{CO}_2$ , permet de transformer le laser à cascade quantique en source laser dont la fréquence est accordable en continu sur une plage de plusieurs GHz, tout en préservant des propriétés spectrales parfaitement identiques à celles du laser à  $\text{CO}_2$ . Cependant, nous avons vu que la stabilité et l’exactitude du laser à  $\text{CO}_2$  asservi à une raie de l’acide formique ne constitue pas une référence suffisamment fiable pour permettre au laser à cascade quantique d’atteindre notre objectif de mesurer les transitions de  $\text{H}_2^+$  avec une incertitude relative de  $10^{-12}$ .

Dans mon travail de thèse, j’ai remplacé l’asservissement du laser à  $\text{CO}_2$  sur l’acide formique par un asservissement sur un peigne de fréquence référencé au système international et décrit au chapitre 4.

# Chapitre 4

## Mise en place d'un peigne de fréquence

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>66</b>
<b>4.2</b>	<b>Laser femtoseconde et peigne de fréquence</b>	<b>66</b>
4.2.1	Spectre d'un laser à modes verrouillés	66
4.2.2	Peigne de fréquence pour la métrologie	68
4.2.3	Notre peigne de fréquence	70
<b>4.3</b>	<b>Modèle de photodétection</b>	<b>74</b>
4.3.1	Modèle de signal	74
4.3.2	Mesure de battement à 200 MHz	80
<b>4.4</b>	<b>Asservissement du peigne de fréquence</b>	<b>86</b>
4.4.1	Asservissement sur une référence radio-fréquence	86
4.4.2	Stabilisation sur une référence optique	91
<b>4.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>102</b>

---

## 4.1 Introduction

Les lasers femtoseconde sont des lasers qui émettent des impulsions de très courte durée, typiquement de l'ordre de quelques femtosecondes ( $10^{-15}$ s). Un aspect essentiel des lasers femtoseconde est leur capacité de former un peigne de fréquence. Ce peigne de fréquence est un ensemble régulier et bien défini de fréquences optiques, créé par les nombreuses lignes spectrales qui composent chaque impulsion femtoseconde. La génération des peignes de fréquence optique remonte à 1964, lorsque Hargrove, Fork et Pollack ont introduit le premier laser à blocage de mode [23]. La mise en oeuvre du peigne de fréquence a été récompensé par le prix Nobel décerné à John L.Hall et Theodor W.Hansch en 2005 [29]. Dans leur article fondateur, ils ont introduit le concept du peigne de fréquence optique, jetant ainsi les bases de son développement futur. Depuis lors, de nombreux chercheurs ont contribué à améliorer les performances des peignes de fréquence, en explorant de nouvelles méthodes de génération et d'asservissement. Des avancées significatives ont été réalisées, notamment dans le domaine de la stabilisation et la mesure de la fréquence optique des lasers avec une très grande précision, ouvrant de nouvelles perspectives en spectroscopie à haute résolution grâce à des travaux tels que ceux de Udem et al. [30].

Le peigne de fréquence joue un rôle essentiel en assurant le lien entre le domaine optique et le domaine RF (Radiofréquence). En effet, grâce à la combinaison de fréquences optiques régulièrement espacées du peigne de fréquence, il est possible de réaliser des mesures précises de fréquence dans le domaine optique et de les convertir en signaux RF cohérents. Cette caractéristique unique permet de créer un pont entre les deux domaines de fréquence.

Les peignes de fréquence optique ont également été utilisés pour des horloges optiques de haute précision en synchronisant les références de fréquence optique avec des oscillateurs atomiques dans le domaine RF [31].

Dans ce chapitre, nous commencerons par présenter, de manière générale, les caractéristiques fondamentales des peignes de fréquence optique. Ensuite, nous nous concentrerons sur notre peigne de fréquence et les spécificités qui le distinguent et nous présenterons le travail réalisé pour l'asservissement du peigne sur une référence radiofréquence, puis sur une référence optique, pour pouvoir l'utiliser pour stabiliser la fréquence de notre source laser à  $9,166 \mu\text{m}$ , le laser à  $\text{CO}_2$ .

## 4.2 Laser femtoseconde et peigne de fréquence

### 4.2.1 Spectre d'un laser à modes verrouillés

Un laser femtoseconde, comme nous l'avons dit en introduction, est un laser qui émet une série d'impulsions de très courte durée qu'on note  $\tau_p$ . Ces impulsions sont régulièrement espacées d'une période temporelle qu'on note  $T_{rep}$  correspondant au temps

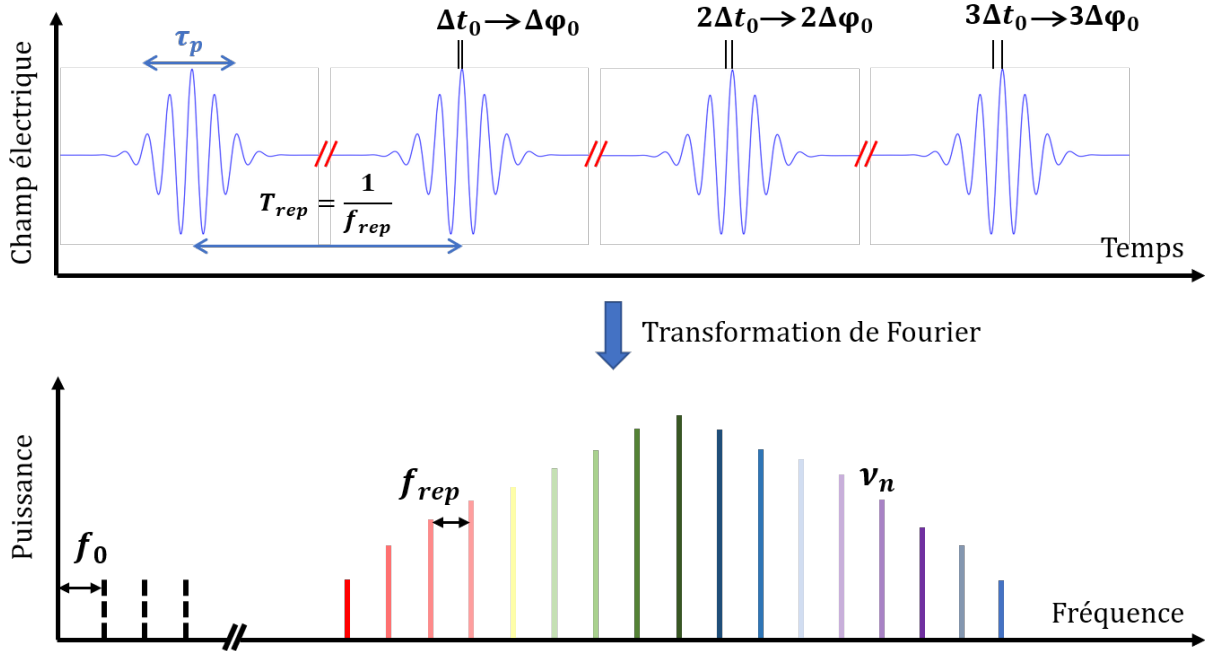


FIGURE 4.1 – Principe du peigne de fréquence optique. La représentation dans le domaine temporel de la sortie du laser à modes verrouillés d'impulsions ultra-courtes avec une période de répétition  $T_{rep}$ . La transformation de Fourier dans le domaine fréquentiel correspond à un peigne de fréquence avec un taux de répétition  $f_{rep} = \frac{1}{T_{rep}}$ . Un décalage de phase entre l'enveloppe du champ électrique est sa porteuse correspondante induit un décalage dans le domaine fréquentiel  $f_0 = \frac{\Delta\phi}{2\pi} f_{rep}$ .

d'aller-retour de l'onde optique dans la cavité laser. Elle donnée par

$$T_{rep} = \frac{L}{v_g}, \quad (4.1)$$

où  $L$  est la longueur de la cavité laser et  $v_g$  la vitesse de groupe de l'enveloppe de l'impulsion. Pour comprendre la stabilisation des lasers à modes verrouillés, il est préférable de passer à un traitement dans le domaine fréquentiel et d'établir alors un lien entre les descriptions dans le domaine temporel et le domaine fréquentiel. Dans un premier temps, nous nous intéressons à une seule impulsion en ignorant la phase de la porteuse qu'on note  $\phi_0$ , et en supposant que toutes les impulsions sont identiques. Celle-ci aura un spectre de puissance correspondant à la transformée de Fourier de sa fonction d'enveloppe qui est centré à la fréquence optique  $\omega_c$  de la porteuse. Généralement, et indépendamment de la forme de l'impulsion, la largeur en fréquence du spectre est inversement proportionnelle à la durée de l'enveloppe  $\tau_p$ .

Pour un train d'impulsions identiques, séparées par une durée exacte  $T_{rep}$ , le spectre est donné par une série de Fourier, ce qui produit un peigne de fréquence régulièrement espacé. L'espacement des fréquences du peigne qu'on note  $f_{rep}$  est inversement propor-



tionnel à la période temporelle  $T_{rep}$ . Dans ce cas, la fréquence d'un harmonique  $n$  du peigne est un multiple entier du taux de répétition  $f_{rep}$

$$\nu_n = n f_{rep}. \quad (4.2)$$

En pratique,  $n$  prend typiquement  $10^4$  à  $10^5$  valeurs autour de  $10^6$ . Lorsque la phase  $\phi_0$  évolue dans le temps, un déphasage  $\Delta\phi_0$  entre la porteuse et l'enveloppe se produit quand on passe d'une impulsion à une autre, c'est à dire au cours d'un intervalle de temps  $T_{rep} = 1/f_{rep}$ . Dans le domaine fréquentiel, il se produit un décalage pour lequel les impulsions s'ajoutent de manière constructive. Ce décalage est donné par  $\frac{\Delta\phi_0}{2\pi T_{rep}}$ . Par conséquent, l'expression de la fréquence optique  $\nu_n$  devient

$$\nu_n = f_0 + n f_{rep} \quad (4.3)$$

où  $f_0$  est le décalage en fréquence (*carrier envelope offset frequency*) dû au décalage de phase d'une impulsion à une autre. Il est donné par [37]

$$f_0 = \frac{\Delta\phi_0}{2\pi} f_{rep}. \quad (4.4)$$

Le lien entre la représentation temporelle et la représentation fréquentielle est montré dans la figure 4.1. Le décalage en phase  $\Delta\phi_0$  entre deux impulsions successives émises par un laser à modes verrouillés, est lié à la dispersion dans la cavité laser. En effet, la dépendance en longueur d'onde de l'indice de réfraction fait que la vitesse de phase  $v_\phi$  de la porteuse n'est pas identique à la vitesse de groupe  $v_g$  de l'enveloppe. Ce déphasage est donné par [37]

$$\Delta\phi_0 = \left( \frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_\phi} \right) L\omega_c. \quad (4.5)$$

### 4.2.2 Peigne de fréquence pour la métrologie

Un peigne de fréquence est considéré comme un outil essentiel en métrologie, notamment pour la mesure précise des fréquences des sources lasers dans le domaine visible ou infrarouge. Il peut être utilisé aussi comme référence pour stabiliser la fréquence de ces sources lasers. Comme nous l'avons vu précédemment, la fréquence  $\nu_n$  d'un mode du peigne se situant dans le domaine optique (THz) est exprimée en fonction de la fréquence de répétition et de la fréquence d'offset, des quantités qui se situent dans le domaine radio-fréquence (MHz). Pour mesurer la fréquence optique  $\nu_n$ , il suffit alors de mesurer les fréquences absolues de ces deux quantités et de connaître l'ordre  $n$  du mode.

La structure très régulière du peigne de fréquence dans le domaine spectral nous permet de le voir comme une règle graduée en fréquence qui peut être utilisée pour mesurer la fréquence absolue d'une source laser si cette fréquence est incluse dans le spectre cou-

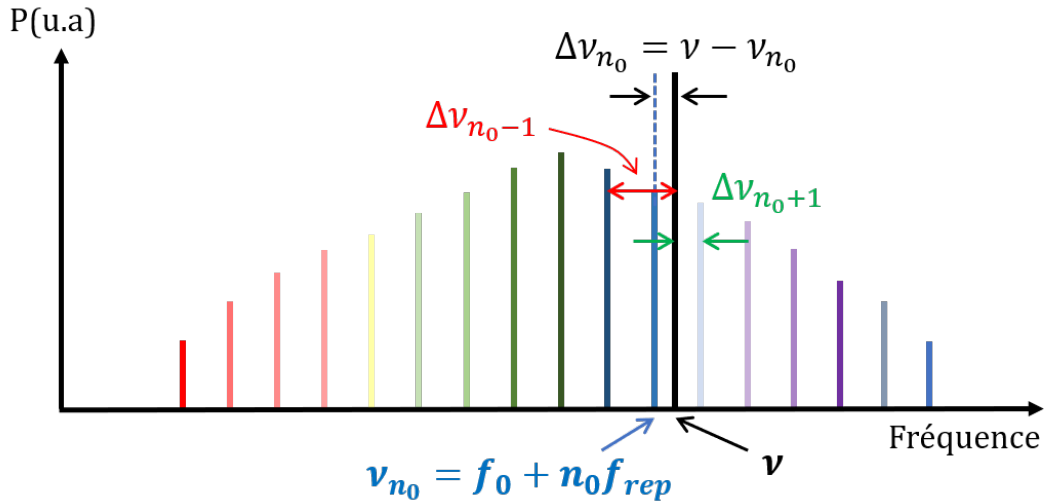


FIGURE 4.2 – Spectre du peigne de fréquence de modes  $\nu_n$  avec la fréquence  $\nu$  de la source laser qu'on veut mesurer, stabiliser sur le peigne ou l'utiliser comme référence pour stabiliser le peigne de fréquence.  $\Delta\nu_{n_0}$  est la fréquence du battement entre la source laser de fréquence  $\nu$  et la dent d'ordre  $n_0$  du peigne la plus proche de  $\nu$  par valeur inférieure.

vert par le peigne. Pour cela, il suffit de réaliser un battement entre cette source laser de fréquence  $\nu$  et les modes optiques  $\nu_n$  du peigne de fréquence, comme montré dans la figure 4.2. En mesurant la fréquence du battement radio-fréquence  $\Delta\nu_n = \nu - \nu_n$  et en connaissant la fréquence absolue du mode du peigne, on peut déduire la fréquence absolue de la source laser qui est donnée par

$$\nu = \Delta\nu_n + n f_{rep} + f_0. \quad (4.6)$$

Ce battement permet non seulement de mesurer la fréquence  $\nu$  de la source laser, mais permet aussi de stabiliser soit la fréquence  $\nu$  sur le mode  $n$  du peigne soit les modes du peigne sur la fréquence  $\nu$  de la source laser.

Nous abordons maintenant la question de la mesure de la fréquence de répétition et la fréquence d'offset du peigne de fréquence. La fréquence de répétition peut être obtenue facilement en envoyant directement le faisceau issu de la sortie du laser femtoseconde sur un photo-détecteur ayant une bande passante supérieure à la fréquence de répétition  $f_{rep}$ . Le spectre RF détecté correspond aux battements entre les modes de fréquences  $\nu_n = f_0 + n f_{rep}$  et les modes  $\nu_{n+p} = f_0 + (n+p) f_{rep}$ . Cela génère un battement à la fréquence  $f_{rep}$  quand  $p = n \pm 1$ , c'est à dire entre les dents adjacentes, et d'autres battements aux fréquences  $2f_{rep}, 3f_{rep} \dots$  comme montré dans la figure 4.3.

Pour la mesure ou la stabilisation de la fréquence de répétition, il est préférable d'utiliser le battement à une harmonique élevée de  $f_{rep}$  plutôt que le battement à  $f_{rep}$  pour améliorer la résolution.

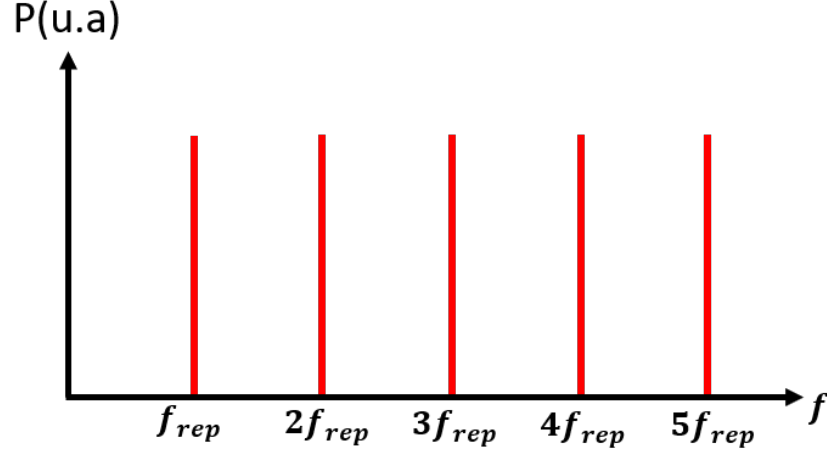


FIGURE 4.3 – Spectre RF contenant les fréquences des différents battements entre les dents du peigne. Ce spectre est obtenu en détectant directement le faisceau du laser femtoseconde par un photo-détecteur.

En revanche, la mesure de  $f_0$  est plus complexe car le décalage en phase entre les impulsions et la porteuse nécessite une mesure interférométrique, que ce soit dans le domaine temporel ou dans le domaine fréquentiel.

Le principe de la méthode de l'auto-référencement ou l'interférométrie  $f - 2f$  [24] est représenté dans la figure 4.4. Pour utiliser cette méthode, le spectre optique du peigne doit couvrir plus d'une octave en fréquence, c'est à dire que les fréquences les plus élevées doivent être deux fois plus grandes que les fréquences les plus basses. La méthode consiste à utiliser un cristal non linéaire doubleur qui réalise la somme en fréquence de toutes les paires de modes  $\nu_p$  et  $\nu_q$  du peigne et produit des modes aux fréquences

$$\nu_{p,q} = f_0 + pf_{rep} + f_0 + qf_{rep} = (p + q)f_{rep} + 2f_0. \quad (4.7)$$

Ensuite, on fait battre ces modes avec la partie haute fréquence du peigne de modes  $\nu_n = nf_{rep} + f_0$ . La mesure du signal de battement entre ces deux modes permet d'obtenir des battements aux fréquences

$$\nu_{p,q} - \nu_n = (p + q - n)f_{rep} + f_0. \quad (4.8)$$

Toutes les valeurs de  $(p + q) - n$  sont possibles. En particulier, lorsque  $(p + q) - n = 0$ , le signal de battement contient une composante à la fréquence  $f_0$ .

### 4.2.3 Notre peigne de fréquence

Le peigne de fréquence que j'ai utilisé pendant ma thèse est un laser à modes verrouillés de la société Toptica. Il est basé sur une fibre optique dopée à l'Erbium

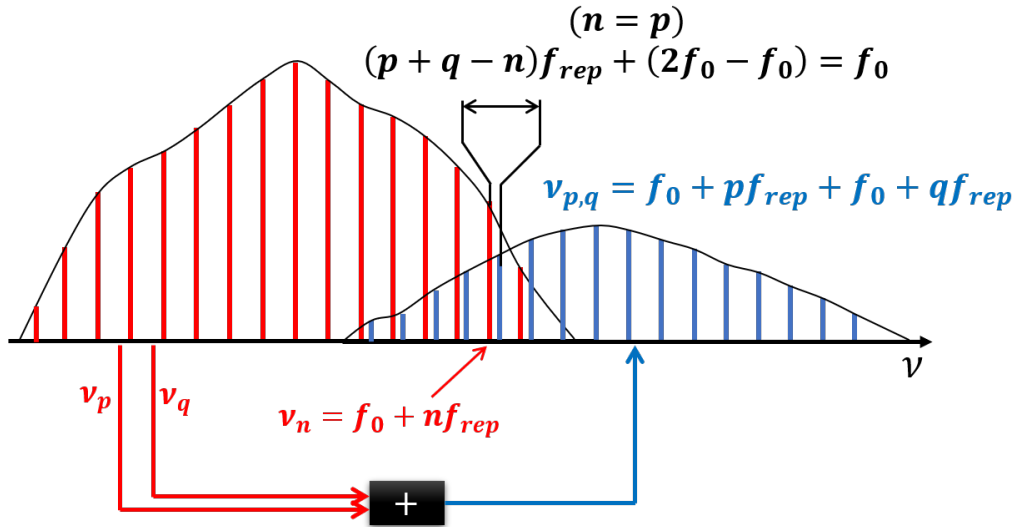


FIGURE 4.4 – Détermination de la fréquence d'offset  $f_0$  d'un peigne de fréquence couvrant un spectre de plus d'une octave. Le battement entre les modes  $\nu_{p,q}$  et  $\nu_n$  permet d'obtenir la fréquence d'offset  $f_0$ .

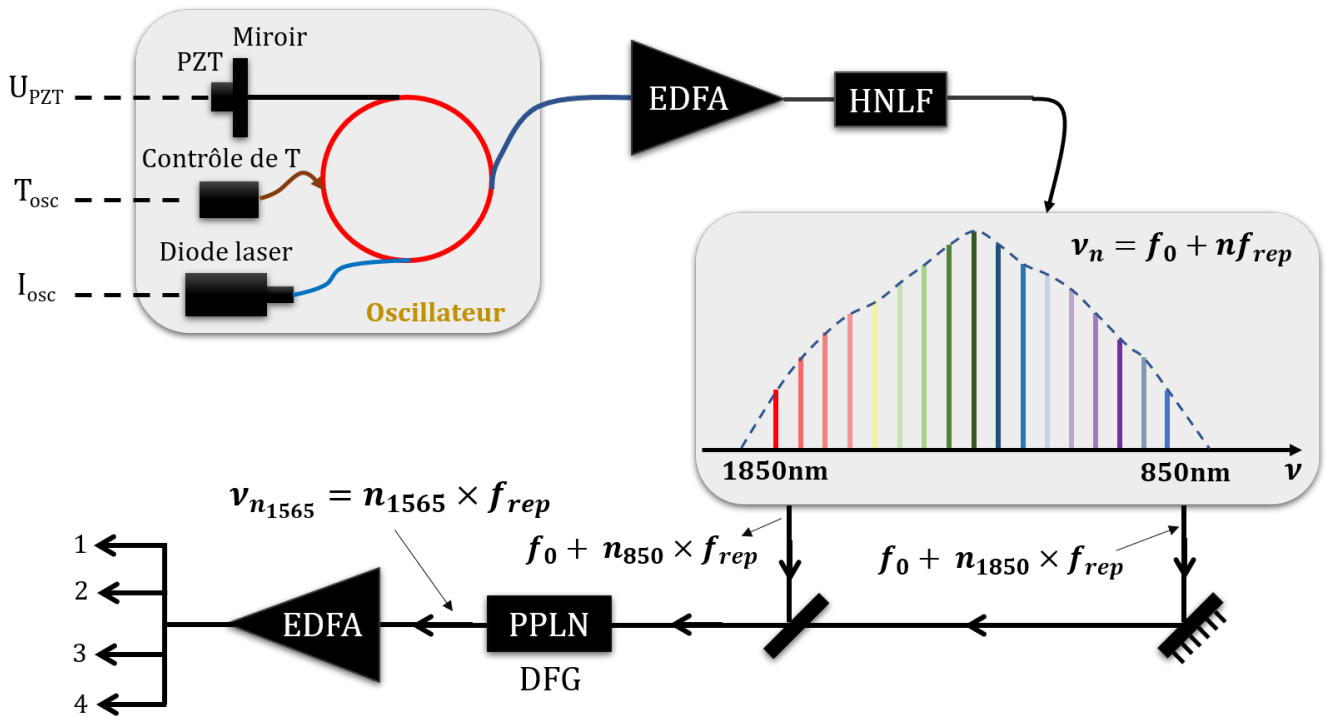


FIGURE 4.5 – Principe de génération du peigne sans fréquence d'offset. EDFA : amplificateur à fibre dopée à l'erbium, HNLF : fibre hautement non linéaire, DFG : génération de la différence de fréquence.

( $\text{Er}^{3+}$ ) stabilisé en température et contrôlable en longueur via l'étirement de la fibre par un miroir monté sur une céramique piézo-électrique. Cette fibre, constituant le

milieu amplificateur, est pompée par une diode laser comme montré dans la figure 4.5. L'oscillateur fondamental émet un train d'impulsion d'une durée de 100 fs avec un taux de répétition de 200 MHz. Notre peigne utilise la méthode de suppression optique de  $f_0$ , qui est détaillée dans le paragraphe suivant.

#### 4.2.3.1 Suppression de la fréquence d'offset $f_0$

Un problème évident avec les peignes de fréquence présenté jusqu'à présent est la fréquence d'offset  $f_0$  qui doit être connue et stable pour la mesure de la fréquence d'une source ou bien pour la stabiliser si on veut utiliser les modes du peigne comme référence. Un peigne de fréquence sans offset ( $f_0=0$ ) peut être généré en utilisant le processus de la génération de la différence de fréquence [25]. Si l'on considère deux modes de fréquence  $\nu_{n_1}$  et  $\nu_{n_2}$  avec  $n_1 > n_2$ , le processus DFG (*difference frequency generation*) génère un troisième mode à la fréquence

$$\nu_{n_1} - \nu_{n_2} = (f_0 + n_1 f_{rep}) - (f_0 + n_2 f_{rep}) = (n_1 - n_2) f_{rep}. \quad (4.9)$$

Dans ce processus non linéaire, non seulement deux modes sont impliqués, mais deux peignes de fréquence de fréquences centrales  $\nu_1$  et  $\nu_2$  ( $\nu_1 > \nu_2$ ), ce qui donne un nouveau peigne centré à la fréquence  $\nu_1 - \nu_2$ . Les fréquences des modes du peigne généré sont données par

$$\nu_{n_{DFG}} = n_{DFG} f_{rep} \quad (4.10)$$

où  $n_{DFG} = n_1 - n_2$  est un entier naturel. Ainsi, les fréquences du peigne généré par la DFG n'ont pas d'offset et la fréquence de chaque mode est donnée tout simplement par un multiple entier de la fréquence de répétition d'impulsion  $f_{rep}$ .

C'est cette méthode qui a été utilisée par l'équipe de Toptica pour retirer la fréquence d'offset de notre peigne de fréquence. Son principe expérimental est montré dans la figure 4.5. En pratique, la sortie de l'oscillateur fondamental est amplifiée avec un amplificateur à fibre dopée à l'Erbium (EDFA) et comprimée pour générer un supercontinuum couvrant plus d'une octave entre 850 nm et 1850 nm dans une fibre hautement non linéaire (HNLF). La génération de la différence de fréquence entre une partie du spectre élargi centrée à 850 nm de fréquence  $f_0 + n_{850} f_{rep}$  et une deuxième partie centrée à 1850 nm de fréquence  $f_0 + n_{1850} f_{rep}$  dans un cristal non linéaire, produit un nouveau peigne sans offset à 1565 nm dont les fréquences des modes sont données par

$$(f_0 + n_{850} f_{rep}) - (f_0 + n_{1850} f_{rep}) = n_{1565} f_{rep}, \quad (4.11)$$

où  $n_{1565} = n_{850} - n_{1850}$  est un entier de l'ordre de  $10^6$ . Dans ce cas, le peigne à différence de fréquence se comporte comme une bande élastique parfaite avec un point fixe à 0 Hz. Ceci a été montré dans l'article [25]. La puissance du spectre de sortie du module de la DFG, est à nouveau amplifiée par une fibre dopée à l'Erbium pour fournir quatre

ports de sorties identiques. Les spectres des sorties des ports sont représentés dans la figure 4.6. Le spectre de chaque sortie est centré à 1565nm avec une largeur à mi-hauteur d'environ 22 nm (soit 2,7 THz) correspondant à  $1,35 \cdot 10^4$  modes et une puissance optique totale d'environ 10 mW. La première sortie est utilisée pour faire un battement avec un signal optique ultrastable distribué par le réseau REFIMEVE pour asservir la fréquence des modes du peigne, le spectre de la deuxième est envoyé à un module d'extension pour générer un peigne à 1895 nm qui est utilisé pour asservir le laser à  $\text{CO}_2$ , la troisième est envoyée, via un lien optique, à une autre expérience dans notre laboratoire et la dernière sera utilisée prochainement pour asservir le laser à fibre à 1549 nm utilisé pour générer le faisceau de refroidissement des ions  $\text{Be}^+$ .

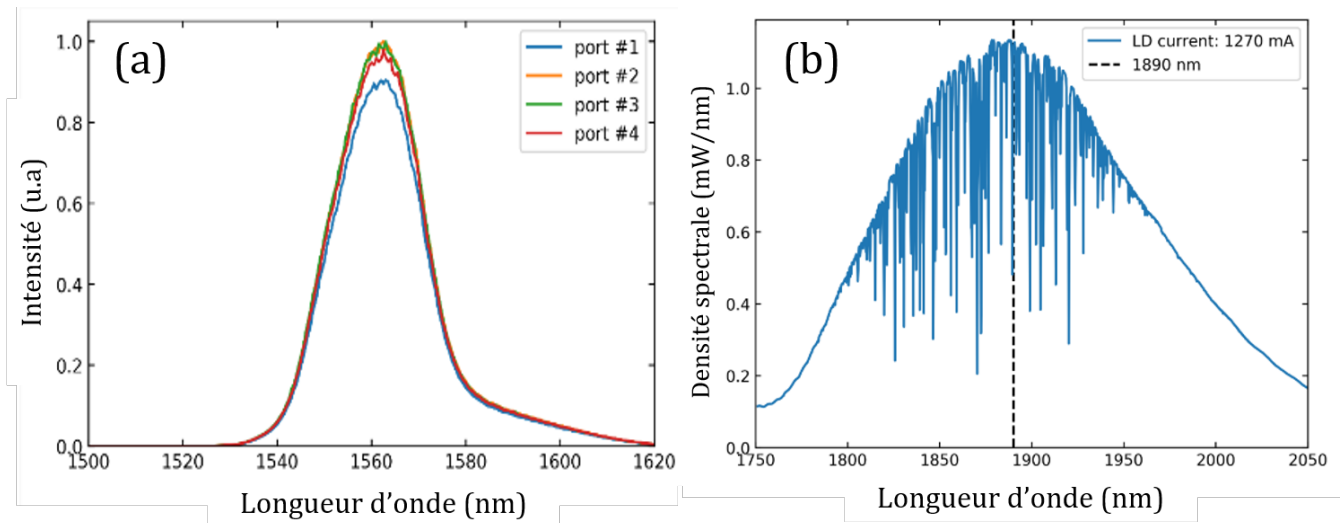


FIGURE 4.6 – (a) : Spectres des quatre sorties à 1565 nm du module DFC CORE du peigne lorsque le courant de pompe de la diode laser vaut  $I_p = 1,235$  A. (b) : Spectre de sortie de l'extension du peigne (module DFC EXT) à 1895 nm lorsque le courant de pompe de l'amplificateur de l'extension vaut  $I_p = 1,270$  A.

#### 4.2.3.2 Contrôle du peigne de fréquence

Notre peigne de fréquence offre une accordabilité de la fréquence de répétition par différents moyens. Tout d'abord, La température de l'oscillateur permet d'accorder  $f_{rep}$  sur  $\pm 10$  kHz avec une bande passante de contrôle inférieure à 1 Hz. La céramique piézo-électrique permet une variation de la fréquence de  $\pm 200$  Hz avec une bande passante de contrôle de 70 kHz. Finalement, le courant de pompe de l'oscillateur permet une accordabilité de 100 Hz et une bande passante de contrôle de 10 MHz. Cet actionneur permet d'atteindre une bande passante d'asservissement (*Control loop bandwidth*) supérieure à 400 kHz (généralement entre 450 kHz et 500 kHz).

L'asservissement du peigne utilise ces trois actionneurs en cascade, les deux premiers

pour l'asservissement sur une référence radio-fréquence, et les trois pour l'asservissement sur une référence optique (voir la section 4.4).

#### 4.2.3.3 Extension du peigne à 1895 nm

Nous disposons aussi d'un module pour l'extension du peigne. Une des sorties à 1,565  $\mu\text{m}$  du peigne est envoyée dans un amplificateur à fibre dopée à l'Erbium (EDFA), puis injectée dans une fibre hautement non linéaire (HNLF) pour créer de nouveaux modes à des longueurs d'onde plus grandes grâce à un processus non linéaire entre les modes du peigne. Le spectre du peigne est alors étendu jusqu'à  $\sim 2000$  nm et la puissance totale à la sortie du module d'extension est d'environ 360 mW lorsque le courant de pompe des diodes de l'amplificateur est  $I_p=1270$  mA. La figure 4.6.b, fournie par le constructeur, montre le spectre du peigne étendu filtré par filtre optique (Longpass filter  $> 1650$  nm). Le spectre obtenu est centré à  $\sim 1895$  nm avec une largeur spectrale de  $\sim 160$  nm et une puissance, mesurée par un détecteur thermique, d'environ 177 mW. Ce peigne étendu est utilisé pour transposer la longueur d'onde du laser à  $\text{CO}_2$ , qui est à 9,166  $\mu\text{m}$ , dans le domaine du proche infrarouge autour de 1,565  $\mu\text{m}$  via le processus de la somme de fréquence dans un cristal non linéaire suivant l'équation

$$\frac{1}{9,166 \mu\text{m}} + \frac{1}{1,895 \mu\text{m}} = \frac{1}{1,565 \mu\text{m}}, \quad (4.12)$$

ce qui permet d'asservir le laser à  $\text{CO}_2$  sur le peigne de fréquence. Cette partie sera discutée en détail dans le chapitre 5.

## 4.3 Modèle de photodétection

Dans cette section, je donne la description mathématique d'un peigne de fréquence et détaille le calcul des signaux de battement observés.

### 4.3.1 Modèle de signal

#### 4.3.1.1 Champ électrique

Dans le cas général, le champ électrique d'un peigne de fréquence dont le spectre est constitué de  $N$  modes et centré à  $\omega_0$  s'écrit, en utilisant les notations complexe, sous la forme

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \epsilon \sum_{p=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}} E_p e^{i((\omega_0 + p\omega_{rep})t - \mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r} - \phi_p)}, \quad (4.13)$$

où  $\mathbf{k}_p$  est le vecteur d'onde du mode  $p$  du peigne avec  $k_p = (\omega_0 + p\omega_{rep})/c$  et  $\omega_{rep} = 2\pi f_{rep}$  avec  $f_{rep}$  la fréquence de répétition du peigne, et  $\mathbf{r}$  la position dans l'espace. Les amplitudes  $E_p$  sont supposées réelles.

### 4.3.1.2 Flux d'énergie et signal de photodétection

Le photo-courant détecté par le photo-détecteur (supposé placé en  $\mathbf{r} = \mathbf{0}$ ) de rendement  $\eta$  est donné par

$$\begin{aligned}
 I(t) &= \frac{\eta\epsilon_0 S c |\underline{\mathbf{E}}|^2}{2} \\
 &= \frac{\eta\epsilon_0 S c}{2} \left| \sum_{p=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}} E_p e^{i((\omega_0 + p\omega_{rep})t + \phi_p)} \right|^2 \\
 &= \frac{\eta\epsilon_0 S c}{2} \sum_{p,n=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}} E_p E_n^* e^{i((p-n)\omega_{rep}t + \phi_p - \phi_n)}.
 \end{aligned} \tag{4.14}$$

Le spectre d'intensité a la structure d'un peigne avec des dents aux fréquences  $r f_{rep}$  ( $r = p - n$ ). Le photo-courant continu (DC)  $I_0$  est obtenu en prenant les termes avec  $p = n$  dans la somme, il est donc donné par

$$I_0 = \frac{\eta\epsilon_0 S c}{2} \sum_{p=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}} |E_p|^2 = \eta P. \tag{4.15}$$

On reconnaît dans cette expression  $P$ , la puissance optique totale du peigne indépendamment de la forme du spectre du peigne.

