

**THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉTABLISSEMENT UNIVERSITÉ
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ
PRÉPARÉE AU LABORATOIRE INTERDISCIPLINAIRE CARNOT
DE BOURGOGNE**

Ecole doctorale n°553

Carnot-Pasteur

Doctorat de Physique

Par

Alexandre Parriaux

**Génération de peignes de fréquences par modulation
électro-optique et applications**

Thèse présentée et soutenue à Dijon, le 25 Novembre 2020, devant le jury composé de :

Anne Amy-Klein	Professeure, Université Sorbonne Paris Nord	Examinatrice
John Dudley	Professeur, Université Bourgogne Franche-Comté	Président
Hugues Guillet de Chatellus	Chercheur CNRS, Université Grenoble Alpes	Rapporteur
Kamal Hammani	Maître de conférences, Université Bourgogne Franche-Comté	Codirecteur de thèse
Delphine Marris-Morini	Professeure, Université Paris-Saclay	Examinatrice
Guy Millot	Professeur, Université Bourgogne Franche-Comté	Directeur de thèse
Arnaud Mussot	Professeur, Université de Lille	Rapporteur
Stéphane Pitois	Cardiologue / Ex-Chercheur CNRS	Examineur

Table des matières

Génération de peignes de fréquences par modulation électro-optique et applications	i
Table des matières	iii
Liste des abréviations	v
Remerciements	vii
Introduction	1
1 Peignes de fréquences et interférométrie	5
1.1 Généralités sur les peignes de fréquences	5
1.1.1 Définition mathématique	5
1.1.2 Montages expérimentaux	7
1.1.3 Intérêts d'un spectre en forme de peigne et applications	8
1.2 Interférométrie à deux peignes de fréquences	9
1.2.1 Interférences entre deux peignes mutuellement cohérents	10
1.2.2 Démultiplication dans le domaine radio-fréquence	11
1.2.3 Limite d'exploitation du spectre radio-fréquence	12
1.3 Spectroscopie à deux peignes de fréquences	13
1.3.1 Introduction	13
1.3.2 Spectroscopie d'absorption des gaz	14
1.3.3 Montages expérimentaux à deux peignes de fréquences	17
1.4 Génération de peignes par modulation électro-optique	21
1.4.1 Généralités sur l'effet électro-optique et les modulateurs	21
1.4.2 Génération de peignes par modulation électro-optique	25
1.4.3 Limites et contournements	29
1.4.4 Applications et conclusion	32
1.5 Conclusion	32
2 Propagation d'impulsions dans une fibre optique	33
2.1 Équation de propagation dans une fibre optique	33
2.1.1 Dispersion de la vitesse de groupe	34
2.1.2 Atténuation linéaire	35
2.1.3 Auto-modulation de phase	35
2.1.4 Effet Raman	36
2.1.5 Simulation numériques	38
2.2 Phénomènes physiques couplés dans les fibres	39
2.2.1 Instabilité de modulation	39
2.2.2 Ondes de choc dispersives	42
2.2.3 Conclusion	44
2.3 Élargissement spectral par ondes de choc dispersives	44
2.3.1 Exploitation du phénomène et caractéristiques	44
2.3.2 Élargissement spectral maximal	44
2.3.3 Conclusion sur l'élargissement par ondes de choc	48
2.4 Applications au spectromètre à deux peignes de fréquences	48
2.4.1 Élargissement et dynamique d'analyse	48
2.4.2 Spectroscopie du cyanure d'hydrogène	51
2.4.3 Conclusion sur les applications du spectromètre	54

2.5	Conclusion	55
3	Spectromètre tout fibré à 2 μm	57
3.1	Motivations d'une extension	57
3.2	Modulation électro-optique directe à 2 μm	58
3.2.1	Introduction	58
3.2.2	Montage expérimental	59
3.2.3	Applications spectroscopiques	62
3.2.4	Conclusion sur la technique de modulation directe à 2 μm	64
3.3	Extension à 2 μm par conversion de fréquences	64
3.3.1	Introduction	64
3.3.2	Instabilité de modulation pour une conversion de fréquences	65
3.3.3	Montage expérimental pour la conversion d'un peigne	67
3.3.4	Montage à deux peignes de fréquences	70
3.3.5	Applications spectroscopiques	72
3.3.6	Conclusion sur la technique de conversion à 2 μm	74
3.4	Conclusion	75
4	Extension du spectromètre dans le moyen-infrarouge	77
4.1	Introduction et rappels	77
4.1.1	Rappels sur les cristaux polarisés périodiquement	77
4.1.2	Relations et contraintes physiques	78
4.2	Montage expérimental	79
4.2.1	Mise en place et description du montage	79
4.2.2	Spectre radio-fréquence	81
4.3	Applications spectroscopiques	82
4.3.1	Spectroscopie du CO_2	82
4.3.2	Analyse de l'air expiré	85
4.3.3	Ouverture sur l'analyse de gaz d'échappement	92
4.4	Conclusion	94
	Conclusion générale et ouverture	95
	Bibliographie	97
	Annexes	109
	A Exemple de code numérique	111
	B Publications, brevets et présentations	113

Liste des abréviations

AMP	Auto-Modulation de Phase
EDFA	Erbium Doped Fiber Amplifier
EM	Électromagnétique
ESNL	Équation de Schrödinger non-linéaire
ESNLG	Équation de Schrödinger non-linéaire généralisée
FHNL	Fibre optique Hautement Non-Linéaire
GDF	Génération par Différence de Fréquences
HP	Helicobacter Pylori
IM2	Instabilité de Modulation d'ordre 2
IM4	Instabilité de Modulation d'ordre 4
MEO	Modulateur Électro-Optique
MI	Modulateur d'Intensité
MIR	Moyen Infrarouge
MP	Modulateur de Phase
PPLN	Periodically Poled Lithium Niobate
RF	Radio-Fréquence
RSB	Rapport Signal sur Bruit
TDFA	Thulium Doped Fiber Amplifier
TF	Transformée de Fourier

Remerciements

« Seriez-vous intéressés par une proposition de stage de licence? ». Il y a 6 ans, cette question ne m'a pas semblé très particulière, surtout pour un stage découverte de quelques jours. J'étais loin de me douter que ma réponse positive me conduirait, quelques années plus tard, à écrire une thèse sur la même thématique passionnante qui m'était proposée en stage. Cette thèse, en voici le manuscrit, celui-ci récapitulant les différents résultats que j'ai pu obtenir sur la génération de peignes de fréquences par modulation électro-optique et leurs applications. Toutefois, ces résultats ne seraient sans doute pas les mêmes sans un bon nombre de personnes que je me dois de remercier ici.

Pour commencer, je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury qui ont évalué ce travail. Merci à Hugues Guillet de Chatellus et Arnaud Mussot pour avoir accepté la tâche de rapporter ce travail, mais également à Anne Amy-Klein, John Dudley, Delphine Marris-Morini et Stéphane Pitois pour l'avoir examiné. Je vous remercie pour l'intérêt porté à cette thèse, ainsi que pour les questions et remarques pertinentes qui ont contribué significativement à améliorer ce travail.

Ensuite, j'aimerais remercier toute l'équipe SLCO et en particulier Julien, Christophe et Bertrand pour m'avoir apporté une aide précieuse durant toute ma thèse, aussi bien avec leurs conseils que sur l'utilisation du matériel. Merci également aux membres des autres équipes avec qui j'ai pu interagir, notamment Pierre, Franck, Bernard et Stéphane pour les coups de main sur des problèmes théoriques comme pratiques. J'ajoute un remerciement spécial à Édouard pour ses enseignements sur la polarisation, les lames quart d'onde et les miroirs.

J'aimerais également remercier Frédéric pour son soutien et sa disponibilité pendant mes études, ainsi que Vincent pour m'avoir fait découvrir très jeune ce qu'était un laboratoire de recherche, et pour son aide sur toutes les questions de spectroscopie que j'ai pu me poser durant ma thèse.

Je souhaite aussi remercier Claire, Ibtissam et Julie qui ont été d'une grande aide pour toutes les tâches administratives et problèmes à résoudre, que ce soit pour une carte d'accès un peu capricieuse, jusqu'à la commande des nombreux équipements qui ont été utilisés pour obtenir les résultats présentés dans ce manuscrit.

Pour continuer, je voudrais saluer tous les doctorants et post-doctorants que j'ai pu rencontrer, Émilien, Nicolas, Karim, Adrien, Ugo, Gang, Kasia, Arnaud, Saïd, Jérémie, Ester, Kilian, Alix, Manon, et la liste n'est sûrement pas complète. Merci pour cette bonne ambiance qui règne au laboratoire comme en dehors, que ce soit autour d'un café, d'un verre, d'un burger du Foodies, d'un match de badminton ou encore d'un bon jeu de société.

Je tiens aussi à remercier toute l'équipe de l'Expérimentarium et les doctorants qui s'y investissent pour faire vivre ce beau programme de vulgarisation scientifique. Celui-ci m'a fait découvrir de nombreux sujets de recherche très intéressants, et j'ai été heureux de pouvoir y contribuer, rendant ainsi la pareille. Dans la même veine, je remercie la Société Astronomique de Bourgogne pour tout ce que cette association organise. D'une manière plus générale, la culture scientifique est très certainement une des raisons qui m'a amené à vouloir faire de la recherche, et pour ça je serai toujours reconnaissant envers les acteurs de ce milieu.

Dans ces remerciements, je n'oublie pas mes amis de longue date qui ont été d'un grand soutien, en particulier Benjamin pour sa relecture des parties médicales après ses 21 jours de travail à l'hôpital, mais aussi pour toutes ces après-midis passées à boire des bières en discutant de tout et rien (et mollo sur les graves); François-Marie, pour toutes ses histoires et galères improbables qui font bien relativiser; Et surtout Nicolas, toujours opérationnel, que ce soit pour des vacances en Alpes, pour ouvrir l'Enfer, une randonnée, ou quelque chose de plus tranquille comme une petite tisane en jouant à la console.

J'aurai également beaucoup d'autres amis à remercier, comme Thomas pour sa relecture du manuscrit pendant sa période de travail en leasing et les parties de Catan, mais aussi Loïc, Céline, Adrien, Julien, Baptiste, et tout ceux que j'ai oublié.

Je n'oublie bien évidemment pas ma famille, sans qui cette thèse n'aurait jamais vu le jour. Je souhaite donc la remercier énormément, en particulier mes frères et sœurs pour leurs encouragements et pour m'avoir fait découvrir les sciences, notamment l'astronomie, dès mon plus jeune âge. Mais surtout, je ne pourrai jamais remercier assez mes parents pour m'avoir toujours fait confiance, soutenu et encouragé dans mes choix, notamment ceux de mes études. La réussite de cette thèse est en partie grâce à eux mais aussi pour eux.

Pour finir, je remercie très chaleureusement mes directeurs de thèse qui m'ont donné une chance unique de pouvoir travailler sur des sujets divers et variés dans des conditions excellentes, et avec un encadrement qui l'était tout autant. Merci pour la confiance que vous m'avez accordée, vos encouragements, votre grande disponibilité, le partage de votre expérience, et votre soutien apporté dans toutes circonstances. Kamal, merci pour tous tes conseils, tes idées, ta pédagogie et ta bonne humeur communicative. Guy, merci pour les longues discussions très enrichissantes, ton honnêteté, ton humour, le temps passé à trouver des financements pour acquérir du matériel, et toutes les bonnes choses régionales que l'on a pu partager. Honnêtement, je pense que je n'aurai pas pu effectuer de meilleure thèse autre part, encore merci pour tout.

Pour toi Maman.

Introduction

L'invention du laser en 1960 par T. MAIMAN a permis une grande avancée dans le domaine de la physique expérimentale [1]. Le potentiel de ces sources à générer des intensités très élevées a rendu possible la découverte de nombreux phénomènes physiques et de fait, de nouvelles disciplines d'études sont nées [2]. De nos jours, les lasers sont devenus indispensables, tant dans la vie quotidienne que dans la recherche actuelle car de nombreuses expériences et instruments reposent sur leur utilisation. L'exemple le plus retentissant de ces dernières années est sans doute la possibilité d'observer des ondes gravitationnelles depuis 2016, en particulier grâce au détecteur LIGO [3].

En 1961, peu après la création du laser, la discipline de l'optique prend un tout nouveau souffle [2]. Jusqu'alors, l'optique géométrique et l'optique ondulatoire, modèles regroupables sous l'électromagnétisme décrit par les *équations de Maxwell*, étaient entièrement suffisantes à la compréhension des phénomènes physiques observables (à quelques exceptions près). Soit (\mathbf{E}, \mathbf{B}) une excitation électromagnétique d'un système. Celui-ci produit une réponse en polarisation \mathbf{P} qui rayonne un champ électromagnétique se mélangeant au champ initial avec $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ l'induction électrique et ε_0 la permittivité diélectrique du vide. Dans un milieu diélectrique neutre non-magnétique, c'est à dire sans charge ni courant, soit avec $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ tel que \mathbf{H} est le champ magnétique et μ_0 la perméabilité magnétique du vide, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad \nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad .$$

Si la réponse en polarisation du milieu \mathbf{P} est définie comme *linéaire*, alors les équations de Maxwell présentées ci-dessus sont aussi linéaires et définissent alors toute l'optique géométrique et ondulatoire. Toutefois, si un laser est utilisé, étant donné sa capacité à délivrer des intensités très élevées comparé à d'autres sources plus traditionnelles, alors la réponse d'un système en polarisation \mathbf{P} à une excitation électromagnétique ne peut généralement plus être approximée comme linéaire. Ceci va susciter un très grand intérêt pour les lasers car il faut alors prendre en compte les réponses *non-linéaires* du système. Dans ce cas, les équations de Maxwell font alors sortir naturellement de nouvelles solutions. En particulier, il découle que de nouvelles fréquences peuvent être créées dans le spectre optique, phénomène qui était jusqu'alors impossible en optique linéaire.

La première observation de ce type de phénomènes avec un laser fut une *génération de seconde harmonique*, c'est à dire que deux photons de fréquence ω vont interagir pour former un photon de fréquence 2ω . Cette expérience réalisée par P. FRANKEN *et al.* en 1961 a ouvert la discipline de l'*optique non-linéaire* [2]. Cependant, les puissances atteignables avec les premiers lasers étaient très faibles ce qui rendait difficile l'observation de phénomènes non-linéaires. Lors de l'expérience de P. FRANKEN *et al.*, l'intensité associée au signal de seconde harmonique était tellement faible qu'un imprimeur du journal où a été publié l'article crut que le point associé au signal était un artefact d'impression, et a décidé de le supprimer. C'est pour cette raison qu'aucun point n'est visible sous la flèche de la figure de l'article présentée à la [Figure 1](#).

L'expérience de P. FRANKEN *et al.* montre donc une certaine nécessité à disposer de sources lasers bien plus puissantes pour étudier des phénomènes non-linéaires. Une façon simple de parvenir à ce résultat est d'utiliser des lasers impulsionsnels. De cette manière, l'énergie du laser se retrouve concentrée dans des courtes périodes d'émission du laser, ce qui permet de produire des puissances crêtes bien plus élevées par rapport à un laser émettant en continu. Pour réaliser un laser impulsionsnel, il est nécessaire de réaliser ce qui est appelé un blocage de modes d'une cavité laser, c'est à dire le fait de rendre égales à un instant donné (et périodiquement) toutes les phases des différents modes de la cavité laser, ce qui permet de produire des impulsions dont la phase est fixée. Ce besoin de lasers impulsionsnels s'est très vite fait ressentir car à peine quatre années après la création du laser par T. MAIMAN, le premier laser à modes bloqués fut réalisé par L. HARGROVE *et al.* [4]. Bien que la description de ce laser dans le domaine temporel soit intéressante, c'est sa représentation dans le domaine spectral qui va faire naître un tout nouveau domaine d'études et encore en forte activité aujourd'hui. En regardant le spectre optique généré par le premier laser à modes bloqués, celui-ci étant présenté à la [Figure 2](#), nous pouvons observer un spectre constitué de fréquences discrètes et régulièrement espacées [4]. C'est le premier spectre de ce type observé et celui-ci sera plus tard dénommé un *peigne de fréquences*.

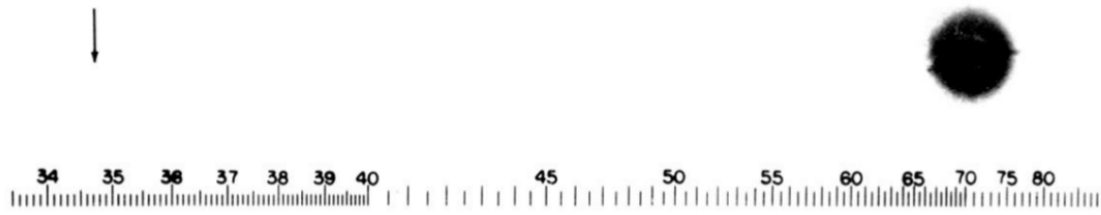


FIG. 1. A direct reproduction of the first plate in which there was an indication of second harmonic. The wavelength scale is in units of 100 Å. The arrow at 3472 Å indicates the small but dense image produced by the second harmonic. The image of the primary beam at 6943 Å is very large due to halation.

FIGURE 1 – Résultat expérimental de la génération de seconde harmonique par P. FRANKEN *et al.* [2]. La flèche montrant un point supposé indiquant la présence du signal de seconde harmonique ne pointe ici en réalité sur rien. Le point fut retiré par un imprimeur du journal car la seconde harmonique générée était tellement faible en intensité qu'il a pensé que le point était un artefact apparu à l'impression.

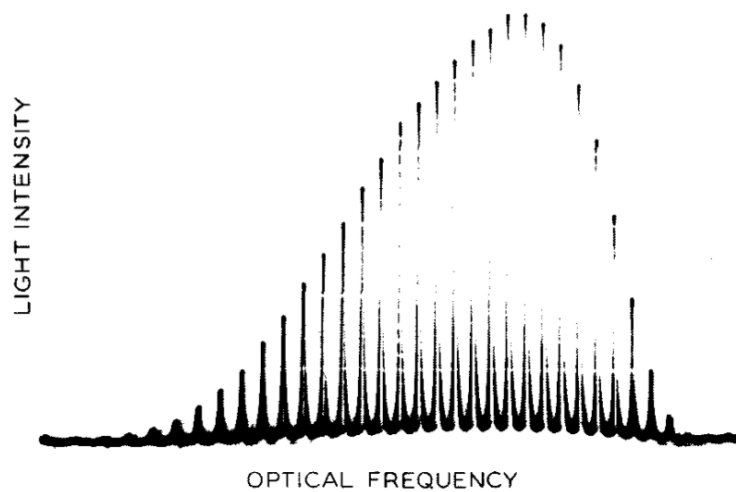


FIGURE 2 – Spectre optique associé au premier laser à modes bloqués par L. HARGROVE *et al.* [4]. Ce spectre montre une succession discrète de fréquences régulièrement espacées. Aujourd'hui, ce type de spectre est couramment appelé un peigne de fréquences.

Après la génération du premier peigne de fréquences en 1964, un intérêt grandissant est né pour ces structures spectrales. Une dizaine d'années plus tard, les premières idées utilisant les peignes pour la métrologie des fréquences commencent à apparaître [5]. Il faut toutefois attendre les années 1990 et la démocratisation des lasers femtosecondes pour que les peignes de fréquences se répandent dans ce domaine [6–8], surpassant les techniques de mesures reposant sur de longues chaînes de conversion très complexes et très lourdes expérimentalement [9]. Depuis, ce domaine de recherche a atteint un tel point de perfectionnement que les peignes de fréquences sont devenus des outils indispensables dans bon nombre de domaines très variés de la physique actuelle. Il est possible de citer la détection d'exoplanètes [10], et toujours la métrologie des fréquences qui s'est encore améliorée [11]. Mais la spectroscopie est sans doute l'exemple le plus parlant puisque certains travaux de J. L. HALL et de T. W. HÄNSCH ont été récompensés d'un prix Nobel en 2005 [12, 13].

Ce manuscrit intitulé *Génération de peignes de fréquences par modulation électro-optique et applications* se présente de la façon suivante. Le chapitre 1 se veut être un chapitre introductif et présente d'une manière générale mais détaillée les peignes de fréquences. Nous verrons comment définir le plus rigoureusement possible ces structures spectrales, leur intérêt, mais aussi les montages expérimentaux les plus couramment utilisés. Dans un second temps, nous verrons comment il est possible d'utiliser les peignes de fréquences pour des applications dans le domaine de la spectroscopie. La technique associée, nommée *spectrométrie à deux peignes de fréquences*, sera présentée d'une façon très détaillée car son utilisation sera légion tout au long de ce manuscrit. Dans un même temps, nous décrirons en détail les montages expérimentaux permettant d'effectuer de la spectroscopie à deux peignes de fréquences et nous mettrons en évidence les problématiques de ce genre de montages. Pour finir ce chapitre, nous introduirons une catégorie de peignes de fréquences bien particuliers, ceux basés sur la modulation électro-optique d'une source laser continue. Nous verrons comment cette technique peut être utilisée

pour développer un spectromètre à deux peignes de fréquences permettant de répondre aux problématiques du domaine. Ce montage sera décrit le plus complètement possible car il sera la base de toutes les recherches présentées dans ce manuscrit.

Le [chapitre 2](#) commencera par aborder les bases de la propagation de la lumière dans les fibres optiques. En effet, le montage à deux peignes de fréquences que nous étudierons étant entièrement basé sur des fibres optiques, il convient de définir de manière adéquate les fondamentaux concernant ces guides d'onde. Nous verrons les équations de propagation et les différentes contributions physiques, ce qui nous permettra de mettre en évidence plusieurs phénomènes que nous exploiterons par la suite pour optimiser le développement de notre spectromètre. Dans ce but, nous détaillerons une étude effectuée sur les ondes de chocs dispersives dans les fibres optiques. Ce phénomène, permettant d'élargir spectralement le spectre d'impulsions optiques, sera étudié pour essayer de résoudre un des désavantages du spectromètre. Pour finir ce chapitre, nous mettrons en pratique ce spectromètre amélioré pour l'étude du cyanure d'hydrogène HCN.

Le [chapitre 3](#) se concentrera sur la résolution d'un deuxième désavantage du spectromètre que nous avons vu dans les chapitres précédents. Nous verrons que dans sa version de base, la longueur d'onde à laquelle le montage opère n'est pas optimale pour la spectroscopie. Tout en gardant l'avantage d'un montage tout fibré, nous verrons qu'il est possible d'étendre ses capacités jusqu'à une longueur d'onde de 2 μm . Pour cela nous étudierons deux méthodes distinctes : la première consiste en la création d'un spectromètre fonctionnant directement à 2 μm et la deuxième, à la conversion dans une fibre optique hautement non-linéaire de peignes créés à 1,55 μm . Ces deux méthodes arrivant à des résultats similaires, nous verrons les avantages et inconvénients de chaque méthode.

Le [chapitre 4](#) constituera en une extension du chapitre précédent. Les longueurs d'onde alentours à 2 μm possèdent certains avantages mais il serait beaucoup plus intéressant d'aller plus haut en longueur d'onde pour effectuer de la spectroscopie, comme dans le moyen infrarouge. Cependant, ceci revient à sacrifier le caractère tout fibré du montage car les fibres optiques ne sont alors plus transparentes à ces longueurs d'onde. Pour ce faire nous utiliserons, à l'aide de cristaux non-linéaires, une méthode pour convertir des peignes créés à 1,55 μm afin d'atteindre les alentours de 4,3 μm . Nous verrons ensuite les applications qu'il est possible d'effectuer avec cette extension du spectromètre dans le moyen infrarouge, en particulier pour le domaine médical.

Pour conclure, nous récapitulerons les apports présentés dans ce manuscrit sur la spectrométrie à deux peignes de fréquences basée sur la modulation électro-optique d'une diode laser continue. Nous verrons aussi quelques pistes d'améliorations qui permettraient de poursuivre les études présentées ici, ce qui renforcerait notre montage expérimental.

Chapitre 1

Peignes de fréquences et interférométrie

En introduction, nous avons vu très rapidement le concept et l'obtention d'un peigne de fréquences. Dans ce premier chapitre, nous commençons donc par aborder les généralités associées à cet objet, le but étant de le définir le plus rigoureusement possible, mathématiquement et physiquement. Nous verrons ensuite de façon détaillée l'intérêt que représente l'utilisation d'un peigne de fréquences et ce, en particulier pour la spectroscopie. Pour finir, nous aborderons des montages expérimentaux bien particuliers basés sur la modulation électro-optique d'un laser continu pour la génération de peignes de fréquences ainsi que pour le développement d'un spectromètre à deux peignes de fréquences.

1.1 Généralités sur les peignes de fréquences

1.1.1 Définition mathématique

Considérons un laser capable d'émettre un train d'impulsions. Nous supposons que toutes ces impulsions disposent d'une même enveloppe temporelle A , qu'elles sont émises à une période de répétition $T = \frac{1}{f_r} = \frac{2\pi}{\omega_r}$ et possèdent une fréquence porteuse $\nu_p = \frac{\omega_p}{2\pi}$ où ω_r et ω_p sont respectivement les fréquences angulaires associées aux fréquences f_r et ν_p ¹. Pour rester dans un cas général, il est pris en compte le fait qu'entre deux impulsions successives il peut exister un décalage de phase $\Delta\varphi$ entre l'onde porteuse et l'enveloppe. Ce décalage est en général induit par une dispersion résiduelle dans la cavité laser générant les impulsions, ce qui induit une différence entre la vitesse de phase et la vitesse de groupe et donc un déphasage entre l'onde porteuse et l'enveloppe. Sous ces conditions, le train d'impulsions f peut s'écrire sous la forme suivante :

$$f(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} (A(t) \cos(\omega_p t - n\Delta\varphi)) * \delta(t + nT) \quad \text{avec } n \in \mathbb{Z} \quad . \quad (1.1)$$

Par transformée de Fourier (TF), le train d'impulsions \tilde{f} dans le domaine des fréquences ω s'écrit :

$$\begin{aligned} \tilde{f}(\omega) &= \mathcal{F}_\omega(f(t)) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t) e^{-i\omega t} dt = \int_{-\infty}^{\infty} \left(\sum_{n=-\infty}^{\infty} (A(t) \cos(\omega_p t - n\Delta\varphi)) * \delta(t + nT) \right) e^{-i\omega t} dt \\ &= \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mathcal{F}_\omega(A(t) \cos(\omega_p t - n\Delta\varphi)) \mathcal{F}_\omega(\delta(t + nT)) \\ &= \pi \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left(\tilde{A}(\omega) * (e^{-in\Delta\varphi} \delta(\omega - \omega_p) + e^{in\Delta\varphi} \delta(\omega + \omega_p)) \right) e^{i\omega n T} \end{aligned} \quad (1.2)$$

où $\tilde{A}(\omega) = \mathcal{F}_\omega(A(t))$. Nous avons alors :

$$\begin{aligned} \tilde{f}(\omega) &= \pi \sum_{n=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(\omega - \omega_p) e^{in(\omega T - \Delta\varphi)} + \tilde{A}(\omega + \omega_p) e^{in(\omega T + \Delta\varphi)} \\ &= \pi \tilde{A}(\omega - \omega_p) \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{in \frac{2\pi}{\omega_r} (\omega - \omega_0)} + \pi \tilde{A}(\omega + \omega_p) \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{in \frac{2\pi}{\omega_r} (\omega + \omega_0)} \quad \text{avec } \omega_0 = \frac{\omega_r}{2\pi} \Delta\varphi \quad . \end{aligned} \quad (1.3)$$

1. Pour des raisons de simplifications, nous utiliserons le symbole ν pour désigner une fréquence et ω pour désigner une fréquence angulaire, les deux étant reliées par $\omega = 2\pi\nu$. Dans cette convention et à des fins de simplifications, nous omettrons le mot « angulaire » pour désigner des fréquences angulaires.

Cette dernière expression de \tilde{f} fait apparaître une somme périodique de diracs. En effet, en considérant la fonction « sha » $\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}$ périodique de période ω_r et définie par :

$$\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\Omega) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(\Omega - n\omega_r) \quad , \quad (1.4)$$

alors par décomposition en série de Fourier, nous avons :

$$\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\Omega) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n(\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}) e^{2i\pi n \frac{\Omega}{\omega_r}} \quad (1.5)$$

avec :

$$c_n(\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}) = \frac{1}{\omega_r} \int_{-\frac{\omega_r}{2}}^{\frac{\omega_r}{2}} \mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\Omega) e^{-2i\pi \frac{n}{\omega_r} \Omega} d\Omega = \frac{1}{\omega_r} \int_{-\frac{\omega_r}{2}}^{\frac{\omega_r}{2}} \delta(\Omega) e^{-2i\pi \frac{n}{\omega_r} \Omega} d\Omega = \frac{1}{\omega_r} e^{-2i\pi \frac{n}{\omega_r} 0} = \frac{1}{\omega_r} \quad . \quad (1.6)$$

Nous pouvons en déduire que :

$$\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\Omega) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(\Omega - n\omega_r) = \frac{1}{\omega_r} \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{2i\pi n \frac{\Omega}{\omega_r}} \quad . \quad (1.7)$$

En reprenant l'équation (1.3), par identification avec l'équation (1.7) nous avons :

$$\sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{in \frac{2\pi}{\omega_r} (\omega + \omega_0)} = \omega_r \mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\omega + \omega_0) \quad (1.8)$$

et de cette dernière relation il en est déduit que :

$$\tilde{f}(\omega) = \underbrace{\pi\omega_r \tilde{A}(\omega - \omega_p) \mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\omega - \omega_0)}_{\tilde{f}_{\text{pos}}(\omega)} + \underbrace{\pi\omega_r \tilde{A}(\omega + \omega_p) \mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}_{\omega_r}(\omega + \omega_0)}_{\tilde{f}_{\text{nég}}(\omega)} \quad . \quad (1.9)$$

La fonction \tilde{f} donnée par l'équation (1.9) est composée de deux termes, \tilde{f}_{pos} définie sur les fréquences positives et $\tilde{f}_{\text{nég}}$ définie sur les fréquences négatives. Étant donné que les fréquences négatives ne possèdent aucun sens physique, intéressons nous à la restriction sur $\omega \geq 0$, c'est à dire à \tilde{f}_{pos} . Cette fonction possède la caractéristique d'être non nulle uniquement pour des fréquences particulières définies par $\omega - \omega_0 - n\omega_r = 0$, c'est à dire pour les fréquences positives définies par :

$$\omega \equiv \omega_n = \omega_0 + n\omega_r \quad \text{avec} \quad n \in \mathbb{Z} \quad \text{et} \quad \omega_0 = \frac{\omega_r}{2\pi} \Delta\varphi \quad . \quad (1.10)$$

Autrement dit, \tilde{f} est non nulle uniquement pour les fréquences qui sont égales à un entier de fois la fréquence de répétition ω_r et décalées à l'origine d'une fréquence ω_0 . Comme toutes les fréquences sont discrètes et équidistantes, la fonction $\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}$ est généralement appelée en mathématiques un *peigne de Dirac*. Dans un contexte physique, nous considérerons la fonction \tilde{f} plutôt que la fonction $\mathbb{I}\mathbb{I}\mathbb{I}$ seule, \tilde{f} étant un peigne de Dirac enveloppé d'une fonction \tilde{A} (l'enveloppe du spectre). Nous appellerons cet ensemble un *peigne de fréquences* et ces composantes fréquentielles seront appelées les *dents* ou les *raies* du peigne. La Figure 1.1 montre la représentation d'un train d'impulsions dans le domaine temporel et spectral, c'est à dire un peigne de fréquences.

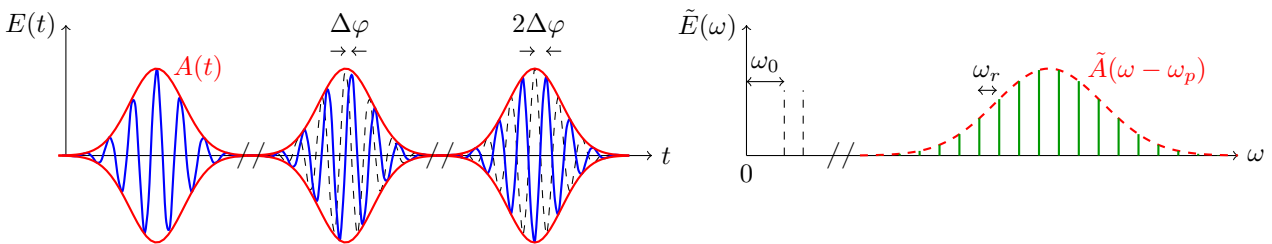


FIGURE 1.1 – Schéma représentant le champ électrique d'un train d'impulsions dans le domaine temporel (à gauche) et spectral (à droite). Dans le domaine fréquentiel, nous observons un peigne de fréquences d'enveloppe \tilde{A} dont les raies sont espacées d'une fréquence ω_r . Ce peigne est décalé à l'origine d'une fréquence ω_0 dû au déphasage $\Delta\varphi$ qu'il peut exister entre l'onde porteuse (en bleu) et l'enveloppe (en rouge) par rapport à deux impulsions successives [14].