Le signal à la fréquence  $r f_{rep}$  est obtenue en prenant les termes avec  $p - n = \pm r$ . Il est donné par

$$I_r(t) = \frac{\eta\epsilon_0 S c}{2} \sum_p \left( E_p E_{p-r} e^{i(\phi_p - \phi_{p-r})} e^{ir\omega_{rep}t} + c.c. \right). \tag{4.16}$$

Si on considère que le peigne est idéal, c'est à dire que les dents ont toutes la même amplitude  $E_0$ , on peut avancer dans les calculs car l'équation 4.16 devient

$$I_r(t) = \eta\epsilon_0 S c E_0^2 \sum_p \cos(r\omega_{rep}t + (\phi_p - \phi_{p-r})). \tag{4.17}$$

Le principe d'un peigne de fréquence à modes verrouillés implique que les modes restent en phase les uns avec les autres. Dans ce cas idéal, le terme de phase ( $\phi_p - \phi_{p-r}$ ) se réduit à 0. Pour  $r$  petit, on peut négliger les effets de bords sur  $p$  dans la somme et les signaux à la fréquence  $r f_{rep}$  ont tous la même amplitude donnée approximativement par

$$I_r(t) = N\eta\epsilon_0 S c E_0^2 \cos(r\omega_{rep}t), \tag{4.18}$$

correspondant à la valeur RMS

$$I_r^{RMS} = \frac{N\eta\epsilon_0 S c E_0^2}{2} = \eta P, \tag{4.19}$$



en écrivant que la puissance totale pour le peigne idéal est  $N \frac{\epsilon_0 S c E_0^2}{2}$ .

### 4.3.1.3 Battement entre deux peignes

#### Cas deux peignes idéaux non corrélés

Nous considérons ici deux peignes idéaux avec des fréquences centrales et des taux de répétition différents. Le champ total s'écrit, y compris les phases  $\phi_{p_1}^{(1)}$  et  $\phi_{p_2}^{(2)}$

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_1 E_1 \sum_{p_1=-\frac{N_1}{2}}^{\frac{N_1}{2}} e^{i((\omega_1 + p_1 \omega_{rep_1})t - \mathbf{k}_{1,p_1} \cdot \mathbf{r} - \phi_{p_1}^{(1)})} + \epsilon_2 E_2 \sum_{p_2=-\frac{N_2}{2}}^{\frac{N_2}{2}} e^{i((\omega_2 + p_2 \omega_{rep_2})t - \mathbf{k}_{2,p_2} \cdot \mathbf{r} - \phi_{p_2}^{(2)})}. \quad (4.20)$$

Le photocourant du battement détecté à la position  $\mathbf{r}=\mathbf{0}$  contient l'intensité de chaque peigne et le terme croisé noté  $C(t)$  donné par

$$\begin{aligned} C(t) &= \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} \left( \sum_{p_1=-\frac{N_1}{2}}^{\frac{N_1}{2}} e^{i((\omega_1 + p_1 \omega_{rep_1})t - \phi_{p_1}^{(1)})} \right) \left( \sum_{p_2=-\frac{N_2}{2}}^{\frac{N_2}{2}} e^{i((\omega_2 + p_2 \omega_{rep_2})t - \phi_{p_2}^{(2)})} \right) \\ &= \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} \sum_{p_1, p_2} e^{i((p_1 \omega_{rep_1} - p_2 \omega_{rep_2})t + \phi_{p_1}^{(1)} - \phi_{p_2}^{(2)})} + c.c. \end{aligned} \quad (4.21)$$

Dans le cas général, le terme croisé contribue à de nombreuses dents avec de nombreuses fréquences différentes dans le spectre du battement, éventuellement sans structure bien identifiée.

#### Cas de peignes idéaux avec des taux de répétition identiques

Cette situation correspond à ce qui est fait pour l'asservissement du laser à  $\text{CO}_2$  sur le peigne, où on génère un battement entre un peigne décalé à  $1,5 \mu\text{m}$  généré par la somme de fréquence et le peigne original à  $1,5 \mu\text{m}$ . Dans ce cas, le terme croisé s'écrit

$$C(t) = \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} \sum_{p_1, p_2} e^{i((p_1 - p_2) \omega_{rep} t + \phi_{p_1}^{(1)} - \phi_{p_2}^{(2)})} + c.c. \quad (4.22)$$

Il présente une structure en peigne avec des pics aux fréquences  $\omega_1 - \omega_2 + r \omega_{rep}$ . Le signal à la fréquence  $\omega_1 - \omega_2$  est donné par les termes avec  $p_1 = p_2$

$$C_{\omega_1 - \omega_2}(t) = \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} \sum_{p_1, p_2} e^{i(\phi_{p_1}^{(1)} - \phi_{p_2}^{(2)})} + c.c. \quad (4.23)$$

Pour calculer cette amplitude, nous avons besoin d'hypothèses sur les phases  $\phi_{p_1}^{(1)}$  et  $\phi_{p_2}^{(2)}$ . En prenant le peigne 1 supposé idéal comme référence de phase, on a  $\phi_{p_1}^{(1)}=0$ , et en

supposant que le peigne 2 se propage, tout simplement, sur une distance  $\Delta L$  dans une fibre d'indice de réfraction  $n$  ayant une dispersion négligeable sur l'étendue spectrale du peigne, on a

$$\phi_p^{(1)} - \phi_p^{(2)} = 0 - 2\pi \frac{n\Delta L \omega_2 + q_1 \omega_{rep}}{c} = -\frac{n\Delta L}{c} \omega_2 + q_1 \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}. \quad (4.24)$$

Ces hypothèses permettent de calculer la somme de l'équation 4.23 qui donne

$$\begin{aligned} C_{\omega_1 - \omega_2}(t) &= \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} e^{i \frac{n\Delta L}{c} \omega_2} e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} \frac{\sin\left(\frac{N+1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}{\sin\left(\frac{1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)} + c.c. \\ &= \eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \frac{\sin\left(\frac{N+1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}{\sin\left(\frac{1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)} \cos\left(\left(\omega_1 - \omega_2\right)t - \frac{n\Delta L}{c} \omega_2\right). \end{aligned} \quad (4.25)$$

Le signal à la fréquence angulaire  $\omega = \omega_1 - \omega_2$  a une phase constante égale à  $\frac{n\Delta L}{c} \omega_2$ . La puissance moyenne du signal de battement détectée par le photo-détecteur est :

$$P_\omega = \frac{\eta \epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} \frac{\sin\left(\frac{N+1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}{\sin\left(\frac{1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}. \quad (4.26)$$

La dépendance de puissance en longueur de fibre  $\Delta L$  a la forme d'une fonction de diffraction avec une périodicité en longueur optique  $\overline{\Delta L} = \frac{c}{f_{rep}}$ . L'acceptance en longueur optique de fibre est donnée par la largeur de la fonction de diffraction et vaut

$$\delta(n\Delta L) = \frac{2c}{(N+1)f_{rep}}. \quad (4.27)$$

Ce calcul montre que pour observer le battement entre deux peignes de même fréquence de répétition, il faut accorder très finement l'écart de chemin optique entre les deux chemins suivis par les deux peignes modulo la périodicité  $\overline{\Delta L}$ .

Pour  $N=10^4$ ,  $f_{rep}=200$  MHz et  $n=1,5$ , on trouve  $\delta(n\Delta L) = 100 \mu\text{m}$  et  $\overline{\Delta L} = 1,5$  m correspond à une longueur de 1 m de fibre.

En pratique, il faut utiliser une ligne à retard optique dont on ajuste le délai en optimisant le signal de battement.

### Cas de peignes non idéaux

Sans l'hypothèse des peignes idéaux, le calcul complet analytique de signaux de battement n'est pas possible. La formule 4.16 montre que l'amplitude du battement à la fréquence  $r f_{rep}$  est inférieure à l'amplitude obtenue dans le cas idéal et peut s'écrire

$$I_r^{RMS} = \gamma I_r^{RMS, idéal} \quad (4.28)$$

où  $\gamma$  est le facteur de contraste qui est inférieur strictement à 1.

De même pour le terme de battement entre les deux peignes. La comparaison de la théorie idéale aux mesures de battement donne accès aux facteurs de contraste.

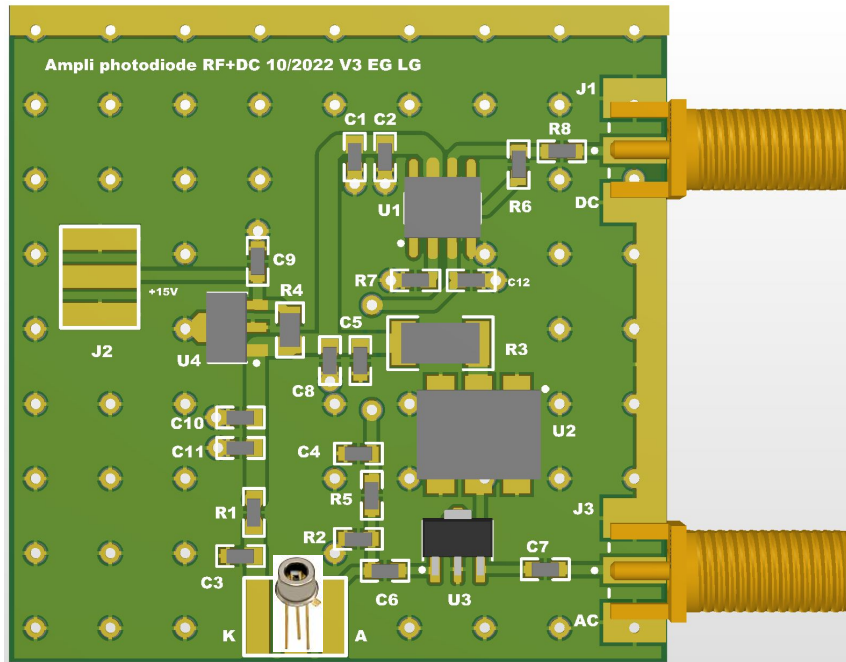
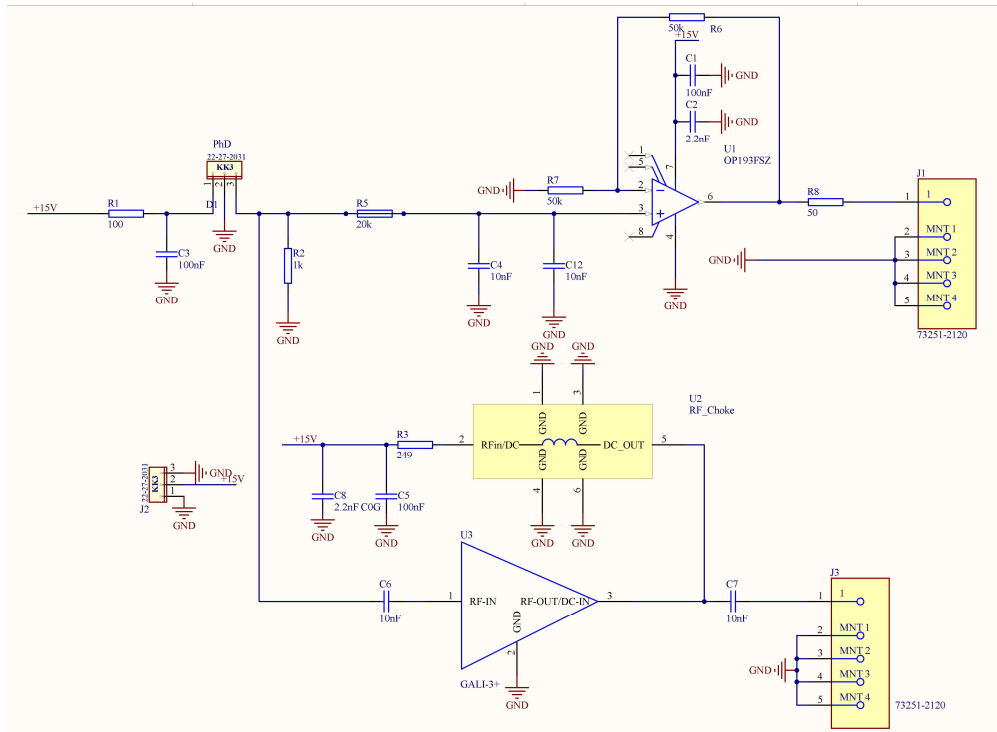


FIGURE 4.7 – En haut : Schéma du circuit électronique permettant de mesurer la composante continue et la composante RF du signal détecté par la photodiode. En bas : Vue 2D des composants électroniques intégrés dans un circuit imprimé (carte PCB).

### 4.3.2 Mesure de battement à 200 MHz

Afin d'analyser, expérimentalement, la dépendance du photocourant  $I_{200}$  et la puissance  $P_{200}$  du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance  $P$  du peigne, j'ai mis en place un système de photodétection comme illustré dans la figure 4.7. Ce système est composé d'une photodiode de type InGaAs fournie par la société Shengshi optical, d'une bande passante de 1 GHz et intégrée dans un circuit électronique spécifique. Ce circuit électronique a pour fonction de séparer le signal continu (DC) du signal radiofréquence (RF) détectés par la photodiode.

La partie RF est directement couplé à un amplificateur RF à travers un condensateur. La partie DC du signal est mesurée par un montage amplificateur non inverseur de gain 2.

#### 4.3.2.1 Mesure du rendement de photodétection

Pour évaluer le rendement  $\eta$  de la photodiode, nous exploitons la composante continue (DC) du circuit. La tension  $U_{DC}$ , qui dépend du photocourant  $i_{ph}$ , est exprimée par (Figure 4.7) :

$$\begin{aligned} U_{DC} &= 2R_2 i_{ph} \\ &= 2R_2 \eta P \end{aligned} \quad (4.29)$$

La figure 4.8 montre l'évolution de la tension continue  $U_{DC}$  en fonction de la puissance

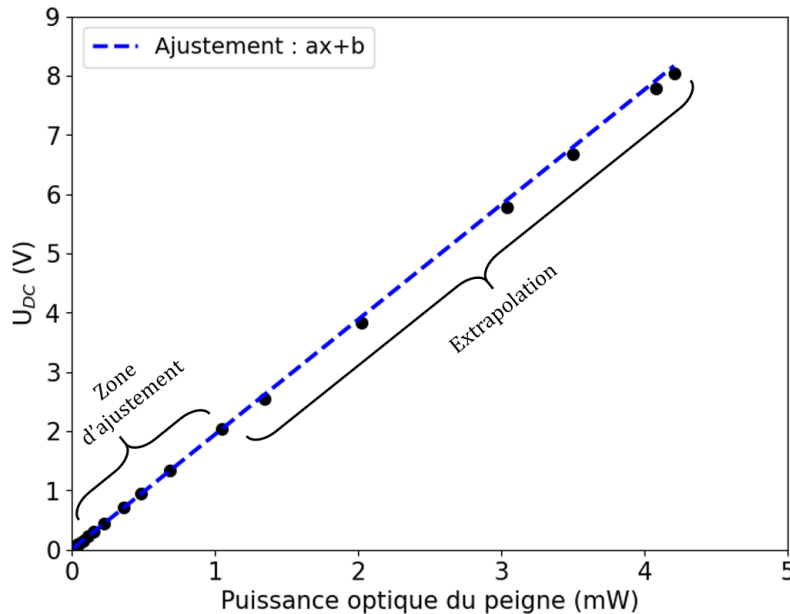


FIGURE 4.8 – Variation de la tension continu  $U_{DC}$  en fonction de puissance optique du peigne. En traits bleus : Ajustement linéaire avec la fonction  $ax + b$  ( $a=1,94$  V/mW,  $b \simeq 0$ ).

issue directement du module du peigne à  $1,565\mu\text{m}$ , en la faisant varier entre 0 et 4 mW, correspondant à la puissance maximale spécifiée par le fabricant, avec un atténuateur fibré. L'ajustement linéaire (représenté par les traits bleus) a été effectué pour des puissances optiques inférieures à 1 mW. Il montre une légère saturation de la photodiode à partir de 2 mW. Le coefficient directeur obtenu à partir de cet ajustement est égal à 1,94 V/mW. À partir de ce coefficient, nous pouvons déduire le rendement  $\eta_{exp}$  de la photodiode, qui est égale à 0,97 A/W. Cette valeur est très proche de celle spécifiée par le fabricant, qui est 0,95 A/W pour  $\lambda=1550$  nm.

### 4.3.2.2 Modèle et mesure de bruit

Dans la partie radiofréquence du circuit, le signal détecté par la photodiode est amplifié par un amplificateur RF (minicircuit : Gali-3+) de gain  $G_{dB}=23,1$  dB à 200 MHz. Le battement à 200 MHz est mesurée à l'aide d'un analyseur de spectre Rohde et Schwarz PFC1500, qui dispose d'une bande passante de 1,8 GHz. Dans cette partie je vais présenter les différentes sources de bruit susceptibles de contribuer au niveau de bruit du signal de battement à 200 MHz. La première source est le facteur de bruit  $F$  de l'amplificateur, qui est défini par [34]

$$\begin{aligned} F &= \frac{S_{in}/N_{in}}{S_{out}/N_{out}} \\ &= 1 + \frac{N_a}{GN_{in}}, \end{aligned} \quad (4.30)$$

où  $S_{in}(N_{in})$  et  $S_{out}(N_{out})$  sont respectivement les niveaux de signal (bruit) à l'entrée et à la sortie de l'amplificateur,  $N_a$  est le bruit ajouté par l'amplificateur lui-même,  $G$  est le gain de l'amplificateur. Le facteur  $F$  est souvent exprimé en dB en terme de noise figure par  $NF(dB) = 10 \log(F)$ . Le bruit ajouté par l'amplificateur est alors donnée par

$$\begin{aligned} N_a &= (F - 1)GN_{in} \\ &= (F - 1)Gk_bTB, \end{aligned} \quad (4.31)$$

où  $B$  est la bande passante du système et  $k_b$  la constante de Boltzmann ( $1,38 \cdot 10^{-23} \text{J.K}^{-1}$ ). Pour l'amplificateur Gali-3+,  $NF=2,6$  dB, correspondant à un facteur  $F \simeq 1,8$ .

La deuxième source de bruit à considérer est le bruit thermique, connu également sous le nom de bruit de Johnson-Nyquist. Il résulte de l'agitation thermique des porteurs de charge, en l'occurrence des électrons, à l'intérieur d'une résistance maintenue en équilibre thermique. Ce phénomène se produit de manière intrinsèque, indépendamment de toute tension appliquée. La puissance de ce bruit aux bornes d'une résistance (dans notre cas, la résistance équivalente donnée par  $R_{eq} = \frac{R_2 R_{in}}{R_2 + R_{in}}$  où  $R_{in}$  est la résistance

d'entrée de l'amplificateur) est donnée par

$$P_{thermique} = k_b T B. \quad (4.32)$$

La troisième source de bruit à considérer est le NEP (*noise equivalent power*) du photodétecteur, qui se définit comme la puissance du signal d'entrée  $P_{in}$  nécessaire pour atteindre un rapport signal sur bruit (S/N) de 1 dans une bande passante de sortie de 1 Hz [35]. En général, le NEP augmente avec la surface  $A$  active du photodétecteur et est donné par [36]

$$NEP = \frac{P_{in} A}{\frac{S}{N} \sqrt{B}}, \quad (4.33)$$

où  $P_{in}$  est exprimée en  $W/cm^2$ . Le NEP quantifie la puissance minimale détectable par la racine carrée de la bande passante du système ( $W/\sqrt{Hz}$ ). En d'autres termes, c'est une mesure du signal optique le plus faible pouvant être détecté. Par conséquent, il est souhaitable d'avoir un NEP aussi bas que possible, car une faible valeur de NEP correspond à un niveau de bruit plus bas et donc un photodétecteur plus sensible. La photodiode que nous utilisons a un NEP de  $4,5 \cdot 10^{-15} W/\sqrt{Hz}$ . En prenant en considération le rendement de la photodiode ( $\eta \simeq 1$ ), cela équivaut à un courant de NEP de  $4,5 \cdot 10^{-15} A/\sqrt{Hz}$ . La puissance de ce bruit aux bornes de la résistance  $R_{eq}$  est donnée par

$$P_{NEP} = R_{eq} (NEP)^2 B. \quad (4.34)$$

La dernière source est le bruit de photon, connu également sous le nom de shot noise ou bruit quantique. C'est une forme de bruit aléatoire qui découle de la nature discrète des photons. Ce type de bruit se manifeste lors de la détection de photons individuels, car leur arrivée n'est pas régulière, mais plutôt aléatoire en raison des propriétés quantiques de la lumière. La puissance de ce bruit aux bornes de la résistance  $R_{eq}$  est donnée par

$$\begin{aligned} P_{photon} &= 2R_{eq} e i_{ph} B \\ &= 2R_{eq} e \eta P B, \end{aligned} \quad (4.35)$$

où  $i_{ph}$  est le photocourant généré par le photodétecteur et  $e=1,6 \cdot 10^{-19} C$  est la charge de l'électron.

Finalement, la puissance totale du bruit à la sortie de l'amplificateur est exprimée par

$$\begin{aligned} N_{out} &= N_a + G(P_{NEP} + P_{thermique} + P_{photon}) \\ &= G(F k_b T + R_{eq} (NEP)^2 + 2R_{eq} e i_{ph}) B. \end{aligned} \quad (4.36)$$

où  $G$  est le gain linéaire de l'amplificateur. Pour une température  $T=300 K$ , une bande passante  $B=1 Hz$ , une résistance équivalente  $R_{eq}=100 \Omega$  et un photocourant  $i_{ph}=1 mA$ ,

Les valeurs des puissances des bruits mentionnés précédemment sont les suivantes :

$$\begin{aligned} Fk_bTB &= 7,45 \cdot 10^{-18} \text{ mW} = -171,3 \text{ dBm}, \\ R_{eq}(NEP)^2 &= 2 \cdot 10^{-24} \text{ mW} = -273 \text{ dBm}, \\ 2R_{eq}e_{i_{ph}}B &= 3,2 \cdot 10^{-17} \text{ mW} = -165 \text{ dBm}. \end{aligned}$$

Il est clair que pour cette valeur de  $R_{eq}$ , la valeur du NEP de la photodiode est insignifiante par rapport aux autres sources de bruit, et par conséquent, nous excluons ce bruit de l'équation 4.36 dans la suite de notre analyse.

La figure 4.10 montre l'évolution de la puissance du bruit du signal de battement à

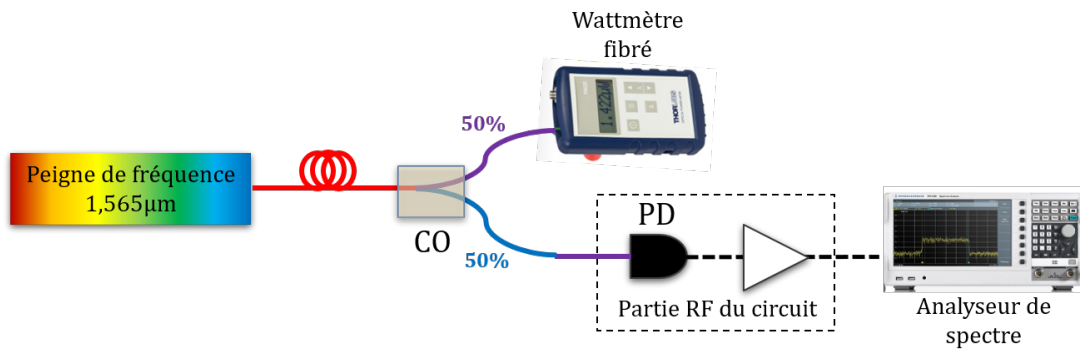


FIGURE 4.9 – Montage expérimental pour la mesure de la puissance électrique du bruit du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance optique du peigne.

200 MHz, mesuré avec un analyseur de spectre (RBW=100 kHz) comme montré dans la figure 4.9, en fonction de la puissance optique du peigne. Dans la plage des puissances optiques comprises entre 0 et 0,02 mW, le niveau de bruit reste constant à une valeur moyenne  $P_{floor}=3,79 \cdot 10^{-11}$  mW. Selon l'équation 4.36, ce plancher de bruit doit être attribué au terme  $GFk_bTB$ . En d'autres termes, dans cette plage, le bruit de photon qui dépend de la puissance du peigne, est inférieur au niveau de bruit donné par le terme  $GFk_bTB$ . A partir de cela, on peut déduire le gain effectif de la partie RF du circuit, qui est donné par

$$G_{eff} = \frac{P_{floor}}{Fk_bTB} = 50,8,$$

correspondant à un gain effectif en dB  $G_{eff,dB}=17$  dB. Cette valeur est inférieure de 6 dB par rapport au gain de l'amplificateur donné par le constructeur. Cette différence s'explique par les pertes qui se produisent dans le circuit à cause d'une adaptation d'impédance imparfaite entre les composantes et les pistes. À partir de 0,2 mW, le bruit de photon devient significatif par rapport à  $GFk_bTB$ , et il évolue linéairement en fonction de la puissance optique du peigne avec un coefficient directeur  $a=2,68 \cdot 10^{-11}$  mW<sub>électrique</sub>/mW<sub>optique</sub>. Nous utilisons ce résultat pour estimer la valeur



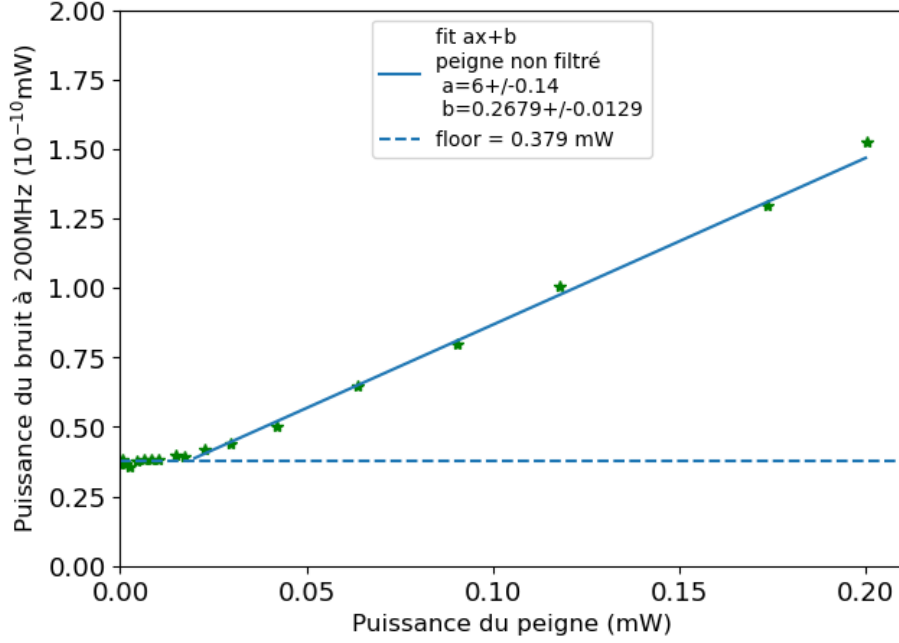


FIGURE 4.10 – Puissance de bruit du signal de battement en fonction de la puissance du peigne. Le bruit est mesuré avec l’analyseur de spectre (RBW = 100 kHz). L’ajustement avec la fonction  $ax + b$  donne  $a = (6 \pm 0, 14) \cdot 10^{-10}$  et  $b = (0, 2679 \pm 0, 0129) \cdot 10^{-10}$  mW.

de la résistance équivalente  $R_{eq}$ , qui peut être difficile à déterminer en raison de la complexité de l’évaluation de la résistance d’entrée  $R_{in}$  de l’amplificateur. En utilisant l’équation 4.35, on voit que la pente  $a$  et  $R_{eq}$  sont liés par

$$R_{eq} = \frac{a}{2e\eta B} = 377 \Omega. \quad (4.37)$$

Cette valeur déterminée expérimentalement est inférieure à la résistance  $R_2$  du circuit de la figure 4.7, et permet d’estimer l’impédance d’entrée à 200 MHz du circuit qui joint la sortie de la photodiode à l’amplificateur Gali-3+. On trouve  $R_{in}=605 \Omega$ .

### 4.3.2.3 Mesure de la puissance du battement à 200 MHz

La théorie prévoit qu’à la sortie de l’amplificateur, la puissance du signal de battement à 200 MHz est donnée, en utilisant l’équation 4.19, par

$$\begin{aligned} P_{200} &= GR_{eq}(i_{ph,200})^2 \\ &= GR_{eq}(\eta P)^2. \end{aligned} \quad (4.38)$$

Le peigne n’étant pas idéal, nous incorporons le facteur de contraste des franges d’interférence  $\gamma$ . Ce facteur prend en compte l’incohérence entre les dents du peigne qui

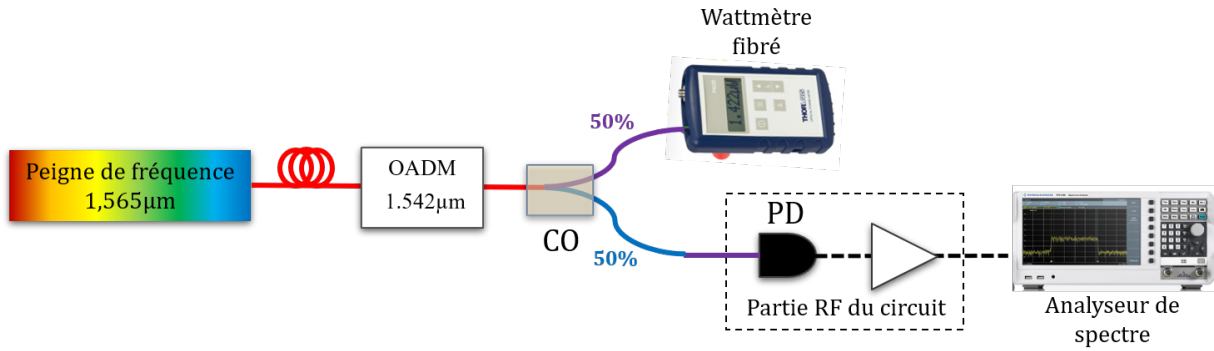


FIGURE 4.11 – Montage expérimental pour la mesure de la puissance électrique du bruit du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance optique du peigne filtré par un filtre OADM.

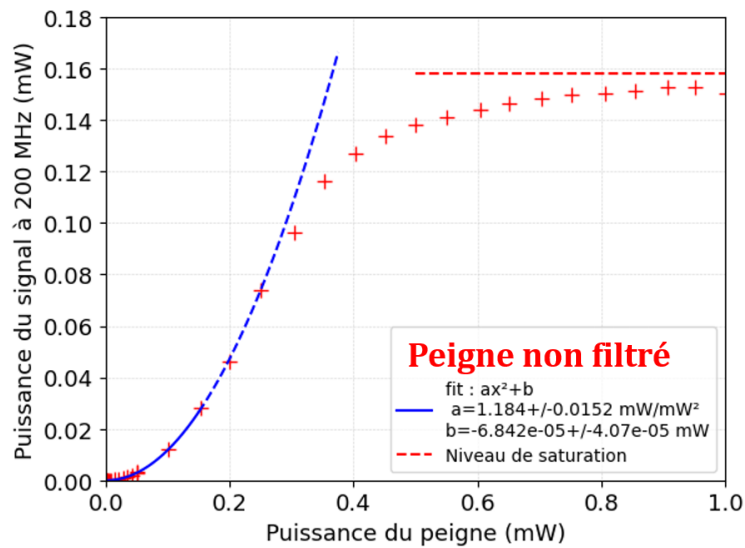


FIGURE 4.12 – Puissance du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance optique du peigne non filtré de largeur 22 nm.

contribuent au battement. Ainsi, l'équation 4.38 devient

$$P_{200} = GR_{eq}(\gamma\eta P)^2. \quad (4.39)$$

Nous utilisons le même dispositif expérimental, tel qu'illustré dans la figure 4.9, pour mesurer la puissance du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance optique du peigne. Cette mesure est présentée dans la figure 4.12 qui illustre la variation de cette puissance en fonction de la puissance optique du peigne, que nous faisons varier jusqu'à 1 mW. La figure révèle une saturation de la photodiode à partir d'une puissance de 0,3 mW, mettant en évidence la nécessité de ne pas appliquer une puissance excessive pour éviter la saturation de la photodiode. D'autre part, pour des puissances optiques

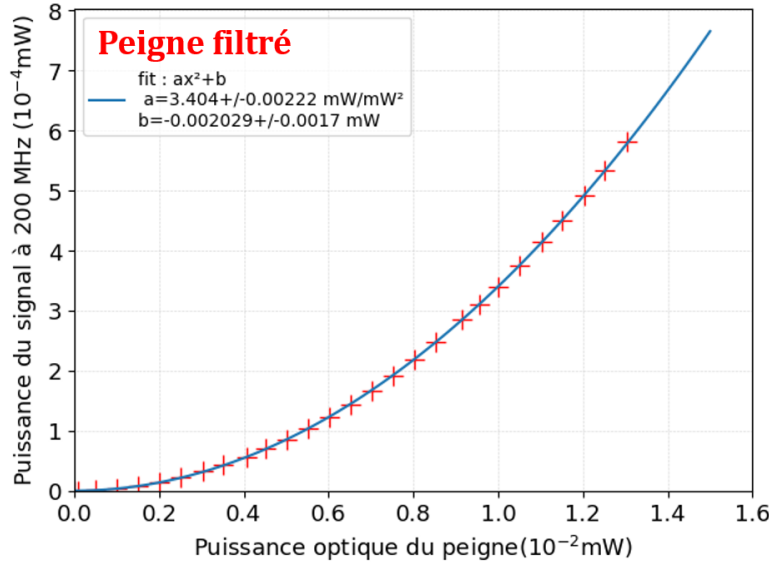


FIGURE 4.13 – Puissance du signal de battement à 200 MHz en fonction de la puissance optique du peigne filtré avec un filtre OADM centré à 1542 nm et d’une largeur de 100 GHz.

faibles, elle met en évidence une variation quadratique, comme indiqué par l’ajustement, ce qui en parfait accord avec les prédictions de l’équation 4.39. L’ajustement donne un préfacteur

$$a = \eta^2 \gamma^2 R_{eq} G_{eff} = 1,18 \text{ mW}/(\text{mW})^2. \quad (4.40)$$

Avec les valeurs  $R_{eq}$  et  $G_{eff}$  obtenues précédemment, nous pouvons déduire le facteur de contraste des franges  $\gamma_{nonfiltré}$  du peigne non filtré, qui est égal à 0,25. Afin d’accroître le facteur de contraste et ainsi d’améliorer le rapport signal sur bruit du signal de battement, il faut réduire le nombre des dents qui contribuent au battement, ce qui réduit l’effet du déphasage qu’il y a entre deux dents adjacentes. Pour cela, j’ai ajouté à la sortie du peigne un filtre OADM (*optical add-drop multiplexer*) centré à 1542 nm et d’une largeur de 100 GHz comme montré dans la figure 4.11. Ce filtre laisse passer environ 500 dents. La figure 4.13 montre la variation de la puissance du signal de battement en fonction de la puissance optique du peigne filtré, que nous faisons varier jusqu’à 13  $\mu\text{W}$ . L’ajustement donne un préfacteur  $a = 3,4 \text{ mW}/(\text{mW})^2$ , correspondant à un facteur de contraste  $\gamma_{filtré} = 0,424$ .

## 4.4 Asservissement du peigne de fréquence

### 4.4.1 Asservissement sur une référence radio-fréquence

La manière la plus simple pour stabiliser les modes optiques du peigne est d’asservir sa fréquence de répétition sur un signal de référence dans le domaine RF.

#### 4.4.1.1 Référence RF à 10 MHz

Le signal radio-fréquence qu'on utilise comme référence pour stabiliser le peigne de fréquence provient du LNE-SYRTE à l'observatoire de Paris [26]. A cet endroit, un signal très stable à la fréquence 100 MHz généré par un maser à hydrogène est utilisé pour moduler l'intensité d'une diode laser à  $1,3 \mu\text{m}$ . Le faisceau résultant est transmis, via une fibre optique de 3 km de longueur, à notre laboratoire où on extrait le signal à la fréquence 100 MHz par une photodiode. Le signal à 100 MHz divisé par 10, est utilisé pour asservir à long terme un oscillateur à quartz ultrastable (la stabilité du quartz est donnée dans la figure 4.16). Les synthétiseurs et les compteurs que nous utilisons dans notre expérience sont tous référencés sur ce signal afin que nos mesures de fréquence soient bien référencés à la définition de l'unité SI (Système International) correspondante.

Il faut noter que le maser du LNE-SYRTE n'est pas référencé aux horloges atomiques qui réalisent la seconde et sa fréquence diffère légèrement de 100 MHz. Le 10 MHz n'est donc pas exact mais s'écarte de la valeur idéale de moins de  $10^{-14}$  en valeur relative, soit  $0,1 \mu\text{Hz}$ , ce qui n'a pas d'incidence sur les mesures que nous faisons.

#### 4.4.1.2 Asservissement de la fréquence de répétition du peigne

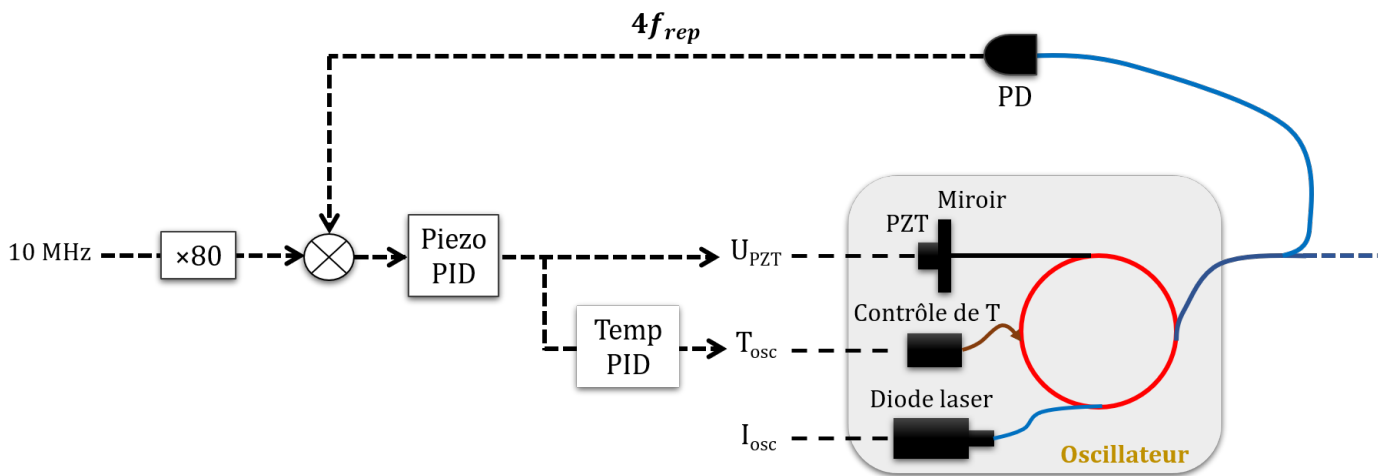


FIGURE 4.14 – Schéma d'asservissement de la fréquence de répétition du peigne de fréquence sur une référence RF à 10 MHz. PID : proportionnel-intégrateur-dérivateur, PD : photo-détecteur.

Le principe d'asservissement de la fréquence de répétition du peigne est représenté dans la figure 4.14. La fréquence  $f_{rep}$  qui est d'environ 200 MHz peut être déterminée en détectant le battement entre les modes voisins du peigne. En comparant ce battement avec une fréquence désirée, via un mélangeur ou un détecteur phase/fréquence, et en extrayant la partie basse fréquence, on peut générer un signal d'erreur permettant d'asservir la fréquence de répétition. Dans notre cas, une partie de la puissance

à la sortie de l'oscillateur fondamental est envoyée à un photodétecteur pour extraire le battement à la fréquence  $4f_{rep}$ . Ce battement est mixé, via un mélangeur, avec un signal de référence à 800 MHz généré à partir du signal à 10 MHz du LNE-SYRTE pour produire un signal d'erreur. Le choix de la quatrième harmonique de  $f_{rep}$  pour l'asservissement du peigne de fréquence permet d'augmenter la précision et d'amplifier de manière naturelle le signal d'erreur d'un facteur 4. Le signal d'erreur est ensuite envoyé à un circuit constitué de deux modules PID (proportionnel-intégrateur-dérivateur) de gains ajustables intégrés au peigne pour rétroagir sur la température et le piézo de la fibre. Comme nous l'avons dit précédemment, l'accordabilité de l'actionneur piézo est limité à  $\pm 200$  Hz sur la fréquence de répétition du peigne. Cet actionneur arrive donc à saturation lorsque la fréquence  $f_{rep}$  subi une dérive de plus de 200 Hz. Pour désaturer les corrections avec le piézo, une partie du signal à la sortie du module PID du piézo est envoyée au deuxième module PID (Figure 4.14) permettant de contrôler la température avec une accordabilité de  $\pm 10$  kHz sur la fréquence  $f_{rep}$ .

#### 4.4.1.3 Caractérisation de l'asservissement RF

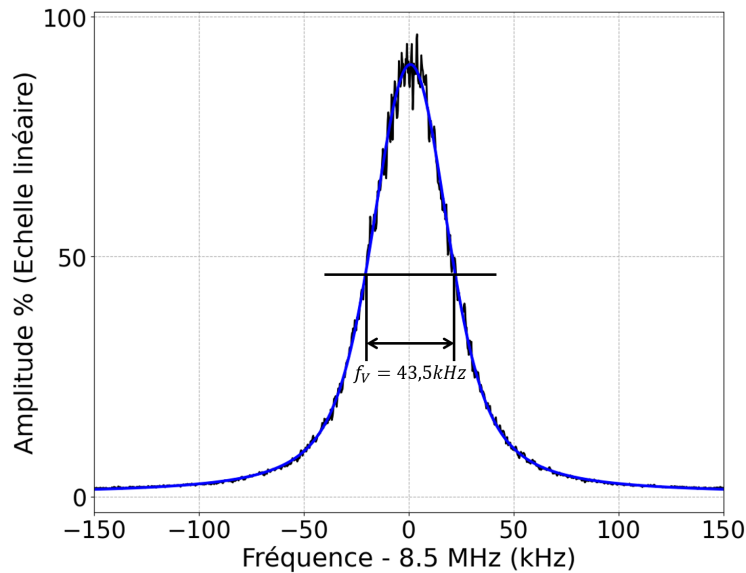


FIGURE 4.15 – Battement à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$  (Figure 4.21) entre le signal optique de référence et le mode le plus proche lorsque le peigne est asservi sur le signal de référence à 10 MHz. Gains PID du piézo : P=0,1, I=0,2, D=0 (u.a). Analyseur de spectre : Span : 300 kHz, RBW = 3 kHz, VBW = 3 kHz, Moyenne sur 20 spectres.

Pour caractériser la stabilité du peigne de fréquence asservi sur la référence RF, nous disposons d'un signal optique ultrastable à 1542 nm (Refimeve :  $f=194\,400\,008.500$  MHz). La figure 4.15 montre le battement RF à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0} \approx 8,5$  MHz entre le mode  $n_0=972\,000$  du peigne et le signal optique ultrastable, lorsque la boucle de rétroaction

de l'asservissement RF est fermée. Le principe de mesure de ce battement sera décrit plus loin dans ce chapitre. L'ajustement est réalisé en utilisant un profil de Voigt, qui résulte de la convolution d'un profil gaussien et d'un profil Lorentzien. Il met en évidence une parfaite concordance entre le profil du battement et le profil de Voigt, avec les largeurs à mi-hauteur  $f_L=24,3$  kHz et  $f_G=28,3$  kHz pour les contributions lorentzienne et gaussienne à la largeur à mi-hauteur du profil de Voigt. Numériquement, on trouve  $f_V \approx 43,5$  kHz, une valeur en accord avec celle donnée par la relation [27]

$$f_V \approx 0,5346f_L + \sqrt{0,2166f_L^2 + f_G^2}, \quad (4.41)$$

et qui est conforme aux spécifications du fournisseur TOPTICA (largeur  $\leq 50$  kHz). Comme notre peigne ne possède pas d'offset de fréquence (équation 4.3), la stabilité re-

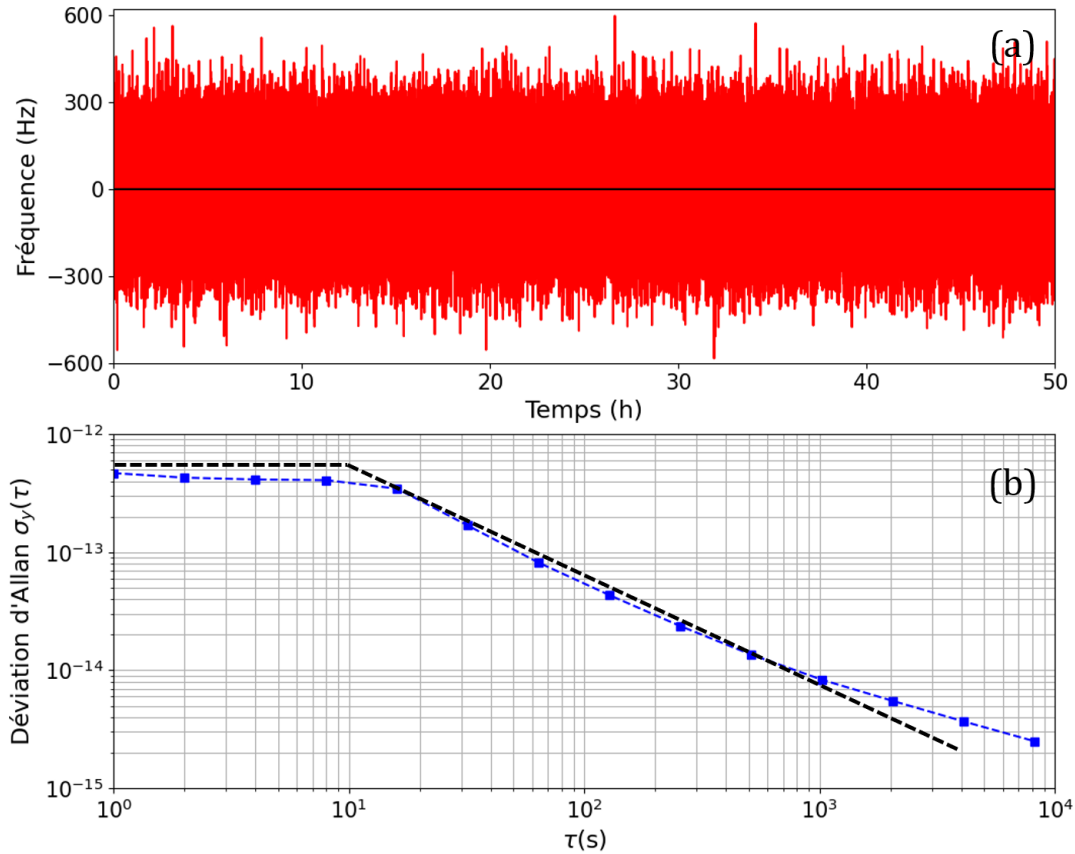


FIGURE 4.16 – a) : Fluctuations de la fréquence du signal de battement optique, autour de 8,5 MHz, entre le mode  $n_0=972\,000$  du peigne et un signal optique ultrastable, mesurées par rapport à sa fréquence moyenne. b) : Déviation d'Allan, relative à 194 THz, de la fréquence du battement optique. PID piézo : P=0.1,I=0.2. La courbe en tirets représente la stabilité relative estimée du signal de référence à 10 MHz.

lative des modes  $\nu_n$  du peigne est liée directement à celle de sa fréquence de répétition

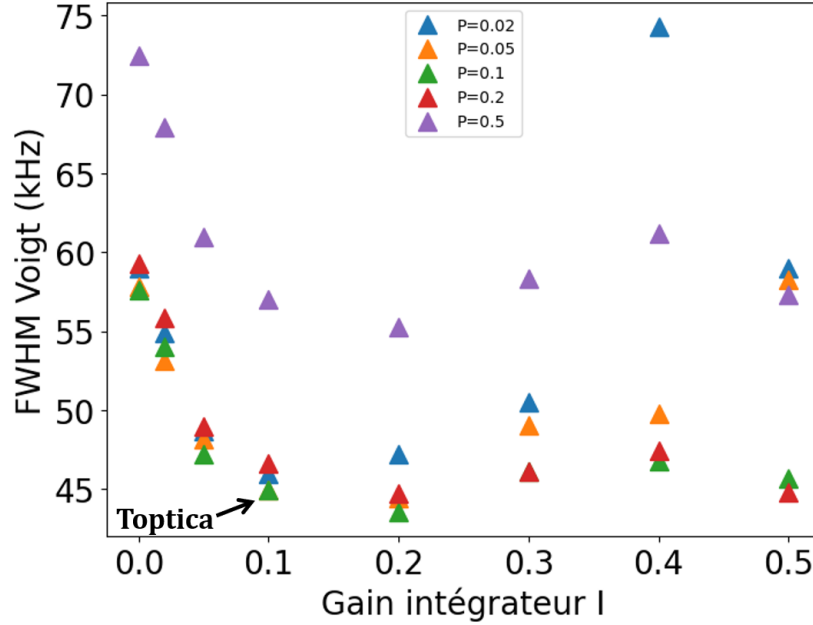


FIGURE 4.17 – Largeur à mi-hauteur du signal de battement entre le signal optique de référence et le mode le plus proche (battement à  $\Delta\nu_{n_0}$ ) du peigne asservi sur le signal de référence RF en fonction des gains P et I du piézo.

par

$$\frac{\delta\nu_n}{\nu_n} = \frac{\delta f_{rep}}{f_{rep}}. \quad (4.42)$$

L'asservissement de la fréquence de répétition du peigne permet alors de transférer les caractéristiques spectrales du signal RF de référence aux modes optiques du peigne. Le transfert de stabilité peut être vérifié en mesurant le battement optique à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$  avec un compteur (Keysight 53220A). Le quartz du compteur est référencé lui aussi sur le signal à 10 MHz utilisé pour la synthèse de la fréquence à 800 MHz. La figure 4.16.a montre un enregistrement de la fréquence du signal de battement optique, autour de 8,5 MHz, auquel on soustrait sa valeur moyenne. L'écart-type d'Allan de la fréquence de ce battement relative à la fréquence optique ( $\sim 194$  THz) est donnée dans la figure 4.16.b. Entre 1 et 10 s, la stabilité de la fréquence du battement optique, c'est à dire celle du mode du peigne, est d'environ  $4,7 \cdot 10^{-13}$  à un temps d'intégration de 1 s. Au delà de 10 s, elle décroît en  $\tau^{-1}$ . Le comportement de cette stabilité coïncide avec celui de la référence RF à 10 MHz. Cependant, lorsque la fréquence de répétition  $f_{rep}$  est stabilisée sur une référence RF, nous imprimons le bruit de phase de la référence RF sur les modes optiques du peigne, ce qui peut augmenter leur largeur. La figure 4.17 montre la variation de la largeur à mi-hauteur du profil de Voigt qui ajuste le battement optique, entre le mode  $n_0=972\,000$  du peigne et la référence optique lorsque la fréquence de répétition du peigne est asservi sur la référence RF, en fonction des gains proportionnel et intégrateur du piézo. L'élargissement minimal des modes optiques du peigne ( $\sim 43,5$  kHz) est obtenue

lorsque le gain proportionnel  $P$  est à 0,1 u.a et le gain intégrateur  $I$  est à 0,2 u.a, des valeurs conformes à celles recommandées par TOPTICA ( $P=0,1$  et  $I=0,1$ ). Cet élargissement sera transféré au laser à  $\text{CO}_2$  s'il est asservi sur le peigne de fréquence puis au laser à cascade quantique, ce qui rend l'asservissement sur une référence RF défavorable pour la spectroscopie à haute résolution de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$ .

En pratique, la boucle d'asservissement RF est lente pour ne pas ajouter de bruit à haute fréquence ( $>1$  Hz) et pour stabiliser à long terme la valeur de  $f_{rep}$ .

La réduction de la largeur des modes optiques du peigne peut être obtenue en stabilisant le peigne sur une référence optique d'une largeur très étroite.

## 4.4.2 Stabilisation sur une référence optique

### 4.4.2.1 Référence optique

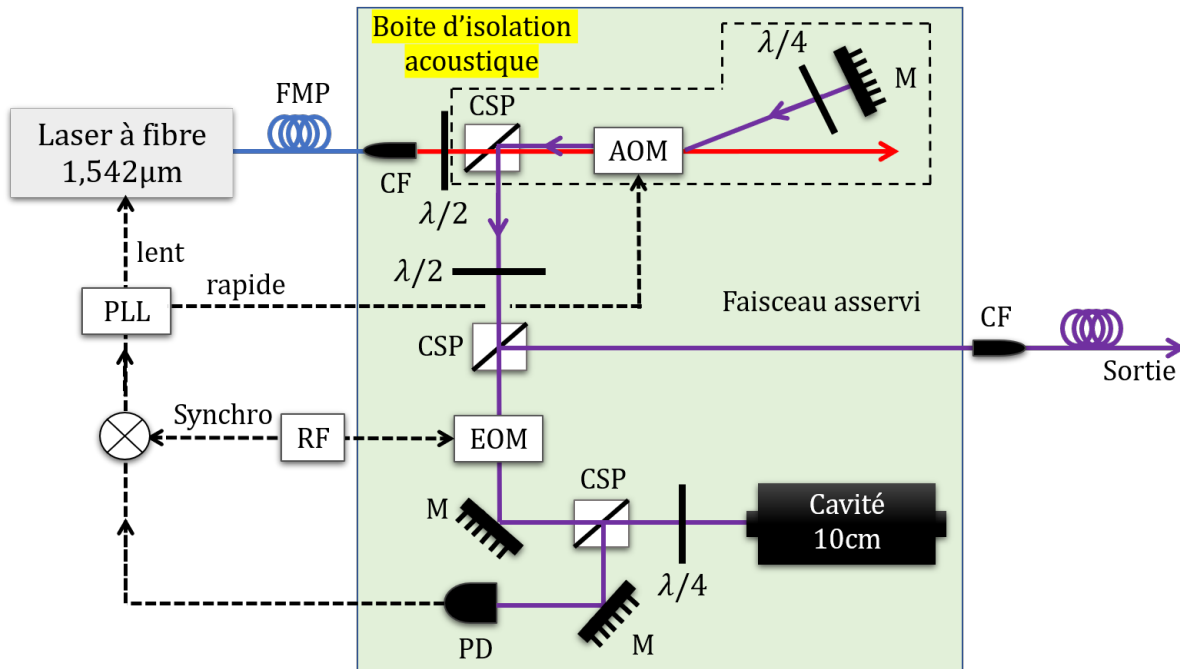


FIGURE 4.18 – Schéma du principe de stabilisation d'un laser à fibre à 1542 nm sur une cavité ultra-stable. FMP : fibre à maintien de polarisation, CSP : cube séparateur de faisceau, AOM : modulateur acousto-optique, EOM : modulateur électro-optique, CF : collimateur fibré, PLL : *phase lock loop*, M : miroir, PD : photo-détecteur. Ce montage est réalisé au SYRTE.

L'oscillateur optique de référence provenant du LNE-SYRTE, qui nous est fourni pour asservir les modes optiques du peigne, est un faisceau issu d'un laser à fibre stabilisé sur une cavité ultrastable [28] en utilisant la méthode de Pound-Drever-Hall [32]. C'est un laser à fibre commercial (Koheras) émettant à une longueur d'onde de 1542 nm,



avec une puissance de 100 mW. En mode libre, la largeur de raie du laser est inférieure à 1 kHz sur une mesure durant 120  $\mu$ s. Ce laser est équipé de deux ports pour contrôler sa fréquence : un port pour le contrôle de la température et un port pour le piézo-électrique (PZT). Cependant, leurs réponses sont relativement lentes, ce qui limite la bande passante de contrôle à quelques dizaines de kHz. Afin d'élargir la plage de contrôle, un modulateur acousto-optique en double passage a été ajouté dans le chemin optique du laser comme montré dans figure 4.18. Ce dispositif permet de corriger la fréquence du laser avec retard de modulation d'environ 1  $\mu$ s, ce qui étend la bande passante de contrôle à  $\sim$ 1 MHz.

La figure 4.18 montre le schéma d'asservissement du laser à fibre sur une cavité ultrastable. Le faisceau laser est envoyé dans l'espace libre par l'intermédiaire d'un collimateur fibré, relié à la sortie du laser avec une fibre à maintien de polarisation. La polarisation du faisceau est alignée sur le premier cube séparateur de polarisation après avoir traversé une lame demi-onde. La quasi totalité de la puissance du faisceau est alors transmises par ce cube en direction du modulateur acousto-optique, que nous avons introduit dans le paragraphe précédent et qui travaille autour de 80 MHz, tandis que presque toute la puissance du faisceau qui passe deux fois par ce modulateur et la lame quart d'onde est réfléchié vers un deuxième cube séparateur de polarisation. Un tel montage en double passage par l'AOM (représenté en pointillé sur la figure) permet de maintenir l'alignement spatial du faisceau lorsqu'on apporte des corrections sur la fréquence de l'AOM. Le second cube, précédé d'une lame demi-onde, permet d'extraire une partie de la puissance du faisceau présentant la partie stabilisée du laser. La partie transmise est envoyée à la cavité pour la stabilisation de la fréquence du laser. Elle traverse un modulateur électro-optique (EOM) modulé à la fréquence 56 MHz, puis traverse le dernier cube séparateur pour arriver finalement à l'entrée de la cavité. La puissance réfléchié par cette dernière, contenant les bandes latérales générées par la modulation et une fraction de la porteuse, est guidée, à l'aide d'une lame quart d'onde, vers un photo-détecteur pour détecter le battement entre la porteuse optique et les bandes latérales. Le signal de battement est ensuite démodulé à l'aide d'une détection synchrone pour générer un signal d'erreur qui est envoyé à une boucle de verrouillage de phase (PLL) pour produire deux signaux de correction. Un signal est appliqué au piézo du laser pour apporter des corrections à basses fréquence, l'autre est appliqué à la fréquence du modulateur acousto-optique pour les corrections rapides.

La stabilité du laser est évaluée en construisant deux lasers indépendants et identiques stabilisés de la même manière [28]. L'écart type d'Allan de la fréquence du signal de battement entre les deux lasers identiques, comparé à celui du bruit de fréquence théorique d'un laser ayant une largeur de raie de 1 Hz, montre que la largeur de raie de chaque laser stabilisé sur la cavité ultrastable, est inférieure à 1 Hz. La stabilité relative est inférieure à  $2.10^{-15}$  à 1s.

La fréquence du laser à fibre stabilisé sur la cavité ultrastable est mesurée avec une grande précision au LNE-SYRTE grâce à des signaux de référence RF par l'intermé-

dière d'un laser femtoseconde asservi sur ce laser à fibre. Le faisceau laser est ensuite transféré au LKB via un lien optique de 3 km par le réseau REFIMEVE dont le bruit est compensé. Il arrive avec une stabilité, donnée par le constructeur, de l'ordre de  $10^{-14}$  à 1s à la fréquence

$$\nu_{ref} = 194\,400\,008\,500\,000 \pm 2 \text{ Hz.} \quad (4.43)$$

Cette fréquence est connue avec une exactitude de  $10^{-14}$  de manière routinière et mieux sur demande.

#### 4.4.2.2 Génération du battement optique

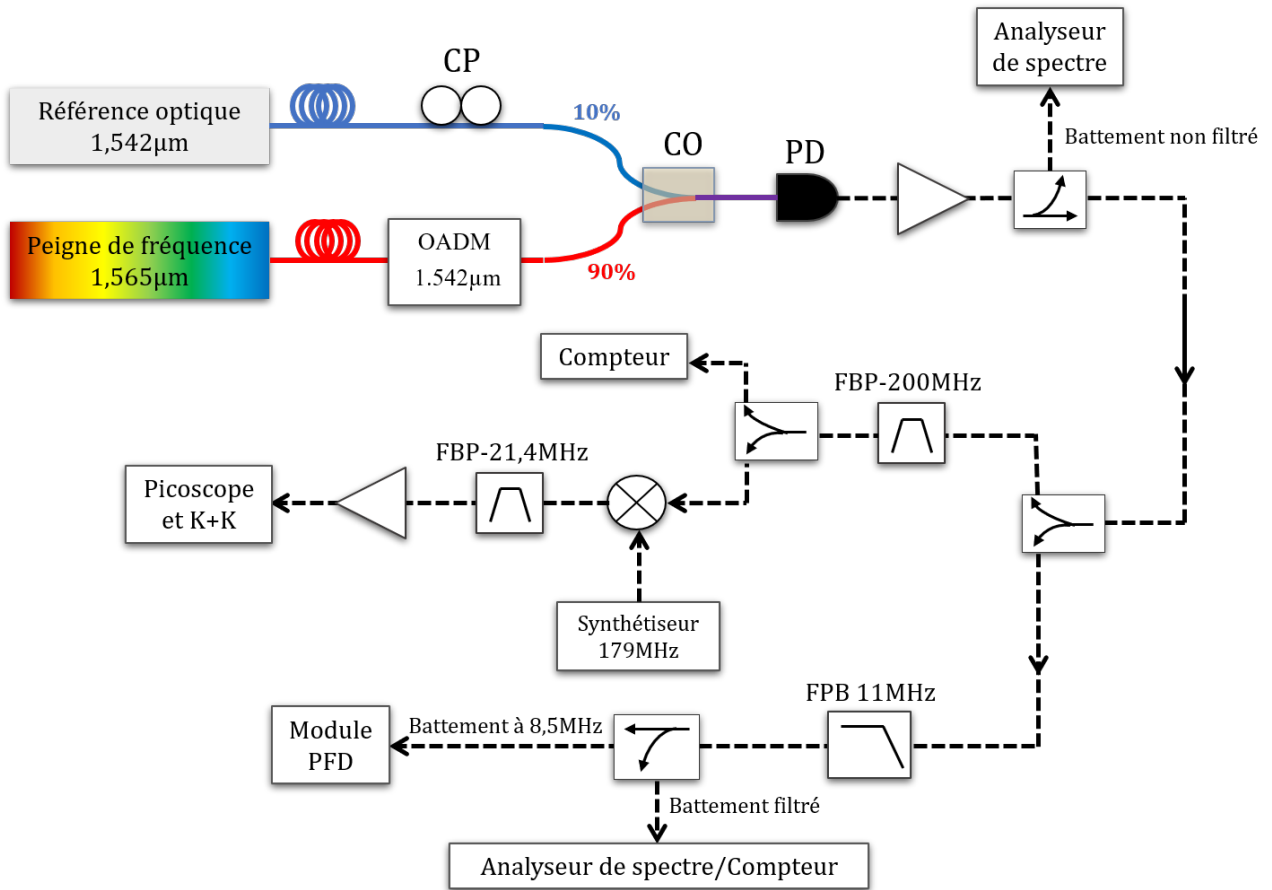


FIGURE 4.19 – Principe de génération du battement RF entre le peigne de fréquence et le signal optique de référence à 1542 nm. Le battement à 8,5 MHz est envoyé à un module PFD pour générer un signal d'erreur qui sera utilisé pour asservir le peigne de fréquence sur le signal optique de référence. Le signal à la fréquence  $f_{rep}=200$  MHz est extrait du spectre pour caractériser sa stabilité et son exactitude. CP : contrôle de polarisation, CO : coupleur optique, PD : photo-détecteur, FBP : filtre bande passante, FPB : filtre passe bas, OADM : *optical add-drop multiplexer*.

Le principe de génération du battement optique entre le peigne de fréquence à

1,565  $\mu\text{m}$  et le signal optique de référence de fréquence  $\nu_{ref}$  est représenté dans la figure 4.19. La puissance d'une sortie du peigne à 1,565  $\mu\text{m}$  est spectralement filtrée par un filtre OADM (*optical add-drop multiplexer*) centré à 1542 nm et d'une largeur de 100 GHz, puis couplée avec le signal de référence via un coupleur optique 90/10. Pour optimiser la puissance du battement, la polarisation du champ électrique du signal de référence est alignée avec celle du peigne de fréquence en utilisant un contrôleur de polarisation Thorlabs PFC024. Le spectre du battement est détecté par un photo-détecteur de type InGaAs d'un rendement  $\eta=0,97$  A/W et une bande passante d'environ  $\sim 1$  GHz. Il est ensuite amplifié par une succession de deux amplificateurs RF : (minicircuits : Gali-3+) d'un gain de 22,4 dB et (minicircuits : ZX60-3018G-S+) d'un gain de 22,8 dB à 100 MHz. Environ 6,3% (-12 dB) de la puissance est extraite avec un coupleur minicircuits ZX30-12-4-S+ pour visualiser sur un analyseur de spectre. La figure 4.20 montre le spectre détecté par le photo-détecteur quand on lui envoie une puissance de 26,2  $\mu\text{W}$  du peigne et 51,6  $\mu\text{W}$  du signal optique de référence. La fréquence du signal de battement  $\Delta\nu_{n_0}$  (Figure 4.20) entre le signal optique de référence et le mode  $n f_{rep}$  le plus proche du côté inférieur, s'écrit

$$\Delta\nu_{n_0} = \nu_{ref} - n_0 f_{rep} \simeq 8,5 \text{ MHz} \quad (4.44)$$

avec  $n_0 = 972000$ . C'est le battement que nous utilisons pour asservir le peigne de fréquence. De manière générale, le photo-détecteur détecte, tant que sa bande passante le permet, les battements avec les différents modes du peigne. Leurs fréquences sont données par

$$\Delta\nu_n = |\Delta\nu_{n_0} - (n - n_0) f_{rep}|. \quad (4.45)$$

En plus de cela, il y a aussi les battements RF entre les différents modes du peigne, aux fréquences  $p f_{rep}$  ( $p=1,2,\dots$ ). Chaque battement résulte d'un très grand nombre de battements entre les modes du peigne qui sont séparés de  $p f_{rep}$ . Cela explique l'écart en puissance de presque 25 dB, qu'on voit dans la figure 4.20, entre un pic à la fréquence  $\Delta\nu_n$  et un pic à  $p f_{rep}$ . Il est vrai que le filtre OADM a atténué les puissances des pics à  $p f_{rep}$ , mais il a permis d'optimiser leurs rapports signal sur bruit. Pour le battement à 200 MHz, le rapport signal sur bruit vaut 60 dB dans une bande d'analyse de 300 kHz. Le signal à la sortie du coupleur est divisé en deux branches avec un splitter (minicircuits : ZESC-2-11+). Une branche est dédiée à la mesure et au suivi continu de la fréquence de répétition  $f_{rep}$  du peigne dans le but de détecter toute variation, dérive ou instabilité. Pour cela, le signal est filtré par un filtre passe bande centré à 200 MHz, puis splitté lui aussi en deux parties avec le même type de splitter. La fréquence de la première partie est mesurée par un compteur (Keysight 53220A). Ce compteur, de type  $\Lambda$ , utilise une technique de subdivision de son temps de porte en plusieurs sections et déduit la moyenne glissante des fréquences mesurées pour chacune de ces sections, ce qui permet de réduire l'impact des erreurs de déclenchement qui peuvent se produire au début et à la fin du temps de porte, où des périodes d'oscillation peuvent être mal

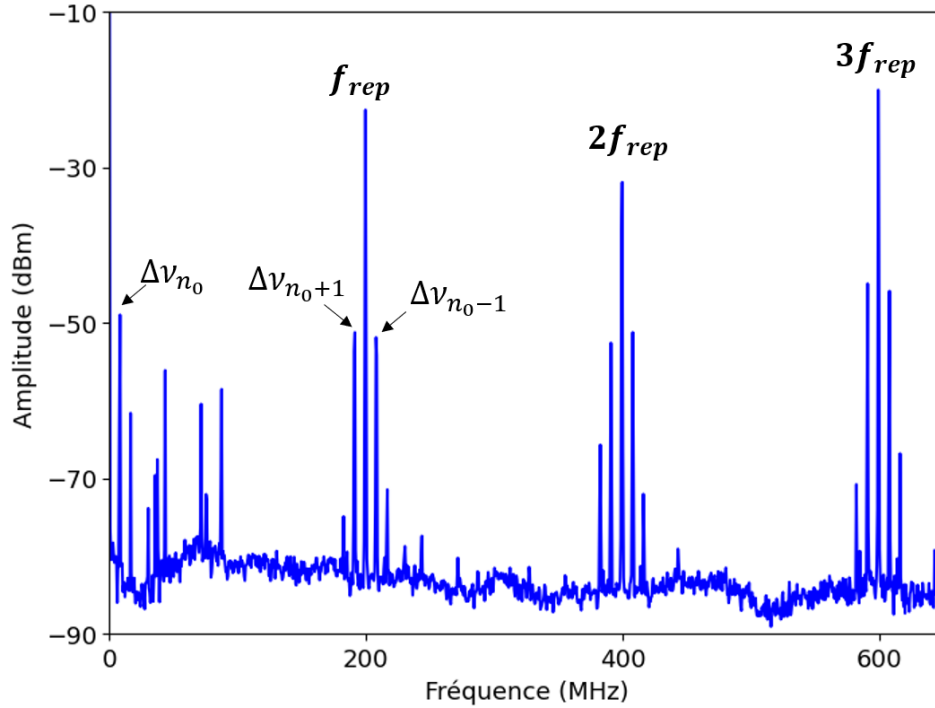


FIGURE 4.20 – Spectre du battement entre le peigne de fréquence et le signal optique de référence à 1542 nm. Les pics aux fréquences  $\Delta\nu_n$  correspondent aux battements entre le signal optique de référence et les modes du peigne de fréquence filtré avec l'OADM. ils sont les mêmes que ceux dans la figure 4.2. Analyseur de spectre : Span : 650 MHz, RBW : 300 kHz, VBW : 300 kHz.

comptées. L'autre partie est transposée à 21 MHz grâce à un synthétiseur et un mélangeur, et envoyée à une voie d'un oscillateur numérique (picoSCOPE) et au compteur K+K inclus dans le système TOPTICA à des fins de monitoring à distance.

Comme nous l'avons dit précédemment, on vise le battement à  $\Delta\nu_{n_0} \simeq 8,5$  MHz pour asservir le peigne de fréquence. La deuxième branche est alors filtrée par un filtre passe bas (minicircuits : SLP-10.7+) de fréquence de coupure  $\sim 11$  MHz pour retirer tous les autres battements ainsi que les pics parasites (Figure 4.20) dont les origines ne sont pas encore identifiées. La figure 4.21 montre le signal de battement à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$ . Le rapport signal sur bruit est 44,5 dB dans une bande d'analyse de 30 kHz, ce qui est largement suffisant pour asservir le peigne de fréquence. Ce signal est envoyé ensuite au module électronique PFD200 (*Phase Frequency Detector*), fourni par Toptica, pour générer un signal d'erreur.