1.1.2 Montages expérimentaux

Dans la section précédente, nous avons mis en évidence qu'un peigne de fréquences est simplement le spectre associé à un train d'impulsions possédant une relation de phase entre les différentes impulsions. Il existe différents types de lasers permettant de générer de telles structures. Dans cette section, nous présentons quelques montages expérimentaux les plus couramment utilisés, à l'exception des peignes générés par modulation électro-optique que nous introduirons plus tard dans une section indépendante.

1.1.2.1 Lasers à modes bloqués

Depuis la mise en évidence des peignes de fréquences [4], la majorité des lasers utilisés pour générer un peigne sont les lasers à modes bloqués. Dans ces lasers, une cavité possédant un temps de vol τ fixe la relation entre les modes longitudinaux, et un milieu à gain pompé par un laser continu induit le blocage de mode par lentille Kerr. De nos jours, le laser à modes bloqués le plus couramment utilisé est sans doute le titane-saphir, un exemple de celui-ci étant représenté à la Figure 1.2 [15, 16]. La fréquence de répétition ω_r du laser, usuellement d'une valeur pouvant être du MHz jusqu'à quelques GHz, et la fréquence de décalage à l'origine ω_0 sont activement contrôlées en utilisant des parties mobiles telles que des miroirs placés sur des platines ou des piezos. Ces lasers émettent des impulsions aussi courtes que quelques dizaines de femtosecondes, ce qui correspond à de très larges peignes de fréquences de plus de cent nanomètres.

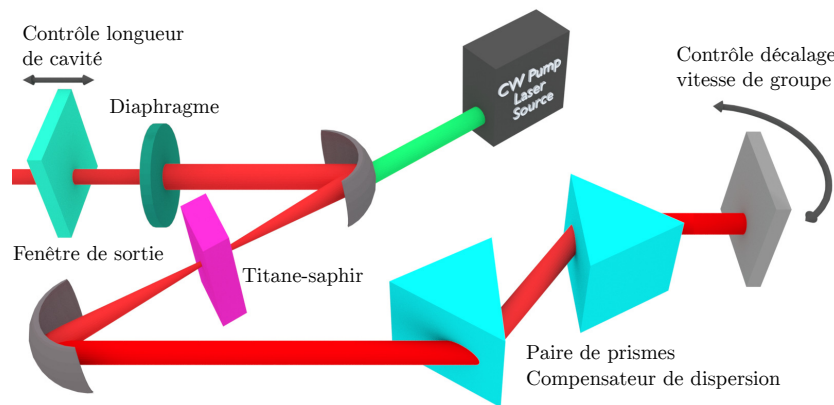


FIGURE 1.2 – Schéma montrant un exemple de laser à modes bloqués de type titane-saphir ainsi que différents composants le constituant.

Un autre exemple de laser à modes bloqués est le laser fibré. Dans ce cas, le blocage de phase se fait par rotation non-linéaire de polarisation dans une fibre optique [17, 18], ou bien en utilisant un absorbant saturable type SESAM [19]. Une architecture particulière du laser peut aussi permettre un blocage de modes, comme par exemple lors de l'utilisation d'un miroir non-linéaire [20]. Plusieurs configurations de ce type de laser ont été développées, et ces lasers sont en général plus compacts et moins coûteux qu'un titane-saphir.

1.1.2.2 Microrésonateurs

Plus récemment, une nouvelle catégorie de montages expérimentaux permettant de générer des peignes ont vu le jour : il s'agit des microrésonateurs [21]. Comparés aux lasers à modes bloqués, les résonateurs sont des cavités optiques construites dans un matériau qui est refermé sur lui-même. Plusieurs formes de microrésonateurs existent comme les microtores, les microsphères, les microdisques, etc., et quelques exemples de ces formes sont présentées à la Figure 1.3.



FIGURE 1.3 – Schéma représentant quelques exemples de microrésonateurs.

Le mécanisme de génération de peignes dans un microrésonateur est basé sur le mélange à quatre ondes. Un laser continu est couplé dans la cavité, en général par ondes évanescentes, et par effet non-linéaire, de nouvelles fréquences peuvent être générées avec un espacement donné par l'inverse du temps de vol de la cavité. Ce temps de vol est fixé par la longueur de la cavité qui est en général inférieur à 1 mm, ce qui donne des fréquences de répétition très élevées, de la dizaine de GHz voire jusqu'au THz. Les microrésonateurs ont atteint un niveau de maturité suffisant pour générer des peignes s'étalant sur plusieurs centaines de nanomètres tout en utilisant des puissances injectées relativement faibles [22–24].

1.1.2.3 Autres architectures

D'autres architectures et montages expérimentaux existent pour générer des peignes de fréquences. Un premier exemple est l'utilisation d'effets non-linéaires dans les fibres optiques tels que la diffusion Brillouin couplée avec le mélange à quatre ondes [25]. Lorsque ces deux effets sont exploités dans une cavité, il est possible de produire un peigne dont le spectre peut s'étendre sur plusieurs dizaines de nanomètres [26]. Toujours en utilisant des phénomènes non-linéaires dans les fibres, il est possible de générer un peigne de fréquences à partir d'une pompe composée de deux lasers continus [27–29]. Pour finir avec un dernier exemple, l'utilisation d'un modulateur acousto-optique peut permettre la génération de peignes de fréquences. En effet, en utilisant la capacité de ces composants à pouvoir décaler la fréquence d'une onde continue d'une certaine quantité, il est possible de créer un peigne en cascade de l'effet acousto-optique à l'intérieur d'une cavité [30, 31]. Ici, les taux de répétition atteignables avec cette technique sont de l'ordre de la centaine de MHz contrairement à plusieurs GHz pour une cavité basée sur l'effet Brillouin ou le mélange à quatre ondes.

1.1.3 Intérêts d'un spectre en forme de peigne et applications

Dans les sections précédentes, nous avons défini ce qu'était un peigne de fréquences et quelques montages expérimentaux permettant de générer ces structures spectrales. Intéressons nous donc maintenant aux intérêts et applications que peuvent permettre les peignes de fréquences.

1.1.3.1 Mesures de fréquences et limites physiques

L'intérêt premier d'un peigne de fréquences réside dans l'équation (1.10) qui le gouverne. Celle-ci montre que toutes les fréquences du peigne sont entièrement caractérisées par les deux grandeurs ω_r et ω_0 . Ces deux fréquences appartiennent au domaine des radio-fréquences (RF) et sont en général d'une valeur inférieure à la dizaine de GHz. Autrement dit, si un laser impulsif possède un spectre en forme de peigne, alors il est possible de connaître toutes les fréquences de son spectre en ne disposant uniquement que des données sur ω_r et ω_0 . Cette capacité est d'un intérêt tout particulier si le peigne est produit dans le visible ou l'infrarouge, c'est à dire pour des fréquences optiques supérieures à la dizaine de THz. En effet, mesurer de façon directe des fréquences optiques de plusieurs dizaines de THz est impossible : les instruments actuels sont complètement dépassés de par le fait qu'ils fonctionnent avec des composants électroniques, les électrons ne pouvant suivre les oscillations ultra-rapides de l'onde porteuse. Intuitivement, nous pourrions imaginer mesurer à la place de la fréquence ν la longueur d'onde λ puis en déduire ν selon $\nu = \frac{c}{\lambda}$, mais cette façon de faire ne permet pas d'effectuer des mesures précises, en particulier pour des applications liées à la métrologie. En effet, il existe des limites physiques sur ces mesures, notamment car il faut pouvoir détecter le front d'onde très précisément. Or expérimentalement, cette mesure de précision est limitée par des erreurs géométriques, ce qui donne lieu à des sources d'incertitudes sur la mesure et donc à une impossibilité de connaître très précisément la longueur d'onde [13, 32]. Il y a donc une réelle nécessité à mesurer des fréquences plutôt que des longueurs d'onde pour effectuer des mesures précises et l'utilisation d'un peigne permet de s'affranchir des problèmes vus ci-dessus.

1.1.3.2 Référencement d'un peigne de fréquences

Comme ω_r et ω_0 appartiennent au domaine RF, il est tout à fait possible de les mesurer précisément en utilisant des instruments électroniques selon la méthode suivante [8, 14]. La fréquence de répétition du laser ω_r est facilement mesurable avec une photodiode rapide. En mesurant l'écart temporel T entre deux impulsions successives, ou en étudiant le spectre électrique du train d'impulsions, il est aisé de remonter à ω_r . La fréquence de décalage à l'origine ω_0 est quant à elle plus difficile à extraire. En effet, d'après l'équation (1.10), celle-ci est directement reliée au déphasage $\Delta\varphi$ entre deux impulsions successives ce qui est très difficile à mesurer directement puisqu'il faudrait pouvoir résoudre les oscillations ultra-rapides de l'onde porteuse. Pour contourner ce problème, une solution trouvée indépendamment par JONES *et al.* et REICHERT *et al.* en 2000 consiste à utiliser le phénomène de génération de seconde harmonique que nous avons vu en introduction [2, 33, 34]. Utilisé avec une source type peigne de fréquences, cela permet de créer un deuxième peigne dont les

fréquences sont alors données par $2\omega_n = 2n\omega_r + 2\omega_0$. Pour continuer, il est nécessaire que le peigne de fréquences initial ait la caractéristique de posséder une raie d'ordre p ainsi que son ordre double $2p$. Dans ce cas, il est dit que le spectre du peigne s'étend sur une *octave*. Si cette condition est remplie, alors en faisant interférer le peigne initial et le peigne doublé en fréquence, un battement va naître entre la raie de fréquence ω_{2p} du peigne initial et la raie de fréquence $2\omega_p$ du peigne doublé. Cette interférence donne un signal à la fréquence $2\omega_p - \omega_{2p} = 2(p\omega_r + \omega_0) - (2p\omega_r + \omega_0) = \omega_0$. De cette manière, en détectant le signal d'interférence entre les deux peignes, il est possible de mesurer la fréquence de décalage à l'origine du peigne ω_0 [33, 34]. Une fois les mesures de ω_r et ω_0 faites, à l'aide de l'équation (1.10), les fréquences optiques du peigne s'en déduisent donc ainsi simplement et le peigne est dit *référéncé*.

1.1.3.3 Mesure d'une fréquence avec un peigne

L'utilisation d'un peigne référéncé permet de nombreuses applications, notamment dans le domaine de la métrologie des fréquences. Par exemple, une fréquence inconnue ω_i peut être mesurée avec un peigne référéncé en utilisant celui-ci de la même façon qu'une règle [8, 14]. Une méthode qu'il est possible de suivre est la suivante :

- Premièrement, il est nécessaire de trouver la raie m du peigne dont sa fréquence ω_m est la plus proche de ω_i . Ceci peut être déterminé par une mesure de longueurs d'onde car il y a moins de contraintes sur la précision nécessaire pour cette détection,
- Deuxièmement, il faut mesurer la fréquence de battement $\omega_{\text{bat}} = \omega_i - \omega_m$ qui, compte tenu de la façon dont est déterminée ω_m , conduit à $\omega_{\text{bat}} < \omega_r$,
- Pour finir, ω_i est déterminée selon la relation suivante $\omega_i = \omega_{\text{bat}} + \omega_m = \omega_{\text{bat}} + m\omega_r + \omega_0$.

En résumé, la mesure d'une fréquence optique inconnue ω_i à l'aide d'un peigne référéncé peut s'effectuer de manière très précise par la mesure de trois autres fréquences ayant un ordre de grandeur très inférieur à ω_i : ω_{bat} , ω_r et ω_0 . Cet exemple permet de révéler un avantage majeur des peignes de fréquences qui est la capacité à réaliser des mesures d'*hétérodynage*, c'est à dire la mesure indirecte d'une grandeur (ici la fréquence optique ω_i) en passant par la mesure directe d'autres grandeurs (ici ω_{bat} , ω_r et ω_0) appartenant à un domaine bien plus propice à la mesure. Cette capacité peut se révéler très intéressante que ce soit pour la métrologie des fréquences, mais aussi pour d'autres domaines d'études comme nous allons le voir.

1.1.3.4 Applications des peignes de fréquences

Depuis leur création, les peignes de fréquences ont été utilisés dans de nombreux domaines d'études. Nous énumérons ici certaines de ces applications ce qui nous permettra en même temps de voir les points forts et les capacités dont disposent les peignes de fréquences. La liste suivante ne peut être et ne se veut pas exhaustive mais elle donne toutefois un aperçu des domaines de recherches actuels, ainsi que des différents domaines d'applications des peignes de fréquences. Nous pouvons citer :

- La calibration de spectrographes (génération d'« astrocomb ») [10, 35–37],
- La mesure de constantes fondamentales [11, 38],
- L'imagerie [39–41],
- La mesure de distances (techniques LIDAR) [42, 43],
- La génération de formes arbitraires [44],
- Le contrôle de qubits [45],
- Etc.

Pour terminer, nous pouvons citer une dernière application des peignes de fréquences qui est l'interférométrie et la spectroscopie. Cette application étant celle que nous réaliserons le plus tout au long de ce manuscrit, la prochaine section est entièrement destinée à expliquer son fonctionnement avec une utilisation de peignes de fréquences, le but étant de cerner tous les détails de cette technique.

1.2 Interférométrie à deux peignes de fréquences

Comme nous l'avons vu précédemment, un spectre disposant d'une structure en forme de peigne est intéressant pour de nombreuses applications. Toutefois, il existe un domaine bien particulier dans lequel l'utilisation de peignes de fréquences va se révéler très propice : l'interférométrie. En utilisant non pas un mais deux peignes de fréquences, il est possible d'obtenir un signal d'interférence très caractéristique entre ces deux peignes. Ce signal qui, comme nous le verrons est facilement détectable, va entre autre permettre des applications à la spectroscopie. Détaillons plus en détail le concept d'interférométrie à deux peignes de fréquences.

1.2.1 Interférences entre deux peignes mutuellement cohérents

La technique d'interférométrie à deux peignes de fréquences est née en 2002 suite à des recherches théoriques de S. SCHILLER [46]. Elle fut ensuite démontrée expérimentalement par F. KEILMANN *et al.* en 2004 [47], puis de façon beaucoup plus détaillée par I. CODDINGTON *et al.* en 2008 [48]. Nous noterons toutefois que des montages expérimentaux à deux peignes de fréquences existaient déjà avant 2002 mais ceux-ci présentaient des motivations différentes par rapport aux travaux de S. SCHILLER [49]. Les principes de fonctionnement de cette technique sont les suivants. Considérons deux peignes de fréquences optiques dont les fréquences de répétition sont légèrement différentes. Le premier a une fréquence de répétition $\omega_{r,1} = \omega_r$ et le deuxième $\omega_{r,2} = \omega_r + \Delta\omega_r$. Nous supposons que les deux peignes possèdent la même fréquence de décalage à l'origine ω_0 , ceci pouvant être réalisé expérimentalement par exemple en asservissant la cavité laser afin d'agir sur $\Delta\varphi$. Si les deux peignes sont mutuellement cohérents entre eux, alors lorsqu'ils sont couplés, ceux-ci vont naturellement interférer. Le signal g associé à la combinaison des deux trains d'impulsions s'écrit :

$$g(t) = f_1(t) + f_2(t) \quad (1.11)$$

où les indices 1 et 2 sont respectivement associés aux trains d'impulsions 1 et 2 et avec f défini par l'équation (1.1). Un détecteur captant le signal d'interférence permet aussi d'observer le spectre RF (aussi appelé spectre électrique) \tilde{g}_{RF} du signal associé à la fonction g , celui-ci étant donné par la TF de l'intensité du champ g tel que :

$$\tilde{g}_{\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) = \mathcal{F}_{\omega_{\text{RF}}} \left(|g(t)|^2 \right) \quad (1.12)$$

En utilisant l'expression de g donnée plus haut, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \tilde{g}_{\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) &= \mathcal{F}_{\omega_{\text{RF}}} \left(|f_1(t) + f_2(t)|^2 \right) = \mathcal{F}_{\omega_{\text{RF}}} \left(|f_1(t)|^2 + |f_2(t)|^2 + 2f_1(t)f_2(t) \right) \\ &= \tilde{f}_{1,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) + \tilde{f}_{2,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) + 2\mathcal{F}_{\omega_{\text{RF}}} (f_1(t)f_2(t)) \\ &= \tilde{f}_{1,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) + \tilde{f}_{2,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}}) + 2\tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}}) \end{aligned} \quad (1.13)$$

Les deux premiers termes $\tilde{f}_{1,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}})$ et $\tilde{f}_{2,\text{RF}}(\omega_{\text{RF}})$ correspondent aux spectres RF associés à chaque train d'impulsions, c'est à dire à deux peignes de fréquences dont la fréquence de répétition est respectivement $\omega_{r,1}$ et $\omega_{r,2}$. En réalité, l'approche utilisée pour l'étude du spectre RF n'est pas mathématiquement rigoureuse, et il conviendrait d'étudier la TF de la fonction d'autocorrélation [50, 51]. Toutefois, le développement relativement simple présenté ici permet d'obtenir un aperçu du spectre RF, surtout en s'intéressant au troisième terme qui n'est autre que le terme d'interférence entre les deux trains d'impulsions. En reprenant l'équation (1.9), celui-ci a pour expression :

$$\begin{aligned} \tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}}) &= \left(\pi\omega_{r,1}\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) + \pi\omega_{r,1}\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) \\ &\quad * \left(\pi\omega_{r,2}\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) + \pi\omega_{r,2}\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) \end{aligned} \quad (1.14)$$

Nous avons alors :

$$\begin{aligned} \tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}}) &\propto \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) \right) * \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) \quad \left. \vphantom{\tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}})} \right\} t_1(\omega_{\text{RF}}) \\ &\quad + \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) * \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) \right) \quad \left. \vphantom{\tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}})} \right\} t_2(\omega_{\text{RF}}) \\ &\quad + \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) \right) * \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) \right) \quad \left. \vphantom{\tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}})} \right\} t_3(\omega_{\text{RF}}) \\ &\quad + \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) * \left(\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) \right) \quad \left. \vphantom{\tilde{f}_1(\omega_{\text{RF}}) * \tilde{f}_2(\omega_{\text{RF}})} \right\} t_4(\omega_{\text{RF}}) \end{aligned} \quad (1.15)$$

où les fonctions $t_{i=\{1,2,3,4\}}$ sont définies et utilisées ici par pure commodité. La première observation qu'il est possible de faire concerne les termes t_3 et t_4 : ceux-ci sont centrés aux alentours de $\pm 2\omega_p$. Compte tenu de l'ordre de grandeur de ω_p (de l'ordre de la centaine de THz pour un peigne généré dans le domaine visible/infrarouge), ces termes ne présentent aucun intérêt car inaccessibles à la mesure. Concentrons nous donc sur les termes t_1 et t_2 , ceux-ci étant centrés à l'origine. Ces deux termes montrant que toutes les dents du premier peigne peuvent interférer avec toutes les dents du deuxième peigne, il est difficile d'obtenir une expression analytique simplifiée pour t_1 et t_2 . Toutefois, si nous nous restreignons aux interférences entre les dents les plus proches du premier et du deuxième peigne, il est possible d'appréhender plus simplement la signification de ce terme d'interférence.

1.2.2 Démultiplication dans le domaine radio-fréquence

Reprenons la définition mathématique du peigne donné à l'équation (1.4). En utilisant le fait que la multiplication d'une fonction f par la fonction III_T revient à échantillonner la fonction f à tous les points nT avec $n \in \mathbb{N}$ (car ce sont les seuls points où la fonction $f\text{III}_T$ est non nulle), nous avons :

$$\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} - \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,1}}(\omega_{\text{RF}} - \omega_0) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(n\omega_{r,1} + \omega_0 - \omega_p)\delta(\omega_{\text{RF}} - \omega_0 - n\omega_{r,1}) \quad (1.16)$$

et de la même manière :

$$\tilde{A}(\omega_{\text{RF}} + \omega_p)\text{III}_{\omega_{r,2}}(\omega_{\text{RF}} + \omega_0) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(k\omega_{r,2} - \omega_0 + \omega_p)\delta(\omega_{\text{RF}} + \omega_0 - k\omega_{r,2}) \quad (1.17)$$

d'où :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \left(\sum_{n=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(n\omega_{r,1} + \omega_0 - \omega_p)\delta(\omega_{\text{RF}} - \omega_0 - n\omega_{r,1}) \right) * \left(\sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(k\omega_{r,2} - \omega_0 + \omega_p)\delta(\omega_{\text{RF}} + \omega_0 - k\omega_{r,2}) \right) . \quad (1.18)$$

Dans le cas particulier où $n = -k$, c'est à dire en ne considérant uniquement que les interférences entre les couples de raies des peignes optiques les plus proches (le signe $-$ venant du fait que t_1 convolue le terme du peigne 1 sur les fréquences positives avec le terme du peigne 2 sur les fréquences négatives), nous avons alors :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(-k\omega_{r,1} + \omega_0 - \omega_p)\tilde{A}(k\omega_{r,2} - \omega_0 + \omega_p)\delta(\omega_{\text{RF}} - \omega_0 + k\omega_{r,1}) * \delta(\omega_{\text{RF}} + \omega_0 - k\omega_{r,2}) \quad . \quad (1.19)$$

En supposant \tilde{A} symétrique, ce qui revient à dire que A est symétrique, nous avons :

$$\begin{aligned} t_1(\omega_{\text{RF}}) &= \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(-(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,1}))\tilde{A}(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,2})\delta(\omega_{\text{RF}} - k(\omega_{r,2} - \omega_{r,1})) \\ &= \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,1})\tilde{A}(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,2})\delta(\omega_{\text{RF}} - k\Delta\omega_r) \end{aligned} \quad (1.20)$$

et sachant que $\omega_{r,1} \approx \omega_{r,2}$ car $\Delta\omega_r \ll \omega_{r,1}$, nous pouvons approximer $\tilde{A}(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,1}) \approx \tilde{A}(\omega_p - \omega_0 + k\omega_{r,2})$ ce qui donne alors :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2(\omega_p - \omega_0 + k\omega_r)\delta(\omega_{\text{RF}} - k\Delta\omega_r) \quad . \quad (1.21)$$

Cette dernière équation peut se mettre sous la forme d'un peigne ayant une fréquence de répétition $\Delta\omega_r$. En effet, nous avons :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2\left(\omega_p - \omega_0 + k\omega_r \frac{\Delta\omega_r}{\Delta\omega_r}\right)\delta(\omega_{\text{RF}} - k\Delta\omega_r) = \tilde{A}^2\left(\omega_p - \omega_0 + \omega_{\text{RF}} \frac{\omega_r}{\Delta\omega_r}\right)\text{III}_{\Delta\omega_r}(\omega_{\text{RF}}) \quad . \quad (1.22)$$

Autrement dit, t_1 est un peigne de fréquence de répétition $\Delta\omega_r$ dont l'enveloppe est donnée par \tilde{A}^2 , c'est à dire par la puissance du spectre optique. De la même manière, le traitement du terme t_2 donne un résultat équivalent et nous obtenons :

$$t_2(\omega_{\text{RF}}) = \tilde{A}^2\left(\omega_p - \omega_0 - \omega_{\text{RF}} \frac{\omega_r}{\Delta\omega_r}\right)\text{III}_{\Delta\omega_r}(\omega_{\text{RF}}) \quad . \quad (1.23)$$

t_2 est donc le symétrique de t_1 . Dans la suite, nous nous intéresserons uniquement au spectre RF issu du terme t_1 car le spectre issu du terme t_2 contient les mêmes informations. Toutefois, comme nous le verrons plus bas, le peigne issu de t_2 ne doit pas être oublié puisqu'il induira des contraintes expérimentales sur la détection.

Le processus d'interférences entre deux peignes de fréquences mutuellement cohérents que nous venons de mettre en évidence est donc un processus d'hétérodynage. Comme les dents d'indice k du peigne RF possèdent une amplitude $\tilde{A}^2(\omega_p - \omega_0 + k\omega_r)$, il est dit que les peignes optiques sont *démultipliés* dans le domaine RF, cette démultiplication de fréquences étant quantifiée par un *facteur de démultiplication* $F_{\text{démul}}$ défini par :

$$F_{\text{démul}} = \frac{\omega_r}{\Delta\omega_r} \quad . \quad (1.24)$$

$F_{\text{démul}}$ est le facteur qui lie les peignes optiques et le peigne RF : le passage d'un domaine à l'autre s'effectue simplement par une multiplication et nous avons $\omega = F_{\text{démul}}\omega_{\text{RF}}$.

Des calculs précédents, nous en déduisons que le peigne RF est une copie des peignes optiques, et donc étudier le peigne RF revient à étudier les peignes optiques. Cette façon de faire possède l'avantage que le peigne RF est bien plus facilement accessible et détectable par rapport aux peignes optiques, car leurs raies sont difficiles à résoudre. En effet, une simple photodiode dont la bande passante est environ égale à $\frac{1}{2}\omega_r$ est suffisante pour détecter des fréquences RF. La technique que nous venons de décrire ici est nommée *interférométrie à deux peignes de fréquences* mais compte tenu des applications spectroscopiques possibles avec cette technique sur lesquelles nous allons revenir, celle-ci est couramment nommée *spectroscopie/spectrométrie à deux peignes de fréquences* et est illustrée à la [Figure 1.4](#) [46].

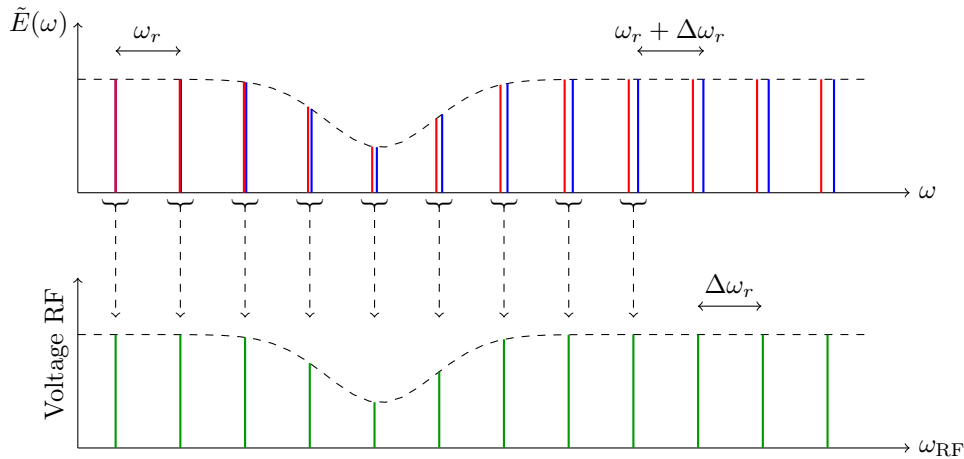


FIGURE 1.4 – Schéma représentant le principe de l'interférométrie à deux peignes de fréquences appliqué à la spectroscopie. Lorsque deux peignes de fréquences ayant une fréquence de répétition ω_r (peigne rouge) et $\omega_r + \Delta\omega_r$ (peigne bleu) sont mutuellement cohérents et couplés, l'interférence entre ces peignes crée un troisième peigne dans le domaine RF dont sa fréquence de répétition est $\Delta\omega_r$. Si une molécule absorbe un (ou les) peigne(s) du domaine optique (absorption représentée en pointillés), l'absorption se visualise aussi dans l'enveloppe du peigne RF : c'est la spectroscopie à deux peignes de fréquences [46].

La création du peigne RF peut aussi se voir d'une autre manière. Un peigne de fréquences peut être considéré comme une somme discrète d'ondes continues. Or, lorsque deux signaux continus de fréquences propres espacées d'une valeur Δ interfèrent, le résultat dans le domaine RF est aussi un signal continu dont la fréquence propre est Δ . En suivant ce raisonnement, chaque dent du premier peigne va interférer avec les dents du deuxième peigne ce qui va naturellement créer une somme de signaux continus tous espacés d'une fréquence $\Delta\omega_r$, c'est à dire la création du peigne RF.

1.2.3 Limite d'exploitation du spectre radio-fréquence

La description que nous avons faite jusqu'à présent n'est pas complète puisque nous nous sommes restreints au cas $k = -n$ dans les dernières équations. De fait, tout laisse penser que la totalité des peignes optiques sont transposables et exploitables dans le domaine RF, mais en réalité, seule une partie l'est. La restriction à $k = -n$ ainsi que la [Figure 1.4](#) ne montrait que le battement des différentes dents des peignes avec leur plus proches voisines, or toutes les dents des peignes optiques interfèrent entre elles. En reprenant l'expression de t_1 donnée par l'équation (1.18), en généralisant le calcul que nous avons fait sans poser de conditions sur k et n , nous pouvons intuitivement la création d'autres peignes dans le domaine RF. Ceux-ci sont tous identiques entre eux et avec un espacement entre les raies de $\Delta\omega_r$ mais ils sont centrés en $(n+k)\omega_r$. Il est défini l'ordre m du peigne RF comme le peigne étant centré en $m\omega_r$ avec $m \in \mathbb{N}$. Ce phénomène est illustré à la [Figure 1.5](#).

Comme le montre la [Figure 1.5](#), la démultiplication des peignes optiques dans le domaine RF fait apparaître une certaine limite spectrale pour chaque peigne RF. En effet, sous peine d'obtenir un signal non exploitable, deux peignes RF de différents ordres ne doivent pas se recouvrir. Ceci implique que chaque peigne RF ne peut dépasser une largeur de ω_r . Cette limite est encore plus restrictive pour l'ordre 0 qui ne peut dépasser une largeur RF de $\frac{1}{2}\omega_r$.

Autrement dit, la démultiplication des fréquences optiques dans le domaine RF montre qu'il n'est possible de démultiplier le spectre optique que dans une certaine bande de fréquences donnée par la fréquence de répétition. Ceci signifie qu'il n'est possible d'exploiter dans le domaine RF que, au maximum, un signal associé à la largeur

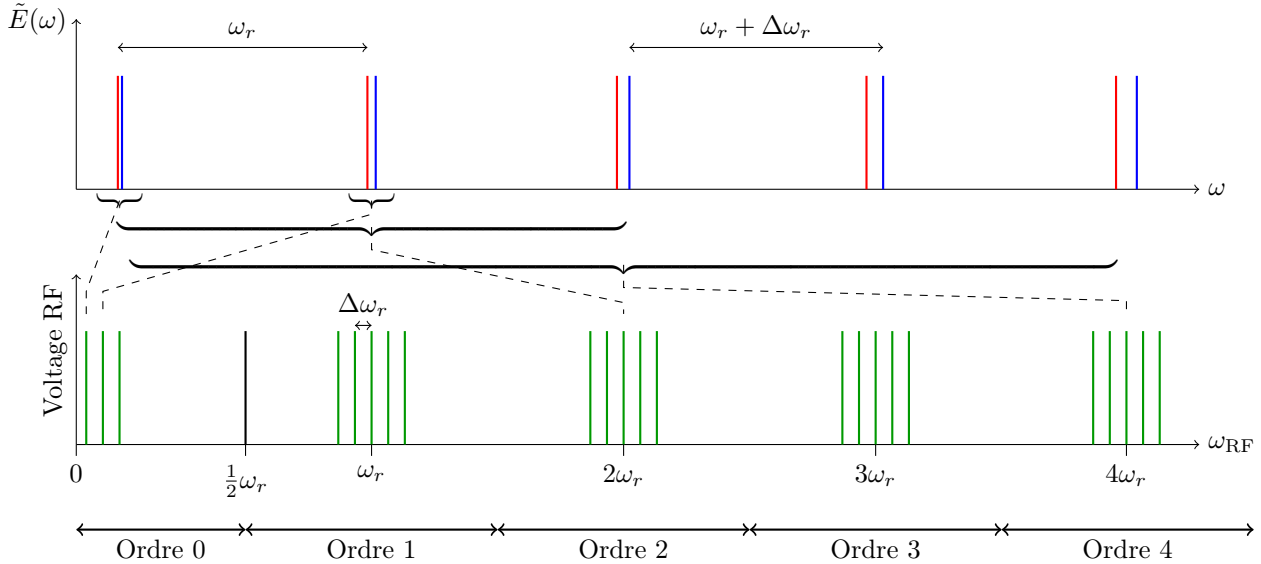


FIGURE 1.5 – Schéma représentant le principe de la démultiplication des peignes optiques dans le domaine RF. Dans le domaine optique, une dent du peigne rouge bat avec la dent du peigne bleu la plus proche mais aussi avec d’autres dents plus éloignées. Dans le domaine RF, ces multiples battements entre toutes les dents des peignes optiques créent plusieurs peignes RF identiques et centrés à un nombre multiple de fois la fréquence de répétition ω_r . L’ordre m du peigne RF avec $m \in \mathbb{N}$ correspond au peigne RF centré en $m\omega_r$.

spectrale optique $\Delta\nu_{\max}$ définie par :

$$\Delta\nu_{\max} = F_{\text{démul}} \frac{\omega_r}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \frac{\omega_r^2}{\Delta\omega_r} . \quad (1.25)$$

Cette dernière équation montre que la limite est contournable en jouant sur la différence de fréquence de répétition $\Delta\omega_r$. Plus celle-ci sera petite et plus il sera possible d’exploiter l’information provenant d’une largeur spectrale optique $\Delta\nu$ grande. Le choix de la différence de fréquence de répétition $\Delta\omega_r$ est donc important et il faut donc veiller à ce que les peignes optiques aient une largeur $\Delta\nu$ compatible avec les paramètres ω_r et $\Delta\omega_r$ s’il est souhaité pouvoir l’exploiter en entier.