#### 4.4.2.3 Module PFD200

Le module PFD200 (*Phase Frequency Detector*) est utilisé pour générer un signal d'erreur correspondant à la différence de phase/fréquence entre le signal d'entrée et la

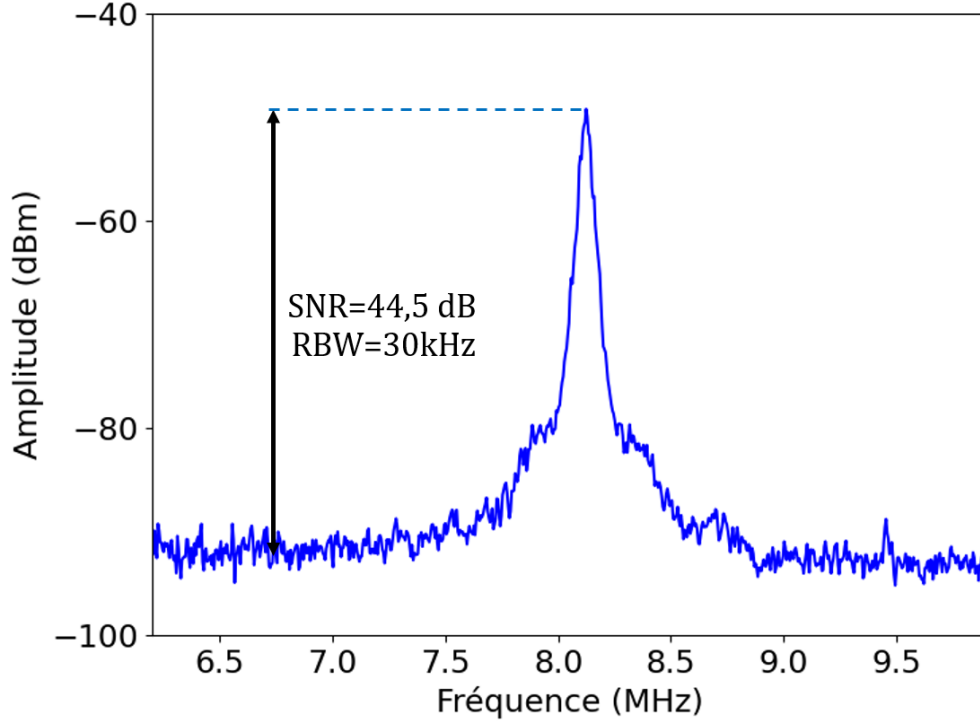


FIGURE 4.21 – Battement à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$  entre le peigne de fréquence en fonctionnement libre et le signal optique de référence. Analyseur de spectre : Span = 6 MHz, RBW = 30 kHz, VBW = 30 kHz.

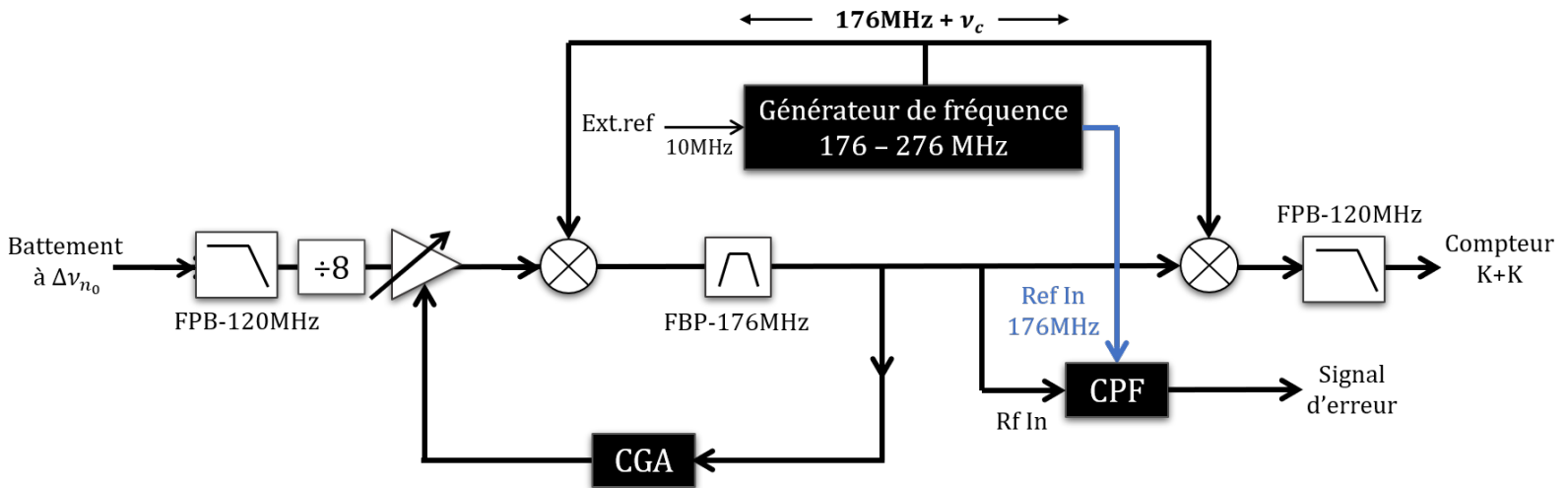


FIGURE 4.22 – Principe de fonctionnement du module PFD200. FPB : filtre passe bande, FBP : filtre passe bas, CGA : contrôle de gain automatique, CPF : comparateur phase-fréquence.

référence interne. Il est conçu pour mettre en oeuvre une boucle à verrouillage de phase avec le module FALC110 en tant que filtre de la boucle.

Un comparateur phase fréquence (CPF) génère un signal d'erreur proportionnel à la différence de phase entre deux signaux d'entrée de même fréquence ou délivre un signal de sortie dont le signe correspond au signe de la différence de fréquence entre les signaux d'entrée. Le CPF présente l'avantage de pouvoir accrocher facilement l'asservissement car le signe du signal d'erreur est toujours correct. La figure 4.22 montre le principe de fonctionnement du module PFD200. Le signal de battement RF à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}(t)$  qui doit être stabilisée sur une fréquence RF de consigne  $\nu_c$  est, à l'entrée, filtré par un filtre passe bas de fréquence de coupure de 120 MHz. Sa fréquence est ensuite divisée par 8 par un diviseur de fréquence pour augmenter la plage de comparaison de phase à  $32\pi$ . L'idée de ce montage est de translater la différence de fréquence  $\delta\nu(t) = \Delta\nu_{n_0}(t) - \nu_c$  de 176 MHz. Pour cela, un générateur de fréquence référencé sur le signal à 10 MHz du LNE-SYRTE délivre un signal à la fréquence  $\nu_c+176$  MHz. Ce signal est mélangé avec le signal de battement à  $\Delta\nu_{n_0}$ , donnant un signal à la fréquence  $\sim 176$  MHz contenant l'information sur le bruit de fréquence du signal de battement. Il est ensuite filtré par un filtre passe bande centré à 176 MHz et d'une largeur de  $\sim 2$  MHz. Afin de générer un signal d'erreur, une partie du signal filtré est comparée avec un signal propre à 176 MHz délivré par le même générateur, via un comparateur phase fréquence. Pour un déclenchement correct de la logique numérique au niveau du comparateur phase fréquence, un contrôle de gain automatique (CGA) est également mis en place, ce qui garantit que le niveau du signal RF est maintenu à un niveau optimal à l'aide d'un amplificateur de gain ajustable. L'autre partie du signal est ramenée, à nouveau, à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}(t)$  via un deuxième mélangeur RF pour mesurer sa fréquence avec le compteur K+K.

#### 4.4.2.4 Module FALC-110

Finalement, pour asservir le peigne de fréquence sur le signal optique de référence, nous disposons d'un deuxième module électronique appelé FALC110 (*Fast Analog Linewidth Control*) fourni par Toptica. C'est un amplificateur de contrôle linéaire très rapide conçu pour des tâches de stabilisation de la fréquence des lasers. Ce module est utilisé pour construire des signaux de corrections à partir du signal d'erreur généré par le module PFD-200. Il se compose des trois parties suivantes :

#### Section d'entrée

Il y a une paire d'entrées de polarités différentes. L'une des entrées est utilisée pour le signal d'erreur qu'on génère avec le module PFD200, et l'autre pour un signal de consigne externe. En ajustant ce signal de consigne, on peut annuler un éventuel offset du signal d'erreur qui peut rompre sa symétrie autour de zéro et détériorer ainsi l'asservissement. Cet offset peut être causé par la nature de certains composants au niveau de la génération du battement RF ou la détection du signal d'erreur. Un potentiomètre supplémentaire est utilisé également pour centrer le signal d'erreur autour

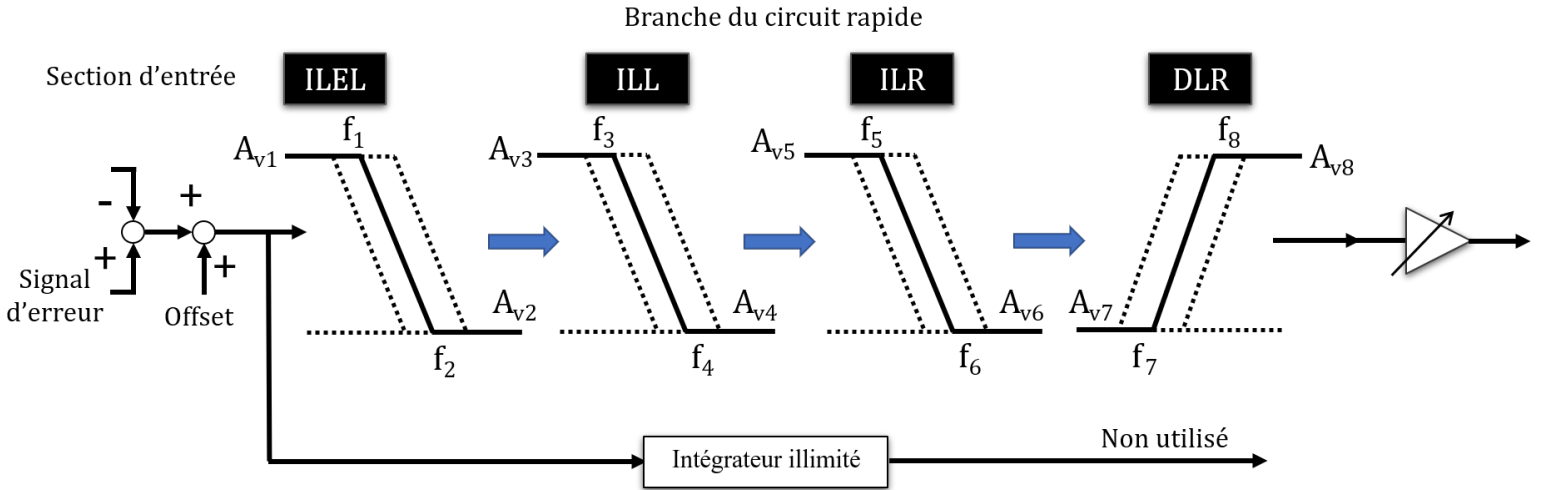


FIGURE 4.23 – Schéma fonctionnel du FALC-110.  $A_v$  : gain en dB et  $f$  : fréquence de coupure.

de zéro (consigne interne). Dans notre cas, le signal d'erreur ne présente aucun offset, donc aucun signal de consigne n'est connecté.

Le choix de la polarité dépend du signe de la pente centrale du signal d'erreur, qui dépend à son tour de la différence de phase. Comme nous l'avons dit dans le paragraphe précédent, le module PFD200 utilise un comparateur de phase fréquence générant un signal d'erreur qui est toujours correct.

### Branche du circuit rapide

Après avoir passé la section d'entrée, le circuit FALC-110 est divisé en deux canaux amplificateurs, dont l'un est la branche du circuit rapide, destinée à moduler le courant d'injection de la diode laser, avec une bande passante de quelques dizaines de MHz. Elle se compose de quatre étages de filtres, Intégrateur à limitation extra-lente (ILEL), intégrateur à limitation lente (ILL) et intégrateur à limitation rapide (ILR) et un filtre dérivateur à limitation rapide (DLR). Les fréquences de coupures de ces filtres sont ajustées par des interrupteurs mécaniques, ce qui permet de configurer la fonction de transfert du FALC-110. Le gain global du chemin du circuit rapide est ajustable par un potentiomètre et par le logiciel de contrôle à la fin du circuit.

### Intégrateur illimité

La deuxième branche après la section d'entrée est l'intégrateur illimité avec une bande passante de  $\sim 10$  kHz. Il utilise le même signal d'erreur que la branche du circuit rapide. Cette branche peut être utilisée pour le bruit et les dérives à basses fréquences, induites par des changements de température par exemple. Cette partie n'a pas été utilisée pour asservir le peigne de fréquence.

## 4.4.2.5 Asservissement du peigne

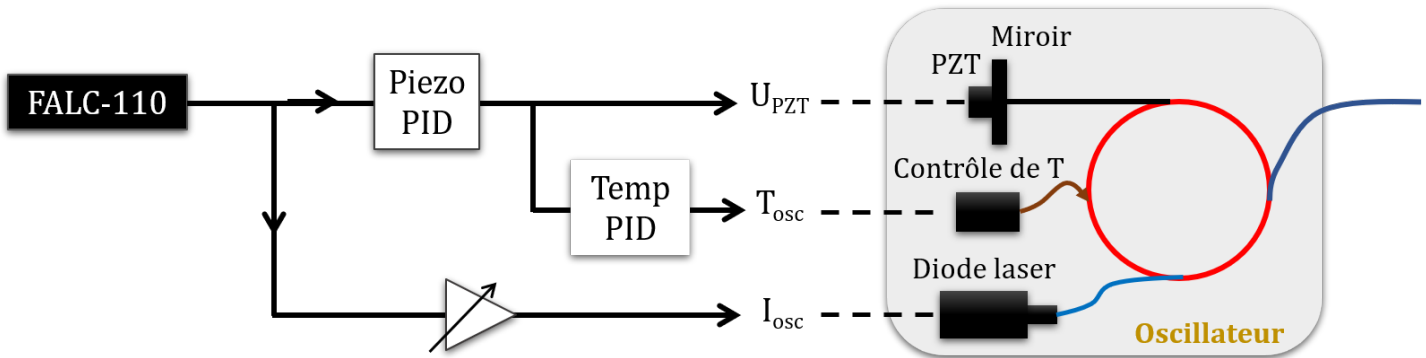


FIGURE 4.24 – Boucle de rétroaction de l'asservissement du peigne de fréquence sur le signal optique de référence. PID : proportionnel-intégrateur-dérivateur.

La figure 4.24 représente la boucle de rétroaction utilisée pour l'asservissement du peigne. Une partie du signal de sortie du circuit rapide du FALC-110 est amplifié par un amplificateur à gain variable contenu dans le module PFD-200 (contrôle de gain interfacé) puis envoyé au module DFC-CORE pour agir sur le courant de pompe de la diode laser pour les corrections rapides. L'autre partie du signal est envoyé au même circuit à deux modules PID que nous avons utilisés pour asservir le peigne sur le signal RF (Figure 4.14). Il apporte des corrections à moyennes et basses fréquences en agissant sur le piézo de la fibre et à très basse fréquence en agissant sur la température. Durant la première phase de test, à la fois l'intégrateur à limitation extra-lente (ILEL) et l'intégrateur à limitation rapide (ILR) n'ont montré aucun impact visible sur les performances d'asservissement. Par conséquent, l'étage ILEL a été désactivé ( $A_{v1}=A_{v2}=0$  dB) et ILR est utilisé comme un amplificateur à gain global plat ( $A_{v5}=A_{v6}=15$  dB). Seuls l'intégrateur à limitation lente (ILL) et le dérivateur à limitation rapide (DLR) sont utilisés pour l'asservissement du peigne comme montré dans figure 4.25. Pour ILL :  $A_{v3}=37$  dB,  $f_3=1$  kHz,  $f_4=65$  kHz et  $A_{v4}=1,6$  dB. Pour DLR :  $A_{v7}=0$  dB,  $f_7=190$  kHz,  $f_8=1$  MHz et  $A_{v8}=15$  dB.

La figure 4.26 montre le signal de battement RF à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$  entre le peigne de fréquence et le signal optique de référence, lorsque la boucle d'asservissement est fermée et la fréquence de consigne  $\nu_c$  est à 8,5 MHz. Ce spectre est mesuré avec un analyseur de spectre avec une résolution bandwidth (RBW) de 3 kHz. La bande passante d'asservissement est de l'ordre de 580 kHz. Cette valeur, atteinte grâce à l'asservissement via le courant de pompe de la diode laser, est limitée par le filtre passe bas à 11 MHz (Figure 4.19), ainsi que le filtre passe bande à 176 MHz du module PFD-200 (Figure 4.22).

L'asservissement optique nous permet d'étendre la stabilité de la référence optique à 1542 nm à tous les modes du peigne de fréquence.



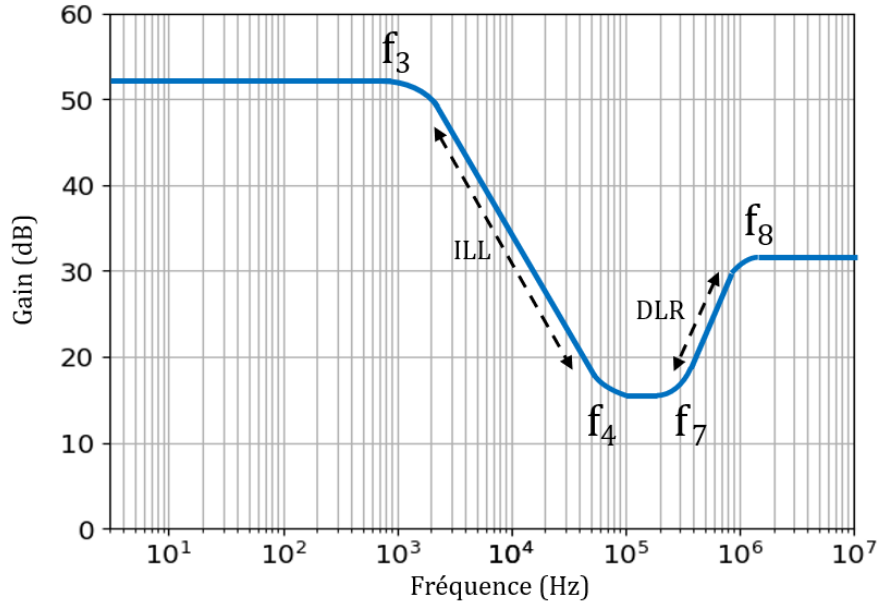


FIGURE 4.25 – Diagramme de bode typique de la fonction de transfert de la branche du circuit rapide du module FALC-110. ILL : intégrateur à limitation lente, DLR : dérivateur à limitation rapide.  $f_3, f_4, f_7, f_8$  : fréquences de coupure.

#### 4.4.2.6 Caractérisation de l'asservissement optique

Pour vérifier l'efficacité de transfert de stabilité effectué par l'asservissement que nous avons décrit précédemment, nous analysons le comportement de la fréquence de répétition  $f_{rep}$  du peigne. Lorsqu'on ferme la boucle de rétroaction, les fluctuations de la fréquence de répétition du peigne  $\delta f_{rep}$  peuvent être exprimées, à partir de l'équation 4.44, en fonction de celles de la référence optique  $\delta \nu_{ref}$  par

$$\delta f_{rep} = \frac{\delta \nu_{ref} + \delta \nu_c}{972000}, \quad (4.46)$$

où  $\delta \nu_c$  correspond aux fluctuations de la fréquence de consigne  $\nu_c$  (Figure 4.22). La stabilité de cette fréquence est donnée par celle de la référence RF à 10 MHz, donc ses fluctuations sont de l'ordre du  $\mu\text{Hz}$ . Ces fluctuations sont négligeables devant celles de la référence optique qui sont de l'ordre du Hz. Par conséquent, les fluctuations de la fréquence de répétition sont prévues pour être de l'ordre du  $\mu\text{Hz}$  (soit une stabilité de  $10^{-14}$ ). Dans la figure 4.27, la courbe verte représente la déviation d'Allan, relative à 200 MHz d'un signal à 10 MHz généré à partir de la fréquence de répétition  $f_{rep}$  lorsque le peigne est asservi sur la référence optique. Pour la comparaison avec les performances de l'asservissement RF, nous mettons sur la même figure, la stabilité relative du signal de battement optique à la fréquence  $\Delta \nu_{n_0}$  (courbe bleue) lorsque le peigne est asservi sur la référence RF dont la stabilité, donnée par le constructeur, est aussi représentée

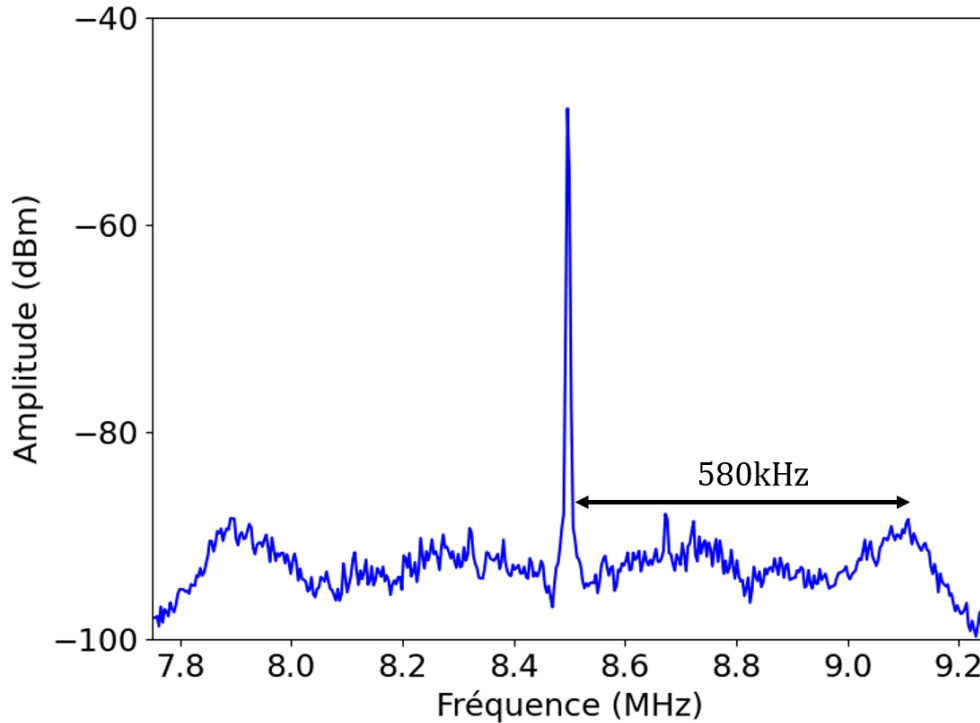


FIGURE 4.26 – Battement entre le peigne de fréquence asservi en optique et le signal optique de référence lorsque la fréquence de consigne  $\nu_c=8,5$  MHz. Analyseur de spectre : Span = 4 MHz, RBW = 3 kHz, VBW = 3 kHz.

par la ligne noire. Tous les enregistrements ont été fait par le même compteur (Keysight 53220) synchronisé par la référence à 10 MHz. On constate que le comportement de la stabilité de la fréquence de répétition du peigne asservi sur la référence optique coïncide avec celui de la référence RF ou le battement optique lorsque le peigne est asservi en RF. Entre 1 et 10 s, la stabilité a un comportement plat à environ  $5.10^{-13}$ , et au delà de 10 s, elle décroît tout comme la référence RF, en  $\tau^{-1}$ . On en déduit que notre mesure de stabilité dans le cas où le peigne est asservi sur la référence optique est limitée par le compteur, plus précisément par la référence externe qui le synchronise, c'est à dire le signal de référence à 10 MHz. Néanmoins, ces mesures nous permettent d'estimer un majorant de la stabilité de la fréquence  $f_{rep}$  du peigne puisque la référence optique est, de deux ordres de grandeurs au moins, plus stable que la référence RF. Dans notre laboratoire, F.Nez dispose lui aussi d'un peigne de fréquence de la société *MenloSystems* d'une fréquence de répétition de 250 MHz asservi sur la même référence optique. Un travail sera effectué dans les mois à venir pour asservir le laser à fibre à 1549 nm, que l'on utilise pour générer le faisceau de refroidissement des ions  $\text{Be}^+$ , sur un des modes optiques de notre peigne asservi en optique. La mesure de stabilité de la fréquence du battement entre le laser à 1549 nm et le peigne de F.Nez nous permettra de caractériser la stabilité de ce laser à fibre, et donc de notre peigne de fréquence.

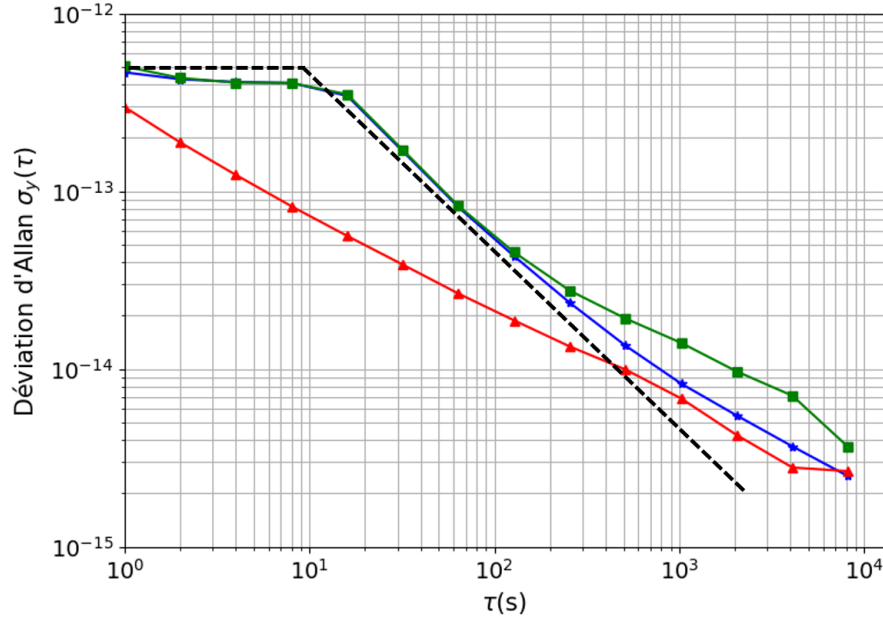


FIGURE 4.27 – (■) : Déviation d’Allan, relative à 200 MHz, d’un signal à 10 MHz généré à partir de la fréquence de répétition  $f_{rep}$  lorsque le peigne est asservi en optique. (★) : Déviation d’Allan du battement optique à la fréquence  $\Delta\nu_{n_0}$  quand le peigne est asservi en RF. (▲) : Bruit de fond de mesures du compteur référencé sur le signal RF à 10 MHz. La ligne noire correspond à la stabilité du signal RF de référence donnée par le constructeur.

## 4.5 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous avons défini et exploré le concept du peigne de fréquence et nous avons présenté les caractéristiques de notre peigne de fréquence. Nous avons discuté également l’asservissement du peigne de fréquence, en stabilisant soit sa fréquence de répétition sur un signal radiofréquence soit ses modes optiques sur une référence optique.

Dans le chapitre suivant, nous aborderons l’application pratique de ce peigne de fréquence stabilisé pour l’asservissement du laser à  $\text{CO}_2$ . Nous explorerons les différentes étapes et les techniques nécessaires pour intégrer notre peigne de fréquence à l’asservissement du laser à  $\text{CO}_2$  et donc du QCL utilisé pour la spectroscopie de  $\text{H}_2^+$ .

# Chapitre 5

## Stabilisation de la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> sur le peigne de fréquence

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>104</b>
<b>5.2</b>	<b>Génération de somme de fréquence</b>	<b>105</b>
5.2.1	Théorie et simulations	105
5.2.2	Expérience	116
<b>5.3</b>	<b>Génération du battement RF</b>	<b>125</b>
5.3.1	Couplage du faisceau somme dans la fibre	125
5.3.2	Génération du battement RF	125
<b>5.4</b>	<b>Asservissement du laser à CO<sub>2</sub></b>	<b>127</b>
<b>5.5</b>	<b>Spectroscopie de HCOOH et répétabilité</b>	<b>130</b>
5.5.1	Dispositif expérimental	130
5.5.2	Résultats et formes de raie	131
5.5.3	Répétabilité des mesures	133
<b>5.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>134</b>

---

## 5.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à la stabilisation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  sur le peigne de fréquence, c'est à dire le transfert des propriétés spectrales des modes du peigne à  $1,565 \mu\text{m}$  au laser à  $\text{CO}_2$  émettant à  $9,166 \mu\text{m}$ . Le transfert est réalisé grâce à une somme de fréquence dans un cristal non linéaire comme représenté dans la figure 5.1. Une partie de la puissance du laser à  $\text{CO}_2$  est combinée avec le faisceau issu de l'extension du peigne à  $1,895 \mu\text{m}$  dans un cristal  $\text{AgGaSe}_2$  pour générer, via une somme de fréquence, un nouveau peigne à  $1,565 \mu\text{m}$  dont les caractéristiques spectrales recopient celles du laser à  $\text{CO}_2$ .

Le battement avec le peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$  révèle alors les propriétés spectrales

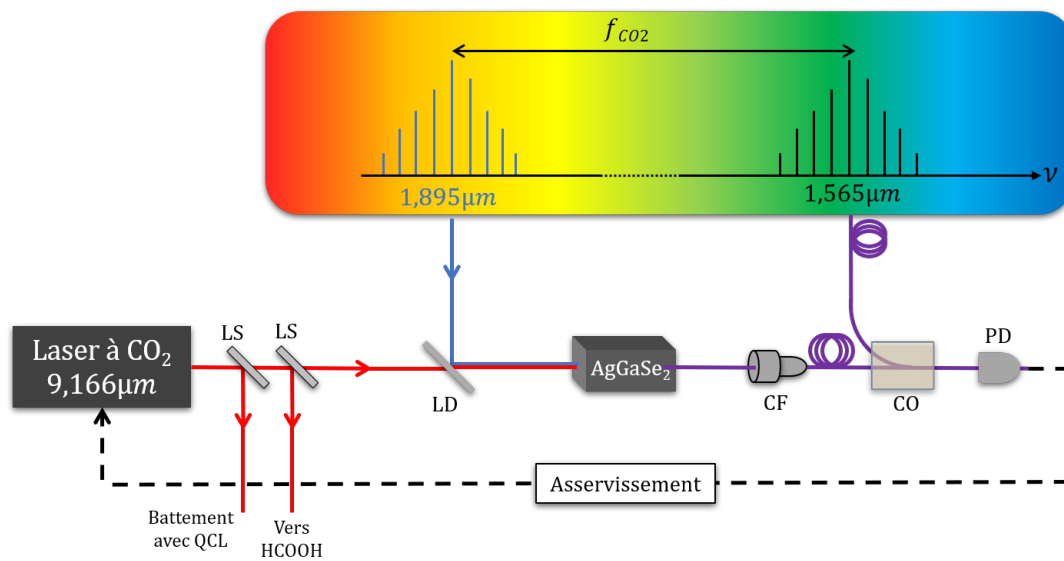


FIGURE 5.1 – Principe d'asservissement du laser à  $\text{CO}_2$  sur un peigne de fréquence. le faisceau à  $1,895 \mu\text{m}$  issu de l'extension du peigne est combiné avec le faisceau laser à  $\text{CO}_2$  pour générer la somme de fréquence via le cristal  $\text{AgGaSe}_2$ . Ce nouveau peigne généré à  $1,565 \mu\text{m}$  est comparé avec le peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$  en générant un battement RF qui va être utilisé ensuite pour asservir le laser à  $\text{CO}_2$  via une boucle de rétroaction.

du laser à  $\text{CO}_2$  et peut être utilisé pour contrôler la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  via une boucle de rétroaction.

Dans la première partie de ce chapitre, nous allons parler de la théorie de la somme de fréquence d'un peigne de fréquence avec un laser monomode, qui nous a permis de faire des simulations pour optimiser la puissance du peigne généré par la somme de fréquence et d'optimiser le signal de battement. Ensuite, nous décrivons le dispositif expérimental qui nous a permis d'obtenir le faisceau somme de fréquence en utilisant les résultats de la simulation. Dans la troisième partie, nous allons parler, d'un point de vue expérimental, de la génération du signal de battement radio-fréquence pour expliquer

finalement comment nous l'avons utilisé pour asservir la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>.

## 5.2 Génération de somme de fréquence

La génération de somme de fréquence est l'archétype des effets non linéaires du second ordre. Il s'agit du processus qui transforme deux photons de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  en un photon de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  à l'aide d'un cristal de susceptibilité  $\chi^{(2)}$  comme montré dans la figure (5.2). C'est un cas particulier du mélange à trois ondes.

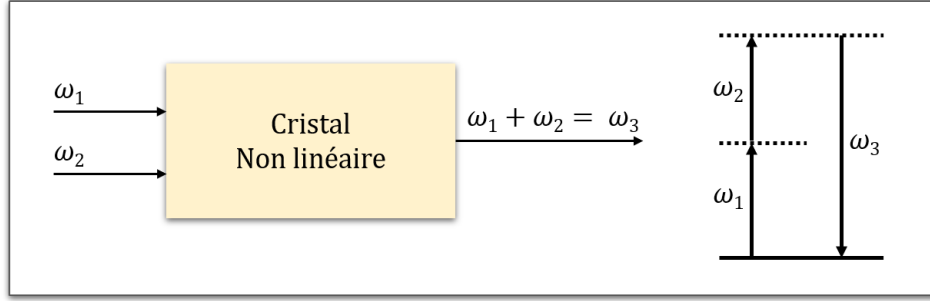


FIGURE 5.2 – Génération de somme de fréquence : le processus ainsi que les niveaux d'énergie virtuels en jeu.

### 5.2.1 Théorie et simulations

Dans un milieu linéaire, la relation entre le champ de déplacement  $\mathbf{D}$  et le champ électrique  $\mathbf{E}$  est

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \underline{\underline{\varepsilon_r}} \mathbf{E} \quad (5.1)$$

dans lequel  $\underline{\underline{\varepsilon_r}}$  est la matrice permittivité relative dans le cas d'un milieu anisotrope. Lorsqu'on souhaite séparer l'influence du milieu du champ appliqué, on écrit le champ de déplacement sous la forme

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (5.2)$$

où  $\mathbf{P}$  est le vecteur de polarisation induite. Cette polarisation contient des termes linéaires et des termes non linéaires en  $\mathbf{E}$  tels que :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} \quad (5.3)$$

avec

$$\mathbf{P}^L = \varepsilon_0 \chi_L \mathbf{E} \quad (5.4)$$

le terme linéaire, et  $\mathbf{P}^{NL} = \mathbf{P}^{(2)} + \mathbf{P}^{(3)} \dots$  le terme non linéaire développé en puissance du champ. Dans le cas de la somme de deux fréquences comme montré dans la figure 5.2, nous nous intéressons à la polarisation du second ordre  $\mathbf{P}^{(2)}$  liée à la susceptibilité

non linéaire du second ordre  $\chi^{(2)}$ . On envoie à l'échantillon une onde électromagnétique où le champ électrique contient deux composantes spectrales de fréquences angulaires  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et de polarisation  $\mathbf{e}_1$  et  $\mathbf{e}_2$  tel que :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = A_1 e^{i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)} \mathbf{e}_1 + A_2 e^{i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)} \mathbf{e}_2 + c.c. \quad (5.5)$$

La polarisation à l'ordre 2 est définie, dans le domaine des fréquences, par :

$$P^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \mathbf{r}) = \varepsilon_0 g_2 \chi^{(2)}(-(\omega_1 + \omega_2); \omega_1; \omega_2) E_1(\omega_1, \mathbf{r}) E_2(\omega_2, \mathbf{r}) \quad (5.6)$$

où les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  ne sont pas nécessairement positives : une fréquence *negative* signifie que c'est la composante conjuguée du champ électrique qui intervient.  $g_2$  est le facteur de dégénérescence qui vaut 1 si  $\omega_1 = \omega_2$  et 2 si  $\omega_1 \neq \omega_2$ . Le terme qui oscille à la fréquence  $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$  est alors

$$P_{\omega_3}(\mathbf{r}, t) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} A_1 A_2 e^{i[(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t]} + c.c. \quad (5.7)$$

Dans la suite, on s'intéresse au calcul de l'efficacité de conversion dans le cas des ondes planes puis des ondes gaussiennes.

### 5.2.1.1 Calcul en ondes planes

#### Équation de propagation

L'évolution d'une onde électromagnétique lorsqu'elle se propage dans le vide ou dans un milieu matériel est donnée par la solution de l'équation de propagation linéaire. Tout commence par les équations de Maxwell (données dans un milieu non métallique, non magnétique) :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (5.8)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (5.9)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (5.10)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (5.11)$$

Des équations (5.9) et (5.10), on tire :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} \quad (5.12)$$

qu'on peut réécrire en utilisant l'équation (5.2) :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (5.13)$$

qui est la forme générale de l'équation de propagation. Cette équation peut être simplifiée. Par exemple, en utilisant l'identité du calcul vectoriel, on peut écrire le premier terme de la partie à gauche sous la forme :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2(\mathbf{E}). \quad (5.14)$$

Lorsque l'onde se propage dans un milieu isotrope, le terme  $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$  est nul car dans ce cas  $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$  implique que  $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ . Dans le cas d'un milieu non isotrope, ce terme ne disparaît pas. Cela est dû à la relation générale qui existe entre  $\mathbf{D}$  et  $\mathbf{E}$  donnée par l'équation (5.2). En général, la contribution de  $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$  dans l'équation (5.14) est négligeable devant le terme  $\nabla^2(\mathbf{E})$ . L'équation de propagation (5.13) devient alors

$$-\nabla^2(\mathbf{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (5.15)$$

En utilisant le fait que  $\mathbf{P} = \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL}$  avec  $\mathbf{P}^L = \varepsilon_0(\underline{\varepsilon}_r(\omega) - 1)\mathbf{E}(\omega)$  où  $\underline{\varepsilon}_r(\omega)$  est la matrice de la permittivité relative linéaire du milieu de propagation et le fait que la dépendance temporelle de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}^{NL}$  est en  $e^{-i\omega t}$ , l'équation (5.15), dans le domaine des fréquences, s'écrit alors

$$(\nabla^2 + \underline{\varepsilon}_r(\omega)) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\omega) = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathbf{P}^{NL}(\omega), \quad (5.16)$$

où  $\mathbf{P}^{NL}$  est la polarisation non linéaire. Lorsqu'on s'intéresse à la propagation de l'onde de fréquence angulaire  $\omega_3$ , cette polarisation est donnée par l'équation (5.7). L'équation 5.16 est l'équation d'évolution du champ qui nous intéresse.

### Calcul de l'efficacité de conversion

Nous nous placerons ici dans le cas des ondes quasi planes d'axe  $z$  et polarisées linéairement. Le champ électrique s'écrit alors

$$E_i(z, t) = A_i(z) e^{i(k_i z - \omega_i t)} + c.c. \quad (5.17)$$

où l'enveloppe  $A_i(z)$  décrit l'évolution spatiale de l'amplitude du champ électrique. Le laplacien scalaire du champ électrique de l'onde généré de fréquence  $\omega_3$  s'écrit

$$\nabla^2(E_3) = \left[ -k_3^2 A_3(z) + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} + \frac{\partial^2 A_3}{\partial z^2} \right] e^{ik_3 z}. \quad (5.18)$$

Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable, le champ électrique varie très peu dans un intervalle en  $z$  de l'ordre de  $\lambda_3$ , ce qui nous permet d'écrire

$$\frac{\partial^2 A_3}{\partial z^2} \ll k_3 \frac{\partial A_3}{\partial z}. \quad (5.19)$$



Avec  $k_3 = \sqrt{\varepsilon_r(\omega_3)} \frac{\omega_3}{c}$  et  $\sqrt{\varepsilon_r(\omega_3)} = n_3$ , l'équation 5.16 devient :

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = i \frac{\omega_3}{\varepsilon_0 c n_3} |\mathbf{P}^{NL}| e^{-i\Delta k z} \quad (5.20)$$

où  $|\mathbf{P}^{NL}| = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} |A_1 A_2|$  est le module de la polarisation non linéaire d'ordre 2 qui oscille à la fréquence  $\omega_3$  et  $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$  avec  $k_i = \frac{2\pi}{\lambda_i}$  le module du vecteur d'onde du faisceau de longueur d'onde  $\lambda_i$ . Si on se place en régime paramétrique, c'est à dire si on suppose que le rendement de conversion de la SFG est suffisamment faible pour que l'on puisse négliger la variation de l'amplitude du faisceau fondamental au cours de la propagation, on peut considérer que les amplitudes  $A_1$  et  $A_2$  sont indépendantes de  $z$ . L'amplitude  $A_3$  de l'onde du faisceau généré par la somme de fréquence est obtenue en intégrant l'équation 5.20 sur toute la longueur du cristal. L'efficacité de conversion est alors donnée par

$$\Gamma_{SFG} = \frac{P_3}{P_1 P_2} = \frac{2^3 \pi^2 d_{eff}^2 l_c^2}{\varepsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 S} \left( \frac{\sin(\frac{1}{2} \Delta k l_c)}{\frac{1}{2} \Delta k l_c} \right)^2 \quad (5.21)$$

où  $P_j = \varepsilon_0 c n_j A_j^2 S / 4$  est la puissance du faisceau de longueur d'onde  $\lambda_j$ ,  $n_j$  est l'indice de réfraction dans le cristal correspondant à la longueur d'onde  $\lambda_j$ ,  $l_c$  est la longueur du cristal,  $\Delta k$  est le désaccord de phase,  $S = \pi w_0^2$  correspond à la surface des faisceaux des trois ondes (dans ce modèle d'ondes planes, nous avons supposé que les ondes ont la même surface à l'intérieur du cristal). L'équation (5.21) montre l'efficacité de conversion est maximale pour  $\Delta k = 0$ , c'est la condition d'accord de phase.

### Accord de phase par biréfringence

Pour que l'intensité de la lumière de fréquence angulaire  $\omega_3$  ne soit pas trop faible, il est indispensable d'obtenir un accord de phase parfait entre les trois ondes de fréquences  $\omega_i (i = 1, 2, 3)$ , c'est à dire annuler le désaccord de phase  $\Delta k$  qui est donné par

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 \quad (5.22)$$

où  $\mathbf{k}_i$  est le vecteur d'onde de fréquence  $\omega_i$  avec  $k_i = \frac{n_i \omega_i}{c} (i = 1, 2, 3)$  où  $n_i$  est l'indice de réfraction du cristal à la fréquence  $\omega_i$  et  $c$  est la vitesse de la lumière. L'onde générée est donc observée autour de la condition d'accord de phase  $\Delta k = 0$ , donc pour

$$n_3 \omega_3 = n_2 \omega_2 + n_1 \omega_1. \quad (5.23)$$

Dans un cristal, il existe trois directions propres de propagation qui sont orthogonales et d'indices de réfraction  $n_x, n_y$  et  $n_z$ . Pour un cristal uniaxe négatif comme le AgGaSe<sub>2</sub>, il existe en fait deux indices de réfraction ordinaires  $n_o$  ( $n_x = n_y = n_o$ ) et un indice de

réfraction extra-ordinaire  $n_e$  ( $n_z = n_e$ ) tel que  $n_e < n_o$ . L'axe  $z$  est l'axe optique défini par la direction où l'indice de réfraction est le même quelle que soit la polarisation de l'onde incidente. La figure 5.3 montre deux ondes incidentes avec des polarisations

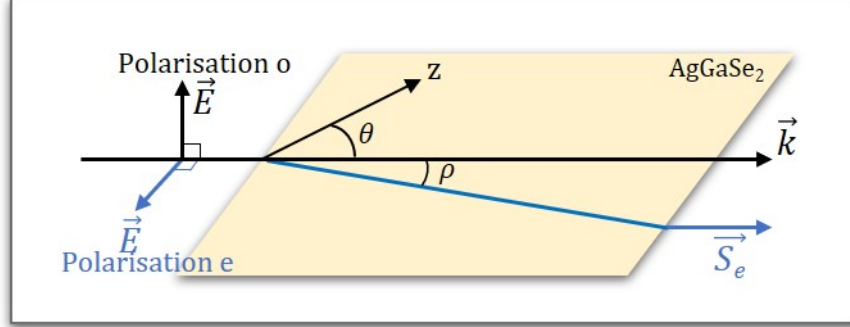


FIGURE 5.3 – La polarisation (direction du champ électrique  $\mathbf{E}$ ) de l'onde ordinaire (o) est perpendiculaire au plan principal formé par l'axe optique  $z$  et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ . L'onde extraordinaire (e) est polarisée dans le plan principal et  $\theta$  est l'angle entre l'axe optique et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ .

perpendiculaires. Le premier cas correspond à une onde possédant une polarisation perpendiculaire au plan  $(\mathbf{k}, \mathbf{z})$  contenant l'axe optique  $\mathbf{k}$  et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , on appelle cette onde l'onde ordinaire d'indice  $n_o$ . Dans l'autre cas, l'onde possède une polarisation contenue dans le plan  $(\mathbf{k}, \mathbf{z})$ . On appelle cette onde l'onde extraordinaire. L'indice de réfraction de cette onde dépend de l'angle  $\theta$ , de l'indice ordinaire  $n_o$  et de l'indice extraordinaire  $n_e$  selon la relation [4] :

$$n_e(\theta) = \left( \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} \right)^{-1/2}. \quad (5.24)$$

Une idée pour obtenir l'accord de phase est de jouer sur la direction de propagation en choisissant l'angle  $\theta$  qui vérifie la condition d'accord de phase. Pour un cristal négatif, il existe en général deux types d'accord de phase : le **type 1** qu'on note *ooe* et celui de **type 2** qu'on note *oeo* où les deux premières lettres présentent la polarisation des ondes incidentes et la troisième présente celle de l'onde générée. On voit que pour l'onde extraordinaire à l'intérieur du cristal, le champ électrique n'est pas perpendiculaire au vecteur d'onde et par conséquent le vecteur de Poynting  $\mathbf{S}$  n'est pas parallèle à  $\mathbf{k}$  : on dit que l'énergie ne se propage plus comme la phase. Il s'agit de la double réfraction et l'angle de walkoff entre le vecteur d'onde et le vecteur de Poynting est donnée par la relation

$$\rho = \arctan \left[ \frac{n_e^2(\theta)}{2} \left( \frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2} \right) \sin(2\theta) \right]. \quad (5.25)$$

Dans la suite, on va utiliser l'accord de phase de type 1 (*oeo*) comme montré dans la figure (5.4) car l'onde générée de fréquence angulaire  $\omega_3$  possède une polarisation

extraordinaire orthogonale à la polarisation des ondes pompes incidentes et peut être séparée par un polariseur. Elle est aussi séparée spatialement des ondes incidentes. L'angle  $\theta$  est choisi de façon à ce que  $\frac{n_e(\theta_{\Delta k=0})}{\lambda_3} = \frac{n_o(\lambda_2)}{\lambda_2} + \frac{n_o(\lambda_1)}{\lambda_1}$ . En combinant cette

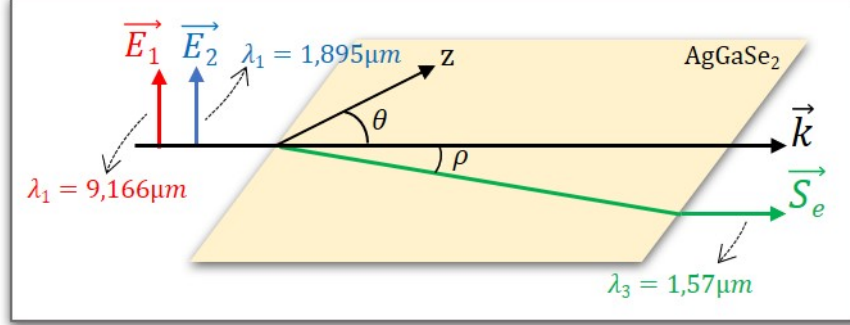


FIGURE 5.4 – Le faisceau de longueur d'onde  $1,565\mu\text{m}$  possédant une polarisation extraordinaire (e) est généré à partir des longueurs d'onde  $9,166\mu\text{m}$  et  $1,895\mu\text{m}$  des faisceaux incidents de polarisation ordinaire (o).  $\theta$  est l'angle que fait le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  avec l'axe optique du cristal ( $z$ ),  $\mathbf{S}$  est le vecteur de poynting et  $\rho$  est l'angle de walkoff (ou de double réfraction).

condition avec l'équation (5.24), on trouve que :

$$\theta_{\Delta k=0} = \arcsin\left(\sqrt{\frac{U-V}{W}}\right) \quad (5.26)$$

avec  $U = \left(\frac{n_{o1}}{\lambda_1} + \frac{n_{o2}}{\lambda_2}\right)^{-2}$ ,  $V = \left(\frac{\lambda_3}{n_{o3}}\right)^2$  et  $W = \lambda_3^2 \left(\frac{1}{n_{e3}^2} - \frac{1}{n_{o3}^2}\right)$ . Les indices de réfraction sont calculés à partir de l'équation suivante,

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^a - C} + \frac{F}{\lambda^b - G} + \frac{D}{1 - \frac{E}{\lambda^c}} \quad (5.27)$$

où les paramètres a,b,c et de A à G sont trouvés dans la référence [2] pour les indices ordinaire et extraordinaire. Les indices propres du cristal AgGaSe<sub>2</sub> pour les trois ondes sont donnés dans le tableau suivant Pour des faisceaux incidents à  $\lambda_1=9,166\mu\text{m}$

Indice	$\lambda=9,166\mu\text{m}$	$\lambda=1,895\mu\text{m}$	$\lambda=1,565\mu\text{m}$
$n_e$	2,565	2,610	2,623
$n_o$	2,598	2,640	2,652

TABLE 5.1 – Les indices propres du cristal AgGaSe<sub>2</sub> pour les trois ondes

et  $\lambda_2=1,895\mu\text{m}$ , la condition d'accord de phase est obtenue avec  $\theta = 53,6^\circ$ , ce qui correspond à un petit angle de walkoff  $\rho = 0,6^\circ$  (10.44 mrad) et un indice  $n_{e3}=2,651$  pour l'onde à  $1,565\mu\text{m}$ . Pour le cristal AgGaSe<sub>2</sub>, le coefficient non linéaire effectif

$d_{eff} = d_{36} \sin(\theta) \sin(2\phi)$  où  $d_{36}=33\text{pmV}^{-1}$  est l'élément du tenseur contracté de la susceptibilité non linéaire tel que  $d_{36} = \frac{1}{2}\chi^{(2)}$  et  $\phi$  est l'angle que fait la projection du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  dans le plan  $(x, y)$  avec l'axe  $x$  comme montré dans la figure 5.5. Le cristal est taillé pour que  $\phi=45^\circ$  et  $\sin(2\phi) = 1$ , ce qui maximise  $d_{eff}$ . La valeur de  $d_{eff}$  calculée pour l'accord de phase de type 1 est  $26,6 \text{ pmV}^{-1}$  supérieure à celle dans le cas de type 2 ( $26,2 \text{ pmV}^{-1}$ ), ce qui représente un autre argument pour l'utilisation de l'accord de phase de type 1. En suivant l'équation (5.21), l'efficacité de conversion calculée est  $4.41\text{mW/W}^2$  pour  $w_0 = 100\mu\text{m}$  et un cristal de longueur 10 mm.

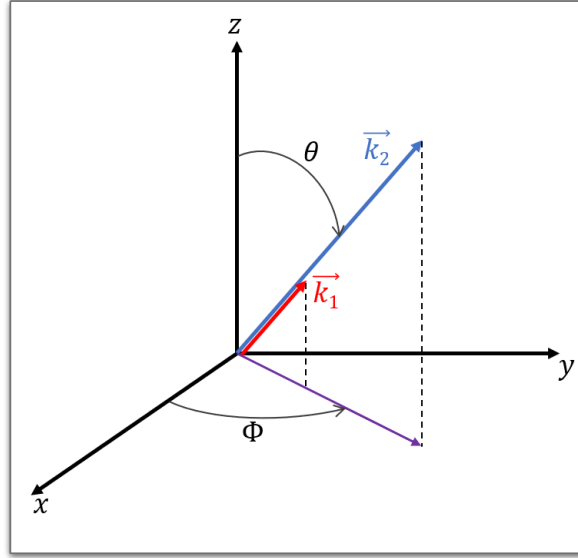


FIGURE 5.5 – Propriétés de réfraction dans un cristal uniaxe (AgGaSe<sub>2</sub>) :  $\theta$  l'angle que fait  $\mathbf{k}$  avec l'axe optique  $z$  et  $\Phi$  l'angle azimutal mesuré à partir de l'axe  $x$ . Figure prise de la référence [8].

### Acceptance spectrale

Comme nous l'avons dit en introduction, on s'intéresse à la somme de fréquence du laser à CO<sub>2</sub> avec le laser femtoseconde à peigne de fréquence. Le spectre de ce dernier, comme nous l'avons vu précédemment, est composé d'un nombre très grand de modes, tous séparés d'un intervalle égal à la fréquence de répétition des impulsions. La fréquence de la  $q^{\text{ème}}$  dent du peigne s'écrit :

$$\nu_q = f_0 + qf_{rep}, \quad (5.28)$$

où  $f_0$  est le décalage du peigne par rapport à l'origine,  $f_{rep}$  est la fréquence de répétition du peigne et  $q$  est un entier. Comme les conditions optimales pour la somme de fréquence dépendent des longueurs d'onde en jeu, l'efficacité de conversion ne peut être optimale pour toutes les dents du peigne. Il est donc utile de calculer l'acceptance spectrale

quand la longueur d'onde  $\lambda_2$  varie (n'est plus égale à  $1.895\mu m$ ). Elle est définie comme la fenêtre spectrale dans laquelle l'efficacité de conversion reste supérieure à la moitié du maximum de cette efficacité même si la condition d'accord de phase n'est plus vérifiée ( $\Delta k \neq 0$ ). La largeur de cette fenêtre pour  $\lambda_2$  peut être calculée à partir de l'expression de l'efficacité de conversion dans l'équation (5.21) et de l'expression 5.22 de  $\Delta k$ . Dans le cas d'une polarisation de type "ooe", elle s'écrit sous la forme [4]

$$\Delta\lambda_2 = \frac{0.886\lambda_2^2}{l_c} \left| n_{o2} - n_{e3} - \lambda_2 \frac{\partial n_{o2}}{\partial \lambda_2} + \lambda_3 \frac{\partial n_{e3}^\theta}{\partial \lambda_3} \right|^{-1}, \quad (5.29)$$

où  $n_{e3}^\theta$  est l'indice de réfraction extraordinaire de l'onde  $\lambda_3$  donné par l'équation 5.24,  $l_c$  est la longueur du cristal et  $c$  est la vitesse de la lumière. Pour que la fenêtre spectrale soit centrée en  $\lambda_2 = 1.895\mu m$ , l'angle  $\theta$  est choisi de façon à ce que la condition d'accord de phase soit vérifiée ( $\Delta k = 0$ ) pour cette valeur de  $\lambda_2$ . L'acceptance calculée pour un peigne centré en  $\lambda_2 = 1.895\mu m$  est  $\Delta\lambda_2 \simeq 17\text{ nm}$  ( $\Delta\nu_2 \simeq 1.44\text{THz}$ ), ce qui correspond à environ 7200 de dents si la fréquence de répétition  $f_{rep}$  est égale à 200 MHz.

### 5.2.1.2 Calcul en ondes gaussiennes

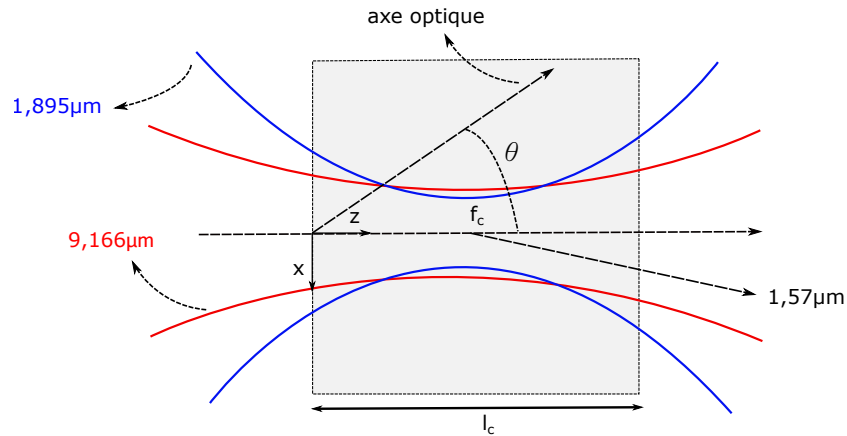


FIGURE 5.6 – Les faisceaux incidents considérés gaussiens sont focalisés à l'intérieur du cristal en  $x=y=0$  et  $z=f_c$ .  $\theta$  est l'angle que font les axes des faisceaux incidents avec l'axe optique du cristal. Dans cette figure, la divergence des faisceaux est exagérée.

Dans les expressions précédentes, nous avons supposé que les ondes étaient planes. Il ne peut s'agir que d'une approximation et, en réalité, l'extension spatiale d'un faisceau est finie et la répartition de lumière dans un plan transverse est non uniforme. Dans ce cas l'équation de propagation fait alors intervenir les gradients du champ électrique dans les directions transverses, noté  $\nabla_\perp$ . Pour cela nous allons considérer que les faisceaux incidents sont des faisceaux gaussiens dont nous rappelons l'expression du

champ électrique [1] :

$$E_j(\mathbf{r}) = \frac{A_j}{1 + i\tau_j} \exp\left(\frac{-\alpha_j}{2}z\right) \exp[i(k_j z - \phi_j)] \exp\left[\frac{(x - \rho_j(z - f_c))^2 + y^2}{w_j^2(1 + \tau_j)}\right] \quad (5.30)$$

où

- $j=1,2$  est l'indice du faisceau de longueur d'onde respectivement  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$
- $A_j$  est l'amplitude réelle du champ du faisceau de longueur d'onde  $\lambda_j$
- $\phi_j$  est une phase constante
- $\alpha_j$  est le coefficient d'absorption du cristal à la longueur d'onde  $\lambda_j$
- $\tau_j = (z - f_c)/z_j$  avec  $z_j = \frac{1}{2}k_j w_j$  qui est la longueur de Rayleigh qui représente la distance caractéristique de focalisation du faisceau
- $f_c = \eta l_c$  est la localisation du waist mesurée à partir de la face d'entrée du cristal ( $\eta = 0.5$  correspond à un waist situé au centre du cristal).

### Calcul de l'efficacité de conversion

Une solution scalaire de l'équation 5.16 est donnée par [1] :

$$E_3(\mathbf{r}) = i \frac{\omega_3}{cn_3} \int P^{NL}(\mathbf{r}') G_3(\mathbf{r}', \mathbf{r}) d\mathbf{r}' \quad (5.31)$$

où  $G$  est la fonction de Green pour un angle de walkoff petit. Elle s'écrit sous la forme :

$$G_3(\mathbf{r}', \mathbf{r}) = \frac{k_3}{i2\pi Z} \exp\left(-\frac{\alpha_3}{2}Z + ik_3 Z\right) \exp\left[\frac{ik_3(X^2 + Y^2)}{2Z}\right] \quad (5.32)$$

$$\text{avec } X = (x - \rho z) - (x' - \rho z') \quad (5.33)$$

$$Y = y - y', \quad (5.34)$$

$$\text{et } Z = z - z' > 0. \quad (5.35)$$

$\alpha_3$  est le coefficient d'absorption de l'onde de fréquence  $\omega_3$ . Pour une onde polarisée extraordinaire, la fonction de Green donnée par l'équation (5.32) est valable dans le cas d'une petite anisotropie ( $\frac{\Delta n}{n} \simeq 10^{-2}$  dans notre cas, qui se traduit par  $\rho = 10,44\text{mrad}$ ). La forme générale de la fonction de Green est donnée dans la référence [7]. Dans le cas d'accord de phase de type *ooe*,  $\rho_1 = \rho_2 = 0$  dans l'équation (5.30). Comme il y a peu d'absorption dans le cristal, on suppose que l'efficacité de conversion est optimale quand les deux waists  $w_j$  sont situés à la même position suivant  $z$  qu'on note  $f_c$ . L'amplitude

de l'onde à  $\omega_3$  à la sortie du cristal en  $z = l_c$ , s'écrit alors

$$E_3(x, y, l_c) = i \frac{\omega_3}{cn_3} dA_1 A_2 \exp\left(-\frac{\alpha_3 l_c}{2}\right) \exp(ik_3 l_c - \phi_1 - \phi_2) \\ \times \int_0^{l_c} dz' \frac{\exp(-\alpha z' + i\Delta k z')}{Q_s(\tau')} \exp\left[-\frac{[x - \rho(l_c z')]^2 + y^2}{w_u^2 R_s(\tau')}\right], \quad (5.36)$$

où

$$Q_s(\tau) = (1 + \kappa_1 \tau)(1 + \kappa_2 \tau) + i(1 + \kappa_e \tau)(l - f - \tau) \quad (5.37)$$

$$R_s(\tau) = \frac{Q_s(\tau)}{(1 + \kappa_e \tau)}. \quad (5.38)$$

avec les notations

$$z_u = \frac{1}{2} k_3 w_u^2 \quad (5.39)$$

$$\kappa_{1,2} = \frac{z_u}{z_{1,2}} = \frac{k_1 + k_2}{k_1 z_2 + k_2 z_1} \quad (5.40)$$

$$\kappa_e = \left( \frac{k_1 + k_2}{k_1 z_2 + k_2 z_1} \right) z_1 z_2 \quad (5.41)$$

$$l = \frac{l_c}{z_u}, f = \frac{f_c}{z_u} = \eta l \quad (5.42)$$

$$a = \frac{\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3}{2} z_u, \sigma = \Delta k z_u. \quad (5.43)$$

Les paramètres  $l, f, a$  et  $\sigma$  sont respectivement le paramètre de focalisation, la position du waist à l'intérieur du cristal, le paramètre d'absorption normalisé et le paramètre d'accord de phase. L'efficacité de conversion est définie par  $\Gamma = \frac{P_3}{P_1 P_2}$  où  $P_3$  est obtenue en intégrant la distribution d'intensité  $I_3(x, y, l_c) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_3 E_3 E_3^*$  dans le plan  $(x, y)$ . Un choix d'écriture de l'expression de l'efficacité de conversion est donné par

$$\Gamma_{SFG} = K_{SFG} l_c (k_1^{-1} + k_2^{-1})^{-1} e^{-\alpha_3 l_c} h_{SFG}(a, l, f, \sigma) \quad (5.44)$$

où  $K_{SFG} = \frac{8\omega_3^2 d^2}{\pi \varepsilon_3 c^3 n_{o1} n_{o2} n_{e3}}$  et  $h_{SFG}$  est la fonction de Boyd et Kleinman, donnée par

$$h_{SFG}(a, l, f, \sigma) = \frac{\kappa_e}{2l} \int_{-f}^{l-f} d\tau d\tau' \\ \times \frac{\exp[-a(\tau + \tau' + 2f) + i\sigma(\tau - \tau')]}{(1 - i\kappa_e \tau') Q_s(\tau) + (1 + i\kappa_e \tau) Q_s^*(\tau')} \times F_\beta(\tau, \tau'), \quad (5.45)$$

avec

$$F_{\beta}(\tau, \tau') = \exp -\beta^2[\tau^2/R_S(\tau) + \tau'^2 R_S^*(\tau')] \\ \times \exp \left( +\beta^2[\tau/R_S(\tau) + \tau'/R_S^*(\tau')]^2 \times \frac{Q_S(\tau)Q_S^*(\tau')}{(1+i\kappa_e\tau)Q_S(\tau) + (1+i\kappa_e\tau')Q_S^*(\tau')} \right). \quad (5.46)$$

où

$$B = \frac{\rho}{2} \left[ \frac{k_3}{2} l_c \right] \quad \text{et} \quad \beta = \frac{\rho z_u}{w_u} = \frac{2B}{\sqrt{l}}. \quad (5.47)$$

Pour faire ce calcul compliqué dans un code python donné en annexe 7.1, j'ai défini une fonction qui prend comme arguments les longueurs d'ondes  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , les waists  $w_1$  et  $w_2$ , la longueur du cristal et  $\theta$  (l'angle que font les faisceaux incidents avec l'axe optique du cristal) et qui retourne la valeur de l'efficacité de conversion. Les intégrations sont faites en utilisant la méthode de Simpson. Pour des faisceaux incident à 9,166  $\mu\text{m}$  et 1,895  $\mu\text{m}$  de même waist  $w = 100 \mu\text{m}$ , un accord de phase idéal  $\Delta k=0$ , une focalisation au centre du cristal décrite par  $\eta=0.5$  et une longueur de cristal de 10mm, l'efficacité de conversion est égale à 1,2 mW/W<sup>2</sup> soit 27,7% de la valeur calculée en onde plane, ce qui souligne l'importance de faire le calcul en ondes gaussiennes.

### Optimisation de $\Gamma_{SFG}$

La figure (5.7) montre la variation de l'efficacité de conversion en fonction des waists des faisceaux incidents à l'intérieur du cristal. On voit que pour chaque valeur du waist  $w_1$  ( $w_{9,166}$ ), l'efficacité de conversion admet un optimum correspondant à une valeur  $w_{2,opt}$  donnée. D'après cette figure, le maximum qu'on peut atteindre dans cette configuration est  $\sim 2,17 \text{ mW/W}^2$  avec les waists  $(w_1, w_2)_{opt} = (53,4\mu\text{m}, 39\mu\text{m})$  dans le cristal.

### Existe-t-il un optimum sur $\theta$ et $\eta$ ?

L'objectif de cette partie est de voir s'il existe un optimum de l'efficacité de conversion  $\Gamma_{SFG}$  suivant l'accord de phase  $\Delta k$ , les deux waists  $(w_1, w_2)$  des faisceaux incidents et leur localisation à l'intérieur du cristal donnée par le facteur  $\eta = \frac{f_c}{l_c}$  ( $f_c$  est la position des deux waists et  $l_c$  est la longueur du cristal). Cette optimisation s'effectue en variant l'angle  $\theta$  (l'angle que font les deux faisceaux incidents avec l'axe optique du cristal) entre 52,7° et 53,85° (ce qui est équivalent à une variation de  $\Delta k$ ), et pour chaque valeur de  $\theta$ , le couple  $(w_1, w_2)_{opt}$  et la valeur de  $\eta$  donnant le maximum de l'efficacité de conversion sont déterminés par un algorithme de maximisation où j'ai scanné  $w_1$  entre 10 et 100 $\mu\text{m}$  par pas de 3 $\mu\text{m}$ , et pour chaque valeur de  $w_1$ , j'ai scanné  $w_2$  dans le même intervalle. La valeur du paramètre de localisation  $\eta$  qui optimise l'efficacité de conversion est  $\eta_{opt}=0,5$  [1]. Les résultats de l'optimisation pour le cristal AgGaSe<sub>2</sub> de longueur  $l_c=10 \text{ mm}$  sont représentés dans la figure (5.8). Cette figure montre la variation



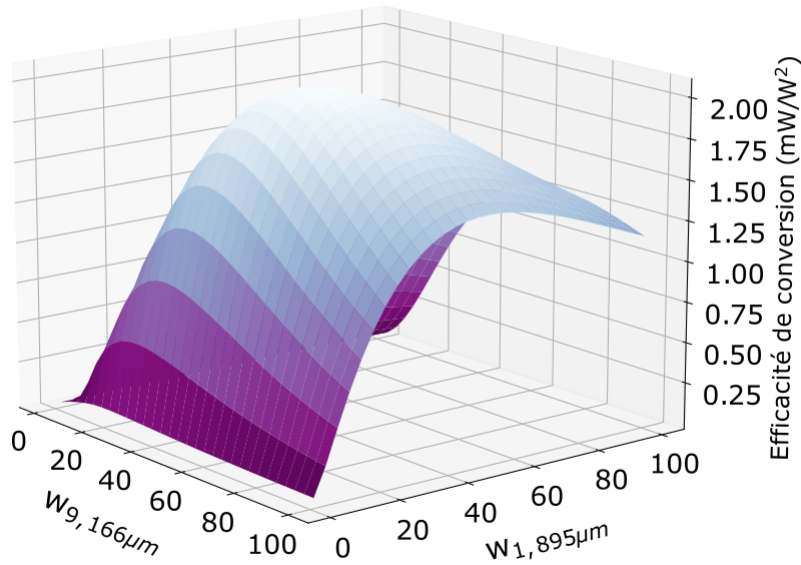


FIGURE 5.7 – Efficacité de conversion en fonction des waists  $w_1$  et  $w_2$ . L'efficacité est calculée pour une longueur de cristal  $l_c=10\text{mm}$ , pour une condition d'accord de phase vérifiée ( $\Delta k = 0$ ) et pour des waists situés au milieu du cristal.

du maximum de l'efficacité de conversion en fonction de l'angle  $\theta$ . Pour  $l_c = 10 \text{ mm}$ , l'optimum est  $\Gamma_{opt} = 2,6 \text{ mW/W}^2$ , obtenu lorsque l'angle  $\theta_{opt} = 53,44^\circ$  qui est très proche de la condition d'accord de phase  $\theta_{\Delta k=0}$  ( $\Delta\theta = \theta_{\Delta k=0} - \theta_{opt} = 0,16^\circ$ ).

### 5.2.2 Expérience

Pour générer la somme de fréquence, nous utilisons un cristal  $\text{AgGaSe}_2$  d'une longueur de 8 mm. Nous expliquerons plus loin dans ce chapitre le choix de cette longueur. L'optimum de l'efficacité de conversion pour cette longueur de cristal est  $2,21 \text{ mW/W}^2$ , obtenu avec les paramètres suivants :

$$\begin{aligned} w_{9,166}^{opt} &= 42 \mu\text{m}, \\ w_{1,895}^{opt} &= 33 \mu\text{m}, \\ \theta_{opt} &= 53,45^\circ. \end{aligned}$$

Dans cette section, nous aborderons en détail la préparation des faisceaux impliqués dans la génération du faisceau somme de fréquence. Nous décrirons les procédures expérimentales, y compris le réglage des équipements et les paramètres de contrôle. Pour évaluer la cohérence entre la théorie et la pratique, nous comparerons également les

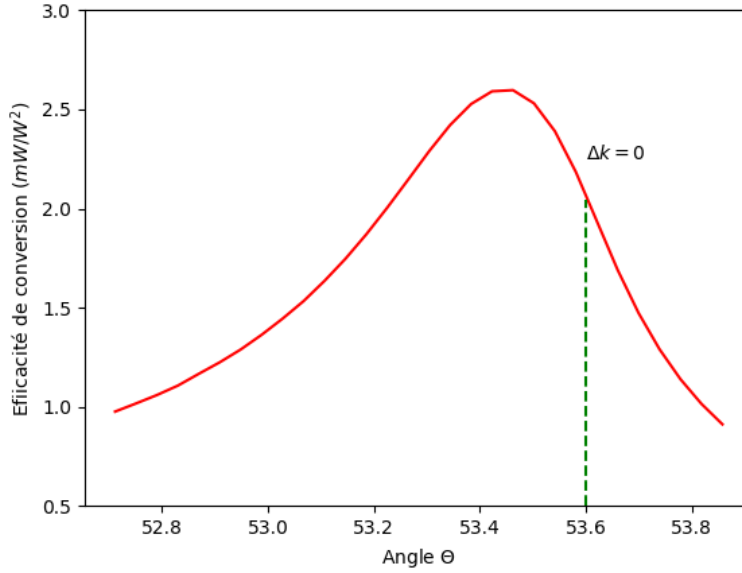


FIGURE 5.8 – Efficacité de conversion en fonction de  $\theta$ . Chaque valeur de l'efficacité de conversion est obtenue en optimisant l'efficacité de conversion suivant  $w_1$ ,  $w_2$  et  $\eta$ . Le pointillé vert représente la condition d'accord de phase  $\Delta k = 0$

résultats expérimentaux avec ceux issus de nos simulations numériques.