En général, ce sera le peigne RF d’ordre 0 qui sera exploité, notamment pour des raisons de facilités et de performances des équipements d’acquisition nécessaires. Toutefois, l’étude de l’ordre 0 induit une contrainte supplémentaire, car celui-ci ne dispose que d’une plage exploitable de $\frac{1}{2}\omega_r$ vu que ce peigne est centré en 0. Cette restriction correspond à une largeur du peigne optique comme devant donc être inférieure à :

$$\Delta\nu \leq F_{\text{démul}} \frac{\omega_r}{4\pi} = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_r^2}{\Delta\omega_r} . \quad (1.26)$$

1.3 Spectroscopie à deux peignes de fréquences

1.3.1 Introduction

Les peignes de fréquences possèdent un certain avantage à être employés dans le domaine de la spectroscopie. Toujours selon le fait que les instruments basés sur de l’électronique ne peuvent mesurer des fréquences optiques, il est donc tout aussi impossible de mesurer des fréquences associées à des raies d’émission ou d’absorption de certains gaz. Comme nous l’avons vu pour la métrologie des fréquences, l’utilisation de peignes de fréquences permet de contourner le problème et les raies d’émissions d’un gaz sont alors déterminables selon le même principe que nous avons déjà détaillé. Dans le cas de la spectroscopie d’absorption, la résolution du problème est plus compliquée car il faudrait pouvoir résoudre les dents du peigne pour pouvoir effectuer une analyse. Comme nous l’avons vu, ceci est quasiment impossible si le peigne possède une résolution élevée (c’est à dire une basse fréquence de répétition) et il est donc plus utile d’utiliser la technique d’interférométrie à deux peignes de fréquences qui est alors désignée par *spectroscopie à deux peignes de fréquences* [12, 13, 52].

Avant de voir plus en détail l’application de l’interférométrie à deux peignes de fréquences à la spectroscopie, abordons quelques notions de spectroscopie qui nous seront utiles pour la suite. Cette partie ne se veut être exhaustive sur le thème de la spectroscopie d’absorption des gaz mais celle-ci présentera toutefois les différentes grandeurs et formules qui seront abordées par la suite dans ce manuscrit.

1.3.2 Spectroscopie d'absorption des gaz

Nous nous intéressons ici à la spectroscopie d'absorption des molécules en phase gazeuse. La restriction à cet état particulier de la matière est purement intentionnelle car les études qu'il est possible de faire avec les peignes de fréquences sont bien plus pertinentes sur les gaz que sur des liquides ou solides. En effet, les études sur les solides demandent des échantillons transparents, ce qui est très restrictif, et les liquides montrent des raies d'absorption très larges ce qui n'est pas adapté à des peignes de fréquences ayant un spectre relativement peu large comme ce dont nous disposerons. Gardons toutefois à l'esprit que ces analyses sont tout à fait possibles et présentes dans la littérature [53–55].

1.3.2.1 Loi de Beer-Lambert

Considérons un échantillon de matière en phase gazeuse à pression et température constante. Cet échantillon est éclairé par une source incidente d'intensité I_i dépendante du nombre d'onde σ (souvent exprimé en cm^{-1} par les scientifiques du domaine, convention que nous garderons dans la suite). L'intensité transmise par le gaz I_t est régie par la *loi de Beer-Lambert* qui s'écrit sous la forme suivante :

$$I_t(\sigma) = I_i(\sigma) \exp(-k(\sigma)L) \quad (1.27)$$

où $\frac{I_t}{I_i}$ est la *transmission*, kL l'*absorbance* avec k le *coefficient d'absorption* et L la *longueur d'absorption*, c'est à dire la longueur traversée par la lumière dans l'échantillon. Le coefficient d'absorption k s'exprime sous la forme suivante :

$$k(\sigma) = P_p \Phi(\sigma) \quad \text{avec} \quad \Phi(\sigma) = S\alpha(\sigma) \quad (1.28)$$

où P_p est la pression partielle de l'échantillon, Φ la *section efficace d'absorption*, S l'intensité spectrale de la raie et α une fonction représentant le profil d'absorption de l'échantillon gazeux.

Cette modification d'intensité lors du passage de la lumière dans l'échantillon est due aux transitions énergétiques internes aux atomes et molécules. Celles-ci se présentent sous plusieurs formes qui sont les suivantes :

Électronique Elles sont liées à la présence d'électrons (libres, liaisons, etc.) : l'interaction lumière-matière peut faire naître un couplage photons-électrons qui se manifeste surtout aux basses longueurs d'onde telles que dans le domaine des ultraviolets,

Vibrationnelle Elles sont liées à la présence de liaisons chimiques dans les molécules et résultent des vibrations moléculaires : ici, l'interaction lumière-matière peut se manifester par un couplage photons-phonons qui est en particulier présent dans l'infrarouge,

Rotationnelle Elles résultent de la rotation de la molécule : l'interaction lumière-matière est ici aussi un couplage photons-phonons mais qui se manifeste à une énergie plus basse que pour une transition vibrationnelle, ce qui la rend en particulier visible dans les micro-ondes/térahertz.

Dans les études rapportées dans ce manuscrit, nous nous intéresserons seulement aux contributions rotationnelles et vibrationnelles couplées (nous allons revenir sur ce point plus bas). Concernant les transitions électroniques, celles-ci sont trop complexes à exciter dans notre cas, car il faut disposer d'une énergie élevée pour pouvoir atteindre la gamme de l'ultraviolet. Gardons à l'esprit que des études sur la spectroscopie électronique sont possibles avec des peignes de fréquences mais relativement compliquées et peu présentes dans la littérature [56, 57].

1.3.2.2 Profils spectraux de raies d'absorption

La loi de Beer-Lambert (1.27) montre qu'un échantillon gazeux possède un profil d'absorption particulier en fonction du nombre d'onde σ . Ces profils d'absorption dépendent de nombreux paramètres physiques comme la température du gaz, la pression, sa concentration, etc. Pour une raie d'absorption particulière, il est possible d'observer au moins trois profils distincts en fonction de ces paramètres physiques ce qui correspond à trois régimes différents. La [Figure 1.6a](#) montre ces différents profils de raies que nous détaillons maintenant.

Régime doppler Le premier régime qu'il est possible d'obtenir est le régime doppler. Celui-ci est visible lorsque l'échantillon dispose d'une basse pression et d'une température élevée. Dans ces conditions, la distribution de vitesses des molécules dans l'échantillon est liée à l'agitation thermique et le profil d'absorption suit une loi gaussienne dont la forme est la suivante :

$$\alpha_G(\sigma) = \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi \Delta\sigma_G^2}} \exp\left(-\ln(2) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\Delta\sigma_G}\right)^2\right) \quad \text{avec} \quad \Delta\sigma_G = \sigma_0 \sqrt{\frac{2 \ln(2) kT}{mc^2}} \quad (1.29)$$

où k est la constante de Boltzmann, m la masse de la molécule et σ_0 le nombre d'onde central de la raie.

Régime lorentzien Le second régime observable est le régime lorentzien. Contrairement au régime doppler, celui-ci est visible lorsque l'échantillon dispose d'une haute pression et d'une basse température. Sous ces conditions, la distribution de vitesses des molécules du gaz est liée aux collisions et le profil d'absorption suit une loi lorentzienne dont la forme est donnée par :

$$\alpha_L(\sigma) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\sigma_L}{\Delta\sigma_L^2 + (\sigma - \sigma_0)^2} \quad \text{avec} \quad \Delta\sigma_L = \Gamma P \quad (1.30)$$

où Γ est le *coefficient d'élargissement collisionnel* du gaz étudié. Dans le cas d'un mélange de gaz, par exemple d'un gaz 1 et 2 où nous nous intéressons à une raie du gaz 1, $\Delta\sigma_L$ possède la forme suivante :

$$\Delta\sigma_L = \Gamma_{1/2}(P - P_p) + \Gamma P_p \quad (1.31)$$

où P_p est la pression partielle du gaz 1, $\Gamma_{1/2}$ le coefficient d'élargissement collisionnel du gaz 1 induit par la présence du gaz 2 et P la pression totale du mélange.

Le profil d'absorption peut être décrit de manière plus complexe avec des paramètres supplémentaires tel que le *coefficient de décalage en pression* des raies δ . En effet, le nombre d'onde central de la raie σ_0 se retrouve légèrement décalé en fonction de la pression du gaz, ce qui se traduit par un changement $\sigma_0 \rightarrow \sigma_0^*$ dans les équations précédentes tel que :

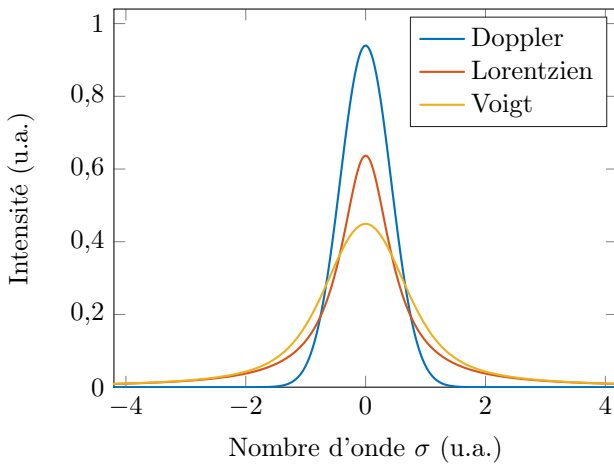
$$\sigma_0^* = \sigma_0 + \delta_{1/2}(P - P_p) + \delta P_p \quad (1.32)$$

où $\delta_{1/2}$ est le coefficient de décalage en pression du gaz 1 induit par la présence du gaz 2.

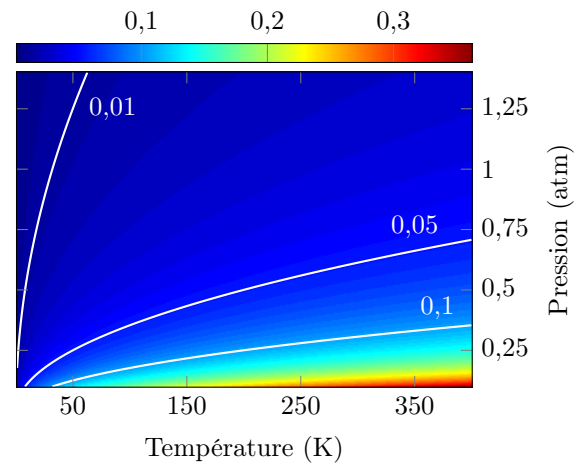
D'autres paramètres pourraient être ajoutés pour une modélisation encore plus complète du profil lorentzien tel que la dépendance des paramètres à la température. Toutefois, ces contributions sont relativement faibles par rapport à celles que nous avons déjà traitées, en particulier à température ambiante, et les données sont beaucoup plus rares à trouver car difficiles à mesurer. Dans ces conditions, nous nous limiterons aux paramètres que nous avons décrit plus haut.

Régime de Voigt Enfin, le troisième régime observable est un régime intermédiaire entre le doppler et le lorentzien qui est nommé le régime de Voigt. Il est difficile de donner des limites hautes et basses générales en pression et température dans lesquelles un régime prend le dessus sur un autre, car cette différence dépend de la molécule considérée, de la raie étudiée, etc. Toutefois, il est possible de prendre un cas particulier pour observer cette dépendance, ce qui est présenté à la [Figure 1.6b](#) où le rapport $\Delta\sigma_G/\Delta\sigma_L$ est calculé pour une plage de pression et de température.

Il est possible d'observer que le régime lorentzien est bien plus important que le régime doppler pour des conditions standards de pression et température (environ 1 atm et 295 K). Toutefois, même si le régime doppler contribue peu, il est important de le prendre en compte, en particulier pour effectuer des mesures précises. Dans



(a) Graphique représentant les différents profils d'absorption qu'il est possible de rencontrer en phase gazeuse.



(b) Rapport $\Delta\sigma_G/\Delta\sigma_L$ pour la raie P(58) de la bande ν_3 du $^{13}\text{CO}_2$ en fonction de la température et de la pression.

FIGURE 1.6 – Graphiques montrant différentes caractéristiques de profils d'absorption en phase gazeuse. Les profils sont tracés à partir des équations (1.29), (1.30) et (1.33) en utilisant une largeur $\Delta\sigma_G = \Delta\sigma_L = 1$.

ce cas, une raie d'absorption se décrit alors par un profil qui est donné par la convolution du profil gaussien et lorentzien. Celui-ci a une forme qui est donnée par :

$$\alpha_V(\sigma) = (\alpha_G * \alpha_L)(\sigma) \quad (1.33)$$

qu'il est possible d'écrire plus explicitement sous la forme suivante :

$$\alpha_V(\sigma) = \frac{\Delta\sigma_L \ln(2)}{\Delta\sigma_D^2 \sqrt{\pi^3}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-t^2} \left(\ln(2) \frac{\Delta\sigma_L^2}{\Delta\sigma_D^2} + \left(\frac{\sqrt{\ln(2)}}{\Delta\sigma_D} (\sigma - \sigma_0) - t \right)^2 \right)^{-1} dt \quad (1.34)$$

L'intégrale apparaissant dans l'équation précédente est difficile à calculer analytiquement mais il est possible de l'approximer, ce qui nous sera très utile pour les analyses numériques ultérieures. Une des formules approchées couramment utilisée pour le profil de Voigt est la suivante [58, 59]. La largeur de raie du profil $\Delta\sigma_V$ est donnée par :

$$\Delta\sigma_V = 0,5346\Delta\sigma_L + \sqrt{0,2166\Delta\sigma_L^2 + \Delta\sigma_G^2} \quad (1.35)$$

et la forme du profil de raie est donnée par :

$$\alpha(\sigma) = \alpha(\sigma_0) \left((1-x)e^{-0,693y^2} + \frac{x}{1+y^2} + 0,016(1-x)x \left(e^{-0,0841y^{2,25}} - \frac{1}{1+0,021y^{2,25}} \right) \right) \quad (1.36)$$

où sont définies les quantités $\alpha(\sigma_0)$, x et y telles que :

$$\alpha(\sigma_0) = (2\Delta\sigma_V(1,065 + 0,447x + 0,058x^2))^{-1} \quad x = \frac{\Delta\sigma_L}{\Delta\sigma_V} \quad y = \frac{|\sigma - \sigma_0|}{\Delta\sigma_V} \quad (1.37)$$

1.3.2.3 Branches et bandes d'absorption

Les profils de raies spectrales que nous venons d'aborder permettent de s'intéresser aux raies d'absorption de manière individuelle. Toutefois, ces raies ne sont pas isolées mais regroupées selon des *branches d'absorption*, elles mêmes regroupées en *bandes d'absorption* correspondant à des modes de vibrations de la molécule. Ici, nous explicitons plus en détail à quoi correspondent ces branches et bandes d'absorption en nous restreignant aux molécules diatomiques ou triatomiques linéaires, seuls types de molécules que nous rencontrerons dans ce manuscrit. Pour commencer, intéressons nous aux bandes d'absorption. Comme nous venons de l'évoquer, celles-ci correspondent à des modes de vibration particuliers de la molécule et ces différents modes, pour une molécule triatomique linéaire, sont illustrés à la Figure 1.7 et sont les suivants :

- Mode ν_1 : correspond à un étirement symétrique de la molécule,
- Mode ν_2 : correspond à une torsion parallèle ou perpendiculaire au plan de la molécule (mode dégénéré),
- Mode ν_3 : correspond à un étirement asymétrique de la molécule.

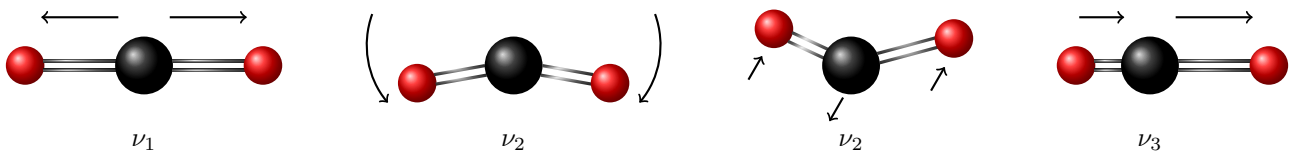


FIGURE 1.7 – Schéma représentant les différents modes de vibration qu'il est possible d'observer pour une molécule triatomique linéaire telle que le CO_2 .

Notons que pour une molécule diatomique, seul le mode ν_1 existe. L'excitation de ces modes pris individuellement correspondra à l'observation de *bandes fondamentales*. D'un autre côté, les harmoniques de ces modes peuvent être excitées, ce qui donne naissance à des bandes telles que la $2\nu_1$ ou la $3\nu_3$ par exemple. De plus, les différents modes existants et leurs harmoniques peuvent ne pas être excités individuellement, ce qui implique l'existence de *bandes de combinaison*. Par exemple, si les modes ν_1 et ν_3 sont excités en même temps, la bande observée sera la $\nu_1 + \nu_3$. Enfin, si la molécule n'est pas initialement dans son état fondamental, par exemple si la molécule est déjà dans le mode ν_1 et que le mode $2\nu_1$ est excité, alors la bande $2\nu_1 - \nu_1$ sera observée.

Comme nous étudions des molécules en phase gazeuse, les deux modes de rotation d'une molécule linéaire peuvent aussi être excités en même temps que leurs modes de vibration, ce qui donne lieu à un couplage rotationnel-vibrationnel. Ainsi, les bandes d'absorption que nous venons de décrire se divisent en deux ou

trois branches nommées P, Q et R, la branche Q n'étant pas toujours autorisée. Ces branches correspondent respectivement à une différence du nombre rotationnel J entre l'état initial et final de $\Delta J = -1, 0, 1$ (seules variations possibles de J dues aux règles de sélection). Pour finir, les branches sont composées d'une multitude de raies, chacune différenciée par leur moment angulaire total (spin nucléaire exclu).

De cette façon, nous pouvons identifier une raie bien particulière, comme ce que nous avons fait à la [Figure 1.6b](#) où l'exemple de la raie 58 de la branche P (simplifié en P(58)) de la bande ν_3 du CO_2 a été choisi.

1.3.3 Montages expérimentaux à deux peignes de fréquences

Maintenant que les bases sur la spectroscopie d'absorption des gaz sont posées, intéressons nous désormais aux montages à deux peignes de fréquences permettant d'effectuer de la spectroscopie.

1.3.3.1 Généralités

La spectroscopie d'absorption à deux peignes de fréquences peut se faire selon deux montages distincts. Ceux-ci sont représentés à la [Figure 1.8](#). Le premier type de montage représenté à la [Figure 1.8a](#) montre que deux peignes de fréquences à des fréquences de répétition légèrement différentes sont générés puis couplés. L'ensemble est ensuite envoyé dans une cuve contenant un gaz et la sortie est récupérée puis dirigée vers un détecteur qui permet de révéler le spectre RF. Le deuxième type de montage, présenté à la [Figure 1.8b](#), montre qu'un seul peigne est envoyé à travers la cuve puis est couplé avec le second peigne à fréquence de répétition légèrement différente. Ensuite, de même que dans le premier cas, les deux peignes sont envoyés sur un détecteur pour obtenir le spectre RF.

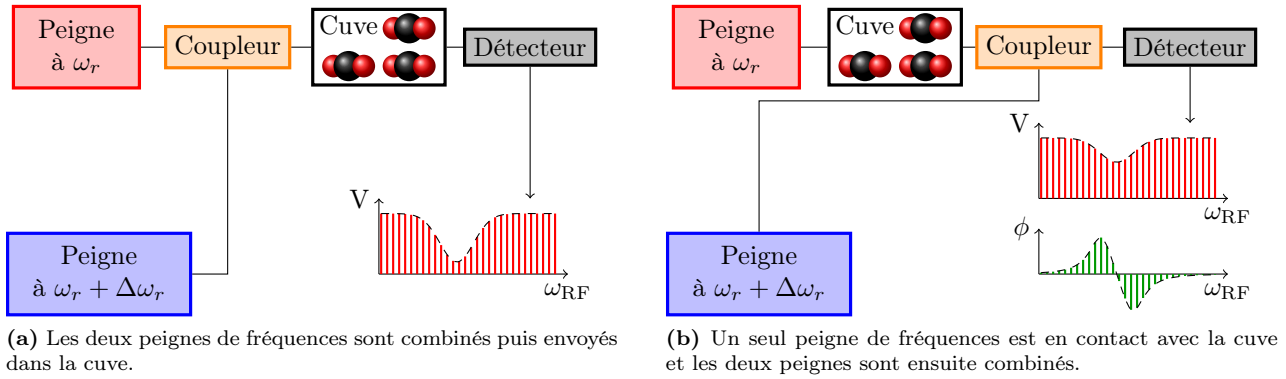


FIGURE 1.8 – Montages typiques permettant d'effectuer de la spectroscopie d'absorption à deux peignes de fréquences.

Bien que les deux montages semblent équivalents, ils possèdent quelques différences non négligeables. Dans le cas du montage où un seul peigne est envoyé à travers la cuve, la spectroscopie à deux peignes permet non seulement d'obtenir le signal d'absorption de l'échantillon placé dans la cuve, mais elle permet aussi de récupérer le changement de phase induit par l'échantillon : c'est le *spectre de dispersion*. Toutefois, le spectre d'absorption détecté est deux fois moins intense que dans un montage où les deux peignes sont envoyés dans la cuve. Pour mettre ceci en évidence, il suffit d'effectuer le changement $\tilde{A} \rightarrow \tilde{A} \exp(-\frac{1}{2}kL - inL)$ dans l'équation (1.22) où k est le coefficient d'absorption, n l'indice de réfraction de l'échantillon et L la longueur de la cuve. Ce changement correspond à l'atténuation du milieu (loi de Beer-Lambert en amplitude) ainsi qu'à l'apparition d'un déphasage induit par le changement d'indice du milieu (dispersion) [60]. Si un seul peigne traverse la cuve, alors l'équation (1.22) devient alors :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \tilde{A}^2(\omega_p - \omega_0 + \omega) \exp\left(-\frac{1}{2}k(\omega)L - in(\omega)L\right) \text{III}_{\Delta\omega_r}(\omega_{\text{RF}}) \quad , \quad (1.38)$$

tandis que dans le cas où deux peignes traversent la cuve, l'équation (1.22) devient :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \tilde{A}^2(\omega_p - \omega_0 + \omega) \exp(-k(\omega)L) \text{III}_{\Delta\omega_r}(\omega_{\text{RF}}) \quad . \quad (1.39)$$

Dans ce dernier cas, le déphasage s'annule, ce qui est logique puisque les deux peignes voient le même chemin optique. La contrepartie est que le signal détecté est deux fois plus intense que dans le premier cas, et donc la sensibilité meilleure. Notons toutefois que l'utilisation de cette configuration est soumise à certaines conditions. En effet, le changement $\tilde{A} \rightarrow \tilde{A} \exp(-\frac{1}{2}kL - inL)$ n'est pas équivalent pour les deux peignes puisque ceux-ci

ont un taux de répétition légèrement différent, et donc l'absorption k_1 et l'indice n_1 vus par le premier peigne ne sont pas exactement les mêmes que l'absorption k_2 et l'indice n_2 vus par le second peigne. De fait, si les deux peignes traversent la cuve, l'équation (1.22) est plus rigoureusement donnée par :

$$t_1(\omega_{\text{RF}}) = \tilde{A}^2(\omega_p - \omega_0 + \omega) \exp\left(-\frac{1}{2}(k_1(\omega) + k_2(\omega))L - i(n_1(\omega) - n_2(\omega))L\right) \text{III}_{\Delta\omega_r}(\omega_{\text{RF}}) \quad (1.40)$$

Cependant, cette dernière équation peut être approximée par l'équation (1.39) si la fréquence maximale du peigne RF est suffisamment petite par rapport à la largeur typique des raies d'absorption étudiées. Si le peigne RF est restreint à l'ordre 0, cette valeur peut être choisie comme étant $\frac{1}{2}\omega_r$, et cela revient à dire que l'échantillonnage des raies d'absorption avec les peignes doit être significatif. Si cette condition est respectée, alors $k_1(\omega) \approx k_2(\omega) \approx k(\omega)$ et $n_1(\omega) \approx n_2(\omega) \approx n(\omega)$, et nous retrouvons l'équation (1.39). Par exemple, dans les expériences que nous effectuerons, $\frac{1}{2}\omega_r$ sera de maximum 150 MHz et les largeurs des raies que nous étudierons seront de l'ordre de la dizaine de GHz. Cette différence de deux ordres de grandeur justifiera dans notre cas cette approximation et donc, dans la suite du manuscrit, nous nous intéresserons uniquement au montage où les deux peignes passent dans la cuve. Ceci est aussi motivé par le fait que le spectre de dispersion n'apporte que peu d'informations supplémentaires dans le cas de la spectroscopie des gaz. Nous noterons toutefois que, dans un contexte autre que la spectroscopie, le spectre de dispersion peut être très intéressant comme par exemple, pour des mesures de dispersion dans les guides d'onde [61], ou des mesures de distances faibles telles que pour la vibrométrie [62].

Que les spectromètres à deux peignes de fréquences soient basés sur l'une ou l'autre configuration que nous avons présentées au dessus, ceux-ci peuvent être développés suivant des conceptions diverses et variées. Il est possible de séparer les montages existants en deux catégories distinctes : la première regroupe les montages où les deux peignes de fréquences sont générés distinctement, tandis que la deuxième regroupe les montages disposant d'une seule source laser permettant de générer ensuite les deux peignes de fréquences. Nous verrons que ces deux catégories apportent chacune avantages et inconvénients.

1.3.3.2 Montages à deux sources distinctes

Les premières expériences à deux peignes de fréquences, le montage de F. KEILMANN *et al.* en 2004 ou celui de I. CODDINGTON *et al.* en 2008, furent basées sur des montages où les deux peignes étaient générés indépendamment [47, 48]. Aujourd'hui, de nombreux montages sont toujours développés de cette manière [63]. Dans cette configuration, deux lasers impulsionnels à modes bloqués distincts (généralement des lasers femtosecondes) délivrent deux peignes de fréquences avec des taux de répétition légèrement différents. Le premier, appelé aussi le *peigne local* (local comb en anglais), dispose d'une fréquence de répétition ω_r tandis que le deuxième, appelée le *peigne sonde* (probe comb en anglais), dispose d'une fréquence de répétition $\omega_r + \Delta\omega_r$.

Dans cette configuration à deux lasers distincts, la cohérence entre les deux peignes est quasi-inexistante d'origine et il est donc impossible d'obtenir un signal d'interférence ayant la forme d'un peigne dans le domaine RF. Il y a donc une nécessité d'effectuer des opérations sur les lasers afin que le signal de battement entre les raies des deux peignes ait une largeur très inférieure à $\Delta\omega_r$. Ainsi et uniquement de cette manière, il sera possible de résoudre un peigne dans le domaine RF. Les opérations nécessaires sont dénommées des opérations d'*asservissements* entre les lasers et consistent en général à faire en sorte que les deux peignes aient la même fréquence ω_0 . De plus, pour obtenir un signal exploitable dans le domaine RF, il faut que les fréquences de répétition des lasers et ω_0 soient relativement constantes au cours de l'expérience, il est dit que les lasers doivent être *stabilisés* en fréquences. Les opérations nécessaires à cette stabilisation sont diverses et variées et consistent en général à asservir les cavités lasers en température, en courant, etc., ce qui peut être coûteux en matériel et en complexité du montage [48, 64, 65]. Toutefois, certains montages arrivent à des temps de fonctionnement de plusieurs dizaines de jours [66]. Notons aussi que ces asservissements existent aussi pour des montages basés sur des microrésonateurs [67].

1.3.3.3 Montages à source unique

Les montages à source unique pour l'interférométrie à deux peignes de fréquences sont plus récents. Le but de ces montages est de s'affranchir d'un des plus gros désavantages des montages à deux sources lasers qui est le besoin d'effectuer des opérations d'asservissements. Ces montages sont alors qualifiés d'être en *free-running*. Comme nous l'avons vu précédemment, les opérations d'asservissement peuvent être très complexes ce qui ne permet pas une grande portabilité du montage en dehors des laboratoires. En conséquence, d'autres types de montages à deux peignes de fréquences ont été élaborés et en particulier des montages reposant sur une source laser unique.

L'idée derrière la naissance de ces montages est la suivante. Étant donné que nous utilisons une technique interférentielle, si deux peignes sont créés à partir d'une même source laser initiale, alors la cohérence mutuelle

entre les deux peignes est intrinsèquement déjà présente et il est alors possible de les faire interférer. De cette manière, l'interférométrie à deux peignes de fréquences est relativement plus simple à mettre en œuvre. En général, la source laser initiale est un laser continu de grande qualité spectrale, c'est à dire dont la largeur spectrale est fine (de l'ordre de la centaine de kHz). Ensuite, ce laser est séparé en deux faisceaux distincts qui seront chacun façonnés pour obtenir un peigne sur chaque bras. Bien entendu, les opérations à effectuer doivent être équivalentes sur les deux bras sous peine de perdre la cohérence existante. Ces opérations doivent aussi permettre de fixer avec une bonne précision la fréquence de répétition de chaque peigne. Ces nouvelles contraintes font que les choix de conceptions sont limités, mais il existe tout de même plusieurs techniques possibles basées sur :

- Des microrésonateurs [53, 54],
- Des modulateurs de phase [68–70],
- Des modulateurs d'intensité [71],
- Des modulateurs de Mach-Zehnder [72–75],
- Des combinaisons de plusieurs modulateurs électro-optiques [61, 76, 77],
- Des modulateurs acousto-optiques [30, 78],
- Des lasers fibrés à deux sorties [79, 80],
- Des techniques hybrides [81–84],
- Etc.

Cette liste n'est pas exhaustive mais recense les montages les plus utilisés dans la génération de peignes de fréquences à partir d'une source unique pour application à l'interférométrie. Dans la section suivante, nous nous intéresserons en détail à un de ces montages. Avant cela, toujours dans un cadre introductif, regardons un exemple typique de montage à deux peignes de fréquences et leurs applications potentielles.

1.3.3.4 Description des montages à deux peignes de fréquences

Dans cette partie, nous nous intéressons aux montages à deux peignes de fréquences dans leur généralités. Nous ferons abstraction de la façon dont ils sont générés et nous supposerons qu'ils sont déjà mutuellement cohérents (intrinsèquement ou rendu par des opérations quelconques). Le but est de cerner les différentes parties typiques des montages expérimentaux. La Figure 1.9 présente un schéma typique d'un montage à deux peignes de fréquences que nous pouvons diviser en quatre parties distinctes.

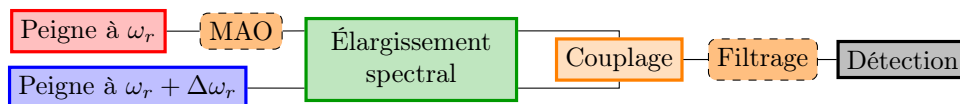


FIGURE 1.9 – Schéma représentant le montage typique d'un interféromètre à deux peignes de fréquences. Les éléments en pointillés peuvent être optionnels. MAO : modulateur acousto-optique.

Élargissement spectral Une fois les deux peignes rendus cohérents mutuellement, il y a en général besoin d'élargir le spectre des peignes. Ceci sera en particulier vrai pour les montages à deux peignes de fréquences issus d'une source unique (à l'exception des microrésonateurs) car les impulsions délivrées par ces montages ne disposent d'un spectre que de quelques nanomètres de largeur, ce qui est insuffisant pour certaines applications. Pour ce faire, la méthode la plus couramment utilisée pour élargir un peigne de fréquences est d'avoir recours à des effets non-linéaires dans une fibre optique. Nous détaillerons plus en détails ce passage dans le prochain chapitre puisque tout un travail a été réalisé dans ce sens.

Couplage des peignes Lorsque les peignes sont élargis, il est ensuite procédé au couplage des deux peignes afin qu'ils puissent interférer. Pour des applications spectroscopiques, une cuve contenant l'élément à analyser est placée avant ou après le couplage (cf. Figure 1.8 comme nous l'avons déjà abordé). Ce couplage peut être fait avec une lame séparatrice ou bien un coupleur fibré selon que le montage soit construit à l'air libre ou non.

Contournement du problème du repliement Une fois le couplage des peignes effectué, un problème va survenir lors de la détection du peigne RF. Nous avons abordé plus haut que l'interférométrie à deux peignes de fréquences réalise une démultiplication dans le domaine RF des fréquences optiques, et qu'il existe une limite d'exploitation du peigne RF suivant l'ordre qui sera analysé. De plus, comme déjà évoqué, l'ordre 0 sera en

général privilégié, mais dans ce cas, il faut alors faire attention au spectre symétrique que nous avons mis en évidence avec l'équation (1.23). En effet, celui-ci étant défini sur les fréquences négatives mais le terme étant centré également en 0, certaines de ses composantes se retrouvent sur les fréquences positives et se mélangent donc avec les raies issues du peigne défini par l'équation (1.22).

Ce problème de superposition des fréquences négatives et positives des peignes est appelé le problème du *repliement*, et celui-ci va induire un brouillage des raies du peigne RF. Pour s'en affranchir, il existe deux solutions. La première consiste à décaler la fréquence centrale d'un des peignes optiques d'une valeur judicieusement choisie ω_{dec} . De cette manière, le peigne RF d'ordre 0 ne sera plus centré en 0 mais en ω_{dec} ce qui permet d'exploiter la totalité du spectre, mais toujours sur une plage comprise entre 0 et $\frac{1}{2}\omega_r$. Le choix judicieux de ω_r et $\Delta\omega_r$ permet alors d'éviter le recouvrement entre les différents ordres de peignes RF. Cette solution de décalage spectral peut être mise en œuvre en utilisant un modulateur acousto-optique sur un des peignes avant élargissement spectral.

La deuxième solution pour palier au problème du repliement consiste à filtrer spectralement les peignes optiques après le couplage. En plaçant le filtre sur une plage judicieuse de manière à ne garder que les fréquences RF positives (ou négatives), le repliement est alors évité. Cette technique a toutefois le désavantage de perdre de l'information puisque nous supprimons alors une partie du spectre. D'un autre côté, cette solution peut présenter certains avantages comme la suppression de bruits optiques venant d'amplificateurs ou encore une augmentation du rapport signal sur bruit [85, 86]. Les deux manières de traiter le problème sont schématisées à la Figure 1.10.

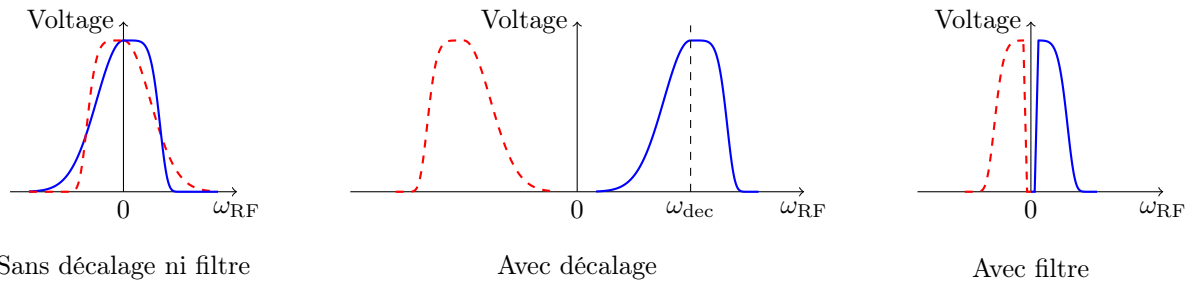


FIGURE 1.10 – Schéma présentant le problème du repliement entre les peignes RF définis par les équations (1.22) et (1.23) (représentés en rouge et bleu sur ce schéma), et les deux méthodes permettant de s'en affranchir. À gauche, il est possible de voir que les deux peignes RF se recouvrent, ce qui a pour conséquence de brouiller le signal utile. Au centre, il est montré qu'en décalant un peigne optique d'une fréquence ω_{dec} , le peigne d'ordre 0 n'est alors plus centré en 0 mais en ω_{dec} , ce qui évite le repliement. À droite, les conséquences de l'utilisation d'un filtre optique sont présentées : le repliement est évité mais une partie du signal est supprimée.

Détection du peigne radio-fréquences La dernière brique d'un montage à deux peignes de fréquences est la détection du peigne RF. Celle-ci se fait en général avec une photodiode dont la bande passante est au moins aussi grande que la borne supérieure de l'ordre du peigne RF qu'il est envisagé de détecter. Par exemple, pour l'ordre 0, ceci équivaut à une bande passante de $\frac{1}{2}\omega_r$. Si la fréquence de répétition est de l'ordre de la centaine de MHz, alors la photodiode nécessaire est relativement simple, peu coûteuse et n'a pas besoin de caractéristiques très évoluées. Pour des raisons pratiques, un filtrage électrique est en général utilisé pour discriminer uniquement les fréquences appartenant à l'ordre du peigne choisi. De plus, pour éviter des effets non-linéaires sur la photodiode dus à la détection d'un signal d'intensité trop élevée, il peut être judicieux d'atténuer le signal optique et d'amplifier le signal électrique de la photodiode avant acquisition. L'acquisition consiste alors en la détection d'un signal temporel constitué des battements entre les différentes impulsions des deux trains d'impulsions se recouvrant. L'ensemble des battements observés par la photodiode est appelé un *interférogramme* dont un exemple typique est montré à la Figure 1.11a. En effectuant ensuite la TF de l'interférogramme, le peigne RF associé est révélé et un exemple est montré à la Figure 1.11b.

Applications spectroscopiques Pour finir, les applications spectroscopiques et notamment l'extraction d'un signal d'absorption se fait de la manière suivante. Pour révéler le signal d'absorption, il convient d'enregistrer une référence, c'est à dire un spectre RF lorsque l'échantillon gazeux à analyser n'est pas disposé sur le chemin des peignes optiques. Ensuite, le peigne de fréquences avec l'échantillon à analyser peut être enregistré et le signal d'absorption s'extrait par comparaison de la ligne de base du spectre de référence et d'absorption. La calibration en fréquence du spectre obtenu s'effectue en utilisant la formule de démultiplication (1.24) des peignes optiques vers le domaine RF. Toutefois, cette calibration se fait à un décalage en fréquence près car l'information sur la fréquence porteuse des peignes est perdue lors du passage dans le domaine RF. Deux solutions sont possibles pour

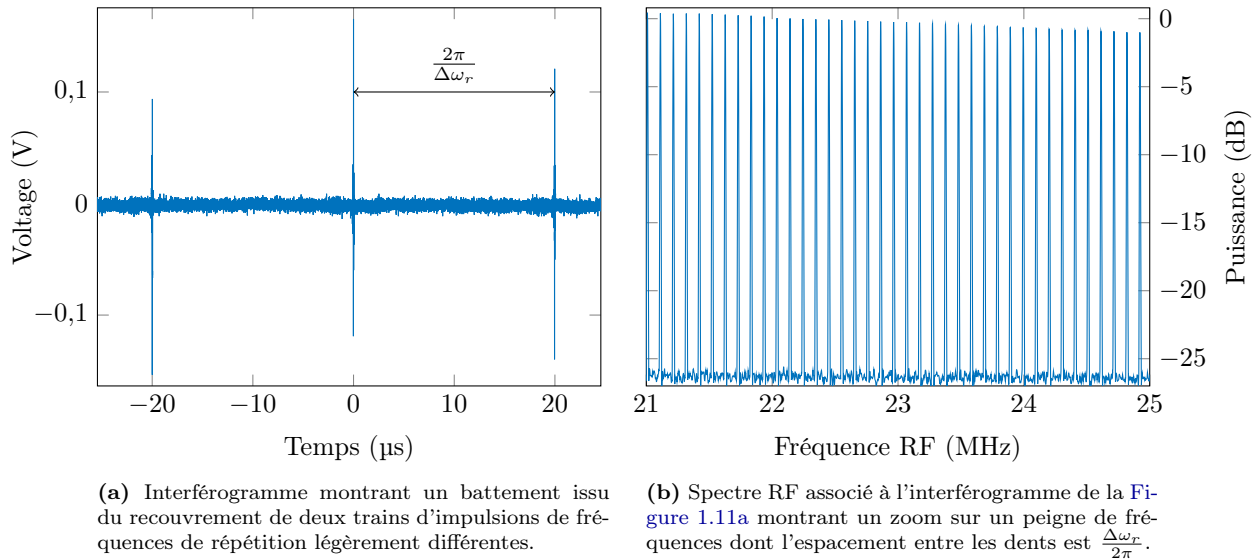


FIGURE 1.11 – Exemple d'interférogramme et de spectre RF obtenus avec un montage à deux peignes de fréquences.

compenser ce décalage. Si les peignes sont référencés, il est aisé d'en déduire la fréquence de décalage. Toutefois, si le montage opère en free-running, les peignes ne sont en général pas référencés et il est difficile d'en déduire la fréquence de décalage. Un moyen de contourner le problème est de recaler le spectre d'absorption obtenu avec une référence externe, comme la fréquence centrale d'une raie d'absorption donnée dans la littérature ou dans une base de données comme HITRAN [87]. Cette solution sera celle choisie pour tous les spectres enregistrés et présentés dans ce manuscrit.

1.4 Génération de peignes par modulation électro-optique

Comme nous l'avons vu dans les sections précédentes, un peigne de fréquences n'est rien d'autre que le spectre optique associé à un train d'impulsions bloquées en phase. Tout l'art dans la génération d'un peigne est donc de créer un laser à modes bloqués. Ceci peut se faire de différentes manières comme par exemple, avec un *absorbant saturable* (le blocage de mode est alors dit passif) ou une modulation de la cavité laser (le blocage de mode est alors dit actif), ce qui était le cas dans les quelques montages expérimentaux que nous avons présentés à la section 1.1.2. Toutefois, les peignes créés de cette manière ne permettront pas d'effectuer de la spectrométrie à deux peignes de fréquences basée sur une source unique, ce qui complexifie un montage potentiel pour utiliser cette technique puisqu'il faudra alors avoir recours à des asservissements de lasers. Dans cette partie, nous allons décrire d'une manière détaillée une façon de générer des peignes qui permet ensuite d'effectuer de la spectrométrie à deux peignes de fréquences basée sur un montage à source unique. Ce montage expérimental sera la base de toutes les expériences que nous réaliserons par la suite et celui-ci repose sur des composants bien particuliers que sont les modulateurs électro-optiques (MEO) dont nous commençons par décrire le fonctionnement.

1.4.1 Généralités sur l'effet électro-optique et les modulateurs

Avant d'introduire les MEOs, rappelons quelques bases sur l'effet électro-optique qui est un effet non-linéaire regroupant plusieurs phénomènes. D'une manière générale, un effet électro-optique est un phénomène qui modifie l'indice de réfraction d'un matériau suite à l'application d'un champ électrique statique. Lors du passage d'une onde électromagnétique (EM) dans le matériau, cette modification de l'indice de réfraction impose alors une phase sur l'onde traversante. L'effet électro-optique peut être vu comme un phénomène de mélange d'ondes entre une onde EM et un champ électrique statique [88].

Plusieurs phénomènes peuvent être définis comme un effet électro-optique. Le premier est l'*effet Pockels* où le changement dans l'indice de réfraction d'un matériau est proportionnel à l'amplitude du champ électrique statique appliqué. Nommé d'après F. POCKELS qui a étudié le phénomène [89], cet effet électro-optique a en réalité été découvert indépendamment par A. KUNDT et W. RÖNTGEN [90, 91]. L'effet Pockels est aussi nommé l'*effet électro-optique linéaire* et ne peut apparaître que dans des matériaux non-centrosymétrique car il s'agit d'un effet non-linéaire du second ordre.

Un second effet électro-optique est l'*effet Kerr* qui montre que le changement dans l'indice de réfraction d'un matériau est proportionnel au carré de l'amplitude du champ électrique statique appliqué [92]. Cet effet peut apparaître dans tous matériaux car il s'agit d'un effet non-linéaire du troisième ordre mais il en résulte que son efficacité est beaucoup plus faible que celle de l'effet Pockels. Dans la suite du manuscrit, nous ne verrons que l'utilisation de l'effet Pockels car c'est le phénomène majoritairement utilisé pour fabriquer des MEOs. De ce fait, lorsque l'adjectif « électro-optique » sera utilisé, celui référera à l'effet Pockels que nous décrivons maintenant.

1.4.1.1 Effet Pockels

Considérons un milieu non-centrosymétrique, anisotropique, non actif optiquement et sans perte. La relation constitutive $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E}$, quand ses composantes sont explicitées, peut être écrite sous la forme suivante :

$$D_i = \varepsilon_0 \sum_j \varepsilon_{ij} E_j \iff E_i = \frac{1}{\varepsilon_0} \sum_j \eta_{ij} D_j \quad (1.41)$$

où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide, ε le tenseur permittivité et η le tenseur inverse de ε . Dans tous systèmes de coordonnées x_i avec $i = \{1, 2, 3\}$, l'ellipsoïde des indices peut être écrite :

$$\sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 \left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} x_i x_j = 1 \quad . \quad (1.42)$$

Les constantes $\left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij}$ décrivent l'indice de réfraction dans les coordonnées x_i et sont symétriques en ij car le tenseur permittivité est symétrique à cause du matériau que nous avons considéré ici. En changeant de repère pour le repère cristallographique, nous trouvons que $\left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \eta_{ij}$. De plus, en supposant que η peut être décomposé en série de Taylor par rapport aux composantes du champ électrique appliqué \mathbf{E} , en nous restreignant au terme linéaire, nous avons :

$$\eta_{ij} = \eta_{ij}^{(0)} + \sum_k r_{ijk} E_k + o(E_k) \quad (1.43)$$

où r est le tenseur décrivant l'effet électro-optique linéaire. Sachant que η est réel et symétrique, r est alors symétrique dans ses deux premiers indices. Par commodité, le $3 \times 3 \times 3$ tenseur r_{ijk} peut être contracté en un 3×6 tenseur r_{hk} en utilisant le réarrangement des indices suivant : $h = 1 \rightarrow ij = 11$, $h = 2 \rightarrow ij = 22$, $h = 3 \rightarrow ij = 33$, $h = 4 \rightarrow ij = 23/32$, $h = 5 \rightarrow ij = 13/31$ et $h = 6 \rightarrow ij = 12/21$. Ainsi, la variation de l'indice de réfraction peut être écrite de la manière suivante :

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_h = \sum_j r_{hj} E_j \quad . \quad (1.44)$$

Les coefficients r_{hj} sont les coefficients électro-optiques et nous donnent les variations de l'indice de réfraction relatif au champ électrique statique appliqué.

1.4.1.2 Modulateurs électro-optiques basiques

En utilisant les concepts vus au dessus, nous présentons maintenant trois basiques composants électro-optiques capables de moduler une propriété particulière d'un champ EM, c'est à dire des MEOs. Ceci nous permettra de conceptualiser plusieurs caractéristiques fondamentales des MEOs. Notons que tous les MEOs existants sont basés sur l'application d'une phase sur une onde EM incidente mais lorsque cet effet est utilisé dans un montage expérimental particulier, cette modulation de phase peut conduire à la modulation d'une autre propriété du champ EM.

Modulateur de phase Considérons un cristal uniaxe comme du phosphate de monopotassium (KDP) d'axes cristallographiques (x, y, z) et tel que le tenseur r_{hj} est différent de zéro seulement pour r_{41} , r_{52} et r_{63} . En appliquant un champ statique électrique longitudinal E_z (qui est généralement appelé le *signal RF*) sur le cristal le long de l'axe z , le système d'axes principaux se modifie en (x', y', z) . L'ellipsoïde des indices est ainsi modifiée et les indices de réfractons sont donnés par :

$$n_{x'} = n_o - \frac{1}{2} n_o^3 r_{63} E_z \quad n_{y'} = n_o + \frac{1}{2} n_o^3 r_{63} E_z \quad (1.45)$$

où n_o est l'indice de réfraction ordinaire. En considérant un champ EM se propageant selon la direction z et polarisé linéairement selon l'axe x' ou y' , une phase $\Delta\varphi$ va être induite par effet électro-optique et, pour une polarisation selon l'axe y' , $\Delta\varphi$ est donnée par :

$$\Delta\varphi = (n_{y'} - n_o) \frac{2\pi L}{\lambda} = \frac{\pi n_o^3 r_{63} V}{\lambda} \quad (1.46)$$

où L est la longueur du cristal et $V = E_z L$ est la tension associée au signal RF appliqué. Une phase $\Delta\varphi$ est donc imprimée sur le champ EM incident ce qui nous donne un modulateur de phase (MP).

Il peut être utile d'introduire la quantité V_π qui est la tension nécessaire pour induire une phase de π . $\Delta\varphi$ est alors donnée par :

$$\Delta\varphi = \pi \frac{V}{V_\pi} \quad \text{avec} \quad V_\pi = \frac{\lambda}{n_o^3 r_{63}} \quad . \quad (1.47)$$

La constante du modulateur $K = \frac{\pi}{V_\pi}$ est nommée la *profondeur de modulation*. Avec du KDP, nous avons $r_{63} = 10.5 \text{ pm.V}^{-1}$ et $n_o = 1.514$ à $546,1 \text{ nm}$ donc à cette longueur d'onde, l'application numérique nous donne $V_\pi = 15 \text{ kV}$ [88].

Modulateur de polarisation Le MP vu au dessus peut être légèrement modifié en ajoutant un ou deux polariseur(s) pour obtenir un modulateur de polarisation. Dans le cas du MP, nous injectons le champ EM suivant l'un des axes principaux x' ou y' ce qui implique que l'état de polarisation reste le même en sortie. Toutefois, si un polariseur permet d'injecter une onde EM à 45° des axes principaux, un retard $\Delta\varphi$ entre les composantes va naître tel que :

$$\Delta\varphi = \Delta n \frac{2\pi L}{\lambda} = (n_{y'} - n_{x'}) \frac{2\pi L}{\lambda} = \frac{2\pi n_o^3 r_{63} V}{\lambda} = \pi \frac{V}{V_\pi} \quad \text{avec} \quad V_\pi = \frac{\lambda}{2n_o^3 r_{63}} \quad . \quad (1.48)$$

Ici, la tension V_π a une signification plus profonde puisqu'à cette tension particulière, le modulateur tourne la polarisation de $\frac{\pi}{2}$ et est donc équivalent à une lame demi-onde. Notons qu'un MP est le cas particulier d'un modulateur de polarisation où la rotation de polarisation est nulle. À la sortie du cristal, un deuxième polariseur avec la même orientation que le premier est généralement utilisé pour projeter les composantes du champ EM sur un même axe.

Modulateur d'intensité Finalement, un modulateur d'intensité (MI) peut être construit en ajoutant une lame quart-d'onde après un modulateur de polarisation placé dans une configuration polariseur-analyseur croisés. Le schéma d'un tel montage est placé à la [Figure 1.12](#).

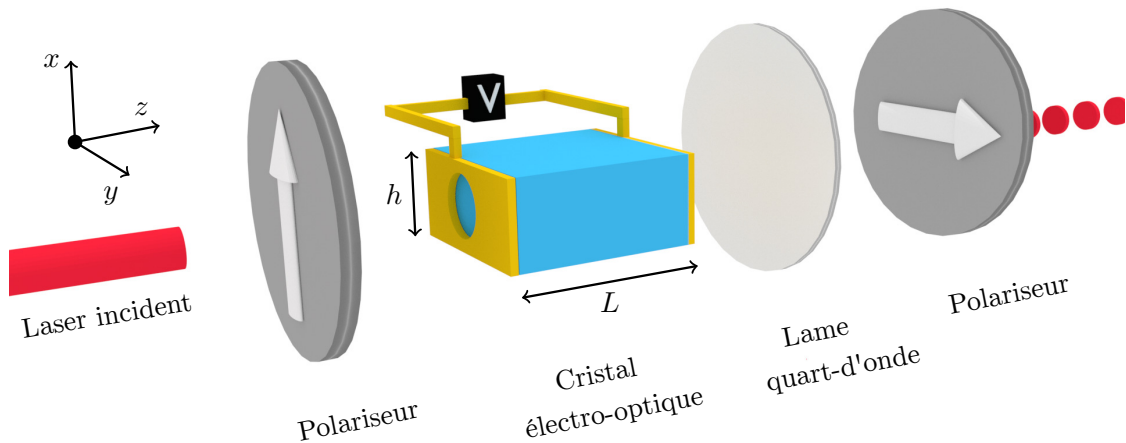


FIGURE 1.12 – Schéma montrant le montage expérimental d'un modulateur d'intensité basique basé sur l'effet électro-optique avec un champ électrique statique longitudinal appliqué sur un cristal de longueur L et de hauteur h . Pour que la lumière puisse se propager, une ouverture peut être découpée dans les électrodes (en jaune), ou des électrodes transparentes sont utilisées.

Le polariseur initial est utilisé afin d'obtenir une polarisation linéaire particulière de l'onde EM incidente sur le cristal, ce qui pratiquement est aussi le cas pour les autres MEOs. Après avoir traversé le cristal et la

lame quart-d'onde, l'onde EM que nous considérons se propageant selon la direction z va voir ses composantes acquérir une différence de phase $\Delta\varphi$ donnée par :

$$\Delta\varphi = \Delta n \frac{2\pi L}{\lambda} + \frac{\pi}{2} = \frac{2\pi n_o^3 r_{63} V}{\lambda} + \frac{\pi}{2} = \frac{\pi V}{2V_\pi} + \frac{\pi}{2} \quad \text{avec} \quad V_\pi = \frac{\lambda}{4n_o^3 r_{63}} . \quad (1.49)$$

Cette dernière équation montre l'utilité de la lame quart-d'onde en sortie : la tension V_π est réduite d'un facteur 2 par rapport à un modulateur de polarisation et d'un facteur 4 par rapport à un MP, l'application numérique donnant ici $V_\pi = 3,75$ kV.

Après l'analyseur, nous pouvons introduire la transmission (ou fonction de transfert) T du montage qui est donnée par :

$$T = \frac{|\mathbf{E}_{\text{sortie}}|^2}{|\mathbf{E}_{\text{entrée}}|^2} = \sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta\varphi\right) = \sin^2\left(\frac{\pi V}{4V_\pi} + \frac{\pi}{4}\right) . \quad (1.50)$$

Si V est statique, T est fixée mais si V est dépendant du temps, nous obtenons alors un MI. Le déphasage de $\frac{\pi}{2}$ induit par la lame quart-d'onde justifie aussi l'utilisation de ce composant. En effet, dans l'expression de la fonction de transfert, ce terme de phase supplémentaire permet de fixer le modulateur à un point d'opération (aussi appelé point de modulation) bien particulier qui, dans notre cas, est le *point de quadrature*. Ceci nous donne une fonction de transfert qui est linéaire au voisinage du point de quadrature ce qui permet d'éviter certaines distorsions du signal optique obtenu par rapport au signal RF appliqué au modulateur. Pour illustrer ceci, considérons un signal RF temporel V possédant une tension crête V_0 . Si $\frac{\pi V_0}{4V_\pi} \ll 1$, nous avons alors :

$$T = \sin^2\left(\frac{\pi V}{4V_\pi} + \frac{\pi}{4}\right) = \frac{1}{2} \left(\cos\left(\frac{\pi V}{4V_\pi}\right) + \sin\left(\frac{\pi V}{4V_\pi}\right) \right)^2 = \frac{1}{2} + \frac{\pi V}{4V_\pi} + o(V_0^2) . \quad (1.51)$$

Ainsi, au voisinage du point de quadrature, T est approximativement linéaire. La fonction de transfert T de l'équation (1.50) est tracée à la Figure 1.13 avec son approximation linéaire au voisinage du point de quadrature.

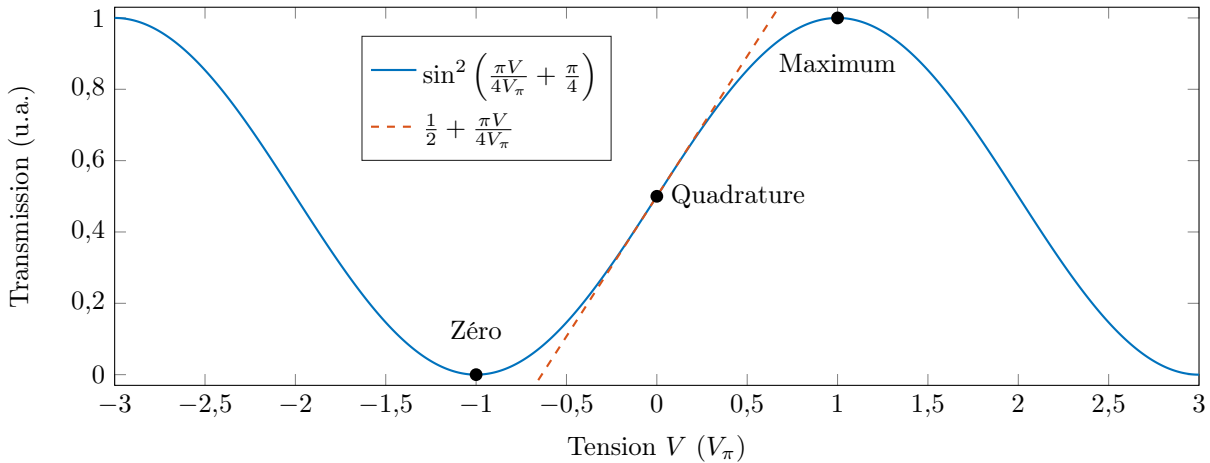


FIGURE 1.13 – Graphique montrant la fonction de transfert d'un modulateur d'intensité basique réglé à son point de quadrature avec plusieurs autres points caractéristiques et l'approximation linéaire au voisinage du point de quadrature.

1.4.1.3 Modulateurs électro-optiques basés sur un montage interférométrique

Les modulateurs que nous avons décrits au dessus sont généralement peu utilisés car ils ne sont pas très efficaces. En effet, l'un des principaux désavantage de ces MEOs est la tension V_π nécessaire qui peut facilement atteindre plusieurs kilovolts, ce qui n'est pas pratique. Ainsi, il y a une volonté de rechercher des matériaux avec la plus basse tension V_π , c'est à dire avec le plus haut coefficient électro-optique possible. La plupart des MEOs actuels sont donc basés sur du niobate de lithium LiNbO_3 mais des études sont aussi orientées vers le titanate de baryum BaTiO_3 [93], ou encore le silicium [75]. Dans le même but de recherche d'efficacité, il est plus intéressant d'utiliser un champ électrique statique transverse à la place d'un champ longitudinal. Premièrement, cela évite l'utilisation d'électrodes qui doivent nécessairement être transparentes à la longueur d'onde incidente, ou d'utiliser des électrodes avec une ouverture adéquate comme montré sur la Figure 1.12. Deuxièmement, l'utilisation d'un champ électrique transverse donne une tension $V = E_x h$ où $h < L$ est la hauteur du cristal et dans ce cas, la tension V_π est alors proportionnelle à $\frac{h}{L}$ ce qui donne des valeurs de V_π de l'ordre de la dizaine de volts lorsque le cristal est correctement taillé.

Un deuxième désavantage des MEOs que nous avons vu plus haut est leur architecture relativement simple qui est sujette à des effets parasites, ce qui diminue leur efficacité et la qualité de la modulation. En particulier pour un MI, ajouter des polariseurs et des lames d'onde font que les performances du MI reposent sur les caractéristiques de ces composants. Ainsi, d'autres architectures ont été étudiées et il a été démontré qu'une structure interférométrique pouvait permettre d'obtenir une efficacité améliorée des MEOs. L'idée est d'introduire le matériau électro-optique dans un interféromètre, usuellement un interféromètre de Mach-Zehnder [94, 95]. Ce design particulier permet de remplacer le polariseur de sortie par un phénomène d'interférence et ainsi pouvoir utiliser des tensions plus faibles [96]. Un MEO est donc souvent appelé un modulateur de Mach-Zehnder et deux architectures sont généralement disponibles et présentées à la Figure 1.14.

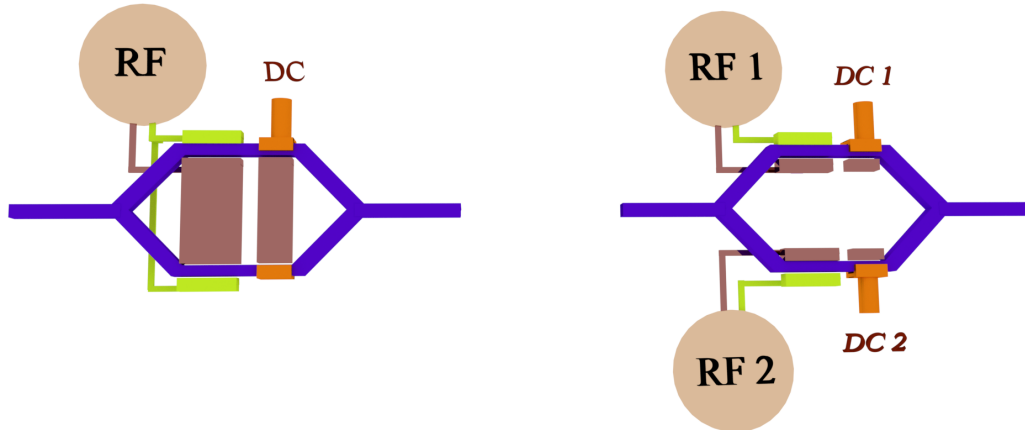


FIGURE 1.14 – Schéma montrant les deux plus courants modulateurs électro-optiques basés sur un interféromètre de Mach-Zehnder. À gauche, modulateur de Mach-Zehnder à simple entrée et à droite, modulateur de Mach-Zehnder à double entrée.

Le principe de ces modulateurs est le suivant. En premier, des guides d'onde sont imprimés sur un matériau électro-optique qui est taillé de manière adéquate selon ses axes cristallographiques. En entrée, le guide commence avec un séparateur 50/50 qui est fait avec une jonction en Y pour créer deux bras. Les deux bras sont ensuite recouverts d'électrodes qui seront utilisées pour appliquer le signal RF et une tension statique indépendamment. Les deux tensions vont induire un effet électro-optique et donc induire une phase sur le champ EM incident. La nouvelle tension statique est appelée la tension de *bias* et est ajoutée afin de pouvoir sélectionner un point de modulation particulier du MEO. Par exemple, un bias de $\frac{V_\pi}{2}$ induit un déphasage de $\frac{\pi}{2}$ ce qui imite la lame quart-d'onde utilisée dans le MI basique que nous avons vu plus haut, et donc fixe le modulateur à son point de quadrature.

Suivant si les bras de l'interféromètre sont assujettis au même ensemble d'électrodes ou non, le modulateur de Mach-Zehnder est respectivement qualifié d'être à simple entrée ou à double entrée. En sortie, les deux bras sont recombinaés avec une deuxième jonction en Y ce qui donne lieu à un phénomène d'interférence. Pour un modulateur de Mach-Zehnder à simple entrée, les phases appliquées sur les deux bras peuvent être les mêmes ou bien avec des signes opposés suivant comment les électrodes sont déposées. Dans le premier cas, le modulateur est dans un mode dit *push-push* ce qui est équivalent à un pur MP tandis que dans le second cas, le modulateur est dans un mode dit *push-pull* et est équivalent à un pur MI.

Plus de détails sur les MEOs peuvent être trouvés dans la référence [97].

1.4.2 Génération de peignes par modulation électro-optique

Dans la partie précédente, nous avons vu que plusieurs MEOs existent et tous sont capables de générer un peigne de fréquences [97]. Pour le mettre en évidence, nous allons nous intéresser à un simple MP. En effet, comme les modulateurs de polarisation ou d'intensité sont basés eux aussi sur une modulation de phase par effet électro-optique, l'étude du MP suffit à mettre en évidence comment un MEO peut générer un peigne.