### 5.2.2.1 Préparation des faisceaux

Le dispositif expérimental est représenté dans la figure 5.9. Les deux faisceaux laser à 9,166  $\mu\text{m}$  et 1,895  $\mu\text{m}$  sont combinés dans le cristal AgGaSe<sub>2</sub> de dimensions 8×5×5 mm<sup>3</sup> pour générer la somme de fréquence. Après avoir enlevé une partie de la puissance pour faire un battement avec le laser à cascade quantique et une partie pour la spectroscopie de l'acide formique, le laser à CO<sub>2</sub> est focalisé dans le cristal en utilisant un télescope composé d'une lentille L<sub>3</sub> (II-VI Infrared, f=50 mm) et une deuxième lentille L<sub>4</sub> (Edmund 39-518, f=50 mm). Les surfaces des deux lentilles sont traitées avec un antireflet à 9,2  $\mu\text{m}$ . Il faut noter que le faisceau laser est très divergeant puisque la valeur du waist  $w_1^{opt}$  est de l'ordre de 3 à 4 fois la longueur d'onde du laser à CO<sub>2</sub> et donc son diamètre à la position de la lentille L<sub>4</sub> est supérieure à 25,4 mm (1 pouce). Par conséquent, nous avons décidé d'utiliser une lentille de deux pouces (diamètre=50,8 mm) pour la lentille L<sub>4</sub>. De plus, cette lentille a une géométrie asphérique, que j'ai simulée et validée avec le logiciel OSLO, qui limite les aberrations géométriques.

Le faisceau à 1,895  $\mu\text{m}$  issu du module d'extension du peigne de fréquence arrive à la table optique avec une fibre optique connectée à un collimateur fibré (Schäfter+Kirchhoff : 60FC-SF-4-A6.2S). Ce faisceau dont les modes s'écrivent  $f_{q_1} = f_1 +$

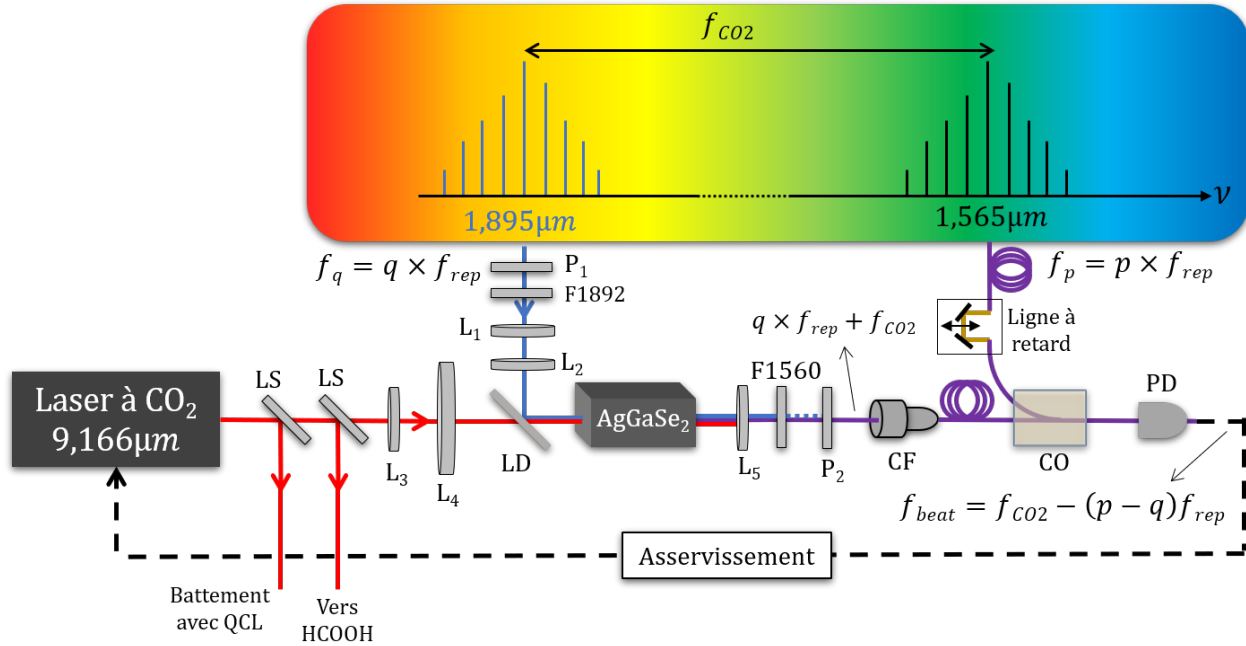


FIGURE 5.9 – Schéma expérimental de la stabilisation du laser à  $\text{CO}_2$  sur le peigne de fréquence. Le faisceau du laser à  $\text{CO}_2$  de fréquence  $f_{\text{CO}_2}$  est combiné avec la partie à  $1,895 \mu\text{m}$  du peigne pour générer la somme de fréquence dans le cristal  $\text{AgGaSe}_2$ . Le peigne généré centré à  $1,565 \mu\text{m}$  est combiné avec le peigne original centré à  $1,565 \mu\text{m}$  pour détecter le battement sur la photodiode. Ce battement est utilisé ensuite pour asservir le laser à  $\text{CO}_2$ . LS : lame séparatrice, L : lentille, P : polariseur, F1560 : filtre centré à  $1560 \text{ nm}$ , F1890 : filtre centré à  $1890 \text{ nm}$ , LD : lame dichroïque, CF : collimateur fibré, CP : contrôle de polarisation, CO : coupleur optique, PD : photodiode.

$q_1 f_{\text{rep}}$  avec  $f_1$  la fréquence centrale du spectre, est filtré spectralement avec un filtre F1980 (SPECTROGON NB-1890-054) centré à  $1892 \text{ nm}$  avec un facteur de transmission de  $77\%$  et une largeur de  $54 \text{ nm}$ . Dans un accord de phase de type ooe, les polarisations des faisceaux incidents sont parallèles. La polarisation du faisceau à  $1,895 \mu\text{m}$  peut être contrôlée en tournant le collimateur fibré. Elle est ajustée en maximisant la puissance transmise à travers d'un polariseur  $P_1$  (Thorlabs LPNIRA-050) aligné horizontalement comme la polarisation du faisceau laser à  $\text{CO}_2$ . Le taux d'extinction du polariseur est  $10^{-4}$  et le facteur de transmission est  $85\%$  à  $1,895 \mu\text{m}$ . La préparation du faisceau avec le waist voulu est réalisée aussi grâce à un télescope composé deux lentilles  $L_1$  plan concave divergente (Thorlabs LC1715-C,  $f=-50 \text{ mm}$ ) et  $L_2$  plan convexe (Thorlabs LA1608-D,  $f=75 \text{ mm}$ ). Le télescope est placé de façon à ce que la position du waist du faisceau à  $1,895 \mu\text{m}$  soit le plus proche possible de celle du faisceau à  $9,166 \mu\text{m}$ . Les faisceaux lasers sont ensuite combinés grâce à une lame dichroïque (Edmund) en Germanium d'une taille de deux pouces (diamètre =  $50,8 \text{ mm}$ ). Cette lame est utilisée pour réfléchir le faisceau à  $1,895 \mu\text{m}$  et transmettre le faisceau à  $9,166 \mu\text{m}$ . Nous avons mesuré les coefficients de réflexion et de transmission de cette lame en polarisation hori-

zontale et verticale pour les deux faisceaux et obtenu  $T(9,166\mu\text{m})\simeq 100\%$  et  $R(1,895\mu\text{m}) = 93,4\%$  en polarisation horizontale contre  $T(9,166\mu\text{m}) = 63\%$  et  $R(1,895\mu\text{m}) = 87,3\%$  en polarisation verticale. Ces chiffres expliquent le choix de la polarisation horizontale pour les faisceaux pompe.

### 5.2.2.2 Alignement des faisceaux

La superposition des faisceaux est un facteur critique pour obtenir la somme de fréquence. L'axe du faisceau laser à CO<sub>2</sub> après la lame dichroïque a été pris comme référence et nous avons aligné le faisceau du peigne à 1,895  $\mu\text{m}$  sur cet axe. Pour cela, nous avons placé un pinhole (Thorlabs : P50HK) qui sera remplacé par le cristal non linéaire après l'alignement et un diaphragme dans l'axe du faisceau laser à CO<sub>2</sub>. La distance qui sépare le pinhole et le diaphragme est 10 cm. Le pinhole est monté sur deux goniomètres permettant le réglage angulaire selon les angles  $\theta$  et  $\phi$ . Le système lui même est monté sur des platines de translation pour pouvoir déplacer le pinhole dans les trois dimensions de l'espace. Le faisceau à 1,895  $\mu\text{m}$  est alors aligné sur l'axe du laser à CO<sub>2</sub> grâce à des miroirs placés entre la lentille L<sub>2</sub> et la lame dichroïque en optimisant la puissance transmise à travers le diaphragme. Les waists très petits des faisceaux qu'il faut mettre dans le cristal pour obtenir la somme de fréquence rendent l'alignement assez délicat car il faut superposer les faisceaux à quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  près. D'après les résultats de la simulation de la somme de fréquence, les deux faisceaux doivent être focalisés au milieu du cristal. Or, une différence d'indice entre les faisceaux à 9,166  $\mu\text{m}$  et 1,895  $\mu\text{m}$  dans le cristal AgGaSe<sub>2</sub> fait que les waists des faisceaux doivent être décalés lors de la préparation de l'alignement fait dans l'air. Ce décalage est donné par  $\delta n_{\frac{l}{2}} = 0,16$  mm où  $l=8$  mm est la longueur du cristal et  $\delta n \sim 4,14 \cdot 10^{-2}$  est l'écart entre les indices à 9,166  $\mu\text{m}$  et 1,895  $\mu\text{m}$ .

Les positions des waists des faisceaux ont été mesurées en charriotant le pinhole suivant l'axe des faisceaux. La position du waist laser à CO<sub>2</sub> a été prise comme référence et le décalage est réalisé en jouant sur la position de la lentille L<sub>2</sub> du faisceau à 1,895  $\mu\text{m}$ .

### 5.2.2.3 Détection du faisceau somme de fréquence

Le cristal AgGaSe<sub>2</sub> est taillé de façon à ce que, si les faisceaux sont en incidence normale, l'angle entre les vecteurs d'ondes des faisceaux et l'axe optique du cristal correspond à l'angle d'accord de phase. La surface d'entrée du cristal AgGaSe<sub>2</sub> est traitée avec un traitement antireflet à 1,895  $\mu\text{m}$  et 9,2  $\mu\text{m}$  tandis que la surface de sortie a un traitement antireflet à 1,565  $\mu\text{m}$ .

A la sortie du cristal, on obtient le faisceau somme de fréquence dont le spectre correspond à un peigne décalé centré à 1,565  $\mu\text{m}$ . Les fréquences des modes de ce peigne sont données par

$$f_1 + q_1 f_{rep} + f_{CO_2}, \quad (5.48)$$

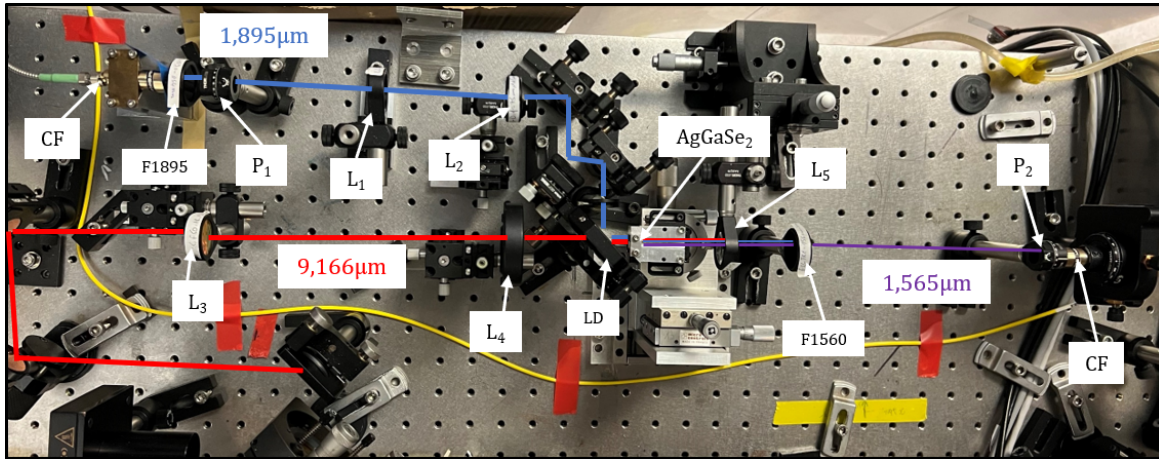


FIGURE 5.10 – Dispositif expérimental pour la génération de somme de fréquence.

où  $f_{CO_2}$  est la fréquence du laser à  $CO_2$ . Pour isoler le faisceau somme de fréquence, une première étape consiste à mettre, à la sortie du cristal, une lentille  $L_5$  biconvexe (Thorlabs LB1471-C,  $f = 50$  mm). Cette lentille permet de bloquer le faisceau laser à  $CO_2$  transmis par le cristal et surtout de mettre en forme parallèle le faisceau somme pour l'injecter dans la fibre. Le faisceau est ensuite filtré spectralement par un filtre F1560 (SPECTROGON NB-1560-056) centré à 1560 nm, d'une largeur de 56 nm et un facteur de transmission de 67%. Ce filtre permet d'atténuer la puissance transmise à 1,895  $\mu\text{m}$  par le cristal. La polarisation du faisceau généré est perpendiculaire à celle des faisceaux incidents dans le cas d'une somme de fréquence de type ooe, donc un polariseur  $P_2$  (Thorlabs LPNIRA-050) aligné verticalement est placé après le filtre pour bloquer complètement le faisceau à 1,895  $\mu\text{m}$ .

#### 5.2.2.4 Efficacité de conversion

Pour estimer l'efficacité de conversion de la génération de somme de fréquence, il faut déterminer la puissance du faisceau somme de fréquence à la sortie du cristal. Cependant, il n'est pas possible de mesurer cette puissance à cause de la présence des résidus des faisceaux à 1,895  $\mu\text{m}$  et 9,166  $\mu\text{m}$  à la sortie du cristal. Expérimentalement, la puissance totale du faisceau à 1,895  $\mu\text{m}$  à la sortie du collimateur fibré est 300 mW. Cette puissance se réduit à 26,4 mW après le filtre F1892 et le polariseur  $P_1$  et à 18,4 mW après la lame dichroïque, c'est à dire à l'entrée du cristal. La puissance du peigne généré à 1,565  $\mu\text{m}$  est mesurée après le polariseur  $P_2$ , là où le faisceau est isolé, avec une grosse photodiode (InGaAs-3000) d'un diamètre de 3 mm et un rendement de 0,95 A/W à 1550 nm. Pour une puissance de 87 mW à 9,166  $\mu\text{m}$  à l'entrée du cristal, la puissance du peigne généré est 627 nW. Cette valeur correspond à une puissance de 1,1  $\mu\text{W}$  à la sortie du cristal si on prend en compte les facteurs de transmission 85% du polariseur et 67% du filtre. L'efficacité de conversion expérimentale est alors 0,7 mW/W<sup>2</sup>.

### 5.2.2.5 Comparaison avec l'efficacité de conversion théorique

D'après la documentation du filtre F1892 (SPECTROGON), sa fonction de transmission ressemble fortement à une lorentzienne. On considère que, à l'entrée du cristal, la puissance du faisceau à 1,895 μm est distribuée sur les dents du peigne suivant une lorentzienne (figure 5.11) donnée par

$$L(f_{q_1}) = \frac{A}{1 + \left(\frac{2(f_{q_1} - f_c)}{\gamma}\right)^2}, \quad (5.49)$$

où  $f_{q_1} = f_1 + q_1 f_{rep}$  est la fréquence du mode d'ordre  $q_1$  du peigne avec  $f_{rep} = 200$  MHz la fréquence de répétition du peigne,  $f_c$  est la fréquence centrale du filtre,  $A$  est la puissance du mode central du spectre, et  $\gamma$  la largeur à mi-hauteur du spectre supposée fixée par celle du filtre. Si la puissance totale du faisceau à 1,895 μm est 18,4 mW, la fonction  $L$  doit vérifier  $\sum_p L(f_q) = 18,4$  mW, donc le facteur  $A$  est estimé à 518 nW.

Pour un cristal de 8 mm de longueur, l'optimum théorique d'efficacité de conversion

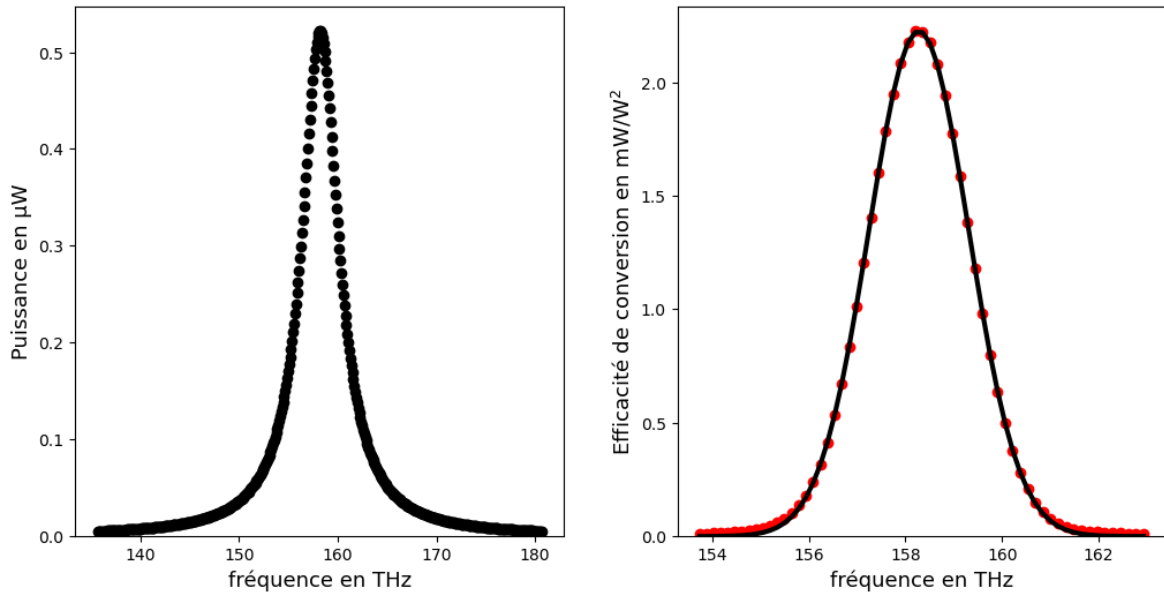


FIGURE 5.11 – A gauche : La forme du spectre du peigne à 1,895 μm à l'entrée du cristal. La puissance de 18,4 mW est supposée distribuée selon une lorentzienne avec une largeur donnée par celle du filtre F1890 (~4,5 THz). A droite : Le profil d'efficacité de conversion de la somme de fréquence du cristal AgGaSe<sub>2</sub> en fonction de la fréquence du mode du peigne à 1,895 μm. La courbe noire correspond à un ajustement gaussien.

de la somme de fréquence dans le cas monochromatique (1,895 μm + 9,166 μm) est 2,21 mW/W<sup>2</sup>. Cet optimum est atteint avec les waists  $w_1^{opt} = 42$  μm pour le faisceau à 9,166 μm et  $w_2^{opt} = 33$  μm pour la faisceau à 1,895 μm et un angle d'accord de phase de 53,45°. On fixe alors ces paramètres et on calcule l'efficacité de conversion pour

chaque dent (ou mode) du peigne à  $1,895 \mu\text{m}$ . L'efficacité de conversion en fonction de la fréquence des modes du peigne est montrée dans la figure 5.11. Ce profil correspond parfaitement à une gaussienne qu'on peut l'écrire sous la forme :

$$\Gamma(f_{q_1}) = \Gamma_0 e^{-\frac{(f_{q_1}-f_0)^2}{2\sigma^2}}, \quad (5.50)$$

où  $\Gamma_0=2,21 \text{ mW/W}^2$  est l'efficacité pour la fréquence centrale  $f_0$  (cas monochromatique). L'acceptance spectrale est  $\sim 2,24 \text{ THz}$ , elle est deux fois plus petite que la largeur du filtre F1892.

Théoriquement, la puissance totale du peigne somme est alors donnée par

$$P = P_{9,166} \times \sum_{q_1} \Gamma(f_{q_1}) L(f_{q_1}), \quad (5.51)$$

où  $P_{9166}$  est la puissance du laser à  $\text{CO}_2$  à l'entrée du cristal. La valeur théorique de la puissance totale est  $1,12 \mu\text{W}$ , correspond à une efficacité de conversion théorique de  $0,7 \text{ mW/W}^2$ . Ces résultats sont en très bon accord avec ce qu'on a mesuré expérimentalement.

### Pourquoi un cristal de 8 mm ?

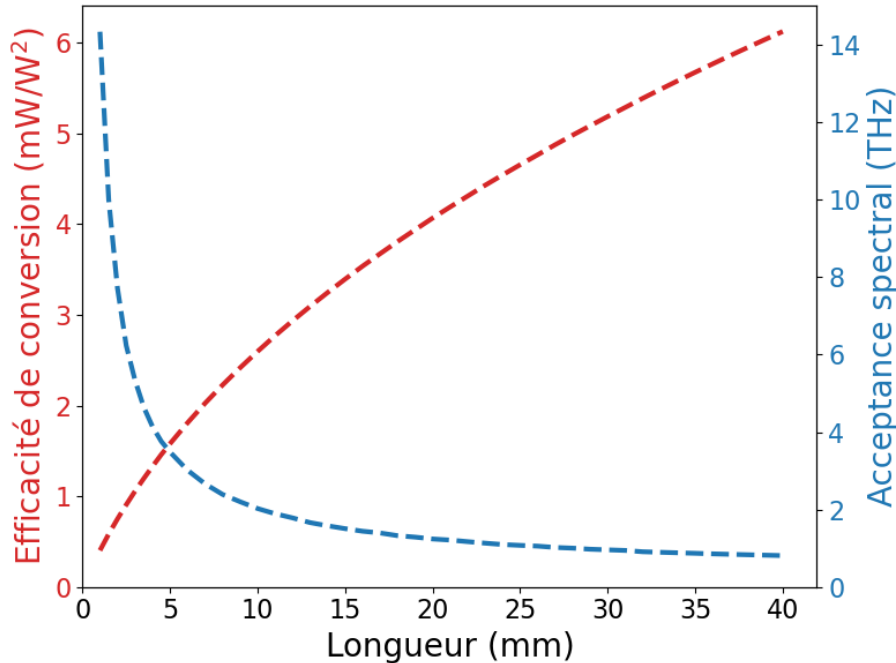


FIGURE 5.12 – Variations des paramètres du profil gaussien de l'efficacité de conversion en fonction de la longueur du cristal  $\text{AgGaSe}_2$ . En rouge : L'amplitude du profil. En bleu : La largeur à mi-hauteur du profil.



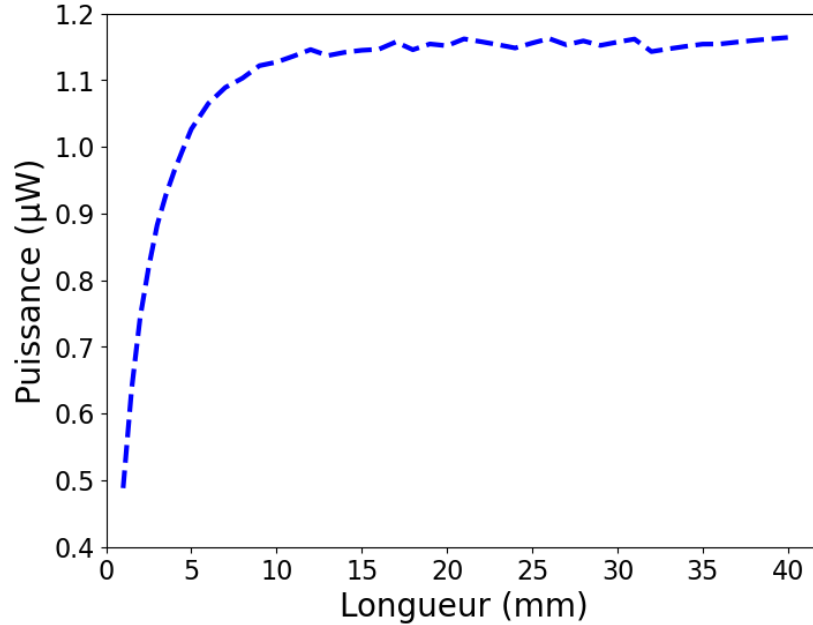


FIGURE 5.13 – Variation de la puissance totale théorique du peigne généré par la somme de fréquence en fonction de la longueur du cristal.

La puissance totale du peigne généré à  $1,565 \mu\text{m}$  comme on l'a vu dans le paragraphe précédent dépend du profil gaussien de l'efficacité de conversion du cristal  $\text{AgGaSe}_2$ . Les paramètres de ce profil dépendent de la longueur du cristal comme montré dans la figure (5.12) où les calculs sont faits avec le modèle des ondes gaussiennes. Lorsque la longueur du cristal est petite, l'acceptance spectrale est grande (et donc le nombre de dents incluses dans la fenêtre spectrale est grand) mais l'efficacité de conversion est faible. A contrario, pour un cristal long, l'efficacité est grande mais l'acceptance spectrale est faible.

Il faut noter que les waists  $w_1^{opt}$  et  $w_2^{opt}$  ainsi que l'angle  $\theta^{opt}$  qui optimisent l'efficacité de conversion (Figure 5.12), c'est-à-dire l'amplitude du profil gaussien, dépendent de la longueur du cristal. Pour chaque longueur, j'ai fixé les paramètres optimums et j'ai calculé l'efficacité de conversion pour chaque dent du spectre de l'extension à  $1,895 \mu\text{m}$  pour obtenir finalement l'acceptance spectrale correspondante à cette longueur. La puissance totale théorique du peigne somme à  $1,565 \mu\text{m}$  en fonction de la longueur du cristal est donnée dans la figure (5.13). Elle augmente avec la longueur du cristal et converge vers une valeur de  $1,15 \mu\text{W}$  qui est très proche de celle qu'on a obtenue avec un cristal de 8 mm.

Expérimentalement, le faisceau du peigne généré est combiné avec celui du peigne original, dont le spectre est aussi supposé lorentzien (Figure 5.14 à gauche), pour générer un battement RF comme montré dans la figure 5.15. La figure (5.14 à droite) montre la variation de la la puissance théorique du signal de battement entre  $220 \mu\text{W}$  du peigne original et 20% de la puissance totale du peigne généré en fonction de la longueur du



crystal. Il existe un optimum mou situé à des longueurs de cristal entre 5 et 8 mm. Ce calcul nous a convaincu d'acheter un cristal de 8 mm et qu'il est inutile d'acheter un cristal trop long qui serait plus cher.

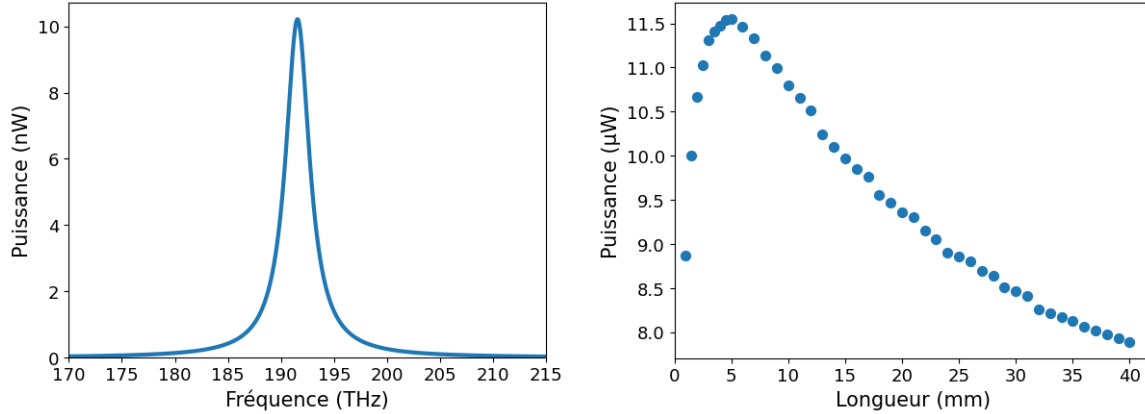


FIGURE 5.14 – A gauche : Profil lorentzien du peigne original centré à  $1,565 \mu\text{m}$  qu'on considère pour faire le calcul de puissance du signal de battement. La puissance totale est  $220 \mu\text{W}$ . A droite : Puissance totale théorique du signal de battement entre le peigne original et le peigne généré en fonction de la longueur du cristal. On a pris seulement 20% de la puissance totale du peigne généré.

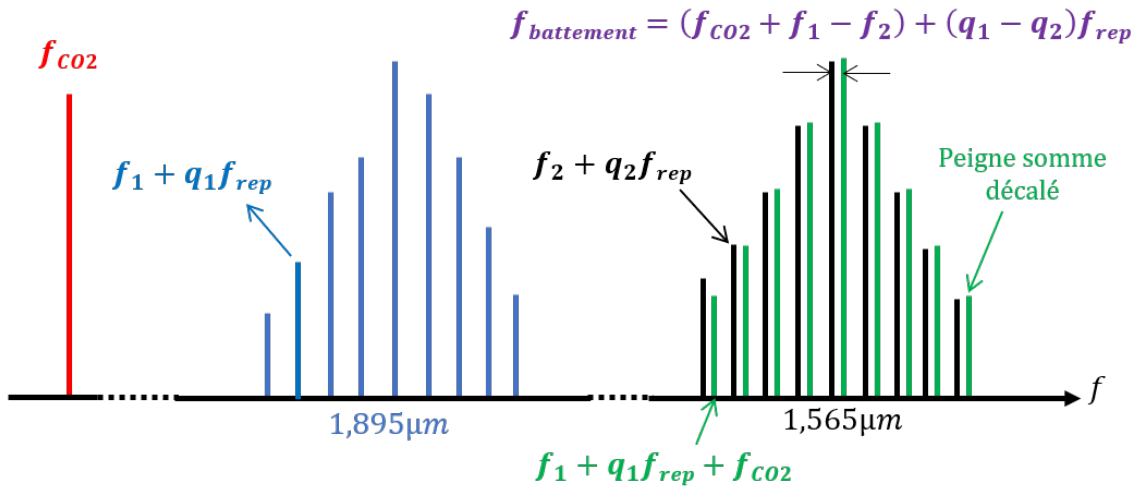


FIGURE 5.15 – Somme de fréquence entre la partie extension du peigne à  $1,895 \mu\text{m}$  (bleu) de modes  $f_1 + q_1 f_{\text{rep}}$  et le laser à  $\text{CO}_2$  (rouge) de fréquence  $f_{\text{CO}_2}$  pour générer un nouveau peigne à  $1,565 \mu\text{m}$  (vert) de modes  $f_1 + q_1 f_{\text{rep}} + f_{\text{CO}_2}$ . Ce peigne est combiné avec le peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$  (noir) de modes  $f_2 + q_2 f_{\text{rep}}$  pour générer un battement radio-fréquence de fréquence  $f_{\text{battement}} = f_{\text{CO}_2} + f_1 - f_2 + (q_1 - q_2)f_{\text{rep}}$ .

## 5.3 Génération du battement RF

### 5.3.1 Couplage du faisceau somme dans la fibre

Le faisceau généré est couplé dans une fibre optique en utilisant un collimateur fibré (Schäfter+Kirchhoff : 60FC-SF-4-A4.5S) (Figure 5.9) fixé dans une monture permettant le réglage angulaire et la translation suivant les trois dimensions de l'espace. Le waist du faisceau généré à 1,565 μm, situé au centre du cristal, est donné par [1]

$$w_3 = \frac{w_{1,opt}w_{2,opt}}{(w_{1,opt}^2 + w_{2,opt}^2)^{1/2}}. \quad (5.52)$$

Le faisceau est rendu parallèle grâce à la lentille L<sub>5</sub> et envoyé ensuite vers le collimateur. 60% de la puissance du faisceau généré est injecté dans la fibre. Ces pertes sont dues essentiellement au fait que la géométrie du faisceau n'est pas parfaitement adaptée à la configuration du collimateur.