1.4.2.1 Génération de peignes par modulation de phase

Considérons une source laser continue de fréquence porteuse ω_p , d'amplitude A_0 , injectée dans un MP de profondeur de modulation K . Le modulateur est piloté par un générateur de tension sinusoïdale à une fréquence de modulation ω_m . Le champ électrique délivré par le générateur est donc de la forme $V(t) = V_0 \sin(\omega_m t)$, où V_0 est la tension crête. À la sortie du modulateur, le champ du laser continu injecté acquiert une phase $\Delta\varphi = KV(t)$

et donc le champ sortant s'écrit :

$$A(t) = A_0 e^{i\omega_p t} e^{i\Delta\varphi} = A_0 e^{i\omega_p t} e^{iKV_0 \sin(\omega_m t)} \quad . \quad (1.52)$$

Dans le domaine fréquentiel, l'amplitude du spectre est donné par la TF de l'équation précédente et nous avons :

$$\tilde{A}(\omega) = \mathcal{F}_\omega(A(t)) = A_0 \delta(\omega - \omega_p) * \left(\int_{-\infty}^{\infty} e^{iKV_0 \sin(\omega_m t)} e^{-i\omega t} dt \right) \quad . \quad (1.53)$$

En utilisant l'identité de Jacobi-Anger, c'est à dire en développant des ondes planes en une série d'ondes cylindriques [98], nous obtenons :

$$\tilde{A}(\omega) = A_0 \delta(\omega - \omega_p) * \left(\int_{-\infty}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(KV_0) e^{it(n\omega_m - \omega)} dt \right) = A_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(KV_0) \delta(\omega - n\omega_m - \omega_p) \quad (1.54)$$

où J_n sont les fonctions de Bessel du premier ordre. La dernière équation montre que le spectre optique est un peigne dont les fréquences sont définies par :

$$\omega \equiv \omega_n = n\omega_m + \omega_p \quad \text{avec} \quad n \in \mathbb{Z} \quad . \quad (1.55)$$

Si ω_p est décomposée selon $\omega_p = k\omega_m + \omega_0$, avec $k \in \mathbb{N}$ et ω_0 la fréquence de décalage à l'origine, alors l'équation (1.55) est donnée par $\omega_n = (n+k)\omega_m + \omega_0$ ce qui est équivalent à l'équation (1.10) lorsque les indices sont renumérotés. Cependant, pour des peignes générés avec des MEOs, l'équation (1.55) est bien plus pratique à utiliser et plus naturelle car elle fait apparaître la fréquence du laser initial ω_p qui est généralement connue contrairement à ω_0 qui doit être mesurée. Exprimée de cette manière, l'entier n donne le numéro de la ligne du peigne par rapport à sa fréquence centrale ω_p fixée à $n = 0$.

Un MP est donc bien capable de générer un peigne de fréquences et il en va de même avec les autres MEOs existants [97]. Toutefois, en vue des applications spectroscopiques que nous effectuerons plus tard, il existe certains avantages à utiliser des MIs plutôt que des MPs. En effet, les spectres générés par des MEOs sont assez étroits, ce qui est d'autant plus vrai avec un MP lorsque la fréquence de répétition choisie est relativement basse (<1 GHz). Une possibilité pour améliorer ce point consiste en l'utilisation de plusieurs MPs en série, mais cette solution implique une gestion optimale du signal RF entre les modulateurs, et donc l'utilisation de délais, ce qui complexifie le montage expérimental [99, 100]. De plus, même en cascadant des MPs, les spectres sont toujours relativement étroits, et il y a donc un besoin de les élargir, ce qui s'effectue généralement avec des effets non-linéaires dans une fibre optique (nous reviendrons sur ce point). Or cet élargissement ne peut se faire qu'avec des puissances crêtes relativement élevées, ce qui est beaucoup plus facile à obtenir en régime impulsionnel qu'en régime continu, régime délivré en sortie d'un ou plusieurs MPs. Le montage expérimental doit donc être ensuite doté d'un moyen pour générer des impulsions, ce qui ajoute des contraintes techniques et matérielles supplémentaires comme l'utilisation d'un MI après modulation de phase (ce qui permet également d'aplatir le peigne) [99, 101, 102], et/ou d'une fibre optique pour gérer la phase spectrale des impulsions [99, 103]. Un schéma de montage expérimental illustrant tout ceci est présenté à la Figure 1.15a au côté d'un peigne typique qu'il est possible de générer avec ce montage à la Figure 1.15b.

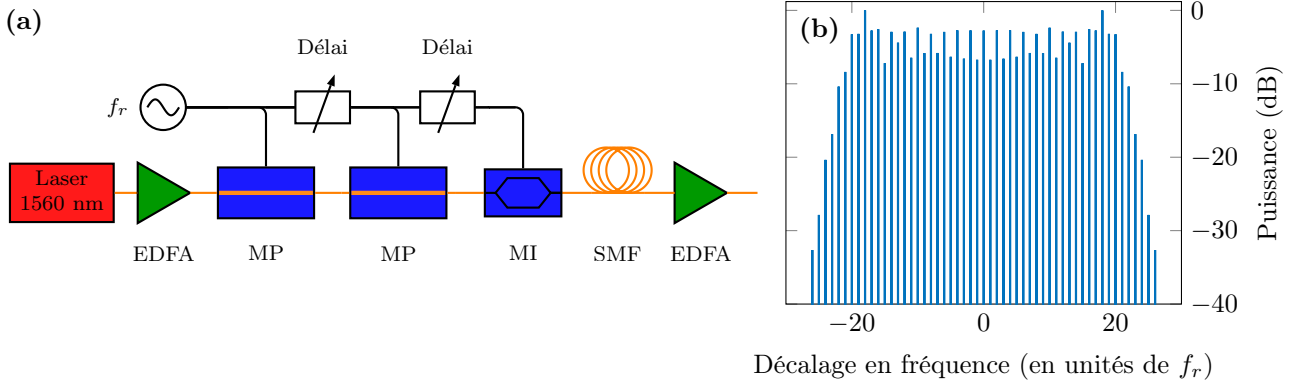


FIGURE 1.15 – (a) Schéma représentant un montage expérimental permettant de générer un peigne de fréquences par modulation de phase. Le modulateur d'intensité et la fibre optique sont des composants utilisés pour obtenir un train d'impulsions, caractéristique généralement souhaitée pour obtenir des puissances crêtes relativement élevées. (b) Spectre simulé montrant un exemple de peigne qu'il est possible de générer avec le montage de (a).

Contrairement aux MPs, les MIs peuvent générer directement des impulsions en limite de Fourier, ce qui est un avantage considérable. De plus, il est possible de n'utiliser qu'un seul MI pour générer un peigne, ce qui simplifie le montage expérimental. Dans la suite, nous nous restreindrons donc uniquement aux MIs puisque toutes les études expérimentales que nous présenterons ont été réalisées avec ces MEOs. Détaillons maintenant le montage expérimental permettant de générer un peigne avec un MI.

1.4.2.2 Génération de peignes par modulation d'intensité

Lorsqu'un peigne est généré avec un MP, ce dernier doit être piloté avec un générateur électrique (le signal RF). Pour un MI, il est également possible de faire la même chose et de le piloter avec une tension $V(t) = V_0 \sin(\omega_m t)$ mais en sortie nous n'obtiendrons pas d'impulsions. Pour ce faire, il convient d'utiliser un générateur d'impulsions électriques pour piloter le MI et de fixer le point de fonctionnement du modulateur à zéro. De cette manière, le modulateur effectuera une véritable conversion électrique-optique et nous obtiendrons un train d'impulsions en sortie.

Un montage expérimental permettant de générer un peigne grâce à un MI aux alentours de $1,55 \mu\text{m}$ est présenté à la Figure 1.16. Ce montage commence par une source laser continue accordable en longueur d'onde aux alentours de $1,55 \mu\text{m}$ qui est amplifiée par un amplificateur à fibre optique dopée aux ions erbiums (EDFA). Le laser est ensuite dirigé vers un MI contrôlé par un générateur d'impulsions électriques. Ce générateur est lui-même piloté par un générateur de tension sinusoïdale qui fixe la fréquence de répétition des impulsions ω_r . La sortie du MI est ensuite amplifiée avec un autre EDFA et nous obtenons un train d'impulsions bloquées en phase, c'est à dire un peigne de fréquences dans le domaine spectral.

Dans le montage expérimental que nous utiliserons par la suite, le générateur d'impulsions électriques délivre des impulsions gaussiennes. Toutefois, si le signal électrique possède une tension crête suffisante, le MI va saturer sur le haut des impulsions électriques, ce qui permet de façonner légèrement les impulsions optiques générées en super-gaussiennes d'ordre 3, c'est à dire dont le profil en intensité est de la forme :

$$|A_m(t)|^2 = |A_m(t=0)|^2 \exp\left(-\left(\frac{t}{\delta_0}\right)^{2m}\right) \quad (1.56)$$

où $m \in \mathbb{N}^*$ est l'ordre de la super-gaussienne et δ_0 est la largeur à e^{-1} en intensité qui vaut ici $\delta_0 = 26,6 \text{ ps}$. Nous noterons que si $m = 1$, nous obtenons une forme gaussienne tandis que pour $m \rightarrow \infty$, la forme tend vers la fonction porte. Le signal temporel qu'il est possible d'observer à la sortie du MI est présenté à la Figure 1.17a et le spectre optique associé au train d'impulsions cadencé à 1 GHz est présenté à la Figure 1.17b. Cette dernière figure montre bien un peigne de fréquences dont l'enveloppe est un sinus cardinal.

Bien qu'un MI puisse générer un train d'impulsions aisément, une différence assez importante existe avec un train d'impulsions généré, par exemple, par un laser femtoseconde. En effet, certaines limitations techniques font qu'un MI ne peut rigoureusement pas éteindre complètement le signal d'entrée, c'est à dire découper le signal continu en revenant strictement à une intensité optique nulle. En sortie du modulateur, il reste donc toujours une composante continue résiduelle de la source initiale, un *fond continu*. Il est dit que le MI dispose d'un *taux d'extinction* τ_{ext} fini qui est défini comme le rapport entre la puissance de l'impulsion et la puissance du fond. La composante continue est en général relativement faible, moins d'un millièème de la puissance crête des impulsions générées par le modulateur, mais il est nécessaire de la prendre en compte pour divers phénomènes physiques que nous rencontrerons car elle peut être néfaste.

1.4.2.3 Montage à deux peignes de fréquences par modulation d'intensité

Nous venons de voir comment il était possible de générer un peigne de fréquences grâce à un MI. Pour des applications à la spectrométrie à deux peignes, il est nécessaire de disposer d'un deuxième peigne de fréquences. Avec une architecture basée sur des MIs, il est possible de construire un montage basé sur une source unique dont le schéma expérimental est présenté à la Figure 1.18a. Ce montage est peu différent de celui permettant de générer un peigne de fréquences présenté à la Figure 1.16. L'astuce ici est d'utiliser une séparatrice (où dans notre cas un coupleur puisque le montage est tout fibré) pour créer deux faisceaux qui seront chacun envoyés dans un MI. Ces deux MIs sont contrôlés par des générateurs électriques possédant une fréquence de répétition

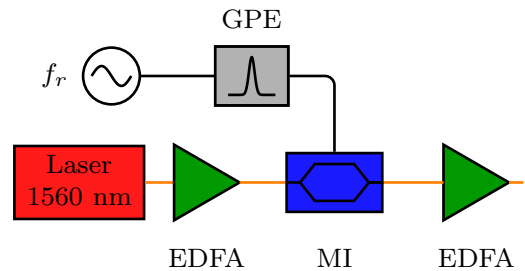
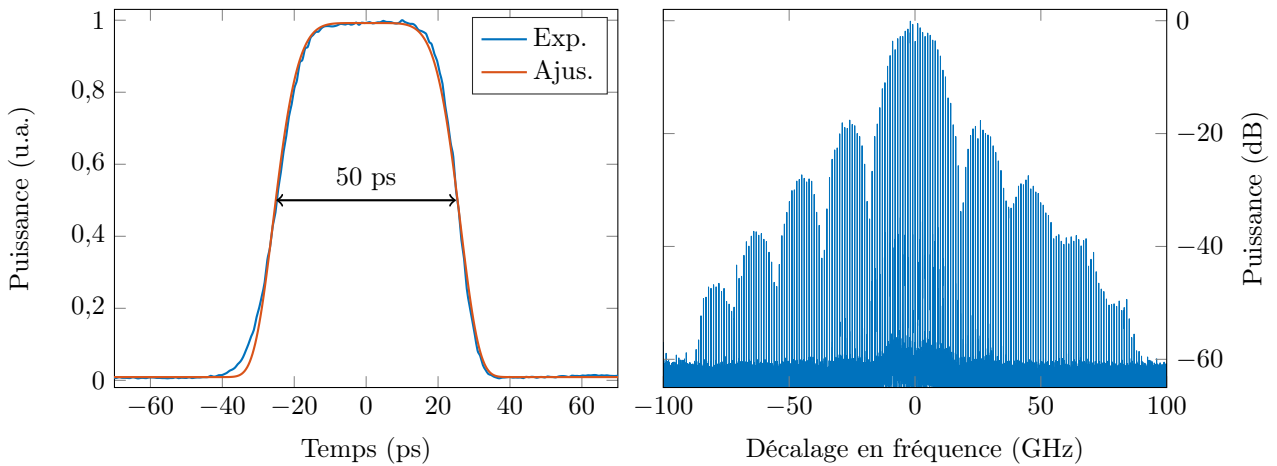


FIGURE 1.16 – Montage permettant de créer un peigne de fréquences par modulation d'intensité. Les éléments EDFA sont des amplificateurs fibrés dopés aux ions erbium Er^{3+} . GPE : générateur de pulses électriques.



(a) Impulsion observée à la sortie d'un MI. En rouge un ajustement d'une super-gaussienne d'ordre 3.

(b) Spectre optique observé à très haute résolution (5 MHz) d'un train d'impulsions cadencé à 1 GHz.

FIGURE 1.17 – Impulsion temporelle et spectre optique observables à la sortie du montage présenté à la Figure 1.16. Une impulsion super-gaussienne d'ordre 3 étant proche d'une impulsion porte, son spectre est déjà très proche d'un sinus cardinal.

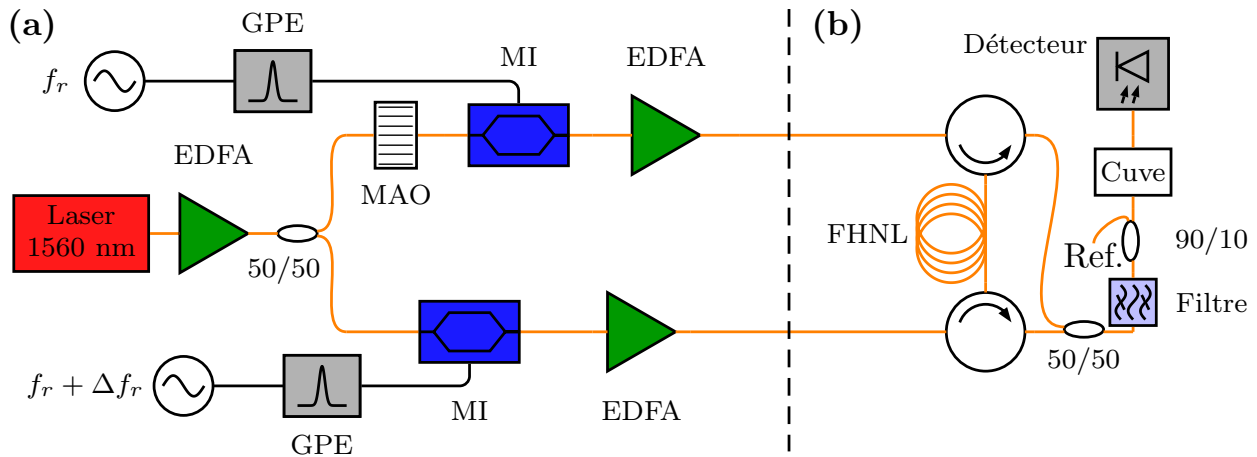


FIGURE 1.18 – (a) Schéma représentant un montage à deux peignes de fréquences basé sur des modulateurs d'intensité. (b) L'ajout de circulateurs et d'une fibre optique hautement non-linéaire au montage de (a) permet d'élargir les peignes de fréquences de manière cohérente entre eux. La cuve et le détecteur permettent de réaliser de la spectroscopie. GPE : générateur de pulses électriques, MAO : modulateur acousto-optique. FHNL : fibre hautement non-linéaire.

légèrement différente. En sortie des MIs, nous disposons donc de deux peignes de fréquences mutuellement cohérents entre eux puisqu'ils sont créés de la même manière et à partir de la même source.

Toutefois, si le montage est employé tel que nous venons de le décrire, effectuer de la spectroscopie sera très difficile. En effet, les MIs ne peuvent générer des impulsions qu'avec une largeur maximale égale à leur bande passante électro-optique, c'est à dire aux alentours de 25 ps (ou 40 GHz). Dans notre cas, celles-ci seront des impulsions super-gaussiennes d'ordre 3 de largeur 50 ps, comme présenté à la Figure 1.17a. De fait, le spectre associé ne s'étend que sur quelques dizaines de GHz comme il est possible de le voir à la Figure 1.17b. Comme dans tout montage à deux peignes de fréquences, il y a donc un besoin d'élargir le spectre afin de pouvoir sonder une plus grande gamme de fréquences. Pour cela, nous allons utiliser des phénomènes non-linéaires dans les fibres optiques que nous aborderons dans le chapitre suivant. D'ici là, nous admettrons qu'il est possible d'élargir des spectres dans une fibre et nous terminons sur le montage expérimental.

L'élargissement spectral dans un montage à deux peignes de fréquences est complexe, car il doit être fait en sorte que la cohérence mutuelle entre les deux peignes soit conservée. Ceci se traduit par le fait que pour élargir les deux peignes, il convient d'utiliser la même fibre optique. En effet, élargir indépendamment les peignes dans deux fibres optiques différentes induirait une différence de chemin optique, ainsi qu'une différence de bruit de phase entre les deux peignes, ce qui détruirait la cohérence mutuelle. Il convient donc de trouver un moyen pour utiliser la même fibre dans laquelle les peignes seraient élargis. Pour ce faire, il est possible d'utiliser des

circulateurs comme montré sur le schéma du montage de la [Figure 1.18b](#). Cette architecture est qualifiée d'être en *contra-propagative*, puisque la fibre est utilisée de sorte que les peignes se propagent en direction opposées. De fait, ils n'interagissent pas pendant l'élargissement ce qui évite la création d'un battement précoce. De plus, le chemin optique pour chaque peigne est ainsi équivalent, de même pour le bruit de phase induit et les inhomogénéités vues par les peignes. Au final, en utilisant qu'une seule fibre et des circulateurs, la cohérence entre les deux peignes reste très élevée et en sortie nous obtenons notre spectre élargi. Pour finir, la suite du montage suit le cas typique des montages à deux peignes de fréquences comme nous l'avons vu à la [Figure 1.9](#) : les peignes sont couplés grâce à un coupleur fibré, puis ils sont filtrés pour éviter le problème du repliement (et/ou un modulateur électro-optique est utilisé), envoyés à travers une cuve et le signal d'interférence est détecté avec une photodiode.

1.4.3 Limites et contournements

Jusqu'à présent, nous avons abordé en majorité les avantages des montages basés sur la modulation électro-optique d'un laser continu. Toutefois, ceux-ci possèdent également des désavantages comparés à des montages plus traditionnels comme ceux à base de lasers femtosecondes. Dans cette partie, nous allons mettre en évidence certaines limites des montages basés sur des MEOs et les moyens possibles pour les contourner.

1.4.3.1 Longueur d'onde de travail

De nos jours, les MEOs sont majoritairement basés sur du niobate de lithium LiNbO_3 qui possède une bande de transparence du visible jusqu'à environ $5 \mu\text{m}$. Cependant, pour obtenir une modulation électro-optique efficace, les MEOs doivent être optimisés dans leur designs (guides, etc.), ce qui restreint la gamme spectrale dans laquelle ils peuvent opérer. Bien qu'un MEO pourrait opérer en dehors de la région qui lui est assignée, celui-ci ne sera alors pas optimisé et son efficacité risque de décroître : un voltage V_π plus élevé sera nécessaire, le taux d'extinction sera plus faible, etc. Ces désavantages indiquent que pour générer un peigne à une longueur d'onde donnée, le MEO doit être choisi en accord. Les MEOs disponibles ne possèdent cependant pas une gamme continue d'opération. Ceux-ci ayant été utilisés en premier lieu pour les télécommunications, les plages spectrales disponibles sont indexées sur les bandes des télécommunications et il est donc possible de trouver des MEOs dans la première bande des télécoms autour de 900 nm , dans la bande O alentour à 1300 nm , dans la bande C+L alentour à 1550 nm et aux alentours de 2000 nm .

Bien qu'il serait possible de concevoir un MEO optimisé à toute longueur d'onde, l'effet électro-optique décroît en fonction de la longueur d'onde. Ainsi, il est donc complexe d'obtenir un MEO efficace dans le moyen infrarouge. Cependant, des études ont montré qu'il est possible d'obtenir de tels MEOs si les matériaux sont modifiés, comme en utilisant du Si-on- LiNbO_3 [104], ou du phosphore noir [105]. En parallèle, il est possible d'accéder à certaines longueurs d'onde par conversion non-linéaire du peigne après sa création. Par exemple, des cristaux ou des guides peuvent être utilisés pour générer des harmoniques ce qui donne des peignes dans le domaine visible [106–109]. D'autre part, des phénomènes de mélanges d'ondes peuvent être utilisés ce qui permet d'atteindre le moyen infrarouge [110–112].

De plus, convertir un peigne peut être plus intéressant que de l'élargir, notamment pour des décalages en fréquences élevés mais aussi car un élargissement spectral peut poser des problèmes comme nous le verrons dans la partie suivante. Différentes études ont été réalisées sur la conversion de peignes par effet non-linéaire et ceux-ci sont schématisés à la [Figure 1.19](#). Étant donné que deux études différentes seront effectuées sur ces phénomènes de conversion, nous les introduisons ici.

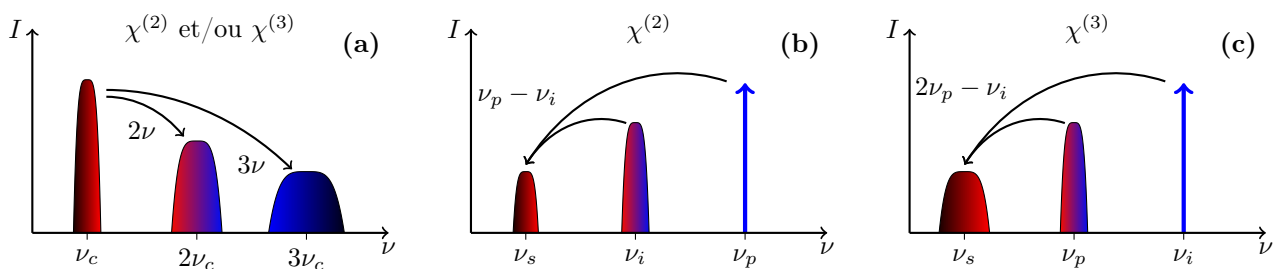


FIGURE 1.19 – Schéma montrant différents phénomènes non-linéaires utilisables pour convertir un peigne. (a) Génération d'harmoniques, (b) génération par différence de fréquences et (c) mélange à quatre ondes dégénéré.

Génération d'harmonique Une première approche pour convertir un peigne est d'utiliser la génération d'harmonique dans un cristal, ce qui permet d'atteindre de plus hautes fréquences et donc typiquement le domaine visible. Par exemple, la génération de seconde harmonique que nous avons déjà abordée peut être réalisée en utilisant un cristal de beta-barium borate [108], des cristaux en LiNbO_3 polarisés périodiquement (PPLN) [106, 107], ou encore des guides d'onde [109]. Dans le second cas, uniquement un quasi accord de phase est disponible et l'intensité de seconde harmonique augmente linéairement avec la longueur du cristal. Si une puissance suffisante est disponible et si le cristal est correctement taillé, de plus hautes harmoniques peuvent être générées en utilisant des effets non-linéaires du troisième ou du quatrième ordre [106]. Notons que pour la n -ième harmonique générée, le peigne aura une largeur n fois supérieure à celle du peigne initial.

Génération par différence de fréquences Un autre effet disponible est la génération par différence de fréquences (GDF) qui est un phénomène non-linéaire du second ordre. Ici, un laser continu de fréquence ν_p joue le rôle de pompe, un peigne de fréquence centrale ν_i joue le rôle d'idler et par différence de fréquences, un signal de fréquence ν_s peut être généré suivant la relation $\nu_p - \nu_i = \nu_s$. La GDF peut être faite en utilisant un cristal, mais une certaine flexibilité peut être acquise en utilisant des PPLNs. Dans ce cas, des signaux peuvent être générés jusqu'à $5 \mu\text{m}$ (la limite de transparence du LiNbO_3), mais le plus grand désavantage est l'utilisation d'un laser continu d'une grande puissance qui peut être coûteux. La GDF est en général utilisée pour atteindre le moyen-infrarouge [110–112], et nous reviendrons sur ce phénomène au [chapitre 4](#) dans ce même but.

Mélange à quatre ondes Pour finir, un autre phénomène utilisable pour convertir des peignes est le mélange à quatre ondes qui est un phénomène non-linéaire du troisième ordre. Celui-ci est en général obtenu dans une fibre optique et est alors assimilable à un phénomène d'instabilité de modulation que nous aborderons dans la partie suivante. Ici, le mélange à quatre ondes est dégénéré et le peigne à la fréquence ν_p joue le rôle de pompe, un laser continu à la fréquence ν_i joue le rôle d'idler et un signal à la fréquence ν_s peut être généré suivant la relation $2\nu_p - \nu_i = \nu_s$. Dans ce cas et contrairement au phénomène de GDF, le peigne possédera une largeur double. Notons que l'idler n'est pas nécessairement un laser continu mais peut aussi être un peigne. Sous ces conditions, il est possible que le phénomène se cascade et donc que le peigne converti joue par la suite le rôle de pompe, l'ancienne pompe le rôle d'idler, et donc qu'il y ait création d'un quatrième peigne à $3\nu_p - 2\nu_i$ [113, 114]. Notons également que ce phénomène est aussi possible dans des guides d'onde [115]. Ce phénomène sera décrit plus en détails dans le [chapitre 3](#) puisque nous l'utiliserons dans une expérience afin de convertir des peignes aux alentours de $2 \mu\text{m}$.

1.4.3.2 Accumulation du bruit de phase

Dans tout système physique, différentes sources de bruit peuvent être gênantes pour la stabilité d'un système mais aussi pour réaliser certaines applications. Ceci est en particulier vrai pour la génération de peignes de fréquences qui requiert un bruit de phase relativement faible. En effet, sachant qu'un peigne est le résultat de l'interférence entre un ensemble d'impulsions, si celles-ci présentent individuellement une fluctuation aléatoire de la phase trop importante (c'est à dire un bruit de phase élevé), alors le spectre ne pourra révéler une structure en forme de peigne. Pour être plus précis, toute source de bruit va restreindre un peigne à acquérir sa forme idéale qui est un ensemble de Diracs. Plus le bruit est important, et plus les dents du peigne se retrouveront élargies [116, 117].

Pour mettre en évidence ce phénomène, reprenons l'équation (1.1) où nous avons considéré un train d'impulsions idéal sans sources de bruit. La forme du train peut être adaptée pour prendre en compte plusieurs sources de bruit telles qu'un bruit en amplitude ΔA_0 , un bruit de phase ψ , ou encore un bruit associé à la période de répétition ΔT (auss appelé jitter temporel). En effectuant ces changements dans l'équation (1.1), la forme du train d'impulsions devient alors :

$$f(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} ((A_0 + \Delta A_0(t))a(t) \cos(\omega_p t - n\varphi)) * \delta(t + nT + \Delta T(t))e^{i\psi(t)} \quad (1.57)$$

où a est l'enveloppe normalisée de l'impulsion définie sans bruit d'amplitude et dans ce cas, telle que $A(t) = A_0 a(t)$. Pour les lasers à modes bloqués conventionnels, toutes ces sources de bruit doivent être prises en compte [116, 117]. Dans le cas de la génération de peignes avec des MEOs, le bruit de phase est la contribution la plus importante, même si d'autres études telles que sur le jitter temporel ont été rapportées [118, 119].

Si uniquement le bruit de phase est pris en compte, l'équation précédente peut être simplifiée et nous avons alors :

$$f(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} ((A(t) \cos(\omega_p t - n\varphi)) * \delta(t + nT))e^{i\psi(t)} \quad (1.58)$$

Dans ce cas, tel que démontré à la référence [116], la densité spectrale de puissance S peut être obtenue et nous avons :

$$S(\omega) = \frac{|\tilde{A}(\omega - \omega_p)|^2}{T^2} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{2\Delta\omega_l}{(\omega - \omega_n)^2 + \Delta\omega_l} \quad (1.59)$$

où $\Delta\omega_l$ est la largeur d'une dent du peigne dépendante de ψ et $\omega_n = n\omega_r + \omega_0$ comme défini précédemment. En conséquence, le peigne prend une forme qui dévie de la forme idéale d'un ensemble de Diracs, celle-ci devenant un ensemble de raies lorentziennes. Cette caractéristique d'élargissement des dents peut être très néfaste et ce, en particulier lorsqu'un élargissement spectral du peigne est requis car les nouvelles dents générées voient leur largeur augmenter avec leur indice n [120]. Si l'élargissement des dents devient trop important, c'est à dire si trop de bruit de phase s'accumule sur les nouvelles dents générées, le peigne perd alors sa structure car la cohérence se dégrade en n^2 [121, 122].

Ce problème d'accumulation du bruit de phase a été mis en évidence par ISHIZAWA *et al.* de manière théorique, et des mesures ont permis d'observer le phénomène [123]. Dans le cas d'un montage utilisant un MI, il est possible de mettre en évidence ce phénomène et d'observer ses conséquences. La Figure 1.20 montre l'exemple d'un élargissement spectral dans une fibre optique où un peigne de fréquences initialement généré avec un générateur RF possédant soit un haut ou un bas bruit RF. Le choix d'un haut bruit RF est fait en dégradant intentionnellement la partie électrique du montage, notamment en choisissant des paramètres non adaptés pour le générateur de tension sinusoïdale. Dans ce cas, nous pouvons observer que le peigne possède une structure qui n'est pas uniforme sur toute sa largeur spectrale (Figure 1.20a et Figure 1.20c), tandis que dans le cas où le générateur délivre un bas bruit RF, les dents du peigne peuvent être observées uniformément sur toute sa largeur (Figure 1.20b et Figure 1.20d).