### 5.3.2 Génération du battement RF

Environ 90% de la puissance du peigne généré injectée dans la fibre optique est couplée avec 10% du peigne original à 1,565 μm pour générer un battement radio-fréquence au niveau du photo-détecteur (Figure 5.9) qui sera utilisé par la suite pour asservir le laser à CO<sub>2</sub>. Il s'agit d'un battement entre deux peignes de fréquence, c'est à dire deux trains d'impulsions dans l'espace temps comme montré dans la figure 5.16. Si on considère que les deux peignes sont idéaux, on peut écrire la puissance du signal

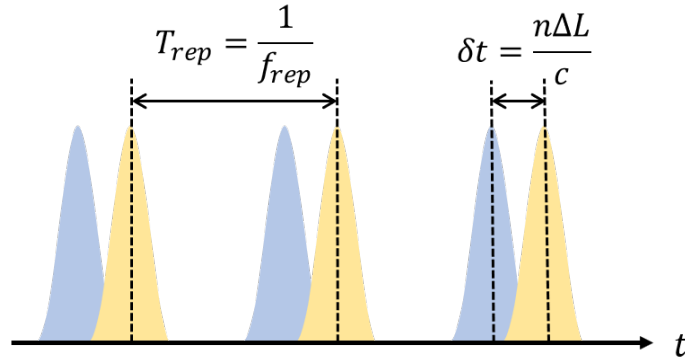


FIGURE 5.16 – Décalage temporel  $\delta t$  entre les deux trains d'impulsions du peigne généré et le peigne original dû à la différence de marche  $\Delta L$  dans les fibres d'indice  $n$ .  $T_{rep}$  est le taux de répétition des peignes.

de battement électriques sous la forme (équation 4.26) :

$$P_\omega = \frac{\eta\epsilon_0 S c E_1 E_2 \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{2} \frac{\sin\left(\frac{N+1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}{\sin\left(\frac{1}{2} \frac{n\Delta L}{c} \omega_{rep}\right)}. \quad (5.53)$$

Pour générer le battement radio-fréquence, une ligne à retard (NEWPORT :F-VDL-2-3-FA-S) est placée dans le chemin du peigne original (Figure 5.9) pour compenser finement la différence de marche  $n\Delta L$  et donc aligner temporellement les impulsions des deux peignes. L'entrée et la sortie de cette ligne sont fibrées. Ce dispositif, réalisé dans l'espace libre, est constitué de deux miroirs à  $45^\circ$  pour que le faisceau issu de la fibre d'entrée soit parallèle à celui injecté dans la fibre de sortie. Les deux miroirs peuvent être translatés sur une distance de 5 cm, ce qui permet de retarder temporellement le peigne original jusqu'à 330 ps. Nous avons utilisé un oscilloscope rapide d'une bande passante de 350 MHz pour mesurer le déphasage temporel entre les signaux à la fréquence  $f_{rep}$  des deux peignes détectés par un photo-détecteur (InGaAs) d'une bande passante de 1GHz. Dans l'expression de la puissance du signal de battement (Équa-

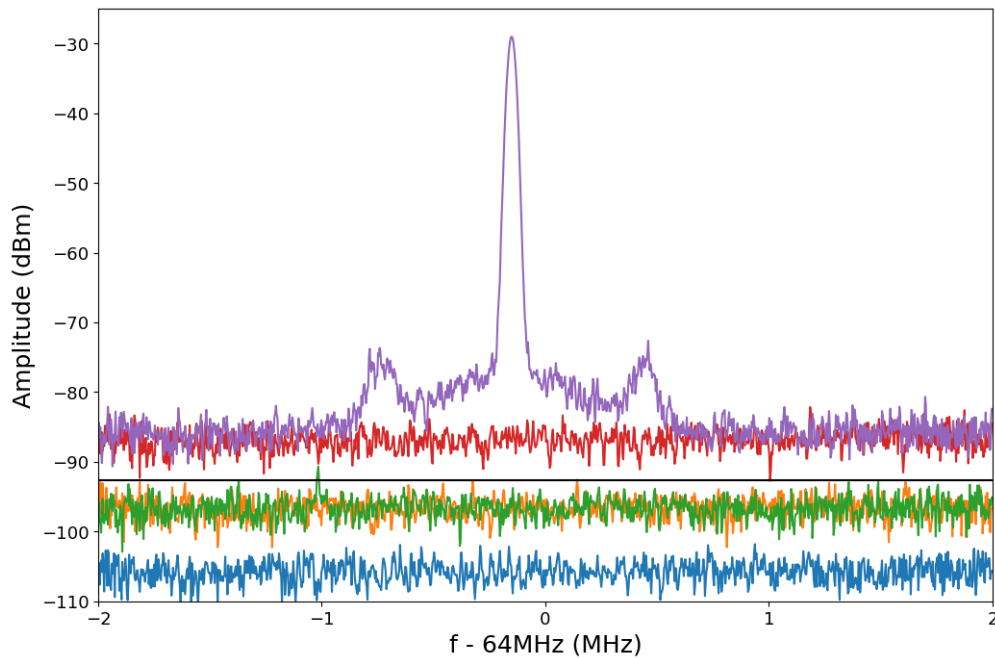


FIGURE 5.17 – Bleu : Bruit de l'analyseur de spectre. Orange : Bruit électronique, sans lumière sur le photodétecteur. Vert : Bruit de photons par peigne généré. Rouge : Bruit du peigne original. Violet : Signal de battement obtenu lorsque les deux peignes sont synchronisés temporellement. Le rapport signal sur bruit du signal de battement est 58 dB dans une bande d'analyse de 30 kHz (53 dB dans 100 kHz). La ligne noire indique la valeur théorique du bruit de photons généré par le puissance du peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$ .

tion 5.53), il intervient le produit scalaire entre les vecteurs de polarisation  $\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$  des champs électriques des deux peignes. Pour cela, un contrôleur de polarisation est positionné lui aussi sur le trajet du peigne original permettant d'aligner sa polarisation sur celle du peigne généré par la somme de fréquence. Quand on règle la ligne à retard et le contrôle de polarisation, on obtient le signal de battement montré dans la figure 5.17. Le plancher de bruit rouge montre que le bruit du peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$  est

au-dessus du bruit de photons généré par sa puissance (représenté par la ligne noire). Le rapport signal sur bruit du signal de battement est d'environ 53 dB dans une bande d'analyse de 100 kHz sur l'analyseur de spectre, ce qui est largement suffisant pour asservir le laser à CO<sub>2</sub>.

## 5.4 Asservissement du laser à CO<sub>2</sub>

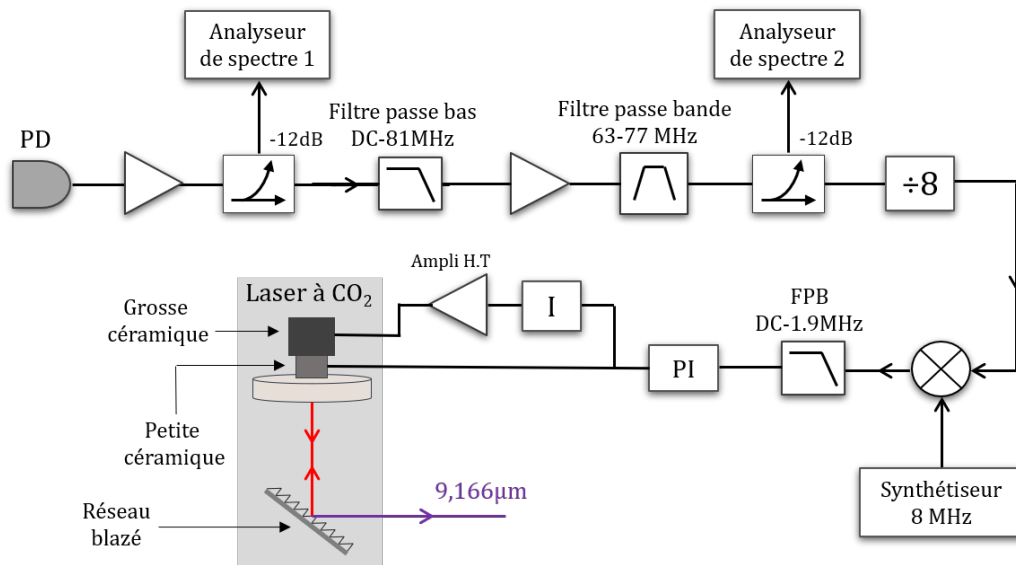


FIGURE 5.18 – Schéma d'asservissement du laser à CO<sub>2</sub> sur le peigne de fréquence basé sur une boucle de rétroaction fait maison.

Le système électronique de stabilisation de la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>, que nous avons réalisé, est représenté dans la figure 5.18. Le signal de battement détecté par le photo-détecteur InGaAs (figure 5.9) est amplifié par un amplificateur radio-fréquence (minicircuits : GALI-3+) d'un gain de 22,4 dB à 64MHz. Ensuite, pour éliminer le battement à 200 MHz et éviter de saturer les amplificateurs, le signal est filtré par un filtre passe bas (minicircuits : SLP-90+) dont la bande passante s'étend de 0 à 81 MHz. Il est ensuite, à nouveau, amplifié par un amplificateur RF (minicircuits : ZFL-500LN+) d'environ 28 dB à 64 MHz, puis filtré par un filtre (SBP-70+) avec une bande passante de 63 à 77 MHz. Notons que le choix des filtres dépend de la fréquence de battement à laquelle nous souhaitons asservir le laser à CO<sub>2</sub>. Un coupleur (minicircuits : ZX30-12-4-S+) est utilisé pour envoyer 6,3% de la puissance sur un analyseur de spectre Rohde et Schwarz PFC1500. Le reste de la puissance du signal est envoyé sur un diviseur (MC12093) pour diviser sa fréquence par 8. Pour obtenir un signal d'erreur, un comparateur phase/fréquence (MC12140) est utilisé pour comparer le signal de battement divisé par 8 avec un signal de référence délivré par un synthétiseur Rohde et

Swcharz SMC100 référencé sur le 10 MHz de LNE-SYRTE. Le signal d'erreur obtenu est proportionnel à la différence de phase entre les deux signaux, il varie de  $-2$  V à  $+2$  V lorsqu'on passe de  $-2\pi$  à  $+2\pi$  sur la différence de phase. Cela correspond, en tenant compte de la division par 8, à une amplitude de 4 V pour une différence de phase du champ du faisceau à  $1,565 \mu\text{m}$  (et donc du faisceau à  $9,166 \mu\text{m}$ ) de  $32\pi$ , ce qui correspond à une pente de  $\sim 25$  rad/V. L'intérêt d'utiliser un diviseur par 8 est d'avoir une marge de  $16\pi$  pour la comparaison de phase, ce qui permet d'éviter les sauts de cycle dans l'asservissement et donc d'améliorer la stabilité et la précision du système. Le comparateur phase fréquence nous permet d'obtenir un système d'asservissement qui peut fonctionner sur une large plage de fréquences. Le signal d'erreur obtenu à la sortie du comparateur est filtré avec un filtre passe bas (minicircuits : SLP-1.9+) d'une bande passante de 2,5 MHz. Dans le système d'asservissement (figure 5.18), la boucle

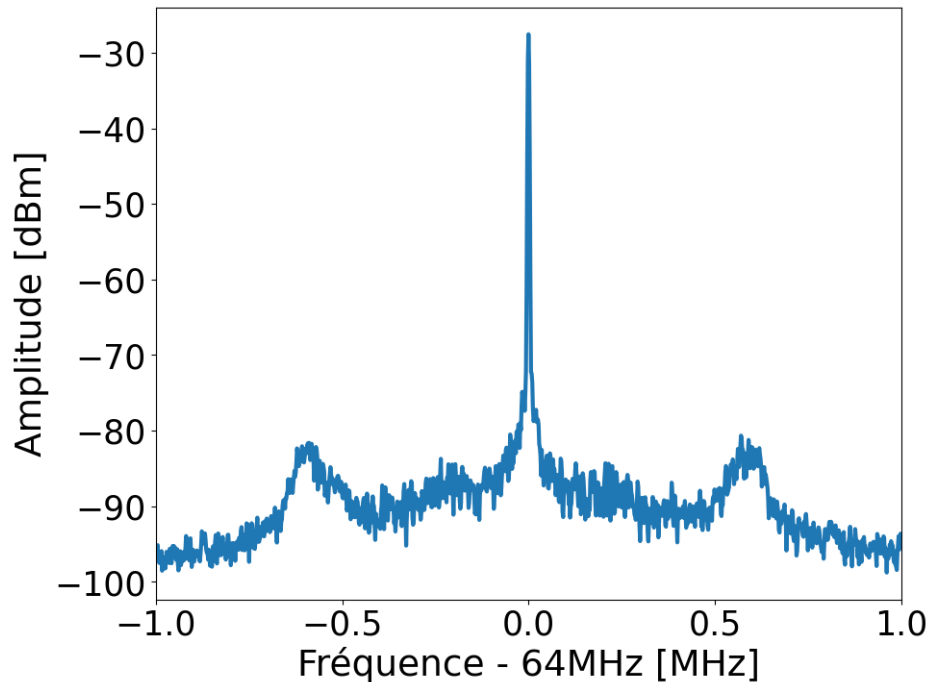


FIGURE 5.19 – Spectre du battement asservi entre le peigne original à  $1,565 \mu\text{m}$  asservi en optique et le peigne généré,  $\text{RBW} = 3$  kHz (résolution bandwidth),  $\text{VBW} = 3$  kHz (vidéo bandwidth). Les bosses viennent du spectre du peigne asservi en optique et ne correspondent pas à la bande d'asservissement du laser à  $\text{CO}_2$ .

est fermée avec deux corrections différentes pour asservir en phase le laser à  $\text{CO}_2$  à partir du signal d'erreur. Ces corrections sont appliquées à travers deux circuits distincts (voir annexe 7.2). Le premier circuit est constitué de deux étages proportionnel et intégrateur (PI) de gains ajustables, il apporte des corrections de haute fréquence en agissant sur la petite céramique piézoélectrique du laser à  $\text{CO}_2$ . Une partie du signal de ce circuit est envoyée à un deuxième circuit constitué d'un étage intégrateur (I) de gain ajustable et qui est utilisé pour les corrections à basse fréquence en agissant sur la

grosse céramique piézoélectrique. La figure 5.19 représente le signal de battement filtré après asservissement. Ce signal est centré à la fréquence 64 MHz (la fréquence délivrée par le synthétiseur pour la comparaison de phase est fixée à 8 MHz).

La figure 5.20 montre le signal de battement non filtré entre une puissance  $P_1=210$  nW

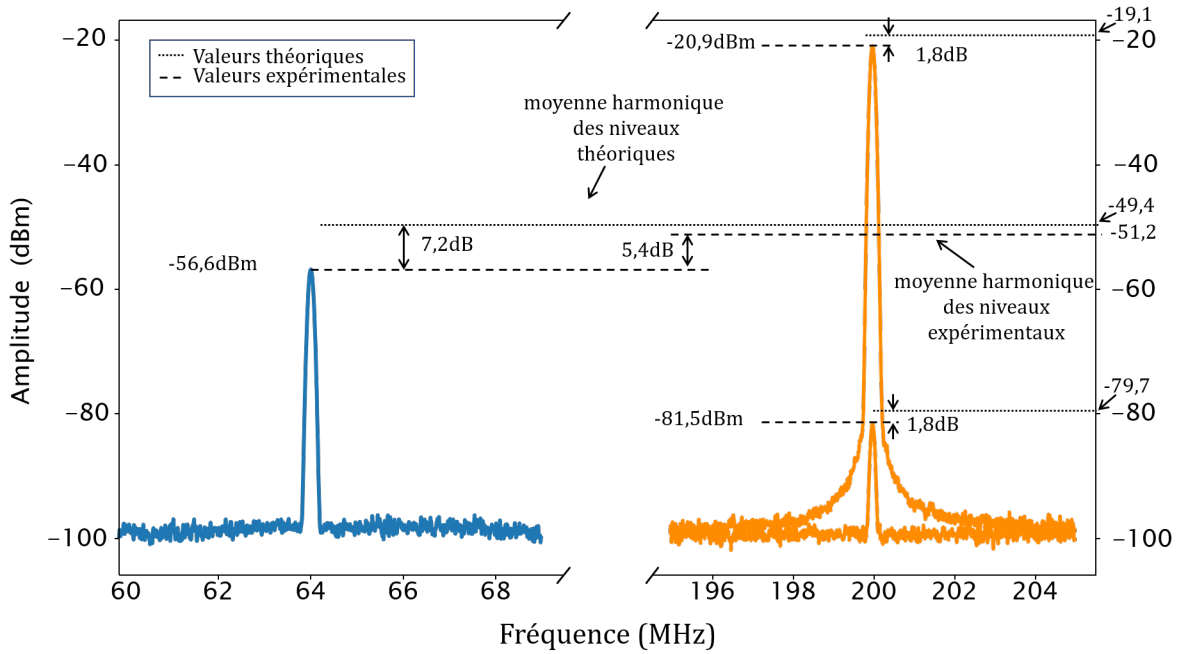


FIGURE 5.20 – Orange : Signaux à la fréquence  $f_{rep}$  générés par le peigne somme ( $P_1=210$  nW) et le peigne original ( $P_2=225$   $\mu$ W) à  $1,565$   $\mu$ m. Bleu : Signal de battement asservi entre le peigne somme et le peigne original à  $1,565$   $\mu$ m. Analyseur de spectre : RBW = 100 kHz; VBW = 1 kHz.

du peigne somme et une puissance  $P_2=225$   $\mu$ W du peigne original à  $1,565$   $\mu$ m ainsi que les signaux à la fréquence  $f_{rep}=200$  MHz générés par les deux peignes. Ces signaux sont mesurés avec l'analyseur de spectre 1 (figure 5.18).

Comme nous l'avons montré précédemment, l'expression du photocourant correspondant à la fréquence 200MHz, détecté par le photodétecteur est donné par (l'équation 4.19)

$$I_{200}^{RMS} = \eta P. \quad (5.54)$$

où  $P$  est la puissance optique du peigne et  $\eta=0,97$  A/W le rendement du photodétecteur. Pour comparer la théorie avec ce qu'on observe sur l'analyseur de spectre 1, nous utilisons un circuit similaire à celui représenté dans la figure 4.7. La résistance équivalente  $R_{eq} = (R_2 R_{in}) / (R_2 + R_{in})$  a été estimée à 377  $\Omega$  (voir section 4.3.2.2). De plus, il faut tenir compte du gain  $G_{dB}=22,4$  dB (donnée par le constructeur) de l'amplificateur Gali-3+ et du coupleur à -12 dB. L'expression théorique de la puissance en dBm du

signal à la fréquence  $f_{rep}$  pour chaque peigne est donc donnée par

$$P_{dBm}^{th} = 10 \log_{10} \left( \frac{R_{eq}(\eta\gamma_{non,filtré}P)^2}{P_0} \right) + G_{dB} - 12, \quad (5.55)$$

où  $P_0=1$  mW et  $\gamma_{non,filtré}$  est le facteur de contraste que nous avons estimé à 0,25 (peigne non filtré, voir section 4.3.2.3). Les valeurs théoriques des puissances sont présentées dans la figure 5.20. On observe que l'écart entre les valeurs théoriques et expérimentales pour les signaux à la fréquence  $f_{rep}$  est quasiment identique, 1,8 dB. Cela montre qu'il n'y a pas saturation au niveau du photodétecteur, les deux signaux à 200 MHz ont le même facteur de contraste et donc la cohérence du peigne somme, plus précisément le peigne à 1,895  $\mu\text{m}$ , n'est pas dégradée par le processus de l'extension. Cet écart est dû essentiellement au fait que la valeur du gain de l'amplificateur est mal estimée et qu'elle est à -1,8 de celle spécifiée par le constructeur.

L'expression de la puissance signal de battement en dBm entre les deux peignes s'écrit

$$P_{batt} = \frac{P_{1,dBm} + P_{2,dBm}}{2}. \quad (5.56)$$

La puissance de ce battement, calculée à partir des mesures expérimentales à 200 MHz, présente un écart de 5,4 dB par rapport à la valeur observée sur l'analyseur de spectre (courbe bleue). En revanche, lorsque cette puissance est déduite des valeurs théoriques à 200 MHz, l'écart atteint 7,2 dB par rapport à la valeur observée. Il convient de noter que le niveau de bruit observé correspond au plancher de bruit de l'analyseur de spectre.

## 5.5 Spectroscopie de HCOOH et répétabilité

### 5.5.1 Dispositif expérimental

Afin de mettre à l'épreuve notre laser à  $\text{CO}_2$  asservi sur le peigne de fréquence dans le contexte d'une expérience de spectroscopie à haute résolution, nous avons procédé à une nouvelle mesure de la raie d'absorption saturée de l'acide formique, qui avait déjà servi de référence de fréquence pour la spectroscopie de  $\text{H}_2^+$ . Cette raie correspond à la transition entre les niveaux ( $J' = 21, K'_a = 2, K'_c = 20$ ) et ( $J' = 21, K'_a = 3, K'_c = 19$ ). Dans cette démarche, nous avons utilisé le même dispositif expérimental que celui illustré dans la figure 3.5, avec quelques ajustements mineurs. Nous avons changé la fréquence de modulation de 5,667 kHz à 700 Hz car pour 5,667 kHz, le  $3f$  (3<sup>ème</sup> harmonique) valait 17 kHz, qui est du même ordre de grandeur de la largeur de raie.

La modulation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  est appliquée par la modulation de la fréquence du synthétiseur utilisé pour la comparaison de phase. Désormais, le signal d'erreur issu de la détection synchrone sert de signal de spectroscopie, comme indiqué dans la figure 5.21. Il convient de noter que le laser à  $\text{CO}_2$  fonctionne sur la raie

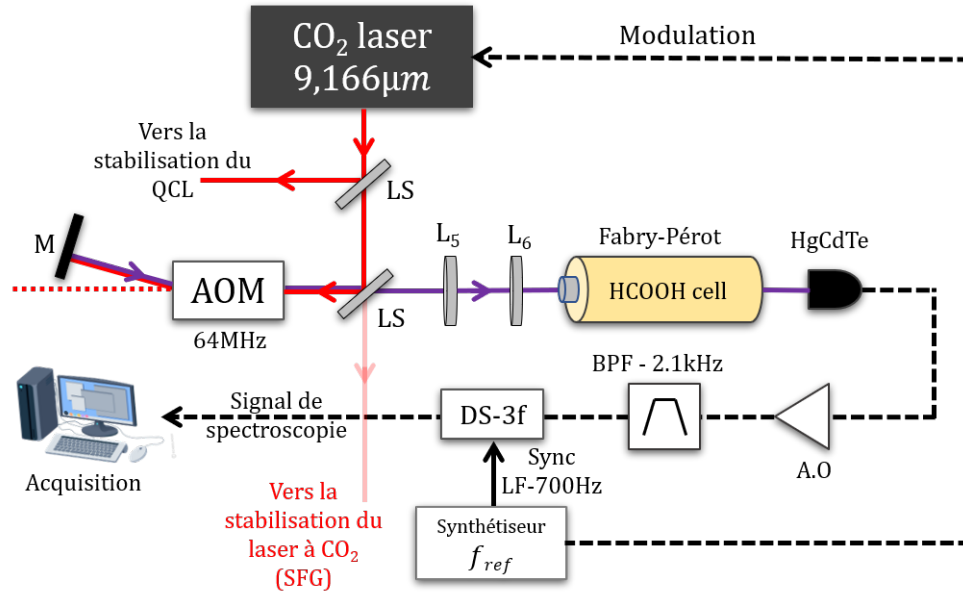


FIGURE 5.21 – Dispositif expérimental pour la spectroscopie de l'acide formique (HCOOH). LS : lame séparatrice, M : miroir, DS : détection synchrone HgCdTe : détecteur refroidi, L : lentille, A.O : amplificateur opérationnel.

9R(42), nous devons alors décaler sa fréquence de 128 MHz à l'aide d'un modulateur acousto-optique, afin de la faire correspondre avec la raie de l'acide formique. Ensuite, le faisceau est introduit dans la cavité de l'acide formique, qui fonctionne comme un résonateur Fabry-Pérot. Pour optimiser le couplage, nous utilisons un télescope composé de deux lentilles  $L_5$  et  $L_6$ . Le signal de transmission du faisceau par la cavité est détecté avec un détecteur (HgCdTe) refroidi à la température de l'azote liquide, puis amplifié avec un amplificateur opérationnel. La partie continu (DC) est extraite de ce signal puis visualisée sur un oscilloscope pour déduire la puissance intra-cavité. Pour obtenir le signal de spectroscopie, la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> est modulée avec une fréquence de modulation  $f_{mod}=700$  Hz. Le signal est alors filtré par un filtre passe bande centré à 2,1 kHz pour l'envoyer à la détection synchrone SRS 810 qui est configurée pour détecter le signal d'absorption saturée en troisième harmonique.

### 5.5.2 Résultats et formes de raie

La figure 5.22 présente le spectre de la raie d'absorption saturée de l'acide formique (courbe bleue), obtenue en balayant la fréquence du laser à CO<sub>2</sub> sur une plage de 1,1 MHz autour du centre de la raie. La modulation de la fréquence est effectuée avec une profondeur de modulation de  $P_{mod}=71$  kHz. La pression de l'acide formique dans la cavité est maintenue à  $1,00\pm 0,01$   $\mu$ bar, tandis que la puissance intracavité est fixée à  $P_{int}=430$   $\mu$ W.

Nous supposons que la raie de l'acide formique a la forme d'une lorentzienne décrite



par

$$L(x) = \frac{A_L}{1 + x^2}, \quad (5.57)$$

où  $A_L$  est l'amplitude du profil de la raie et  $x$  est une variable sans dimension donnée par

$$x = (\nu - \nu_0)/\Gamma \quad (5.58)$$

où  $\nu_0$  désigne la fréquence centrale de la raie, tandis que  $\Gamma$  représente sa largeur expérimentale à mi-hauteur. Une première approximation consiste à considérer que le profil de la raie d'absorption saturée peut être décrit par la dérivée troisième du profil de la raie donné par l'équation 5.57 :

$$L^{(3)}(x) = A_L \left( \frac{-48x^3}{(1 + x^2)^4} + \frac{24x}{(1 + x^2)^3} \right). \quad (5.59)$$

L'ajustement du spectre en utilisant la dérivée troisième d'une Lorentzienne s'est révélé insatisfaisant, notamment en ce qui concerne la reproduction des petites bosses latérales de la raie comme montré dans la figure 5.22 (courbe rouge). Par conséquent, nous sommes confrontés à la nécessité de rechercher un modèle alternatif qui puisse mieux correspondre à ce spectre.

La spectroscopie que nous réalisons se trouve dans le régime de modulation de longueur d'onde, avec des fréquences de modulation et de démodulation de 700 Hz et 2100 Hz, très lentes devant le temps d'évolution des cohérences de l'acide formique. Pour une modulation sinusoïdale de la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>, le signal d'absorption est donné par l'équation 5.57 avec  $x$  remplacée par  $x + m \cos(2\pi f_{mod}t)$  où  $m = P_{mod}/\Gamma$  :

$$S(x, t) = \frac{A_L}{1 + (x + m \cos(2\pi f_{mod}t))^2} \quad (5.60)$$

Plusieurs auteurs, tels R.Arndt [42], J.Reid et D.Labrie [43], ont exploré les modèles théoriques pour la spectroscopie par modulation de fréquence. En suivant le modèle d'Arndt, le signal à la  $n^{\text{ième}}$  harmonique détecté par la détection synchrone est proportionnel à la quantité  $S_n(x)$  obtenue en calculant la décomposition en série de Fourier de la fonction périodique de l'équation 5.60 :

$$S_n(x) = \frac{1}{2} \frac{1}{m^n} \epsilon_n i^n \frac{\left\{ [(1 - ix)^2 + m^2]^{\frac{1}{2}} - (1 - ix) \right\}^n}{[(1 - ix)^2 + m^2]^{\frac{1}{2}}} + c.c., \quad (5.61)$$

avec  $\epsilon_0 = 1$ ,  $\epsilon_n = 2$  pour  $n \geq 1$ . Pour  $n=3$ , l'équation 5.61 devient

$$S_3(x) = -\frac{1}{m^3} i \frac{\left\{ [(1 - ix)^2 + m^2]^{\frac{1}{2}} - (1 - ix) \right\}^3}{[(1 - ix)^2 + m^2]^{\frac{1}{2}}} + c.c. \quad (5.62)$$

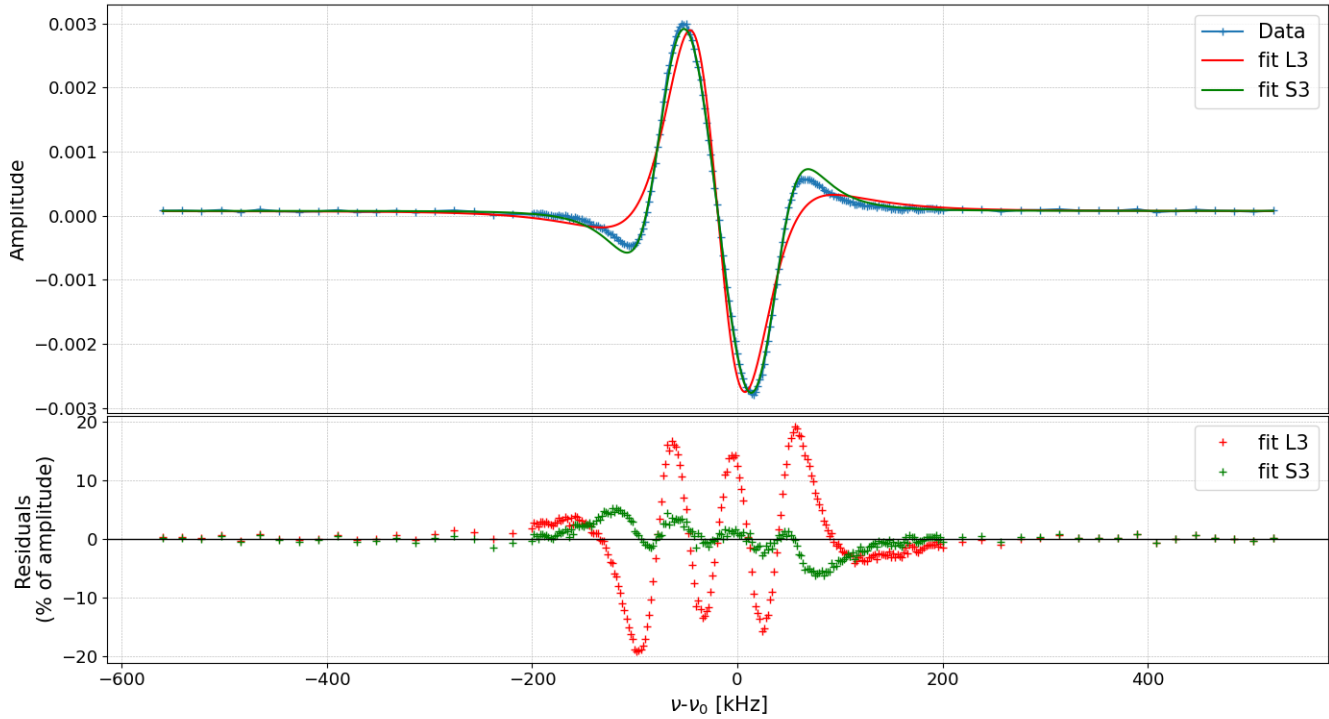


FIGURE 5.22 – Bleu : Spectre de la raie d'absorption de l'acide formique détecté en 3<sup>ème</sup> harmonique. Rouge : Ajustement du spectre avec la dérivée troisième d'une Lorentzienne ( $L^{(3)}$ ). Vert : Ajustement avec le modèle  $S_3$  de R.Arndt. Les résidus de chaque ajustement sont indiqués en bas. Le nombre de points est  $N=237$ . Conditions expérimentales : pression= $1 \mu\text{bar}$ , Puissance intracavité= $430 \mu\text{W}$ , fréquence de modulation  $f_{mod}=700 \text{ Hz}$ , profondeur de modulation  $P_{mod}=71 \text{ kHz}$ , temps d'intégration pour chaque point est 30 ms.

En introduisant une amplitude  $A_{S_3}$ , l'ajustement du spectre est ensuite réalisé avec la fonction  $A_{S_3}S_3(x)$  et représenté par la courbe verte dans la figure 5.22. On remarque que, au niveau des bosses, l'ajustement réalisé avec le modèle  $S_3$  a permis de réduire les résidus de manière significative, avec une réduction quatre fois plus importante par rapport à l'ajustement basé sur la dérivée troisième d'une lorentzienne.

### 5.5.3 Répétabilité des mesures

La figure 5.23 montre un ensemble de 140 mesures de la fréquence centrale de la raie de l'acide formique, correspondant à 70 aller-retour de balayage de la fréquence du laser à CO<sub>2</sub>. La fréquence centrale est déterminée via l'ajustement par le modèle  $S_3$  décrit précédemment. Les mesures ont été réalisées en maintenant la pression à  $1,00 \pm 0,01 \mu\text{bar}$ , une puissance intracavité de  $430 \mu\text{W}$ , une fréquence de modulation de

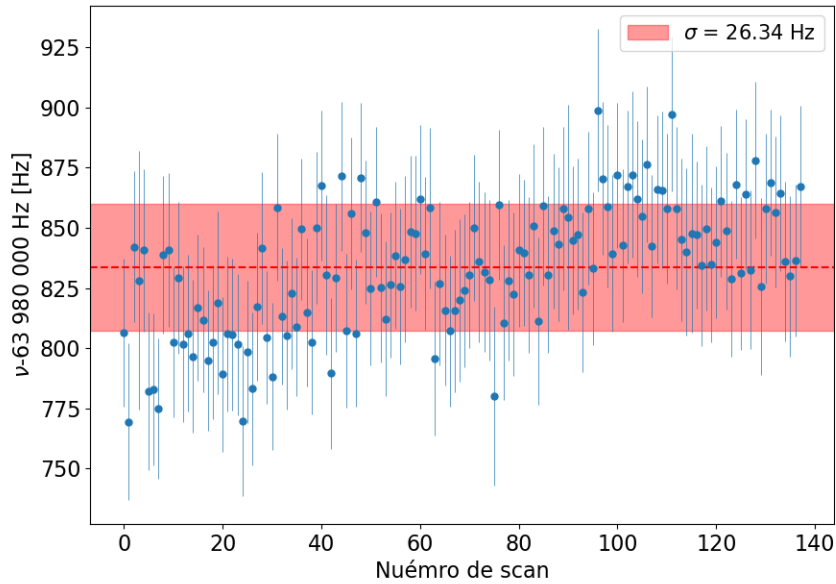


FIGURE 5.23 – 140 mesures de la fréquence centrale de la raie de l’acide formique via l’ajustement par le modèle  $S_3$ . Conditions expérimentales : pression= $1,00\pm 0,01$   $\mu\text{bar}$ , puissance intracavité= $430$   $\mu\text{W}$ , fréquence de modulation  $f_{mod}=700$  Hz, profondeur de modulation  $P_{mod}=71$  kHz, temps d’intégration de la détection synchrone pour chaque point est 30 ms.

700 Hz, une profondeur de modulation de 71 kHz, et un temps d’intégration de la détection synchrone de 30 ms.

L’analyse de la déviation standard de ces mesures révèle que nous sommes en mesure de pointer avec une précision remarquable sur le centre de la raie, à 26 Hz près. Une étude plus détaillée de la raie d’HCOOH réalisée par M.Leuliet, montre que l’incertitude de 26 Hz est limitée par le rapport signal à bruit du spectromètre et non pas par la fréquence du laser. Cela signifie que nous sommes capables de contrôler la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  avec une précision relative meilleure que  $10^{-12}$ .

## 5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit la stabilisation de la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  à  $9,166$   $\mu\text{m}$  sur un harmonique élevé de la fréquence de répétition du peigne de fréquence. Cette dernière est elle-même asservie sur un signal optique de référence dans le domaine du proche infrarouge, à  $1,542$   $\mu\text{m}$ , généré au LNE-SYRTE et transféré au LKB via le réseau REFIMEVE.

Par la suite, nous avons procédé à la spectroscopie d’absorption saturée de l’acide formique en utilisant le laser à  $\text{CO}_2$ . Les résultats obtenus lors de la mesure de la

répétabilité sur la fréquence centrale de la raie nous ont permis de conclure que la fréquence de notre laser à CO<sub>2</sub> est connue avec une précision relative meilleure que 10<sup>-12</sup>. Lorsque cette précision est transférée au laser à cascade quantique, il devient possible de sonder la fréquence de raie de transition vibrationnelle de l'ion moléculaire H<sub>2</sub><sup>+</sup> avec une exactitude relative de 10<sup>-12</sup>.



# Chapitre 6

## Conclusion générale et perspectives

### Conclusion générale

Au cours de cette thèse, nous avons montré qu'une source laser à  $9,166\mu\text{m}$  peut être asservie sur une référence optique distante, afin de réaliser la spectroscopie à haute résolution sans effet Doppler de la transition vibrationnelle ( $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$ ) à deux photons de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  pour une nouvelle détermination de la constante fondamentale  $\mu_{pe} = m_p/m_e$ .

Dans notre expérience, nous disposons d'un piège de Paul linéaire nous permettant de piéger les ions  $\text{H}_2^+$  préparés dans l'état vibrationnel ( $v = 0, L = 2$ ) par la méthode REMPI utilisant 3+1 photons à 303 nm. Ces ions sont refroidis sympathiquement par les ions du Béryllium  $\text{Be}^+$  piégés et refroidis par un laser UV à 313 nm. Les ions  $\text{Be}^+$  sont créés soit par impact électronique soit par une photo-ionisation à 3 photons à 303 nm. Pour détecter la transition, nous utilisons la méthode REMPD, qui consiste à dissocier optiquement et de manière sélective les ions  $\text{H}_2^+$  se trouvant dans l'état ( $v = 1, L = 2$ ) à l'aide d'un laser à 213 nm.