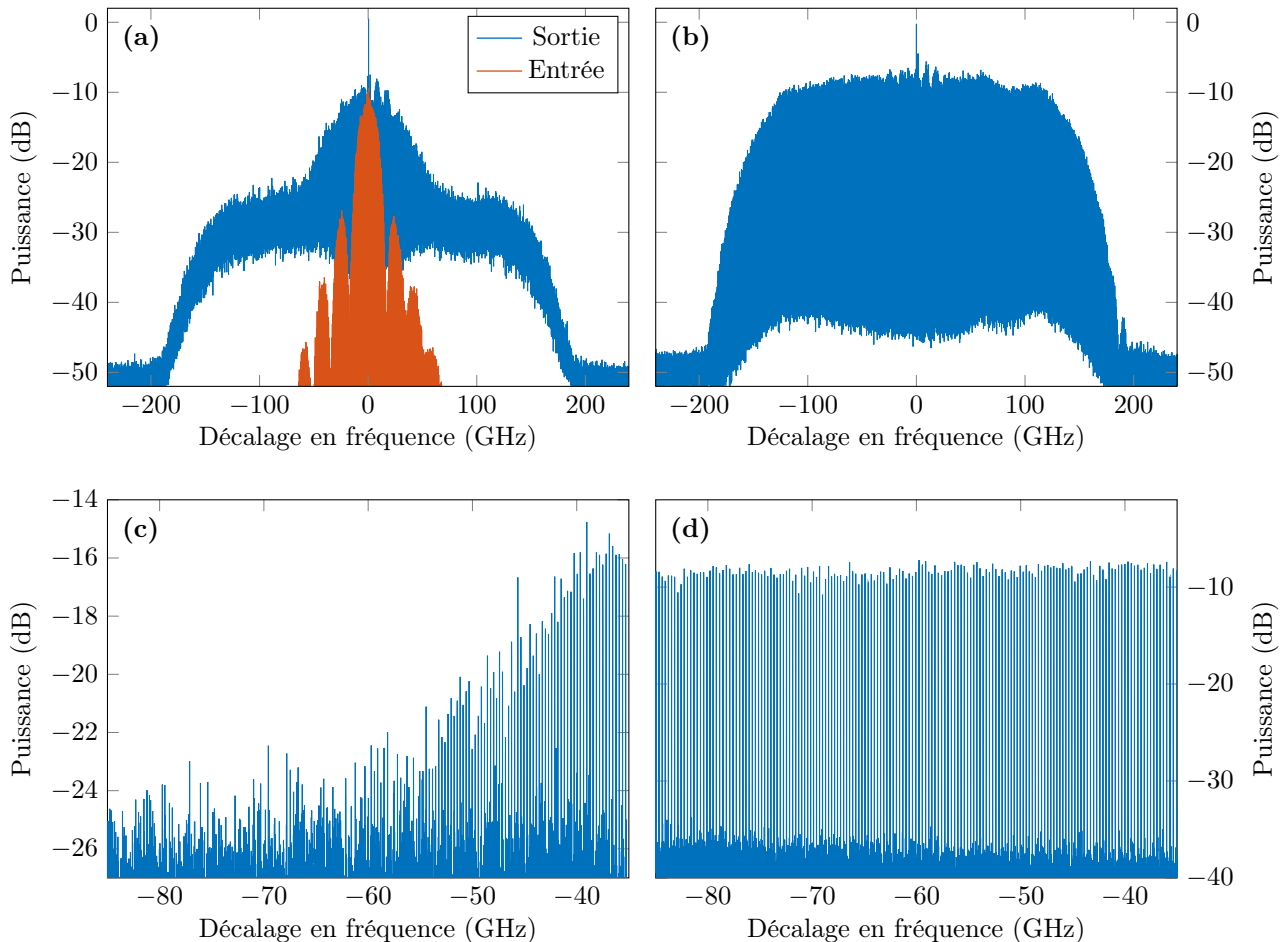


FIGURE 1.20 – Spectre optique enregistré avec une résolution de 5 MHz montrant l'élargissement spectral d'un peigne généré avec un modulateur d'intensité piloté par un générateur RF possédant un (a) haut et (b) bas bruit de phase. (c) et (d) sont des zooms respectifs de (a) et (b) montrant la structure du peigne de sortie et ses limitations.

De ces simples expériences et observations, il est clair que le bruit de phase joue un rôle important dans l'élargissement d'un peigne de fréquences. En conséquence, il convient de contrôler ce bruit et plusieurs solutions

ont été étudiées, notamment à base de rétro-contrôles sur la génération du peigne [121, 122, 124, 125]. Cependant, ces techniques sont relativement coûteuses en matériel (utilisation de cavités Pérot-Fabry par exemple) et complexes à mettre en place. Dans notre cas, pour des raisons de simplicité, nous ne mettrons pas en place de moyens particuliers pour éviter l'accumulation du bruit de phase, mais nous ferons attention à ce que celui-ci ne deviennent pas gênant pour les expériences que nous devons effectuer.

1.4.4 Applications et conclusion

Pour finir, citons quelques applications des peignes de fréquences générés par modulation électro-optique. Pour celles basées sur des montages utilisant un seul peigne, nous pouvons citer :

- La spectroscopie directe [126–128],
- La génération de formes arbitraires [129–135],
- La photonique et métrologie dans le domaine RF [100, 136, 137],
- Les télécommunications et le cloaking [138–141],
- La calibration de spectrographes [125, 142, 143].

Concernant les applications basées sur des montages à deux peignes de fréquences générés avec des MEOs, nous pouvons citer :

- La spectroscopie [72–74, 144–147],
- L'imagerie [49, 148–152],
- La mesure de distances [62, 76, 83, 153–159],
- Etc.

Nous pouvons en conclure que les peignes de fréquences générés avec des MEOs possèdent des domaines d'applications très variés, mais aussi que les montages à deux peignes ne sont pas réservés que pour la spectroscopie. Plus de détails concernant les peignes générés avec des MEOs et leurs applications potentielles sont disponibles sous la référence suivante : **Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic frequency combs”**. Dans : *Adv. Opt. Photon.* **12.1** (2020), p. 223–287 [97].

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu les fondamentaux concernant la génération de peignes de fréquences, les montages expérimentaux existants permettant de les générer, ainsi que les applications qu'il est possible d'effectuer avec ces spectres bien particuliers. Dans les applications, nous avons abordé une technique bien particulière basée sur des peignes permettant d'effectuer de la spectroscopie, dont les principes fondamentaux ont aussi été abordés. Parmi toutes les sources de peignes de fréquences existantes, les montages basés sur des modulateurs électro-optiques ont été détaillés, aussi bien dans leur fonctionnement que dans leur limites. Dans la suite de ce manuscrit, nous nous intéresserons en particulier au montage expérimental basé sur la génération de peignes mutuellement cohérents avec des modulateurs d'intensité pour effectuer de la spectroscopie. Le prochain chapitre s'intéresse principalement à la résolution d'un des problèmes de ce montage, la faible bande spectrale des peignes.

Chapitre 2

Propagation d'impulsions dans une fibre optique

Dans le chapitre précédent, nous avons vu comment définir un peigne de fréquences ainsi qu'une technique bien particulière permettant d'effectuer de la spectrométrie avec ces structures. Dans les montages associés, nous avons aussi vu qu'il pouvait être nécessaire d'élargir le spectre des peignes ce qui, en général, s'effectue dans une fibre optique. Ceci est en particulier vrai pour les peignes générés avec des MEOs étant donnée leur faible largeur spectrale. Dans cette partie, nous présentons donc certaines notions propres aux fibres optiques ainsi que quelques définitions pour appréhender les outils théoriques nécessaires à nos futures études. Le modèle principal permettant de décrire la propagation d'une impulsion dans une fibre optique ainsi que les paramètres et grandeurs physiques intervenants seront présentés ici. Cette partie n'est pas destinée à être exhaustive mais le lecteur pourra se reporter à la référence bibliographique du domaine pour de plus amples détails [25].

2.1 Équation de propagation dans une fibre optique

Considérons une impulsion se propageant suivant un axe z dans une fibre optique monomode. Cette impulsion est caractérisée par son champ électrique $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ dont l'enveloppe est supposée lentement variable par rapport aux variations rapides de l'onde porteuse (approximation SVEA). Il est supposé que les impulsions sont suffisamment intenses pour induire une réponse non-linéaire du matériau composant la fibre, c'est à dire que d'après les équations de Maxwell, l'équation de propagation de l'impulsion est donnée par :

$$\Delta \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \mathbf{A} = \mu_0 \partial_t^2 (\mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t)) \quad (2.1)$$

où les vecteurs \mathbf{P} sont respectivement les vecteurs polarisations linéaire et non-linéaire définis par le tenseur réponse du système. Pour \mathbf{P}_{NL} , la réponse non-linéaire peut être supposée comme étant quasi instantanée, approximation tout à fait valable pour des impulsions picosecondes, ce qui revient à négliger la diffusion Raman (nous reviendrons sur cet effet plus bas). Sous ces conditions, l'enveloppe lentement variable de l'impulsion $A(z, t)$, dans le repère se déplaçant à la vitesse de groupe de l'onde (z, t) , satisfait à l'équation suivante :

$$i \partial_z A + i \frac{\alpha}{2} A - \frac{\beta_2}{2} \partial_t^2 A + \gamma |A|^2 A = 0 \quad (2.2)$$

où β_2 est le coefficient de dispersion d'ordre 2 (en $s^2.m^{-1}$), γ est le coefficient non-linéaire ou coefficient Kerr (en $W^{-1}.m^{-1}$) et α est le coefficient d'absorption (en m^{-1}). L'équation (2.2) se nomme *équation de Schrödinger non-linéaire* (ESNL) de par sa ressemblance avec l'équation de Schrödinger en mécanique quantique [25].

L'ESNL (2.2) est toutefois une équation approchée qui convient dans la majeure partie des cas mais qui ne nous satisfera pas dans la suite de nos études. En effet, les effets de dispersion ne sont pris en compte que jusqu'au deuxième ordre, ce qui est assez réducteur pour les phénomènes comme l'instabilité de modulation que nous considérerons, notamment lorsque les spectres mis en jeu sont relativement étendus. De plus, même si nous utiliserons majoritairement des impulsions picosecondes, l'effet Raman n'est pas négligeable pour tout type de fibre, en particulier pour les fibres optiques hautement non-linéaires (FHNL). De fait, il convient mieux d'utiliser l'*équation de Schrödinger non-linéaire généralisée* (ESNLG) qui, comme son nom l'indique, est plus générale et est donnée par :

$$i \partial_z A + i \frac{\alpha}{2} A + \sum_{n=2}^{\infty} i^n \frac{\beta_n}{n!} \partial_t^n A + \gamma (1 - f_R) |A|^2 A + \gamma f_R A \int_0^{\infty} h_R(t') |A(z, t - t')|^2 dt' = 0 \quad (2.3)$$

où les β_n sont les coefficients de dispersion d'ordre n (coefficients issus du développement de Taylor de la constante de propagation β généralement effectué à la fréquence de la porteuse ω_p), h_R la fonction réponse Raman et f_R un paramètre qui mesure la contribution Raman par rapport à la non-linéarité totale. Notons que d'autres termes pourraient être rajoutés dans l'équation (2.3) ce qui permettrait de prendre en compte des effets comme l'auto-raïdissement [25]. Toutefois, ces effets non-linéaires d'ordre supérieur ne seront pas rencontrés dans nos expériences, ce qui fait que nous ne les aborderons pas.

La première caractéristique des équations (2.2) et (2.3) est qu'elles possèdent une contribution non-linéaire. Les puissances injectables dans une fibre font que ces contributions ne sont plus négligeables et celles-ci peuvent même, en pratique, concurrencer les effets linéaires. Regardons plus en détail les différentes contributions de l'ESNLG et leurs conséquences sur la propagation d'une impulsion.

2.1.1 Dispersion de la vitesse de groupe

Le membre $\sum_{n=2}^{\infty} i^n \frac{\beta_n}{n!} \partial_t^n A$ dans l'équation (2.3) correspond à la *dispersion de la vitesse de groupe*. Dans un milieu diélectrique, comme l'indice de réfraction n dépend en général des fréquences ω , alors celles-ci ne peuvent se propager à la même vitesse : c'est la *dispersion chromatique*. Elle est caractérisée par une grandeur D (en s.m⁻²) définie par :

$$D(\lambda) = \frac{\lambda}{c} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \quad \text{et reliée aux coefficients } \beta_n \text{ d'après} \quad D(\omega) = -\frac{\omega^2}{2\pi c} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\beta_{n+2}}{n!} (\omega - \omega_p)^n \quad (2.4)$$

où λ est la longueur d'onde associée à ω , ω_p est la fréquence à laquelle les coefficients β_n sont déterminés et c la vitesse de la lumière dans le vide. En conséquence, les fréquences vont se disperser lors de leur propagation dans la fibre. La dispersion est dite normale si $\beta_2 > 0$ et anormale si $\beta_2 < 0$. Dans le cas normal, les basses fréquences (« rouges ») vont se propager plus vite que les hautes (« bleues »), ce qui implique que les basses fréquences vont se retrouver en avant de l'impulsion tandis que les hautes en arrière : il y a un glissement de fréquences, c'est à dire naissance d'un *chirp* $\delta\omega$ induit par la dispersion de la vitesse de groupe. Celui-ci est défini par :

$$\delta\omega = -\partial_t \phi \quad (2.5)$$

où ϕ est la phase temporelle de l'impulsion. Dans le cas anormal, ce sont les hautes fréquences qui se propagent plus vite que les basses mais dans les deux cas, le spectre ne va pas changer, seule la forme de l'impulsion va être affectée. En effet, la vitesse de groupe v_g étant définie par $v_g = \partial_{\beta\omega} = \beta_1^{-1}$, deux fréquences voisines ne vont donc pas voir la même vitesse de groupe. Il y aura alors une dispersion de la vitesse de groupe et l'impulsion va s'étaler temporellement [25].

Il est possible de définir une longueur caractéristique à partir de laquelle les effets dispersifs agissent significativement. C'est la *longueur de dispersion* L_D définie par :

$$L_D = \frac{\delta_0^2}{|\beta_2|} \quad (2.6)$$

où δ_0 est la demi-largeur temporelle à e^{-1} du maximum d'intensité de l'impulsion.

La Figure 2.1 montre l'effet de la dispersion de la vitesse de groupe sur le profil temporel d'une impulsion gaussienne de largeur initiale $\delta_0 = 10$ ps après 10 km de fibre supposée purement dispersive. Nous pouvons constater qu'après propagation dans la fibre, le profil temporel est plus large d'un facteur 2 environ. Nous pouvons aussi constater qu'après propagation, la puissance crête a diminuée, ici aussi d'un facteur d'environ 2. Ceci n'est pas une coïncidence car ces facteurs sont en réalité les mêmes. L'absence de pertes fait qu'il y a conservation de l'énergie, or l'énergie d'une impulsion étant égale au produit largeur temporelle fois la puissance crête, si l'une de ces quantités diminue/augmente alors la deuxième quantité augmente/diminue naturellement. De plus, la fibre ayant été supposée purement dispersive, l'équation de propagation est alors l'ESNLG sans le terme de perte et de non-linéarité :

$$i\partial_z A + \sum_{n=2}^{\infty} i^n \frac{\beta_n}{n!} \partial_t^n A = 0 \quad . \quad (2.7)$$

Cette équation se résout en passant dans le domaine fréquentiel par TF et la solution est donnée par :

$$A(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{\mathbb{R}} \tilde{A}(z=0, \Omega) \exp\left(\sum_{n=2}^{\infty} i^{n-1} \frac{\beta_n}{n!} \Omega^n z - i\Omega t\right) d\Omega \quad (2.8)$$

ce qui montre que dans le domaine spectral, nous avons :

$$|\tilde{A}(z, \Omega)|^2 = |\tilde{A}(z=0, \Omega)|^2 \quad (2.9)$$

c'est à dire conservation du profil spectral au cours de la propagation. Nous pouvons en conclure que dans un régime purement dispersif, seul le profil temporel se retrouve modifié.

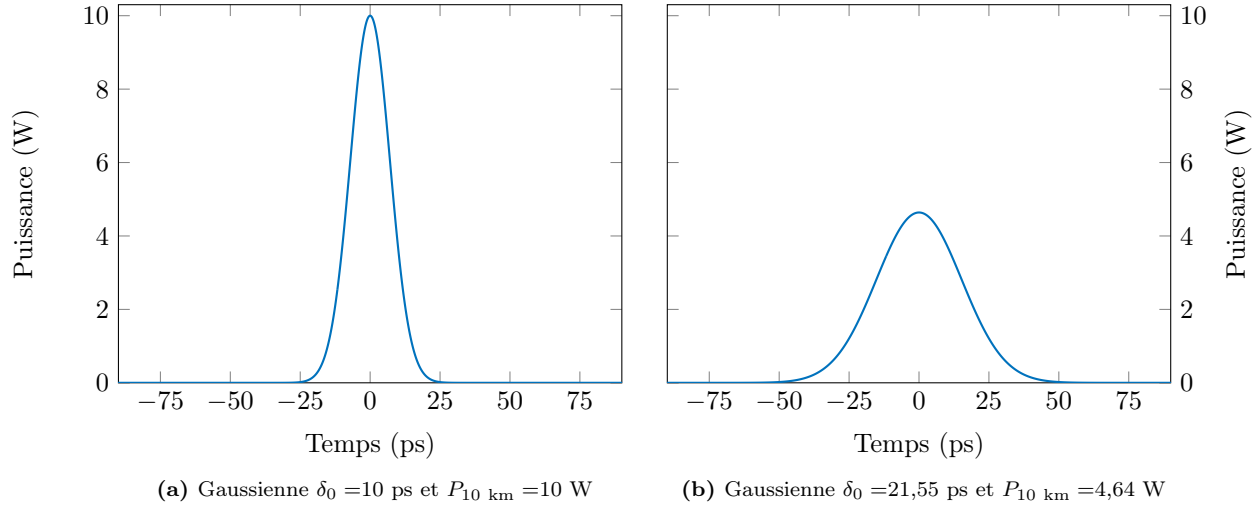


FIGURE 2.1 – Graphiques présentant une impulsion gaussienne respectivement avant et après propagation dans une fibre optique ($D = -14,970$ ps.nm $^{-1}$.km $^{-1}$ à 1550 nm) de 10 km supposée purement dispersive. Les effets non-linéaires et les pertes ont été négligés pour isoler la contribution liée uniquement aux effets de dispersion de la vitesse de groupe.

2.1.2 Atténuation linéaire

Le terme $\frac{1}{2}i\alpha A$ quantifie l'atténuation en puissance dans la fibre due à l'absorption du signal par le matériau, c'est à dire les pertes linéiques lors de la propagation. Nous considérons ici une fibre optique faite de silice, c'est à dire le matériau le plus couramment utilisé pour la conception de fibres. Deux phénomènes physiques sont en majeure partie responsables de cette absorption. Le premier est la *diffusion Rayleigh* due à l'interaction photons-électrons et qui se modélise, en dB.km $^{-1}$, suivant la relation :

$$\alpha_{\text{Ray}} = 1,7 \left(\frac{0,87}{\lambda(\mu\text{m})} \right)^4 \quad (2.10)$$

Le deuxième phénomène est l'*absorption infrarouge* due à l'interaction photons-phonons, qui se modélise, en dB.km $^{-1}$, suivant la relation :

$$\alpha_{\text{IR}} = 7,81 \times 10^{11} \exp\left(\frac{-48,48}{\lambda(\mu\text{m})}\right) \quad (2.11)$$

Nous obtenons donc l'atténuation totale de la silice donnée par $\alpha = \alpha_{\text{ray}} + \alpha_{\text{IR}}$. La [Figure 2.2](#) montre les allures typiques des différentes contributions en fonction de la longueur d'onde ainsi que l'absorption totale. Nous pouvons remarquer que l'absorption atteint un minimum de 0,2 dB.km $^{-1}$ aux alentours de 1,55 μm , ce qui fait de cette plage spectrale un choix privilégié pour les télécommunications. Au dessus de 1,55 μm , l'absorption augmente en fonction de la longueur d'onde pour atteindre 20 dB.km $^{-1}$ à 2 μm . Au delà de 2 μm , la silice devient de moins en moins transparente et devient même opaque à 2,3 μm , rendant impossible la propagation.

D'autres contributions peuvent donner lieu à des pertes lors de la propagation d'un signal dans une fibre comme l'absorption ultraviolet ou les impuretés de la fibre. Pour ces dernières, l'exemple le plus contraignant est la présence de molécules avec une liaison OH, en particulier à cause de l'eau omniprésente dans l'environnement qui s'incruste dans les matériaux destinés à la conception de fibres. Selon la concentration, des pics d'absorptions intenses entre 1,2 μm et 1,4 μm peuvent être observés mais les progrès technologiques en matière de conception de fibres font qu'il est désormais possible de s'en affranchir.

2.1.3 Auto-modulation de phase

Comme déjà mentionné, les impulsions injectées dans une fibre peuvent être relativement puissantes. Les effets non-linéaires ne sont alors plus négligeables et le terme $\gamma |A|^2 A$ dans l'ESNL (2.2) va apparaître, induisant

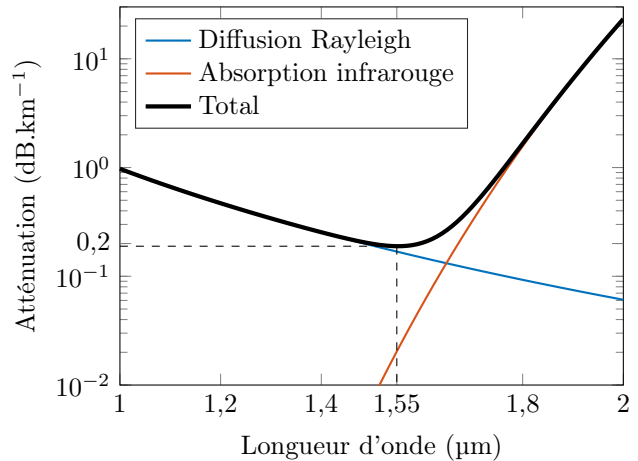


FIGURE 2.2 – Graphique illustrant les contributions majoritaires induisant une atténuation dans une fibre optique en silice en fonction de la longueur d'onde. Le minimum se situe aux alentours de 1550 nm pour 0,2 dB.km $^{-1}$.

le phénomène d'*auto-modulation de phase* (AMP). Comme vu plus haut dans l'équation de propagation (2.1), les intenses impulsions qui se propagent dans la fibre vont provoquer une réponse optique du milieu par une polarisation non-linéaire. Celle-ci va entraîner une dépendance de l'indice de réfraction de la fibre à l'intensité du champ électrique, c'est l'*effet Kerr* temporel et l'indice de réfraction peut alors s'écrire sous la forme :

$$n(\lambda, |A|^2) = n_0(\lambda) + n_2 |A|^2 \quad (2.12)$$

où n_0 est l'indice de réfraction linéaire et n_2 l'indice de réfraction non-linéaire (en $\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$). La valeur de ce dernier paramètre dépend de la longueur d'onde, du type de fibre, et est difficilement mesurable avec précision. En effet, différentes techniques de mesure donnent différents résultats, et dans le cas d'une fibre standard à 1550 nm, n_2 possède une valeur comprise entre $2,2 \times 10^{-20}$ et $2,7 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [25]. n_2 est relié au coefficient Kerr par la relation :

$$\gamma = \frac{2\pi n_2}{\lambda A_{\text{eff}}} \quad \text{avec} \quad A_{\text{eff}} = \frac{\left(\iint_{\mathbb{R}^2} |A(x, y)|^2 dx dy \right)^2}{\iint_{\mathbb{R}^2} |A(x, y)|^4 dx dy} \quad (2.13)$$

où A_{eff} est l'aire effective de la fibre associée au mode spatial de fonction $A(x, y)$. Dans le cas d'une fibre monomode, $A(x, y)$ est une gaussienne de largeur à mi-hauteur w (dont la valeur est proche du diamètre du cœur de la fibre) et l'aire effective vaut alors $A_{\text{eff}} = \frac{\pi w^2}{4 \ln(2)}$.

Lors de la propagation, les impulsions vont donc modifier localement l'indice de réfraction de la fibre ce qui va induire une modification de la phase instantanée ϕ_i de l'onde : il y a une modulation de la phase de l'impulsion par l'impulsion, une auto-modulation. La fréquence instantanée ω_i étant donnée par $\omega_i = -\partial_t \phi_i$, la modification de ϕ_i va donc entraîner une modification des fréquences ω_i . Il y aura alors une création de fréquences et le spectre va naturellement s'élargir tandis que le profil temporel reste inchangé [25]. En effet, l'équation de propagation dans une fibre purement non-linéaire est alors l'ESNLG sans le terme de perte et dispersion :

$$i\partial_z A + \gamma |A|^2 A = 0 \quad (2.14)$$

dont la solution est donnée par :

$$A(z, t) = A(z = 0, t) \exp\left(i\gamma |A|^2 z\right) \quad (2.15)$$

ce qui montre que le profil temporel est invariant au cours de la propagation. Toutefois, la phase de l'impulsion est modifiée lors de la propagation d'une grandeur $\gamma |A|^2 z$ ce qui induit une création de fréquences dans le spectre.

De la même manière que la longueur de dispersion, il est possible de définir une longueur caractéristique à partir de laquelle les effets non-linéaires agissent significativement. C'est la *longueur non-linéaire* L_{NL} définie par :

$$L_{\text{NL}} = \frac{1}{\gamma P_0} \quad (2.16)$$

où P_0 est la puissance crête de l'impulsion injectée dans le milieu.

La Figure 2.3 montre l'effet d'AMP sur le profil spectral d'une impulsion gaussienne de largeur totale à mi-hauteur initiale $\Delta\nu = 26,5$ GHz et de puissance crête 100 W après 50 m de fibre supposée purement non-linéaire. Nous pouvons constater qu'après propagation dans la fibre, la largeur totale à mi-hauteur du spectre s'est élargi d'un facteur de plus de 10.

2.1.4 Effet Raman

Pour finir, le terme $\gamma f_{\text{R}} A \int_0^\infty h_{\text{R}}(t') |A(z, t - t')|^2 dt'$ dans l'équation (2.3) correspond à la contribution Raman dont l'existence a déjà été mentionnée mais dont l'effet n'a pas encore été expliqué. L'effet Raman est un phénomène de diffusion inélastique d'un photon venant de la lumière injectée dans la fibre avec les molécules du matériau. Plus précisément, la diffusion Raman correspond à l'absorption d'un photon par le matériau qui n'est pas ré-émis avec toute son énergie : l'énergie manquante est convertie en phonon par excitation vibrationnelle des molécules du matériau.

Dans le cas d'une fibre optique en silice, l'énergie manquante correspond en majeure partie à une perte d'énergie associée à un décalage en fréquence de 13,2 THz. Toutefois, la réponse Raman de la silice h_{R} est complexe et ne possède pas d'expression analytique, mais des formes approchées peuvent être utilisées [25, 160]. Une des formes la plus couramment utilisée de h_{R} est la suivante :

$$h_{\text{R}}(t) = (1 - f_b) (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \tau_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right) + \frac{f_b}{\tau_b^2} (2\tau_b - t) \exp\left(-\frac{t}{\tau_b}\right) \quad (2.17)$$

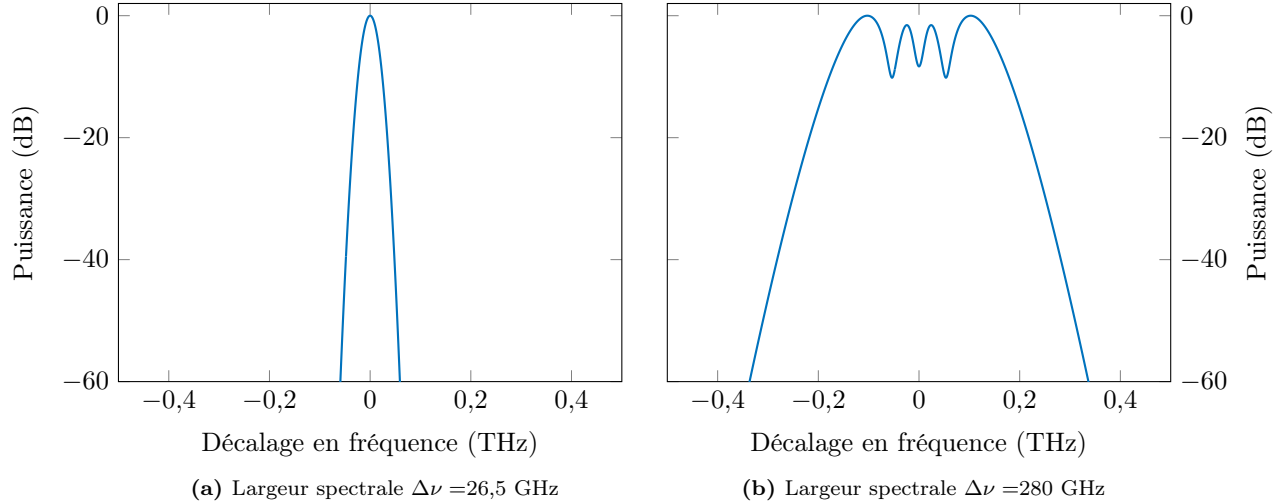


FIGURE 2.3 – Graphiques présentant le spectre optique d’une impulsion gaussienne de puissance crête initiale $P_0 = 100$ W respectivement avant et après propagation dans une fibre ($\gamma = 2,22 \text{ W}^{-1} \cdot \text{km}^{-1}$ à 1550 nm) de 50 m. Les effets linéaires ont été négligés pour isoler la contribution liée uniquement à l’auto-modulation de phase.

où $\tau_1 = 12,2$ fs, $\tau_2 = 32$ fs, $\tau_b = 96$ fs, $f_b = 0,21$ et $f_R = 0,245$. τ_1 et τ_2 sont des constantes reliées à l’approximation que l’effet Raman est lié à la vibration des molécules de silice à une fréquence unique, et τ_b et f_b sont des constantes reliées à la présence d’un pic boson, caractéristique des matériaux amorphes. Notons que dans l’ESNLG (2.3), $h_R(t)$ est normalisée de sorte que $\int_0^\infty h_R(t) dt = 1$.

La Figure 2.4a montre la forme de h_R dans le domaine temporel mais il peut être intéressant d’étudier la réponse Raman dans le domaine spectral \tilde{h}_R avec $\tilde{h}_R(\omega) = \mathcal{F}_\omega(\Theta(t)h_R(t))$ où Θ est la distribution d’Heaviside. La Figure 2.4b montre la partie imaginaire et la partie réelle de \tilde{h}_R . La partie imaginaire de \tilde{h}_R est directement liée au gain Raman et montre la présence d’un pic important aux alentours de 13,2 THz. Expérimentalement parlant, l’effet Raman dans une fibre en silice conduira à la création d’une bande située à 13,2 THz du signal injecté. Cet effet peut être néfaste puisqu’une partie de l’énergie du signal injecté dans la fibre peut se perdre. De plus, lorsque l’effet Raman naît du bruit (effet Raman spontané), celui-ci peut entraîner des instabilités dans les impulsions puisque les composantes spectrales générées sont alors incohérentes. Ceci est en particulier vrai si la bande Raman générée se retrouve en dispersion anormale. Dans ce cas, si la bande a une puissance suffisante, elle peut alors générer de l’instabilité de modulation (nous aborderons cet effet plus bas). Notons

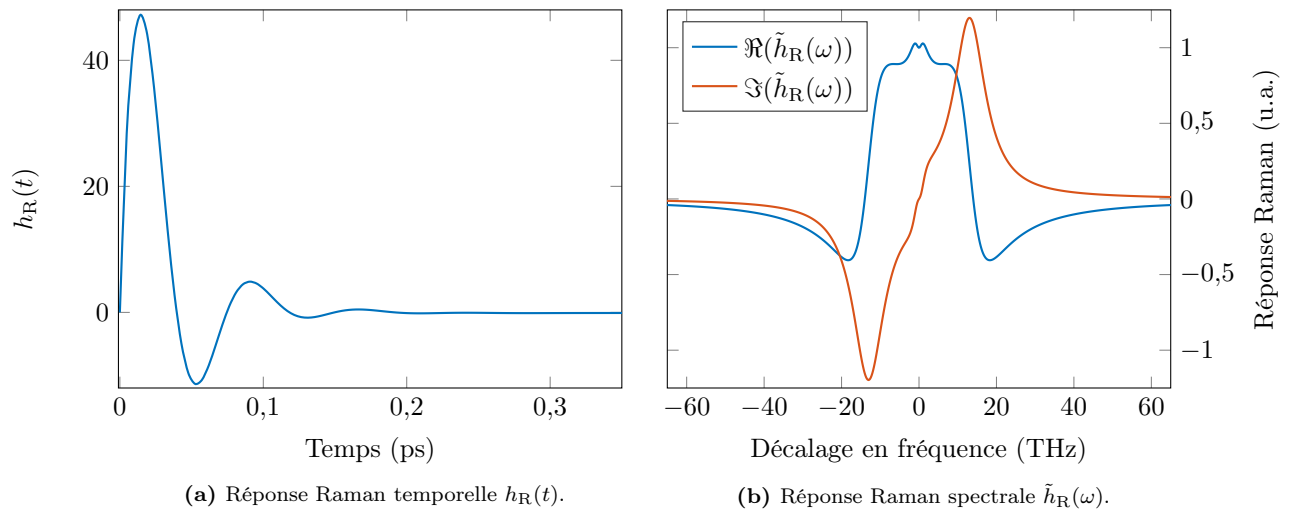


FIGURE 2.4 – Graphiques représentant, pour une fibre optique en silice, une approximation de la réponse Raman dans le domaine temporel donnée par l’équation (2.17) et spectral. La réponse temporelle montre la non-instantanéité de l’effet Raman, tandis que la réponse spectrale montre, en particulier avec sa partie imaginaire, les décalages en fréquences qui sont plus ou moins susceptibles de subir un gain.

aussi que si la bande Raman est assez puissante, elle peut aussi induire son propre effet Raman : il est dit que l'effet Raman se cascade. En dispersion anormale, une cascade Raman naissante du bruit et accompagnée d'instabilité de modulation va alors créer un supercontinuum incohérent, ce qui peut affecter le signal initial si rien n'est fait pour le contrôler. Dans toutes les expériences que nous effectuerons, il convient donc de vérifier que l'effet Raman n'est pas néfaste.

Pour terminer sur l'effet Raman, notons que pour des impulsions sub-picoseconde, c'est à dire des impulsions avec des spectres larges, les hautes fréquences peuvent induire un gain sur les basses fréquences par effet Raman. Ceci se manifeste par un décalage du spectre vers les basses fréquences, car l'énergie de l'impulsion se transfère des hautes vers les basses fréquences. Cet effet de décalage par effet Raman est nommé *effet Raman intra-impulsion*, mais nous ne serons pas concerné par celui-ci étant donné que les impulsions que nous utiliserons seront bien trop longues pour observer cet effet.

2.1.5 Simulation numériques

Dans les sections précédentes, nous avons effectué quelques simulations numériques permettant de calculer le champ A en sortie d'une fibre optique afin de mettre en évidence les effets des différentes contributions de l'ESNLG (2.3). Dans la suite de ce manuscrit, nous réaliserons d'autres simulations numériques afin d'essayer de prévoir les résultats de nos expériences, mais aussi pour vérifier que les paramètres choisis (longueur de fibre, puissance crête initiale, etc.) sont bons et que les effets parasites comme l'effet Raman ne sont pas gênants. Ces simulations numériques sont réalisées grâce à la technique suivante que nous décrivons mathématiquement en premier lieu.

L'ESNLG (2.3) peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\partial_z A = (\hat{L} + \hat{N})A \quad (2.18)$$

où \hat{L} et \hat{N} représentent respectivement un opérateur linéaire et non-linéaire définis par [25, 161] :

$$\hat{L} = \sum_{n=2}^{\infty} i^{n+1} \frac{\beta_n}{n!} \partial_t^n - \frac{\alpha}{2} \quad \text{et} \quad \hat{N} = i\gamma(1 - f_R) |A|^2 + i\gamma f_R \mathcal{F}_\omega^{-1} \left(\tilde{h}_R(\omega) \mathcal{F}_\omega \left(|A|^2 \right) \right) \quad (2.19)$$

La solution de l'équation (2.18) à la sortie d'une fibre de longueur l peut être calculée numériquement en utilisant le fait qu'il existe une solution exacte de l'équation (2.18) à une distance $z + h$ donnée par :

$$A(z + h, t) = \exp \left(h(\hat{L} + \hat{N}) \right) A(z, t) \quad (2.20)$$

Étant donné que \hat{L} et \hat{N} sont des opérateurs qui ne commutent pas forcément, le développement de la dernière équation doit être fait en utilisant la formule de Zassenhaus qui nous donne que :

$$\exp \left(h(\hat{L} + \hat{N}) \right) = \exp \left(h\hat{L} \right) \exp \left(h\hat{N} \right) \exp \left(-\frac{h^2}{2} [\hat{L}; \hat{N}] \right) \exp \left(\frac{h^3}{6} \left(2[\hat{N}; [\hat{L}; \hat{N}]] + [\hat{L}; [\hat{L}; \hat{N}]] \right) \right) \dots \quad (2.21)$$

où $[\ ; \]$ est l'opérateur commutateur. De ce développement, nous remarquons que des conditions particulières sur h peuvent nous permettre de faire l'approximation suivante :

$$\exp \left(h(\hat{L} + \hat{N}) \right) \approx \exp \left(h\hat{L} \right) \exp \left(h\hat{N} \right) \quad (2.22)$$

ce qui serait très avantageux pour effectuer des calculs numériques et ainsi obtenir le champ à la distance $z + h$. En effet, plus le pas h est petit et plus les produits en puissance de h élevée de l'équation (2.21) tendent vers 1. Nous pouvons donc en conclure que plus h est petit, et plus l'erreur associée à l'approximation faite dans l'équation (2.22) sera petite. Une conséquence de cette approximation est qu'elle nous permet de considérer que les effets linéaires et non-linéaires agissent indépendamment sur la distance h . Concernant le choix de h pour l'application numérique, celui-ci dépend généralement des conditions de l'expérience. Toutefois, il est possible de choisir une définition comme la suivante :

$$h = \min(L_{NL}; L_D) \times 10^{-3} \quad .$$

En effet, une telle condition relative aux longueurs caractéristiques linéaires et non-linéaires permet de contrôler le pas h relativement à l'approximation recherchée de l'agissement indépendant entre les effets linéaires et non-linéaires. Ce choix permet de garder un temps de simulation relativement court et d'obtenir une erreur suffisamment faible, mais suivant la simulation à effectuer, il peut être utile de revoir cette définition.

Après avoir choisi un pas h adapté, le calcul de $A(z+h, t)$ se fait alors en deux étapes. La première consiste à traiter les effets linéaires en passant dans le domaine spectral. En effet, nous avons vu que les phénomènes de dispersion, lorsqu'ils étaient considérés seuls, pouvaient être traités dans le domaine spectral et que la résolution de l'équation (2.7) possède une solution exacte qui consiste en l'ajout d'une phase. Nous avons donc :

$$A(z+h, t) \approx \mathcal{F}_\omega^{-1} \left(\exp \left(i \left(\sum_{n=2}^{\infty} \frac{\beta_n}{n!} \omega^n + i \frac{\alpha}{2} \right) h \right) \mathcal{F}_\omega \left(\exp(h\hat{N}) A(z, t) \right) \right) . \quad (2.23)$$

La deuxième étape consiste à traiter les effets non-linéaires dans le domaine temporel. Concernant ces effets, nous avons vu que lorsque uniquement l'effet Kerr est considéré, la résolution de l'équation (2.14) possède aussi une solution exacte qui consiste en l'ajout d'une phase. L'ajout de l'effet Raman ne complique pas le raisonnement lorsque celui-ci est traité de la manière dont nous l'avons écrit dans l'équation (2.19). Nous avons alors :

$$A(z+h, t) \approx \mathcal{F}_\omega^{-1} \left(\exp \left(i \left(\sum_{n=2}^{\infty} \frac{\beta_n}{n!} \omega^n + i \frac{\alpha}{2} \right) h \right) \mathcal{F}_\omega \left(\exp \left(i\gamma h \left((1-f_R) |A(z, t)|^2 + f_R \mathcal{F}_\omega^{-1} \left(\tilde{h}_R(\omega) \mathcal{F}_\omega \left(|A(z, t)|^2 \right) \right) \right) \right) A(z, t) \right) \right) \quad (2.24)$$

ce qui termine la méthode de calcul de $A(z+h, t)$. Cette technique de calcul du champ A pour une simulation numérique est appelée *transformée de Fourier à pas divisés* puisque à chaque pas h , des opérations par TF sont faites afin d'effectuer certains calculs dans le domaine le plus adapté. Pour obtenir le champ en sortie d'une fibre de longueur l , il suffit alors de répéter le calcul. En posant $l = mh + p$ avec $m \in \mathbb{N}$ et $p < h$, $A(z=l, t)$ s'obtient avec l'équation suivante :

$$A(z=l, t) = \exp(p\hat{L}) \exp(p\hat{N}) \left(\prod_{n=1}^m \exp(h\hat{L}) \exp(h\hat{N}) \right) A(z=0, t) \quad (2.25)$$

et chaque produit se calcule en utilisant l'équation (2.24) adapté à la position considérée.

Notons que la technique de TF à pas divisés est la technique la plus simple de résolution de l'ESNLG (2.3). De fait elle est donc facilement améliorable et optimisable pour des simulations nécessitant un long temps de calcul. Un exemple de code numérique en langage MATLAB permettant de résoudre l'ESNLG (2.3) par TF à pas divisés est placé à l'Annexe A.

2.2 Phénomènes physiques couplés dans les fibres

Jusqu'à présent, nous avons traité de façon découplée les effets linéaires et non-linéaires. Cependant, les deux contributions sont rarement séparées et il faut alors considérer l'ensemble, c'est à dire un couplage entre les deux effets. En tenant compte de l'interaction entre dispersion et effet Kerr, de nouveaux phénomènes peuvent apparaître, comme celui de l'*instabilité de modulation* que nous abordons maintenant.

2.2.1 Instabilité de modulation

2.2.1.1 Présentation du phénomène

L'instabilité de modulation est un phénomène non-linéaire et dispersif apparaissant aussi bien dans les fibres optiques qu'en hydrodynamique ou encore les condensats de Bose-Einstein [162, 163]. Plus généralement, celui-ci est relié à la description de la propagation d'une onde par l'ESNLG (2.3). Ce phénomène montre que sous certaines conditions, que nous verrons plus bas, une faible perturbation associée à un champ appelé *pompe* peut être amplifiée avec un gain non négligeable. Cette amplification s'étend sur une certaine bande spectrale, et alors dénommée *bande de gain*, qui dépend des paramètres de la fibre utilisée et de la puissance de la pompe injectée.

Les sources de perturbation peuvent être naturelles comme le bruit quantique. Dans ce cas, l'instabilité de modulation est alors qualifiée de *spontanée*. La perturbation peut aussi être ajoutée par volonté expérimentale et l'instabilité de modulation est alors dite *induite*. Il est dit qu'il y a instabilité de modulation car la perturbation va moduler l'enveloppe temporelle de la pompe à une certaine fréquence et provoquer l'apparition de lobes dans le spectre, de nouvelles fréquences. Dans sa version la plus simple, ce phénomène peut être interprété comme un mélange à quatre ondes où l'accord de phase est réalisé par l'AMP et les effets dispersifs [25].

2.2.1.2 Démonstration analytique du phénomène

Dans cette partie, nous démontrons l'existence du phénomène d'instabilité de modulation en prenant en compte jusqu'à l'ordre 4 les effets de dispersion dans l'ESNLG (2.3), et en négligeant l'effet Raman. L'équation s'écrit alors :

$$i\partial_z A + \gamma |A|^2 A - \frac{\beta_2}{2} \partial_t^2 A - i \frac{\beta_3}{6} \partial_t^3 A + \frac{\beta_4}{24} \partial_t^4 A = 0 \quad . \quad (2.26)$$

Les solutions stationnaires de cette équation sont données par $A(z, t) = A_0 e^{i\gamma A_0^2 z}$. Pour mettre en évidence l'instabilité de modulation, nous effectuons une analyse de stabilité linéaire. Celle-ci consiste à considérer une perturbation $\varepsilon(z, t)$ au champ $A(z, t)$ et à étudier son comportement lorsque nous injectons le tout dans l'équation de propagation (2.26). Le champ considéré est donc de la forme suivante :

$$A(z, t) = (A_0 + \varepsilon(z, t)) e^{i\gamma A_0^2 z} \quad . \quad (2.27)$$

Nous avons :

$$\partial_z A = (i\gamma A_0^2 (A_0 + \varepsilon) + \partial_z \varepsilon) e^{i\gamma A_0^2 z} \quad ; \quad \partial_t^j A = e^{i\gamma A_0^2 z} \partial_t^j \varepsilon \quad (2.28)$$

et, en ne considérant que les termes de plus grand ordre en ε (suffisant pour notre étude) :

$$|A|^2 = (A_0 + \varepsilon)(A_0 + \varepsilon^*) = A_0^2 + A_0(\varepsilon + \varepsilon^*) + |\varepsilon|^2 \approx A_0^2 + A_0(\varepsilon + \varepsilon^*) \quad (2.29)$$

soit :

$$|A|^2 A \approx (A_0^2 + A_0(\varepsilon + \varepsilon^*))(A_0 + \varepsilon) e^{i\gamma A_0^2 z} \approx e^{i\gamma A_0^2 z} (A_0^3 + A_0^2(2\varepsilon + \varepsilon^*)) \quad . \quad (2.30)$$

En remplaçant le tout dans l'équation (2.26), en simplifiant par $e^{i\gamma A_0^2 z}$ et en regroupant les différents termes, nous obtenons :

$$\partial_z \varepsilon + i \frac{\beta_2}{2} \partial_t^2 \varepsilon - \frac{\beta_3}{6} \partial_t^3 \varepsilon - i \frac{\beta_4}{24} \partial_t^4 \varepsilon - i\gamma A_0^2 (\varepsilon + \varepsilon^*) = 0 \quad . \quad (2.31)$$

Relation de dispersion Nous cherchons la relation de dispersion associée à l'équation (2.31). Pour cela, nous considérons le cas général où ε s'écrit sous la forme suivante :

$$\varepsilon = u + iv \quad \text{avec} \quad u = u_0 \cos(\Omega t - Kz) \quad \text{et} \quad v = v_0 \sin(\Omega t - Kz) \quad . \quad (2.32)$$

En injectant l'équation (2.32) dans l'équation de propagation, en séparant partie réelle et imaginaire, nous obtenons le système suivant :

$$\begin{cases} \partial_z u - \frac{\beta_2}{2} \partial_t^2 v - \frac{\beta_3}{6} \partial_t^3 u + \frac{\beta_4}{24} \partial_t^4 v = 0 \\ \partial_z v + \frac{\beta_2}{2} \partial_t^2 u - \frac{\beta_3}{6} \partial_t^3 v - \frac{\beta_4}{24} \partial_t^4 u - 2u\gamma A_0^2 = 0 \end{cases} \quad . \quad (2.33)$$

D'après les expressions de u et v , le système (2.33) peut se mettre sous la forme suivante :

$$\begin{cases} K \frac{u_0}{v_0} + \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 - \frac{\beta_3}{6} \Omega^3 \frac{u_0}{v_0} + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 = 0 \\ K \frac{v_0}{u_0} + \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 - \frac{\beta_3}{6} \Omega^3 \frac{v_0}{u_0} + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 + 2\gamma A_0^2 = 0 \end{cases} \quad . \quad (2.34)$$

Celui-ci peut se mettre sous forme matricielle et les solutions non triviales sont données pour un wronskien nul, ce qui conduit à :

$$\begin{vmatrix} K - \frac{\beta_3}{6} \Omega^3 & \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 \\ \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 + 2\gamma A_0^2 & K - \frac{\beta_3}{6} \Omega^3 \end{vmatrix} = 0 \quad (2.35)$$

ce qui donne la relation de dispersion suivante :

$$K = \frac{\beta_3}{6} \Omega^3 \pm \sqrt{\left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 \right) \left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 + 2\gamma A_0^2 \right)} \quad . \quad (2.36)$$

Cas où K dispose d'une partie imaginaire Compte tenu de la forme de la relation de dispersion (2.36), K peut présenter une partie imaginaire sous certaines conditions. Dans ce cas, nous pouvons écrire $K = k + ik'$ avec $k = \Re(K)$ et $k' = \Im(K)$. La perturbation $\varepsilon(z, t)$ (2.32) peut alors s'écrire :

$$\varepsilon(z, t) = \frac{u_0 + v_0}{2} e^{i(\Omega t - Kz)} + \frac{u_0 - v_0}{2} e^{-i(\Omega t - Kz)} = \frac{u_0 + v_0}{2} e^{k'z} e^{i(\Omega t - kz)} + \frac{u_0 - v_0}{2} e^{-k'z} e^{-i(\Omega t - kz)} \quad (2.37)$$

et donc nous avons, peu importe le signe de k' , un terme croissant exponentiellement. Au final, nous pouvons dire que :

$$|\varepsilon(z, t)|^2 \propto e^{2|k'|z} \quad (2.38)$$

Autrement dit, si K dispose d'une partie imaginaire, la perturbation ε voit sa puissance croître d'un facteur $e^{2|k'|z}$: c'est le phénomène d'instabilité de modulation. Nous définissons le gain en puissance g tel que $g(\Omega) = 2|k'|$. L'étude de cette fonction, qui revient à étudier k' , nous permet notamment de savoir à quelle fréquence le gain est maximum. C'est ce que nous cherchons maintenant à connaître. Pour cela, nous posons :

$$f(\Omega) = \left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 \right) \left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 + 2\gamma A_0^2 \right) \quad \text{et} \quad h(\Omega) = \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 \quad (2.39)$$

ce qui aboutit à :

$$f(\Omega) = h(\Omega)(h(\Omega) + 2\gamma A_0^2) \quad (2.40)$$

La forme de K (2.36) nous montre que celle-ci présente une partie imaginaire si $f(\Omega) < 0$. Les minimums de f peuvent se trouver en étudiant les zéros de la fonction $\frac{\partial f}{\partial \Omega}$. Nous avons :

$$\frac{\partial f}{\partial \Omega} = \frac{\partial h}{\partial \Omega} (h(\Omega) + 2\gamma A_0^2) + h(\Omega) \frac{\partial h}{\partial \Omega} = 2 \frac{\partial h}{\partial \Omega} (h(\Omega) + \gamma A_0^2) \quad (2.41)$$

Les racines de $\frac{\partial f}{\partial \Omega}$ sont données par :

$$\frac{\partial h}{\partial \Omega} = 0 \quad \text{soit} \quad \Omega_0 = 0 \quad \text{et} \quad \Omega_1^2 = -6 \frac{\beta_2}{\beta_4} \quad (2.42)$$

ou bien :

$$h(\Omega) + \gamma A_0^2 = 0 \quad \text{soit} \quad \frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + \frac{\beta_4}{24} \Omega^4 + \gamma A_0^2 = 0 \quad (2.43)$$

Les solutions de (2.43) sont données par :

$$\Omega_{\pm}^2 = \frac{24}{2\beta_4} \left(-\frac{\beta_2}{2} \pm \sqrt{\frac{\beta_2^2}{4} - 4 \frac{\beta_4}{24} \gamma A_0^2} \right) = \pm \frac{2}{\beta_4} \sqrt{9\beta_2^2 - 6\beta_4 \gamma A_0^2} - 6 \frac{\beta_2}{\beta_4} \quad (2.44)$$

En injectant les solutions trouvées dans f , nous avons pour la solution Ω_1 :

$$f(\Omega_1) = \frac{3}{2} \frac{\beta_2^2}{\beta_4^2} \left(\frac{3}{2} \beta_2^2 - 2\gamma A_0^2 \beta_4 \right) \quad (2.45)$$

Or $|\beta_2| \gg |\beta_4|$ et γA_0^2 est de l'ordre de l'unité donc $f(\Omega_1) > 0$, ce qui n'est pas souhaitable pour avoir K complexe. D'un autre côté, nous avons pour Ω_{\pm} :

$$f(\Omega_{\pm}) = -(\gamma A_0^2)^2 < 0 \quad (2.46)$$

Le gain en puissance à Ω_{\pm} étant indépendant de β_2 et β_4 , nous pouvons définir une fréquence optimale Ω_{opt} où le gain est maximum. Compte tenu de l'expression de Ω_{\pm} , nous avons :

$$\Omega_{\text{opt}} = \sqrt{\frac{2}{|\beta_4|} \sqrt{9\beta_2^2 - 6\beta_4 \gamma A_0^2} - 6 \frac{\beta_2}{\beta_4}} \quad (2.47)$$

De plus, nous pouvons calculer la largeur du gain $\Delta\Omega$ en recherchant les zéros de f qui sont donnés par :

$$\Omega_0^2 = -12 \frac{\beta_2}{\beta_4} \quad \text{et} \quad \Omega_1^2 = -6 \frac{\beta_2}{\beta_4} - \frac{12}{\beta_4} \sqrt{\frac{\beta_2^2}{4} - \frac{1}{3} \beta_4 \gamma A_0^2} \quad (2.48)$$

et la largeur du gain est alors donnée par $\Delta\Omega = \Omega_1 - \Omega_0$. Sous la condition que $\frac{\beta_4}{\beta_2^2} \gamma A_0^2 \ll 1$, la largeur peut être approximée par :

$$\Delta\Omega \approx \gamma A_0^2 \sqrt{\frac{-\beta_4}{3\beta_2^3}} \quad (2.49)$$

Comme nous avons considéré ici les effets de dispersion jusqu'à l'ordre 4, nous avons mis en évidence le phénomène d'*instabilité de modulation d'ordre 4* (IM4) [25, 164, 165].

Cas particulier de la restriction à β_2 Un cas particulier important est la restriction de la relation de dispersion (2.36) au coefficient β_2 (notons que les termes de dispersion impairs ne jouent aucun rôle dans l'apparition du phénomène d'instabilité de modulation). Celle-ci nous donne :

$$K = \pm \sqrt{\Omega^2 \frac{\beta_2}{2} \left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + 2\gamma A_0^2 \right)} = \pm \sqrt{f(\Omega)} \quad \text{avec} \quad f(\Omega) = \Omega^2 \frac{\beta_2}{2} \left(\frac{\beta_2}{2} \Omega^2 + 2\gamma A_0^2 \right) . \quad (2.50)$$

K dispose d'une partie imaginaire si $f(\Omega) < 0$. Étudions son signe, nous avons :

$$\frac{\partial f}{\partial \Omega} = \frac{\beta_2}{2} (2\beta_2 \Omega^3 + 4\gamma A_0^2 \Omega) = \beta_2 (\beta_2 \Omega^3 + 2\gamma A_0^2 \Omega) . \quad (2.51)$$

Les racines de $\frac{\partial f}{\partial \Omega}$ sont donc données pour $\Omega = 0$ ou bien pour :

$$\beta_2 \Omega^2 + 2\gamma A_0^2 = 0 \quad \text{soit} \quad \Omega_1^2 = -\frac{2\gamma A_0^2}{\beta_2} . \quad (2.52)$$

Si $\beta_2 > 0$ alors Ω_1 n'est pas une solution physique (car fréquence imaginaire) et la seule solution est $\Omega = 0$. Dans ce cas, $\frac{\partial f}{\partial \Omega}$ est positive donc f est strictement croissante et compte tenu de son expression, la fonction est aussi positive. K ne dispose alors pas de partie imaginaire. Toutefois, si $\beta_2 < 0$ alors nous avons :

$$\Omega_1 = \sqrt{\frac{2\gamma A_0^2}{|\beta_2|}} \quad \text{et} \quad f(\Omega_1) = -(\gamma A_0^2)^2 . \quad (2.53)$$

K dispose alors d'une partie imaginaire et le gain maximal est obtenu à la fréquence Ω_1 : c'est le phénomène d'instabilité de modulation d'ordre 2 (IM2) [25]. Nous pouvons remarquer que l'IM2 apparaît uniquement en régime de dispersion anormale tandis que l'IM4 se manifeste en régime de dispersion normale.

La Figure 2.5 montre la forme typique des bandes de gain de l'IM2 et de l'IM4 pour une valeur de $|\beta_2|$ donnée. Bien que le gain maximal induit par IM2 et IM4 soit équivalent, une différence majeure apparaît au niveau de la position et de la largeur des bandes de gain : pour l'IM4, cette largeur est beaucoup plus fine que pour l'IM2. Ceci implique que pour une instabilité de modulation induite, une précision beaucoup plus importante est nécessaire afin qu'une perturbation soit sujette au gain. L'autre différence importante entre les deux phénomènes se situe au niveau de la position fréquentielle des bandes de gain. Comme il est possible de le voir sur la Figure 2.5, la seule prise en compte de la dispersion jusqu'à l'ordre 4 permet de disposer d'une bande de gain à plusieurs dizaines de THz de la pompe.

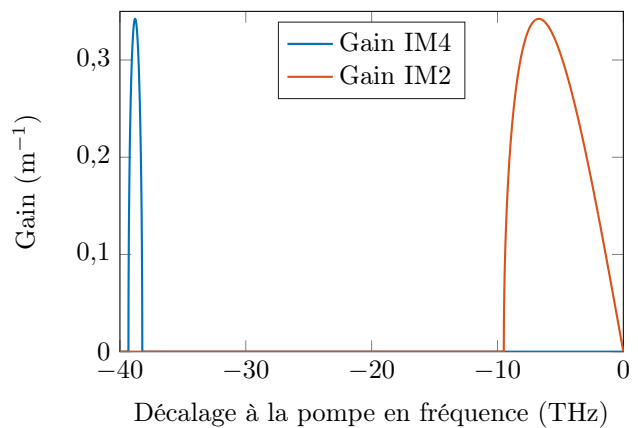


FIGURE 2.5 – Courbes de gain associées à l'IM2 et l'IM4 pour une pompe à $\lambda = 1560$ nm, avec les paramètres d'une fibre que nous utiliserons plus tard, présentés dans le Tableau 3.2 (l'opposé de β_2 a été considéré pour la bande de gain d'IM2).

2.2.2 Ondes de choc dispersives

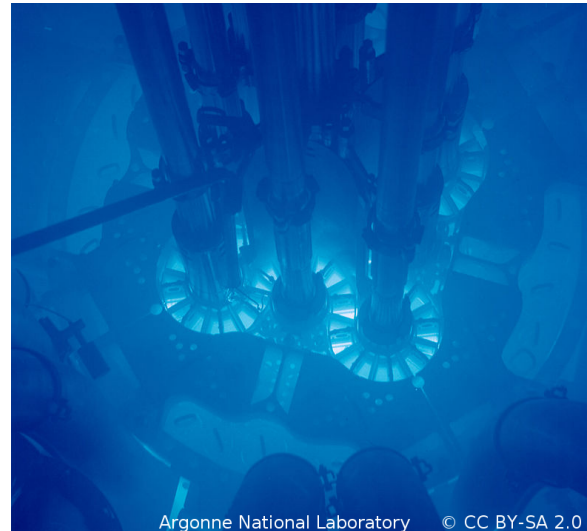
Un autre phénomène physique peut apparaître lors d'un couplage des contributions linéaires et non-linéaires. En tenant compte de l'interaction entre dispersion et effet Kerr, le phénomène d'ondes de choc dispersives peut survenir, ce que nous allons maintenant aborder.

2.2.2.1 Définition physique générale et origines du phénomène

Avant de considérer les ondes de choc dans les fibres optiques, commençons par définir ce qu'est une onde de choc. D'une manière générale, peu importe le domaine de la physique, *une onde de choc est le résultat de l'évolution d'une perturbation dans un fluide dont une de ses propriétés aux alentours de la perturbation présente une discontinuité*. Ces discontinuités peuvent être de différentes natures et les plus connues sont celles liées à la pression lors de propagation d'un objet dans un gaz. Ceci peut donner lieu à un bang supersonique ainsi qu'à la formation d'un nuage de condensation lors, par exemple, du passage du mur du son par une fusée comme le montre la Figure 2.6a. Un autre type de discontinuité peut être au niveau de la cohérence d'ondes EM émises dans un milieu, ce qui peut donner lieu à un effet Tcherenkov (ou « bang supraluminique ») lorsque des particules dépassent la vitesse de la lumière dans un milieu différent du vide, comme le montre la Figure 2.6b.



(a) Nuage de condensation créé autour d'une fusée Falcon 9 lors de son passage à vitesse supersonique.



(b) Lumière bleue générée dans la piscine d'un réacteur nucléaire par des particules supraluminiques dans l'eau.

FIGURE 2.6 – Photographies montrant deux exemples d'ondes de choc de différentes natures.

Mathématiquement parlant, la discontinuité d'une grandeur associée à l'onde de choc cache une « catastrophe du gradient », c'est à dire la divergence en un point du gradient de cette grandeur. Toutefois, une divergence mathématique est physiquement impossible à matérialiser, car la divergence d'une grandeur est reliée à un état qui tend à être multivalué. Par exemple, le profil d'intensité d'une impulsion en fonction du temps ne peut avoir plusieurs valeurs à un même temps donné, ceci reviendrait à dire qu'elle peut remonter le temps. De fait, un système physique évite ces divergences par des mécanismes de dissipation ou de viscosité qui forcent le système à se régulariser en lissant les variations trop abruptes qui peuvent naître [166–169].

2.2.2.2 Chocs dans les fibres

Dans les fibres optiques, la définition que nous avons vue ci-dessus peut être utilisée. En reprenant l'équation (2.2), nous avons vu qu'il existe des contributions linéaires et non-linéaires. Lorsque celles-ci sont du même ordre de grandeur, les effets de dispersion et d'AMP vont se combiner. Dans le cas d'une propagation dans une fibre en dispersion normale, le décalage par la dispersion des fréquences créées par AMP et situées au cœur de l'impulsion vont se retrouver piégées par les fréquences situées sous les ailes de l'impulsion. En effet, les basses et hautes fréquences générées par AMP vont respectivement se propager plus et moins vite que les composantes spectrales sous les ailes, qui sont de fréquences intermédiaires. À un certain point, un recouvrement temporel entre les différentes composantes spectrales du cœur et des ailes a lieu, ce qui laisse place à un phénomène d'interférences [170, 171]. C'est ici que se manifeste l'onde de choc puisqu'il y a création d'une discontinuité : l'effet combiné de l'AMP et de la dispersion fait que le profil de l'impulsion se déforme et ce façonnage tend à donner des flancs d'impulsions très raides, c'est à dire une discontinuité en intensité à un temps donné. La Figure 2.7 montre l'exemple d'un choc avec une impulsion gaussienne : au moment du choc, à $z = z_c$, les flancs de l'impulsion (aux alentours de ± 100 ps) présentent une pente qui tend à diverger. Pour éviter la naissance d'une discontinuité en intensité, le système physique se régularise entre autre par un phénomène d'interférences lié au recouvrement des fréquences créées par AMP et décalées par la dispersion, ce qui induit la création d'oscillations sur les flancs de l'impulsion comme il est

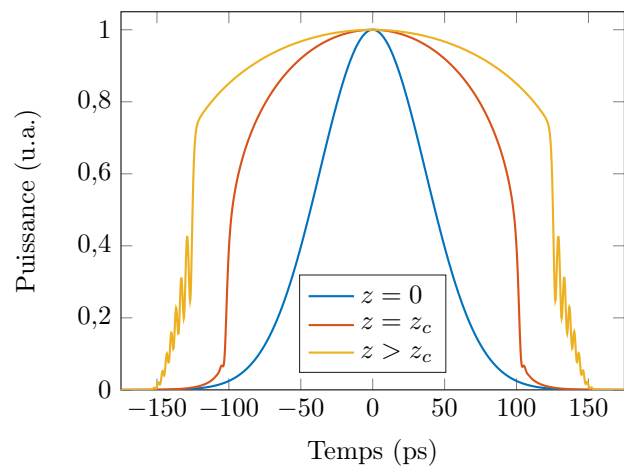


FIGURE 2.7 – Simulation par intégration numérique de l'ESNL du profil temporel d'une impulsion gaussienne (largeur de 50 ps avec 50 W de puissance crête initiale) lors d'une propagation dans une fibre DCF en dispersion normale. Les profils sont donnés à différentes distances de propagation : au début ($z = 0$), au choc ($z = z_c$) et au delà du choc ($z > z_c$).

possible de le voir sur la même figure que précédemment pour une distance supérieure au choc $z > z_c$ [25, 172].

Le type de choc que nous avons mis en évidence, nommé ondes de choc dispersives, est en particulier accentué si les impulsions présentent un fond continu de faible intensité [173, 174]. Notons aussi que des chocs associés à des discontinuités d'autres grandeurs, comme la phase, peuvent être observés dans les fibres optiques [175, 176].

2.2.3 Conclusion

Dans ces deux premières sections, nous avons posé de façon résumée les bases concernant la propagation d'une impulsion dans une fibre optique monomode. Il a été mis en évidence les deux principaux phénomènes qui vont modifier de manière significative le profil temporel, la dispersion de la vitesse de groupe, et le spectre de l'impulsion, l'AMP. Lorsque les deux contributions sont couplées, des phénomènes comme l'instabilité de modulation ou d'ondes de choc dispersives peuvent apparaître. Notons que pour ces deux derniers phénomènes, nous avons négligé l'implication de l'effet Raman pour des raisons purement expérimentales.

2.3 Élargissement spectral par ondes de choc dispersives

Revenons brièvement sur notre montage à deux peignes de fréquences générés par des MIs vu dans le chapitre précédent. Comme nous l'avons fait remarquer, en sortie d'un MI, le spectre des impulsions est relativement étroit ce qui ne permet pas d'effectuer de la spectroscopie sur une large bande. Il y a donc un besoin d'élargir le spectre et cela peut être fait grâce au phénomène d'ondes de choc dispersives que nous avons vu dans la section précédente. Commençons par regarder comment ce phénomène peut être exploité dans ce sens.

2.3.1 Exploitation du phénomène et caractéristiques

Le phénomène d'ondes de choc dispersives a la particularité de survenir en régime de dispersion normale. Ceci est d'un certain avantage car il évite que les phénomènes de type instabilité de modulation apparaissent à des fréquences qui sont proches de celles de la pompe. En effet, le phénomène est, par essence, un phénomène d'amplification de perturbations. Or si ces perturbations amplifiées se retrouvent dans le spectre de la pompe, alors elles peuvent rendre le signal incohérent temporellement. Ceci est donc incompatible pour une application type génération de peignes de fréquences qui a besoin d'une cohérence très élevée comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent. De plus, en régime de dispersion anormale, un élargissement spectral dans une fibre optique va en majeure partie se faire par AMP. Or comme nous avons pu le voir lors de la présentation de cet effet et en particulier avec la Figure 2.3b, l'AMP induit de fortes oscillations sur le haut du spectre ce qui peut aussi être néfaste car le signal possède alors un fort contraste qui est peu adapté à des applications.