Nous avons décrit en détail nos sources laser à  $9,166\mu\text{m}$ , un laser à cascade quantique (QCL) utilisé pour exciter la transition vibrationnelle  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  de  $\text{H}_2^+$  et un laser à  $\text{CO}_2$  situé à 1,655 GHz de cette transition. Nous avons présenté le système d'asservissement précédent qui reposait sur l'asservissement en phase du laser à cascade quantique sur le laser à  $\text{CO}_2$  pour le transformer en une source laser dont la fréquence est accordable en continu sur une plage de plusieurs GHz, tout en préservant des propriétés spectrales parfaitement identiques à celles du laser à  $\text{CO}_2$ . Ce dernier était asservi sur la raie d'absorption saturée de l'acide formique. En terme d'exactitude et de stabilité, le laser à  $\text{CO}_2$  asservi sur une raie de l'acide formique ne constitue pas une référence suffisamment fiable pour permettre au QCL d'atteindre notre objectif de mesurer les fréquences des transitions vibrationnelles de  $\text{H}_2^+$  avec une incertitude relative de l'ordre de  $10^{-12}$ . Cela nous a conduit à changer cette méthode d'asservissement et à utiliser un laser femtoseconde à peigne de fréquence asservi sur une référence

optique ultrastable comme référence pour stabiliser la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$ . Ce changement de stratégie constitue le coeur de mon travail de thèse.

Ensuite, nous avons donné une brève définition d'un peigne de fréquence et présenté les caractéristiques de notre peigne qui est centré à 1565 nm sans fréquence d'offset. Pour l'asservissement du peigne, nous avons d'abord décrit le dispositif expérimental permettant de stabiliser la fréquence de répétition sur une référence radio-fréquence (RF) à 10 MHz provenant du LNE-SYRTE. Bien que cette référence RF ait permis d'atteindre une stabilité relative de  $4,7 \cdot 10^{-13}$ , elle a eu pour effet d'élargir les modes optique du peigne, entraînant un élargissement d'environ 43,5 kHz. La réduction des largeurs des modes optiques a été réalisée en stabilisant le peigne sur une référence optique ultrastable à 1542 nm provenant du LNE-SYRTE. Nous avons décrit en détail le dispositif expérimental associé.

Finalement, nous avons décrit le dispositif expérimental permettant de stabiliser la fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  sur le peigne de fréquence asservi sur la référence optique. Nous avons fait une description détaillée du processus de somme de fréquence entre le faisceau du laser à  $\text{CO}_2$  à 9,166  $\mu\text{m}$  et l'extension du peigne à 1,895  $\mu\text{m}$  dans un cristal non linéaire de type  $\text{AgGaSe}_2$ . La répétabilité des mesures de la fréquence centrale de la raie d'acide formique effectuées par le laser  $\text{CO}_2$  asservi, a montré que la fréquence de ce dernier est connue avec une incertitude relative inférieure à  $10^{-12}$ . Le QCL asservi sur le laser à  $\text{CO}_2$  permettra alors de mesurer la fréquence de transition vibrationnelle avec l'incertitude relative souhaitée.

## Perspectives

Une fois que nous aurons accompli la mesure de la fréquence de transition  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 1, L = 2$  de  $\text{H}_2^+$  avec le QCL à 9,166  $\mu\text{m}$  asservi, notre prochaine étape consistera à explorer d'autres transitions dans cet ion. La transition  $v = 0, L = 0 \rightarrow v = 0, L = 2$  à deux photons à 9,128  $\mu\text{m}$  [59] peut être sondée par un deuxième QCL dont nous disposons, qui opère à cette longueur d'onde et qu'on peut asservir sur le peigne de fréquence.

L'équipe dirigée par J.P Home à Zurich [82] s'engage dans la mesure de la fréquence de transition  $v = 0, L = 0 \rightarrow v = 3, L = 2$  à un photon à 1576 nm de l'ion  $\text{H}_2^+$ . Dans le même domaine de longueur d'onde, nous envisageons également la mesure de la fréquence de transition  $v = 0, L = 2 \rightarrow v = 3, L = 2$  à un photon à 1621 nm en utilisant une diode laser à cette longueur d'onde. Ces mesures, combinées avec celles effectuées à Dusseldorf et à Amsterdam, constituent un ensemble complet permettant de déterminer de manière indépendante les constantes  $\mu_{pe}$ ,  $\mu_{dp}$ ,  $R_\infty$ ,  $r_p$  et  $r_d$  (la masse du deutéron).

A plus long terme, la spectroscopie par logique quantique [83, 84] sur l'ion  $\text{H}_2^+$  est envisagée. Cette approche permet d'atteindre une précision considérable, bien supérieure

à celle des calculs théoriques. Elle présente une grande importance pour évaluer la stabilité des constantes fondamentales au fil du temps.





# Chapitre 7

## Annexes

### Sommaire

---

7.1	Calcul de l'efficacité de conversion de la SFG . . . . .	142
7.2	Circuit d'asservissement du laser à CO <sub>2</sub> . . . . .	145

---

## 7.1 Calcul de l'efficacité de conversion de la SFG

Ici, je donne le code Python que j'ai fait pour calculer l'efficacité de conversion de la somme de fréquence donnée par l'équation 5.44. La fonction principale prend comme argument les valeurs des waists des faisceaux incidents  $w_1$  et  $w_2$ , leurs longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , la longueur  $l_c$  du cristal AgGaSe<sub>2</sub> et l'angle d'accord de phase  $\theta$ . L'intégral double de la fonction de Boyd et Kleinman, donnée par l'équation 5.45, est calculé par la méthode de Simpson comme montré dans l'avant avant dernière ligne.

```
#calcul de l'indice ordinaire
def indice_ord_AgGaSe2(lambda_vid):
    lambda_vid = lambda_vid*1e6
    return np.sqrt(6.849065+0.417863/(lambda_vid**1.970203-0.178080)
        +0.000442/(lambda_vid**0.340086-0.889242)+1.209374/(1-915.345/
            lambda_vid**1.921292))
#calcul de l'indice extraordianire
def indice_extr_AgGaSe2(lambda_vid,theta):
    n_o = indice_ord_AgGaSe2(lambda_vid)
    lambda_vid = lambda_vid*1e6
    n_e = np.sqrt(6.675232+0.436579/(lambda_vid**1.893694-0.229775)
        +0.012063/(lambda_vid**4.269152-0.213957)+3.252722/
            (1-3129.32/lambda_vid**2.047204))
    return n_e*n_o/np.sqrt(n_e**2*np.cos(theta)**2+n_o**2
        *np.sin(theta)**2)
#calcul de l'efficacité de conversion
def gamma_SFG(w_1,w_2,lambda1_vid,lambda2_vid,l_c,theta):
    lambda3_vid = 1/(1/lambda1_vid+1/lambda2_vid)
    # o +o ---> e
    n1o = indice_ord_AgGaSe2(lambda1_vid)
    n2o = indice_ord_AgGaSe2(lambda2_vid)
    n3e = indice_extr_AgGaSe2(lambda3_vid,theta)
    ro = -1*np.arctan(n3e**2*(1/indice_ord_AgGaSe2(lambda3_vid)**2
        -1/indice_extr_AgGaSe2(lambda3_vid,np.pi/2)**2)*
        np.sin(2*theta)/2)
    phi = np.pi/4
```

```

d_eff = d_36*np.sin(theta+ro)*np.sin(2*phi)
lambda_1 = (lambda1_vide)/n1o
lambda_2 = (lambda2_vide)/n2o
lambda_3 = (lambda3_vide)/n3e
k_1 =2*np.pi/(lambda_1)
k_2 =2*np.pi/(lambda_2)
k_3 =2*np.pi/(lambda_3)
omega_3 = 2*np.pi*c/(lambda3_vide)
w_u = w_1*w_2/np.sqrt(w_1**2+w_2**2)
z_u = 0.5*k_3*w_u**2
z_1 = np.pi*w_1**2/(lambda_1)
z_2 = np.pi*w_2**2/(lambda_2)
eta=0.5
f_c = eta*l_c
l = l_c/z_u
f=f_c/z_u
a = 0.5*(alpha_1+alpha_2-alpha_3)*z_u
delta_k = (k_3 - k_2 - k_1)
sigma = delta_k*z_u
beta = ro*z_u/w_u
kappa_1 = (k_1 + k_2)*z_2/(k_1*z_2+k_2*z_1)
kappa_2 = (k_1 + k_2)*z_1/(k_1*z_2+k_2*z_1)
kappa_e = ((k_1+k_2)/(k_1*z_2+k_2*z_1))**2*z_1*z_2
def Q_s(t):
    return (1+1j*kappa_1*t)*(1+1j*kappa_2*t)+(0+1j)
        *(1+1j*kappa_e*t)*(l-f-t)
def R_s(t):
    return Q_s(t)/(1+1j*kappa_e*t)
def exp_2(t,t_p):
    return np.exp(beta**2*(t/R_s(t)+t_p/np.conj(R_s(t_p))))**2*
        Q_s(t)*np.conj(Q_s(t_p))/((1-1j*kappa_e*t_p)*Q_s(t)+
        (1+1j*kappa_e*t)*np.conj(Q_s(t_p)))
def F(t,t_p):
    return np.exp(-beta**2*(t**2/R_s(t)+t_p**2/
        np.conj(R_s(t_p))))*exp_2(t,t_p)
def integrand(tau,tau_p):
    return np.real(np.exp(-a*(tau+tau_p+2*f)+1j*sigma*
        (tau-tau_p))/((1-1j*kappa_e*tau_p)*Q_s(tau)+(1+1j*kappa_e
        *tau)*np.conj(Q_s(tau_p)))*F(tau,tau_p))
K_SFG = 8*omega_3**2*d_eff**2/
        (np.pi*epsilon_0*c**3*n1o*n2o*n3e)

```

```
tau_h = np.linspace(-f,1-f,50)
tau_p_h = np.linspace(-f,1-f,50)
z = integrand(tau_h[:,None],tau_p_h)
h = (kappa_e/(2*1))*simps(simps(z,tau_h),tau_p_h)
gamma = (K_SFG*1_c*1/(1/k_1+1/k_2))*np.exp(-alpha_3*1_c)*h
return gamma
```

## 7.2 Circuit d'asservissement du laser à CO<sub>2</sub>

Le circuit de la boucle de rétroaction pour l'asservissement du laser à CO<sub>2</sub> est illustré dans la figure 7.1. Les fonctions réalisées par les amplificateurs opérationnels sont :

- U<sub>1A</sub> : gain proportionnel -P pour la petite céramique du laser à CO<sub>2</sub>.
- U<sub>1B</sub> : gain intégrateur -I pour la petite céramique du laser à CO<sub>2</sub>.
- U<sub>1C</sub> : sommateur des gains  $-((-P)+(-I))=I+P$ .
- U<sub>2A</sub> : intégrateur lent pour la grosse céramique du laser à CO<sub>2</sub>.
- U<sub>2D</sub> : offset pour ajuster le point de fonctionnement du laser à CO<sub>2</sub>.
- U<sub>2B</sub> : sommateur de l'offset et de l'intégrateur lent.
- U<sub>2C</sub> : inverseur.

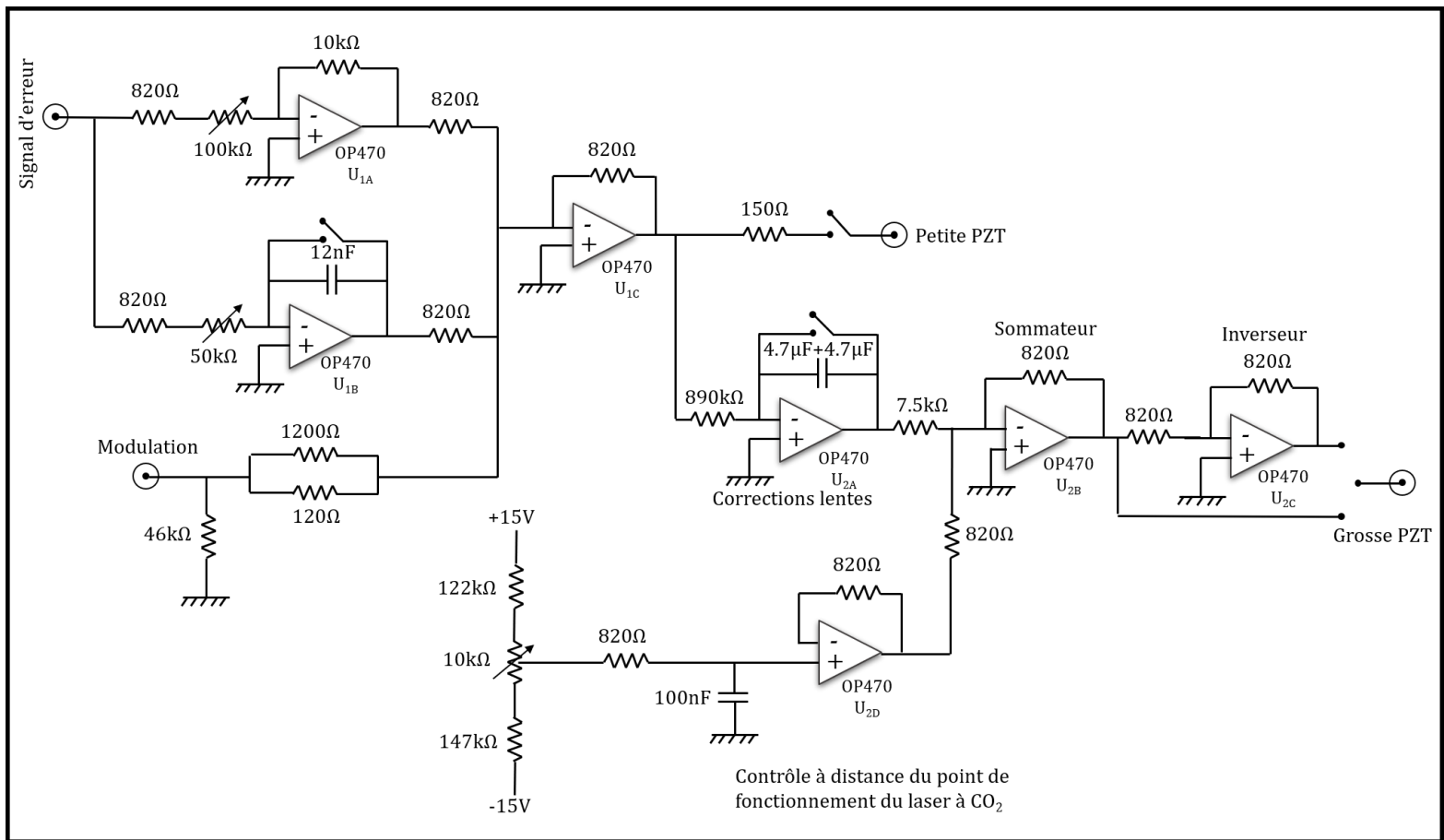


FIGURE 7.1 – Circuit d'asservissement du laser à CO<sub>2</sub>.

# Bibliographie

- [1] J.-J. Zondy, D. Touahri, and O. Acef, Absolute value of the  $d_{36}$  nonlinear coefficient of  $\text{AgGaS}_2$  : prospect for a low-threshold doubly resonant oscillator-based 3 :1 frequency divider, *J. Opt. Soc. Am. B* 14, 2481-2497 (1997).
- [2] D. A. Roberts, Dispersion equations for nonlinear optical crystals : KDP,  $\text{AgGaSe}_2$ , and  $\text{AgGaS}_2$ , " *Applied optics* 35, 4677-4688 (1996).
- [3] G. D. Boyd, and D. A. Kleinman. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams, *Journal of Applied Physics* 39, 3597 (1968).
- [4] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*, vol. 64 (Springer, 2013).
- [5] S.C. Mehendale, P.K. Gupta. Effect of double refraction on type II phase matched second harmonic generation (1988).
- [6] J.J. Zondy. Comparative theory of walkoff limited type II versus type I second harmonic generation with gaussian beams (1991).
- [7] R. C. Eckardt, H. Masuda, Y. X. Fan, and R. L. Byer. Absolute and relative nonlinear optical coefficients of KDP,  $\text{KD}^*\text{P}$ ,  $\text{BaB}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiIO}_3$ ,  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ , and KTP measured by phase-matched second harmonic generation. *IEEE J. Quantum Electron.* 26, 922 (1990).
- [8] J. E. Midwinter and J. Warner. The effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on the polar distribution of second-order non-linear optical polarization. *Br. J. Appl. Phys* (1965).
- [9] Bérengère Argence<sup>1</sup>, Bruno Chanteau<sup>1</sup>, Olivier Lopez<sup>1</sup>, Daniele Nicolodi<sup>2</sup>, Michel Abgrall<sup>2</sup>, Christian Chardonnet<sup>1</sup>, Christophe Daussy<sup>1</sup>, Benoît Darquié, Yann Le Coq and Anne Amy-Klein<sup>1</sup>. Quantum cascade laser frequency stabilization at the sub-Hz level (2015).
- [10] John L. Hall, Matthew S. Taubman, Scott A. Diddams, Bruce Tiemann, Jun ye, Long-Sheng G MA, David Jones, and Steven Cundiff. Stabilizing and measuring optical frequencies (2013).
- [11] Naoya Kuse, Thomas R.Schibli, and Martin E.Fermann. Low noise electro-optic comb generation by fully stabilizing to a mode-locked fiber comb (2016).

- [12] Michael G. Hansen,\* Evangelos Magoulakis, Qun-Feng Chen, Ingo Ernsting, and Stephan Schiller. Quantum cascade laser-based mid-IR frequency metrology system with ultra narrow linewidth and  $1.10^{-13}$  level frequency instability (2015).
- [13] Franck Bielsa. Spectroscopie vibrationnelle à deux photons de l'ion  $H_2^+$  : développement d'une source laser à  $9,166\mu m$ . Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007. Français.
- [14] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, Science 264, 553-556 (1994).
- [15] C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, and A. Y. Cho, "Recent progress in quantum cascade lasers and applications," Rep. Prog. Phys., vol. 64, no. 11, p. 1533, 2001.
- [16] Franck Bielsa, Khelifa Djerroud, Andrei Goncharov, Albane Douillet, Tristan Valenzuela, Christophe Daussy, Laurent Hilico, and Anne Amy-Klein. HCOOH high-resolution spectroscopy in the 9,18 m region. Journal of Molecular Spectroscopy, 247(1) :41-46, 2008.
- [17] C. J. Foot, Atomic physics, vol. 7 (Oxford University Press, 2005).
- [18] Loudon, R. (2000). The quantum theory of light. OUP Oxford.
- [19] J. Vander Auwera, K. Didriche, A. Perrin, F. Keller, Journal of Chemical Physics 126, 124311 (2007).
- [20] High resolution spectroscopy, Ed. K. Shimoda, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg (1976).
- [21] J. Rutman and F. Walls, "Characterization of frequency stability in precision frequency sources," Proceedings of the IEEE 79, 952-960 (1991).
- [22] Enrico Rubiola (2008). Phase Noise and Frequency Stability in Oscillators.
- [23] Hargrove, L., Fork, R. L. Pollack, M. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation. Applied Physics Letters 5, 4-5 (1964).
- [24] Hall, J. L., Hänsch, T. W. (1999). Nobel lecture : Defining and measuring optical frequencies. Reviews of Modern Physics, 71(3), 1259-1289.
- [25] Thomas Puppe, Alexander Sell, Russell Kliese, Nazanin Hoghooghi, Armin Zach, and Wilhelm Kaenders, "Characterization of a DFG comb showing quadratic scaling of the phase noise with frequency," Opt. Lett. 41, 1877-1880 (2016).
- [26] G. D. Rovera, S. Bize, B. Chupin, J. Guéna, P. Laurent, P. Rosenbusch, P. Urich, and M. Abgrall. UTC(OP) based on LNE-SYRTE atomic fountain primary frequency standards. Metrologia, 53(3), 2016.
- [27] Olivero, J. J.; R. L. Longbothum (February 1977). "Empirical fits to the Voigt line width : A brief review". Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. 17 (2) : 233-236.



- [28] Jiang, H., "Development of ultra-stable laser sources and long-distance optical link via telecommunication networks," Thèse, Observatoire de Paris - LNE-SYRTE, UPMC (2010).
- [29] Hänsch, T. W., Hall, J. L. (2006). Nobel lecture : passion for precision. *Reviews of Modern Physics*, 78(4), 1297-1309.
- [30] Udem, Th., Holzwarth, R., Hänsch, T. W. (2002). Optical frequency metrology. *Nature*, 416(6877), 233-237.
- [31] Ludlow, A. D., Boyd, M. M., Ye, J., Peik, E., Schmidt, P. O. (2015). Optical atomic clocks. *Reviews of Modern Physics*, 87(2), 637-701.
- [32] Black, E. D., "An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization," *Am. J. Phys.*, 69(1), 79-87 (2001).
- [33] F. Bielsa, K. Djerroud, A. Goncharov, A. Douillet, T. Valenzuela, C. Daussy, L. Hilico, and A. Amy-Klein, à paraître dans *Journal of Molecular Spectroscopy*, DOI : 10.1016/j.jms.2007.10.003.
- [34] [www.minicircuits.com](http://www.minicircuits.com)
- [35] P.L. Richards, "Bolometers for infrared and millimeter waves," *Journal of Applied Physics* 76, 1 (1994).
- [36] <https://www.thorlabs.com>
- [37] A. Schliesser, N. Picqué, and T. W. Hänsch, "Mid-infrared frequency combs," *Nature Photonics* 6, 440 (2012).
- [38] J.D. Jackson : *Classical Electrodynamics* 2nd edn. (Wiley, New York 1975) p.132.
- [39] F.M. Penning. Die Glimmentladung bei niedrigem Druck zwischen koaxialen Zylindern in einem axialen Magnetfeld. *Physica*, 3(9) :873-894, 1936.
- [40] W. Paul, H. Steinwedel : *Z. Naturforsch.* A8, 448 (1953).
- [41] W. Paul, H. Steinwedel : German patent No. 944900 ; U.S. Patent No.2939952 (1953).
- [42] R. Arndt, "Analytical line shapes for lorentzian signals broadened by modulation," *Journal of Applied Physics* 36, 2522-2524 (1965).
- [43] J. Reid and D. Labrie, "Second-harmonic detection with tunable diode laserscomparison of experiment and theory," *Applied Physics B* 26, 203-210 (1981).
- [44] Johannes Heinrich. A Be<sup>+</sup> ion trap for H<sub>2</sub><sup>+</sup> spectroscopy. PhD thesis, 2018. Thèse de doctorat dirigée par Hilico, Laurent Physique Sorbonne université 2018.
- [45] P. Ghosh. *Ion Traps*. Oxford Science Publications, 2005.
- [46] M. A. O'Halloran, S. T. Pratt, P. M. Dehmer, and J. L. Dehmer. Photoionization dynamics of H<sub>2</sub> C 1 u : Vibrational and rotational branching ratios. *The Journal of Chemical Physics*, 87(6) :3288-3298, 1987.

- [47] Vu Quang Tran. Towards high precision spectroscopy of hydrogen molecular ions  $\text{H}_2^+$  and  $\text{HD}^+$  : Theory and Experiment. PhD thesis, Université Pierre-et-Marie-Curie, 2013.
- [48] Thomas Louvradoux. Spectroscopie à haute résolution de  $\text{H}_2^+$  : production et refroidissement sympathique d'ions piégés.. Physique [physics]. Université Paris Cité, 2019.
- [49] Nicolas Sillitoe. Production of state-selected  $\text{H}_2^+$  ions and numerical simulations of sympathetic cooling in RF traps. PhD thesis, Université Pierre-et-Marie Curie, 2017.
- [50] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls. Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers. *Phys. Rev. Lett.*, 40 :1639-1642, 1978.
- [51] F. M. J. Cozijn, J. Biesheuvel, A. S. Flores, W. Ubachs, G. Blume, A. Wicht, K. Paschke, G. Erbert, and J. C. J. Koelemeij. Laser cooling of beryllium ions using a frequency-doubled 626 nm diode laser. *Opt. Lett.*, 38(13) :2370-2372, Jul 2013.
- [52] J. C. J. Koelemeij, W. Hogervorst, and W. Vassen. High-power frequency stabilized laser for laser cooling of metastable helium at 389 nm. *Review of Scientific Instruments*, 76(3) :033104, 2005.
- [53] William H. Wing, George A. Ru, Willis E. Lamb, and Joseph J. Spezeski. Observation of the infrared spectrum of the hydrogen molecular ion  $\text{HD}^+$ . *Phys. Rev. Lett.*, 36 :1488-1491, 1976.
- [54] Alan Carrington and Richard A Kennedy. Vibration-rotation spectroscopy of the  $\text{HD}^+$  ion near the dissociation limit : Iii. measurements of the  $v = 17-15$  and  $20-17$  bands : demonstration of an asymmetric electron distribution. *Molecular Physics*, 56(4) :935-975, 1985.
- [55] Alan Carrington, Iain R McNab, and Christine A Montgomerie. Vibration-rotation spectroscopy of the  $\text{HD}^+$  ion near the dissociation limit : Iv. nuclear hyperfine structure in the  $v= 18-16$  band. *Molecular Physics*, 64(4) :679-689, 1988.
- [56] Alan Carrington, Iain R McNab, and Christine A Montgomerie. Spectroscopy of the hydrogen molecular ion. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 22(22) :3551, 1989.
- [57] JCJ Koelemeij, B Roth, A Wicht, I Ernsting, and S Schiller. Vibrational spectroscopy of  $\text{HD}^+$  with 2-ppb accuracy. *Physical Review Letters*, 98(17) :173002, 2007.
- [58] U Bressel, A Borodin, J Shen, M Hansen, I Ernsting, and S Schiller. Manipulation of individual hyperfine states in cold trapped molecular ions and application to  $\text{HD}^+$  frequency metrology. *Physical Review Letters*, 108(18) :183003, 2012.
- [59] Vladimir I. Korobov, L. Hilico, and J.-Ph. Karr. Fundamental Transitions and Ionization Energies of the Hydrogen Molecular Ions with few ppt Uncertainty. *Phys. Rev. Lett.*, 118 :233001, 2017.

- [60] J Biesheuvel, J-Ph Karr, L Hilico, KSE Eikema, W Ubachs, and JCJ Koelemeij. Probing qed and fundamental constants through laser spectroscopy of vibrational transitions in  $\text{HD}^+$ . *Nature communications*, 7 :10385, 2016.
- [61] J Biesheuvel, J-Ph Karr, L Hilico, KSE Eikema, W Ubachs, and JCJ Koelemeij. High-precision spectroscopy of the  $\text{HD}^+$  molecule at the 1-ppb level. In *Exploring the World with the Laser*, pages 267-307. Springer, 2018.
- [62] Kortunov, I.V., Alighanbari, S., Hansen, M.G. et al. Proton–electron mass ratio by high-resolution optical spectroscopy of ion ensembles in the resolved-carrier regime. *Nat. Phys.* 17, 569–573 (2021).
- [63] Patra, Sayan, et al. "Proton-electron mass ratio from laser spectroscopy of  $\text{HD}^+$  at the part-per-trillion level." *Science* 369.6508 (2020) : 1238-1241.
- [64] Soroosh Alighanbari, Michael Georg Hansen, VI Korobov, and Stephan Schiller. Rotational spectroscopy of cold and trapped molecular ions in the lamb-dicke regime. *Nature Physics*, 14(6) :555, 2018.
- [65] S. Alighanbari, G. S. Giri, Florin Lucian Constantin, V. I. Korobov, S. Schiller. Precise test of quantum electrodynamics and determination of fundamental constants with  $\text{HD}^+$  ions. *Nature*, 2020, 581 (7807), pp 152-158.
- [66] Vladimir L. Ryjkov, XianZhen Zhao, and Hans A. Schuessler. Simulations of the rf heating rates in a linear quadrupole ion trap. *Phys. Rev. A*, 71 :033414, 2005.
- [67] R. D. Knight and M. H. Prior. Laser scanning measurement of the density distribution of confined  $6\text{Li}^+$  ions. *Journal of Applied Physics*, 50(5) :3044–3049, 1979.
- [68] P. Bowe, L. Hornekær, C. Brodersen, M. Drewsen, J. S. Hangst, and J. P. Schiffer. Sympathetic Crystallization of Trapped Ions. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :2071-2074, 1999.
- [69] S. Sturm, F. Köhler, J. Zatorski, A. Wagner, Z. Harman, G. Werth, W. Quint, C. H. Keitel, and K. Blaum. High precision measurement of the atomic mass of the electron. *Nature*, 506 :467–470, 2014.
- [70] F. Heijne, F. Köhler-Langes, S. Rau, J. Hou, S. Junck, A. Kracke, A. Mooser, W. Quint, S. Ulmer, G. Werth, K. Blaum, and S. Sturm. High-Precision Measurement of the Proton’s Atomic Mass. *Phys. Rev. Lett.*, 119 :033001, 2017.
- [71] CODATA. <https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mpsme> .
- [72] Maximilian Beyer and Frédéric Merkt. Observation and calculation of the quasisubbound rovibrational levels of the electronic ground state of  $\text{H}_2^+$ . *Physical review letters*, 116(9) :093001, 2016.
- [73] A.D.J. Critchley, A.N. Hughes, and I. McNab, *Phys. Rev. Lett.* 86, 1725-1728 (2001).
- [74] J. Pedregosa, C. Champenois, M. Houssin, et M. Knoop, *International Journal of Mass Spectrometry* 290, 100-105 (2010), arXiv :1001.1403v1 [physics.ins-det].

- [75] A. J. Reuben, G. B. Smith, P. Moses, A. V. Vagov, M. D. Woods, D. B. Gordon, R. W. Munn, Ion trajectories in exactly determined quadrupole fields, *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* 154 (1-2) (1996) 43 – 59.
- [76] V.B. Berestetsky, E.M. Lifshitz, and L.P. Pitaevsky, *Relativistic Quantum Theory* (Pergamon, Oxford, 1982).
- [77] V.I. Korobov, L. Hilico and J.-Ph. Karr, *Phys. Rev. A* 74, 040502(R) (2006).
- [78] Jean-Philippe Karr, Franck Bielsa, Albane Douillet, Jofre Pedregosa Gutierrez, Vladimir I. Korobov, and Laurent Hilico. Vibrational spectroscopy of  $\text{H}_2^+$  : Hyperfine structure of two-photon transitions. *Phys. Rev. A*, 77, 2008.
- [79] C. J. Bordé, J. L. Hall, C. V. Kunasz, and D. G. Hummer, “Saturated absorption line shape : Calculation of the transit-time broadening by a perturbation approach,” *Physical Review A* 14 , 236–263 (1976).
- [80] Laurent Hilico, Nicolas Billy, Benoit Grémaud, and Dominique Delande. Polarizabilities, light shifts and two-photon transition probabilities between  $j=0$  states of the  $\text{H}_+^2$  and  $\text{D}_+^2$  molecular ions. *Journal of Physics B*, 34 :1, 2001.
- [81] M. Haidar, V.I. Korobov, L. Hilico, J.-Ph. Karr, Higher-order corrections to spin-orbit and spin-spin tensor interactions in hydrogen molecular ions : Theory and application to  $\text{H}_2^+$ , *Phys. Rev. A* 106, 022816 (2022).
- [82] N. Schwegler, D. Holzapfel, M. Stadler, A. Mitjans, I. Sergachev, J.P. Home, and D. Kienzler. Trapping and ground-state cooling of single  $\text{H}_2^+$ . *Phys. Rev. Lett.* 131, 133003.
- [83] Fabian Wolf, YongWan, Jan C Heip, Florian Gebert, Chunyan Shi, and Piet O Schmidt. Non-destructive state detection for quantum logic spectroscopy of molecular ions. *Nature*, 530(7591) :457, 2016.
- [84] Chin-wen Chou, Christoph Kurz, David B Hume, Philipp N Plessow, David R Leibbrandt, and Dietrich Leibfried. Preparation and coherent manipulation of pure quantum states of a single molecular ion. *Nature*, 545(7653) :203, 2017.
- [85] Cohen-Tannoudji. Atomic motion in laser light. In J. Dalibard, J.M. Raimond, and J. Zinn Justin, editors, *Fundamental Systems in Quantum Optics*. Elsevier Science Publisher B.V., 1992. Les Houches, Session LIII, 1990.
- [86] Li-Yan Tang, Zong-Chao Yan, Ting-Yun Shi, and J. Mitroy. Dynamic dipole polarizabilities of the Li atom and the  $\text{Be}^+$  ion. *Phys. Rev. A* 81, 042521.
- [87] Wolf, S., Studer, D., Wendt, K. et al. Efficient and robust photo-ionization loading of beryllium ions. *Appl. Phys. B* 124, 30 (2018).
- [88] Jannes B Wübbena, Sana Amairi, Olaf Mandel, and Piet O Schmidt. Sympathetic cooling of mixed-species two-ion crystals for precision spectroscopy. *Physical Review A*, 85(4) :043412, 2012.

## Résumé

Ma thèse présente le développement d'une source laser à 9,166  $\mu\text{m}$  référencée au système international d'unités, en vue de la spectroscopie vibrationnelle à haute résolution de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  dans l'objectif d'obtenir une nouvelle détermination de la constante fondamentale  $m_p/m_e$  avec une incertitude relative extrêmement faible avec 12 chiffres significatifs. La première partie explore la préparation, le piégeage et le refroidissement d'ions  $\text{Be}^+$  permettant le refroidissement sympathique d'ions  $\text{H}_2^+$  piégés, ainsi que la méthode utilisée pour créer des ions  $\text{H}_2^+$  dans l'état vibrationnel fondamental. Les parties suivantes qui constituent le travail principal de ma thèse mettent en lumière la source laser utilisée - un laser à cascade quantique - pour réaliser l'excitation à deux photons de la transition de l'ion moléculaire  $\text{H}_2^+$  et présentent son asservissement en phase sur un laser à  $\text{CO}_2$  lui-même asservi en phase sur un peigne de fréquence référencé au système international d'unité via le réseau REFIMEVE. Le transfert de stabilité du peigne au laser à  $\text{CO}_2$  est réalisé grâce à un processus de mélange non linéaire dans un cristal d'AgGaSe<sub>2</sub>.

**Mot-clés : Ions moléculaires, Ions piégés, Refroidissement laser, Refroidissement sympathique, Spectroscopie à haute résolution, Asservissement des lasers, peigne de fréquence, mélange non linéaire, AgGaSe<sub>2</sub>.**

---

## Abstract

My thesis presents the development of a 9,166  $\mu\text{m}$  laser source referenced to the international system of units, for high-resolution vibrational spectroscopy of the molecular ion  $\text{H}_2^+$  with the aim of obtaining a new determination of the fundamental constant  $m_p/m_e$  with extremely low relative uncertainty to 12 significant digits. The first part explores the preparation, trapping and cooling of  $\text{Be}^+$  ions enabling sympathetic cooling of trapped  $\text{H}_2^+$  ions, as well as the method used to create  $\text{H}_2^+$  ions in the fundamental vibrational state. The following sections, which constitute the main work of my thesis, highlight the laser source used - a quantum cascade laser - for the two-photon excitation of the  $\text{H}_2^+$  transition, and present its phase locking to a  $\text{CO}_2$  laser itself phase-locked to a frequency comb referenced to the international system of units via the REFIMEVE network. Stability transfer from the comb to the  $\text{CO}_2$  laser is achieved by a non-linear mixing process in an AgGaSe<sub>2</sub> crystal.

**Keywords : Molecular ions, Trapped ions, laser cooling, Sympathetic cooling, High resolution spectroscopy, Laser servo control, Frequency comb, Non-linear mixing, AgGaSe<sub>2</sub>.**