En régime de dispersion normale, les deux contraintes que nous venons de mentionner plus haut sont contournées. L'instabilité de modulation peut exister avec l'IM4 mais celle-ci n'apparaîtra uniquement que très loin de la pompe et avec une efficacité faible si elle n'est pas stimulée, ce qui ne la rend alors pas néfaste. De plus, si la fibre optique est fortement dispersive, le phénomène d'ondes de choc va alors intervenir et l'élargissement spectral va se retrouver modifié. En effet, en plus de façonner le profil temporel comme nous avons pu le voir dans la partie précédente, le profil spectral va se retrouver lui aussi modifié. Il est possible de voir que le spectre devient plus plat et présente donc un contraste bien plus faible que si l'élargissement était réalisé par pure AMP [171].

En regardant de plus près les caractéristiques qu'acquiert une impulsion après un choc, il est possible de voir que le spectre semble posséder une largeur et une fréquence maximale indépendantes du profil initial. De plus, il est aussi possible de remarquer que la largeur spectrale maximale est quasiment indépendante de la durée de l'impulsion initiale. Cette impression est illustrée par des simulations d'intégrations numériques de l'ESNL (2.2) et présentées à la Figure 2.8. Cette caractéristique est intéressante à étudier car si nous pouvons démontrer qu'il existe une faible dépendance aux conditions initiales injectées dans la fibre, alors nous pourrions prévoir quel élargissement spectral il est possible d'obtenir en ne considérant que les paramètres de la fibre.

2.3.2 Élargissement spectral maximal

Nous cherchons à investiguer théoriquement puis expérimentalement la largeur spectrale limite induite par le phénomène d'ondes de choc dispersives. Pour cela, intéressons nous aux quantités conservées de l'ESNL (2.2) où les pertes sont négligées [177].

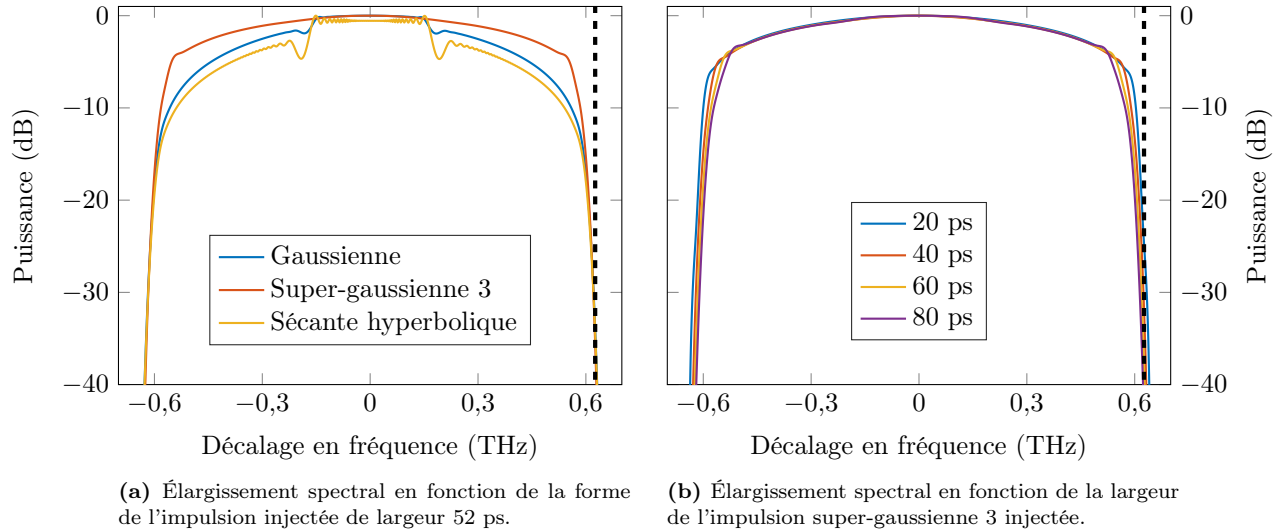


FIGURE 2.8 – Résultats numériques d'intégration de l'ESNL (2.2) (pertes négligées) en sortie d'une fibre DCF de longueur 1400 m pour une puissance crête initiale $P_0 = 100$ W. Les lignes en pointillés montrent la fréquence donnée par l'équation (2.66).

2.3.2.1 Conservation de l'énergie

En considérant la conservation de l'énergie (hamiltonien associé au système), la quantité suivante se trouve être constante au cours de la propagation [25] :

$$\frac{d}{dz} \left(\gamma P_0 \frac{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^4 dt}{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^2 dt} + \beta_2 \frac{\int_{\mathbb{R}} \Omega^2 |\tilde{A}(z, \Omega)|^2 d\Omega}{\int_{\mathbb{R}} |\tilde{A}(z, \Omega)|^2 d\Omega} \right) = 0 \quad (2.54)$$

où P_0 est la puissance initiale de l'impulsion. Cette équation fait directement apparaître l'écart-type σ_Ω du spectre. En effet, celui-ci est défini par :

$$\sigma_t = \sqrt{\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2} \quad \text{avec} \quad \langle t^p \rangle = \frac{\int_{\mathbb{R}} t^p |A(z, t)|^2 dt}{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^2 dt} \quad (2.55)$$

Appliqué à la largeur spectrale, nous avons :

$$\sigma_\Omega = \sqrt{\langle \Omega^2 \rangle - \langle \Omega \rangle^2} \quad (2.56)$$

Le terme $\langle \Omega \rangle^2$ est nul car Ω est l'écart à la fréquence de la porteuse ω_p ($\Omega = \omega - \omega_p$) et intuitivement nous avons $\langle \omega \rangle = \omega_p$. Ceci nous donne donc pour l'écart-type spectral :

$$\sigma_\Omega = \sqrt{\langle \Omega^2 \rangle} \quad (2.57)$$

En reportant cette grandeur dans l'équation (2.54), nous obtenons :

$$\frac{d}{dz} \left(\gamma P_0 \frac{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^4 dt}{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^2 dt} + \beta_2 \sigma_\Omega^2 \right) = 0 \quad (2.58)$$

Par intégration sur z , nous pouvons en déduire :

$$\gamma P_0 \frac{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^4 dt}{\int_{\mathbb{R}} |A(z, t)|^2 dt} + \beta_2 \sigma_\Omega^2 = C \quad (2.59)$$

où C est une constante indépendante de z . Cette dernière équation peut être réécrite sous la forme :

$$\mathcal{L}_{\text{NL}}^{-1}(z) + \mathcal{L}_{\text{D}}^{-1}(z) = C \quad (2.60)$$

où les deux termes représentent respectivement la généralisation de la longueur non-linéaire (2.16) et la longueur de dispersion (2.6) au cours de la propagation [177].

2.3.2.2 Évaluation de la constante C et écart-type spectral

En début de propagation dans une fibre optique, les effets non-linéaires sont prépondérants. En se plaçant en $z = 0$, il est donc possible d'évaluer la constante C car $\mathcal{L}_D^{-1}(z = 0) = 0$ et donc :

$$C = \mathcal{L}_{NL}^{-1}(z = 0) = \gamma P_0 F^2 \quad \text{avec} \quad F^2 = \frac{\int_{\mathbb{R}} |A(0, t)|^4 dt}{\int_{\mathbb{R}} |A(0, t)|^2 dt} . \quad (2.61)$$

Sachant qu'à très grande distance du choc les effets non-linéaires s'évanouissent, dans la limite $z \rightarrow \infty$ nous avons aussi :

$$C = \mathcal{L}_D^{-1}(z \rightarrow \infty) = \beta_2 \sigma_\Omega^2(z \rightarrow \infty) . \quad (2.62)$$

En égalant les deux expressions trouvées pour la constante C , il s'en déduit alors l'écart-type spectral à grande distance du choc et nous obtenons :

$$\sigma_\Omega(z \rightarrow \infty) = \sqrt{\frac{\gamma P_0}{\beta_2}} F . \quad (2.63)$$

F est une constante proche de 1 pour des impulsions standards (gaussienne, sécante hyperbolique, super-gaussienne, ...). Elle peut être calculée analytiquement pour certains profils et nous avons par exemple $F = 2^{-\frac{1}{4}m}$ pour une super-gaussienne d'ordre m . Nous pouvons donc en déduire que l'écart-type spectral dépend donc très faiblement de la forme et de la durée de l'impulsion initiale.

2.3.2.3 Élargissement spectral maximal

Bien que nous ayons trouvé l'expression analytique de l'écart-type spectral maximal après un choc, ceci ne nous renseigne pour l'instant que peu sur l'élargissement spectral maximal que nous avons pu observer dans les simulations numériques de la [Figure 2.8](#). Toutefois, il est aussi possible de démontrer qu'après un choc, toutes impulsions tendent à obtenir un spectre ayant une forme parabolique [178, 179]. Mathématiquement, une impulsion parabolique se définit sous la forme suivante :

$$A(t) = \begin{cases} \sqrt{1 - \left(\frac{t}{\Delta t}\right)^2} & \text{pour } |t| < \Delta t \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.64)$$

où Δt est la racine de la parabole. Dans le cas d'une impulsion à profil parabolique, il est possible de calculer que son écart-type défini par l'équation (2.55) vaut explicitement $\sigma_t = \frac{\Delta t}{\sqrt{5}}$. Un spectre ayant une forme parabolique montre donc une racine à la fréquence $\Delta\Omega = \sqrt{5}\sigma_\Omega$. Or, comme nous l'avons indiqué plus haut, toutes impulsions tendent à obtenir un spectre ayant une forme parabolique après un choc [179]. Dans le cas théorique où le spectre devient purement parabolique, en reprenant l'expression de σ_Ω donnée par l'équation (2.63), nous obtenons donc que $\Delta\Omega$ vaut :

$$\Delta\Omega = \sqrt{5} \sqrt{\frac{\gamma P_0}{\beta_2}} F . \quad (2.65)$$

Le facteur F défini à l'équation (2.61) est calculable analytiquement pour une parabole et vaut $F = \frac{2}{\sqrt{5}}$. Cette dernière étape nous donne la valeur exacte de l'élargissement spectral maximal induit par ondes de choc dispersives pour un spectre ayant une forme parabolique et nous avons :

$$\Omega_{\max} = \Delta\Omega = 2 \sqrt{\frac{\gamma P_0}{\beta_2}} . \quad (2.66)$$

En réalité, à grande distance du choc, le spectre des impulsions n'est pas purement parabolique. Ceci implique que la largeur maximale théorique peut légèrement être différente de l'expression trouvée. Toutefois, les simulations numériques telles que celles présentées à la [Figure 2.8](#) montrent un très bon accord avec cette approximation. Nous nous proposons maintenant de vérifier expérimentalement cette limite théorique.

2.3.2.4 Vérification expérimentale

Pour vérifier expérimentalement les prédictions théoriques précédentes, nous entreprenons une expérience qui consiste à envoyer des impulsions dans différentes longueurs de fibre et à observer le spectre en sortie pour mesurer sa largeur. La source que nous utilisons est une source peigne de fréquences générée par modulation électro-optique comme montré à la [Figure 1.16](#), ce qui est équivalent à un train d'impulsions super-gaussien

d'ordre 3. Le fréquence de répétition des impulsions est fixée à 100 MHz pour cette étude, ce qui permet d'obtenir des puissances crête relativement importantes. La puissance du train est contrôlée par l'EDFA de sortie et nous la fixons à 54,3 W crête. Le train est ensuite dirigé vers différents tronçons de fibre DCF dont les paramètres sont donnés dans le [Tableau 2.1](#). En sortie de fibre, le signal est envoyé vers un analyseur de spectre optique dont la résolution est de 2,5 GHz.

Longueur (km)	D (ps.nm ⁻¹ .km ⁻¹)	S (ps.nm ⁻² .km ⁻¹)	α (dB.km ⁻¹)	γ (W ⁻¹ .km ⁻¹)
0 → 1,4	-91	-0,11	0,55	4,6

Tableau 2.1 – Données constructeurs à 1550 nm de la fibre DCF utilisée pour l'étude des ondes de choc dispersives.

Les spectres enregistrés à la sortie des différents tronçons de fibre sont présentés à la [Figure 2.9](#). Une fois les mesures effectuées, il convient d'extraire les largeurs spectrales des différents spectres. Pour cela, la largeur à -20 dB par rapport au plateau des spectres est choisie afin de pouvoir effectuer une étude pour toutes distances de propagation. En effet, le choix d'une valeur plus grande risquerait de dépasser la limite basse des spectres qui n'est autre que de l'émission spontanée amplifiée provenant des EDFAs. De plus, le choix de la largeur à mi-hauteur ou à e^{-1} en intensité n'est pas non plus possible car il faudrait aussi évaluer les pieds des spectres, chose difficile à faire toujours à cause de l'émission spontanée amplifiée existante. -20 dB semble donc un bon compromis par rapport au rapport signal sur bruit (RSB) disponible et nos capacités d'analyses.

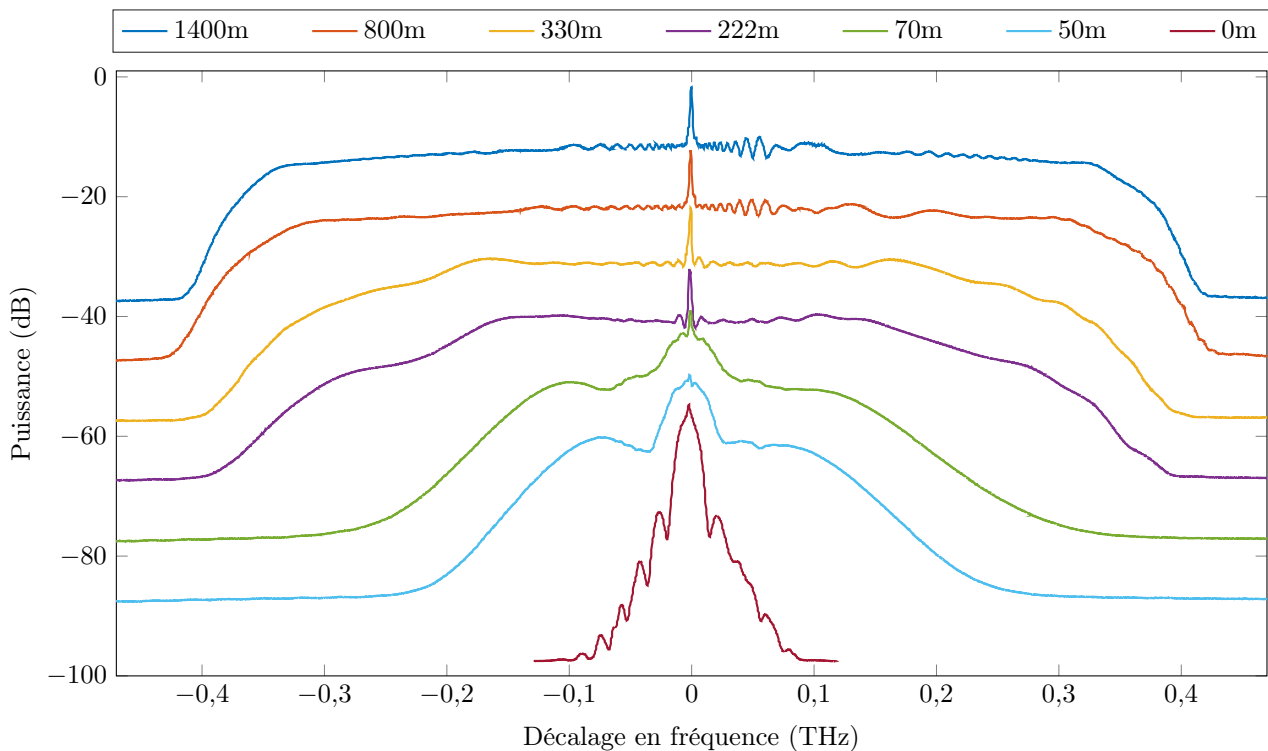


FIGURE 2.9 – Graphique présentant le spectre de l'impulsion après propagation dans une certaine longueur de fibre DCF, fibre dont les paramètres sont présentés dans le [Tableau 2.1](#), pour une puissance crête initiale de 54,3 W. Les différents spectres sont décalés en intensité les uns des autres de 10 dB afin de pouvoir les visualiser indépendamment.

Une fois les largeurs à -20 dB extraites, celles-ci sont reportées en fonction de la distance de propagation à la [Figure 2.10](#). De plus, ces mesures sont comparées aux simulations numériques de l'ESNL, desquelles la largeur à -20 dB a été extraite. Enfin, la valeur de la largeur maximale théorique, donnée par deux fois la fréquence maximale de l'équation (2.66), a été reportée. Globalement, l'accord est très bon : les deux courbes se confondent quasiment et une largeur limite est bien observée lorsque la distance de propagation est élevée. Bien que de légers écarts sont observés, ceux-ci ne dépassent pas la largeur maximale théorique et sont explicables. Premièrement, la présence du fond continu ne permet pas de définir le plateau des spectres de façon rigoureuse. Celui-ci est d'autant plus difficile à définir que les spectres peuvent présenter des asymétries. Deuxièmement, la puissance d'entrée dans la fibre n'est pas rigoureusement égale à chaque fois que la fibre est changée. En effet, la puissance d'entrée se déduit de la mesure de la puissance de sortie, puissance moyenne qui peut fluctuer de quelques milliwatts. Enfin, bien que nous ayons pris des morceaux de fibres tous issus de la même bobine

initiale, rien ne nous dit que les morceaux à disposition sont tous équivalents, les pertes dues à l'enroulement étant un bon exemple de différences. Tous ces facteurs combinés peuvent facilement expliquer les écarts observés. Toutefois, le même type d'accord est observé en réalisant l'expérience à différentes puissances initiales.

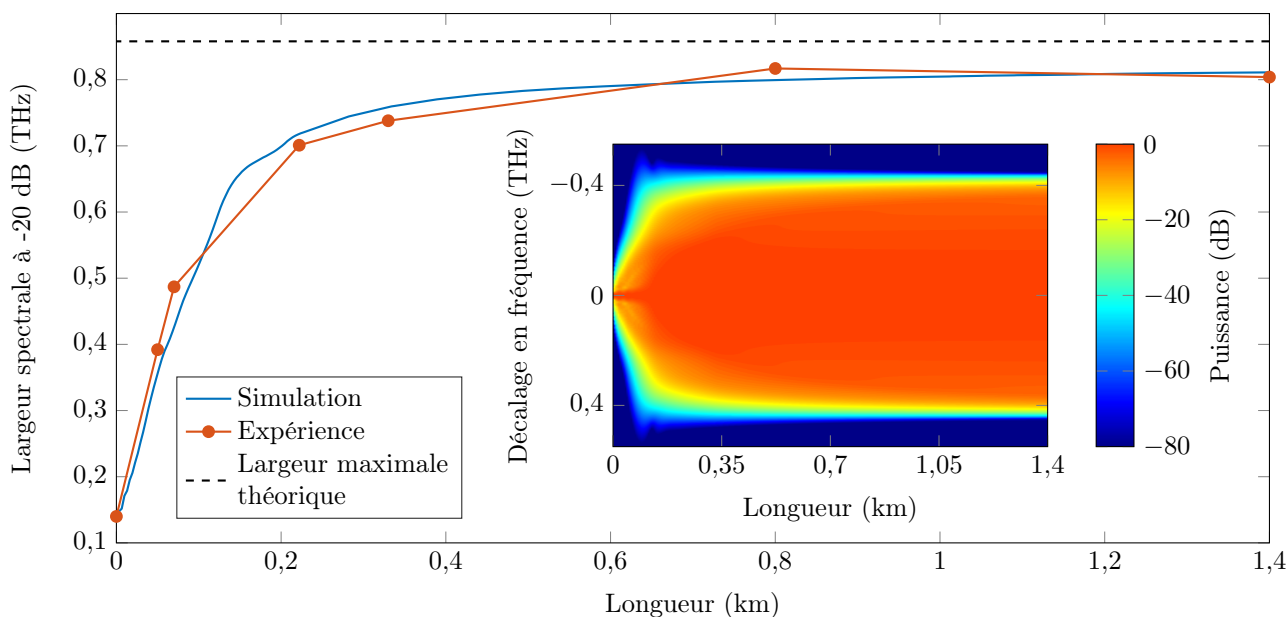


FIGURE 2.10 – Graphique présentant la largeur spectrale à -20 dB de l'impulsion en fonction de la distance de propagation, théoriquement avec une simulation numérique de l'ESNL et expérimentalement avec les données issues des spectres de la Figure 2.9. Le graphe incrusté montre la totalité du spectre simulé.

2.3.3 Conclusion sur l'élargissement par ondes de choc

Dans cette partie, nous avons mis en évidence que le phénomène d'ondes de choc dispersives induisait une limite dans l'élargissement spectral qu'il est possible d'obtenir, limite qui ne dépend que des paramètres de la fibre optique considérée et de la puissance initiale injectée. Cette limite a été quantifiée et une expression analytique a pu être démontrée. En parallèle, une expérience a été entreprise pour essayer de valider les prédictions théoriques et les résultats obtenus sont en très bon accord. Nous verrons dans le chapitre suivant que les résultats obtenus, en particulier la largeur maximale de l'élargissement spectral, peuvent être utilisés pour mesurer des paramètres de fibres optiques inconnus. Les résultats présentés dans cette partie ont été publiés sous la référence suivante : **A. PARRIAUX et al. "Spectral broadening of picosecond pulses forming dispersive shock waves in optical fibers". Dans : *Opt. Lett.* 42.15 (2017), p. 3044–3047 [180].**

2.4 Applications au spectromètre à deux peignes de fréquences

Les ondes de choc dispersives que nous avons étudiées dans ce chapitre ont pour but premier d'élargir le spectre des peignes en sortie d'un MI. En effet, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, ces peignes sont bien trop étroits pour effectuer de la spectroscopie seuls, et un élargissement par ondes de choc (donc dans une fibre en dispersion normale) s'avère être une solution très intéressante compte tenu de la platitude du spectre obtenu. Un exemple de peigne après élargissement spectral par ondes de choc a déjà été présenté à la Figure 1.20b, mais nous n'avons pas encore abordé de manière détaillée comment exploiter ce phénomène pour notre montage à deux peignes de fréquences. C'est ce que nous présentons dans cette partie où nous aborderons une fois de plus les limites de notre montage, les façons pour l'optimiser, et pour finir quelques résultats spectroscopiques qu'il est possible d'obtenir.

2.4.1 Élargissement et dynamique d'analyse

L'élargissement par ondes de choc peut se dérouler a priori dans n'importe quelle fibre en dispersion normale. Toutefois, étant donné qu'il est recherché l'obtention d'un spectre large et plat, un compromis doit être trouvé entre la dispersion, la non-linéarité et la longueur de la fibre à utiliser. En effet, en reprenant l'équation (2.66) donnant la largeur maximale d'un spectre qu'il est possible d'obtenir par élargissement par ondes de choc, il

est possible de voir qu'entre deux fibres différentes c'est le facteur $\sqrt{\frac{\gamma}{\beta_2}}$ qui pilote la largeur maximale. Il serait donc tentant de vouloir choisir une fibre avec une forte non-linéarité et une faible dispersion mais il serait alors difficile d'obtenir un spectre plat. En effet, l'expérience menée précédemment nous montre, en particulier avec la [Figure 2.9](#) et la [Figure 2.10](#), qu'il faut une certaine longueur de fibre avant que le spectre ne rentre dans un régime stationnaire, se stabilise et n'évolue plus. D'une manière générale, il faut se situer à une distance relativement importante du choc, celle-ci étant proportionnelle à l'inverse du nombre soliton $N^{-1} = \sqrt{\frac{L_{NL}}{L_D}} = \frac{1}{\delta_0} \sqrt{\frac{\beta_2}{\gamma P}}$ [171].

À titre d'exemple, dans l'expérience précédente cette longueur a été calculée à 160 m, et expérimentalement nous pouvons voir que le spectre se stabilisait à une longueur de 800 m. De fait, choisir une faible dispersion et une forte non-linéarité fait que la distance du choc augmente, et donc qu'il faut des longueurs de fibre élevées, plusieurs kilomètres, pour obtenir un spectre plat. Même si cela est tout à fait réalisable, une question de coût empêche l'utilisation de grandes longueurs de fibre, mais aussi une question de RSB de notre futur signal RF délivré par le spectromètre. En effet, même en utilisant un montage contra-propagatif pour l'élargissement, une certaine perte de cohérence entre les deux peignes existe puisque les deux peignes ne voient pas exactement le même chemin optique. Plus la longueur de la fibre sera grande, et plus ce phénomène sera amplifié, ce qui affecte le RSB du spectre RF. Étant donné qu'expérimentalement le meilleur RSB possible est souvent recherché, utiliser de grandes longueurs de fibre n'est alors pas forcément possible. Notons que la distance du choc est aussi impactée par la puissance des impulsions injectées dans la fibre, mais étant donné qu'un spectre large est recherché, ce paramètre sera optimisé en priorité dans ce but tout en gardant un bon RSB après élargissement (nous allons revenir sur ce point plus bas).

Dans la suite, nous utiliserons une fibre « TrueWave » dont les paramètres sont présentés dans le [Tableau 2.2](#). Contrairement à la DCF utilisée plus tôt, celle-ci a une dispersion six fois moindre, mais une non-linéarité deux fois plus faible. Toutefois, son atténuation linéique ainsi que son diamètre de cœur proche de celui d'une fibre standard font que les pertes sont plus faibles que celles d'une DCF. De plus, cette fibre étant assez répandue, il est possible d'obtenir des longueurs importantes sans que cela ne soit trop coûteux. Pour finir, la faible dispersion de cette fibre, contrairement à la DCF, aura aussi une importance dans le [chapitre 4](#).

Longueur (km)	D (ps.nm ⁻¹ .km ⁻¹)	S (ps.nm ⁻² .km ⁻¹)	α (dB.km ⁻¹)	γ (W ⁻¹ .km ⁻¹)
0 → 5	-14,970	0,056	0,2	2,2

Tableau 2.2 – Données constructeurs à 1550 nm de la fibre TrueWave utilisée dans nos expériences.

En utilisant des impulsions de 31 W crête, la distance du choc avec cette fibre est de 720 m. De plus, différents tests expérimentaux et simulations numériques ont permis de voir qu'un minimum de 2 km de fibre était nécessaire pour rentrer dans un régime spectral stationnaire, et donc pour obtenir un spectre plat. Toutefois, l'expérience seule permet de conclure sur la longueur à utiliser car il s'avère que nous utiliserons une longueur de 1 km. En effet, contrairement aux simulations numériques présentées à la [Figure 2.8](#) mais conformément aux précédentes expériences placées à la [Figure 2.9](#), il est possible d'observer des oscillations au centre des spectres. Celles-ci sont dues au fond continu initial des MEOs [173, 174, 180], et comme il est possible de le voir à la [Figure 2.9](#), des longueurs importantes de fibre font ressortir ces oscillations de manière conséquente. Celles-ci sont peu nuisibles pour effectuer de la spectroscopie mais uniquement tant qu'elles restent stables et bien définies, ce qui est difficile à garantir lorsque de grandes longueurs de fibre sont utilisées. Un compromis est donc à trouver entre largeur spectrale maximale et qualité globale du spectre, et différents tests avec plusieurs longueurs de fibre nous ont permis de voir qu'une longueur de 1 km était la longueur optimale pour notre montage. Un exemple de spectre RF obtenu après élargissement dans cette fibre de 1 km est montré à la [Figure 2.11](#). Celui-ci est obtenu par moyennage de la TF d'environ 200 interférogrammes de durée 8,4 ms, chacun étant enregistré à un taux d'échantillonnage de 8 ns. Notons que la puissance de 31 W crête utilisée ici est plus faible que celle utilisée dans l'expérience précédente car une fréquence de répétition de 250 MHz a été choisie. Dans notre montage, cette fréquence est la fréquence limite basse à laquelle il est possible d'obtenir des spectres élargis sans problème de décohérence liés à l'accumulation du bruit de phase due aux différents composants, et donc des baisses importantes du RSB comme nous l'avons vu à la [Figure 1.20](#) sur différentes parties du spectre.

Le spectre de la [Figure 2.11](#) montre un RSB de presque 30 dB. Cependant, dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il était parfois utile de filtrer le spectre afin d'obtenir un RSB plus important [85, 86]. Bien qu'un filtrage ne permette pas d'exploiter la même largeur spectrale, une telle restriction peut s'avérer avantageuse pour certaines analyses spectroscopiques, comme le verrons ci-dessous. Un exemple de spectre RF obtenu après filtrage des peignes sur 0,650 nm en sortie de fibre est présenté à la [Figure 2.12](#). Contrairement à la [Figure 2.11](#), un RSB de presque 40 dB est maintenant observable. De même que précédemment, le spectre RF est obtenu par moyennage de la TF d'environ 200 interférogrammes de durée 8,4 ms enregistrés à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

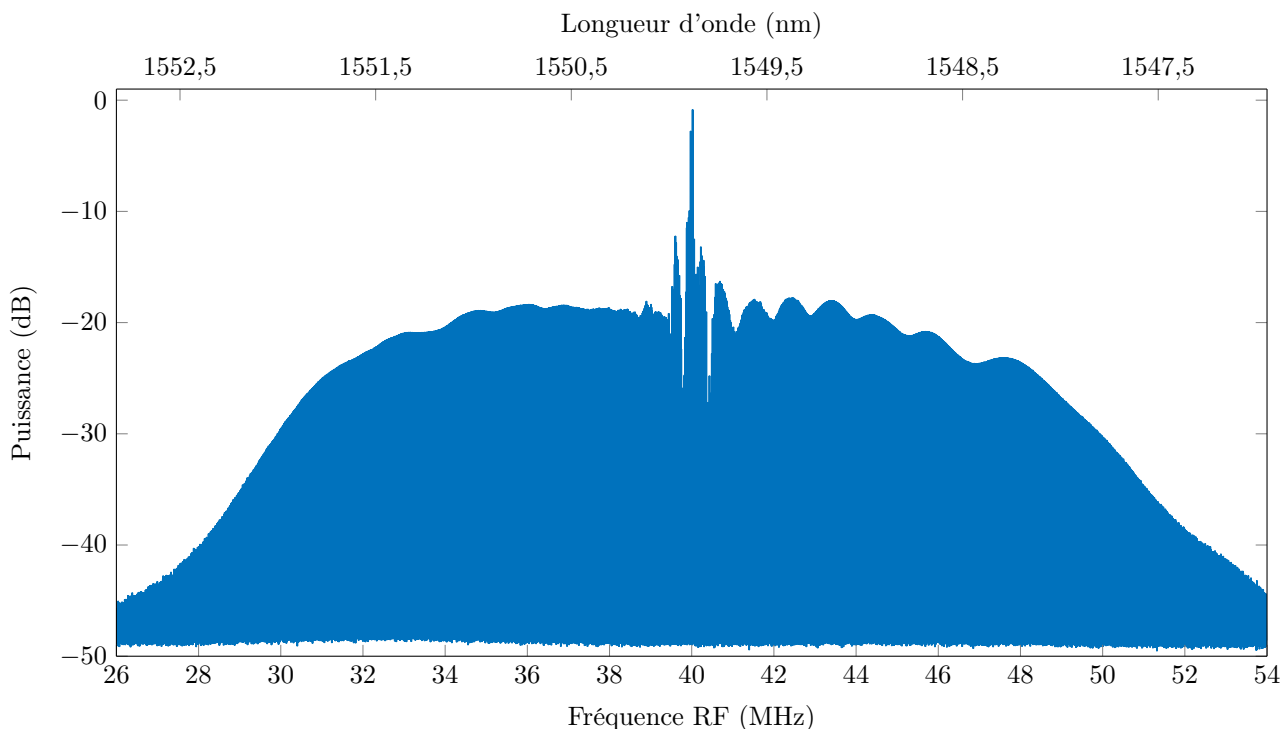


FIGURE 2.11 – Exemple de signal montrant le spectre RF du spectromètre après élargissement par ondes de choc dans une fibre TrueWave de 1 km. Ici, $f_r = 250$ MHz, $\Delta f_r = 9,53$ kHz et la puissance initiale des impulsions avant injection dans la fibre est de $P = 31$ W. Le spectre est obtenu par moyennage de la TF d'environ 200 interférogrammes de durée 8,4 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

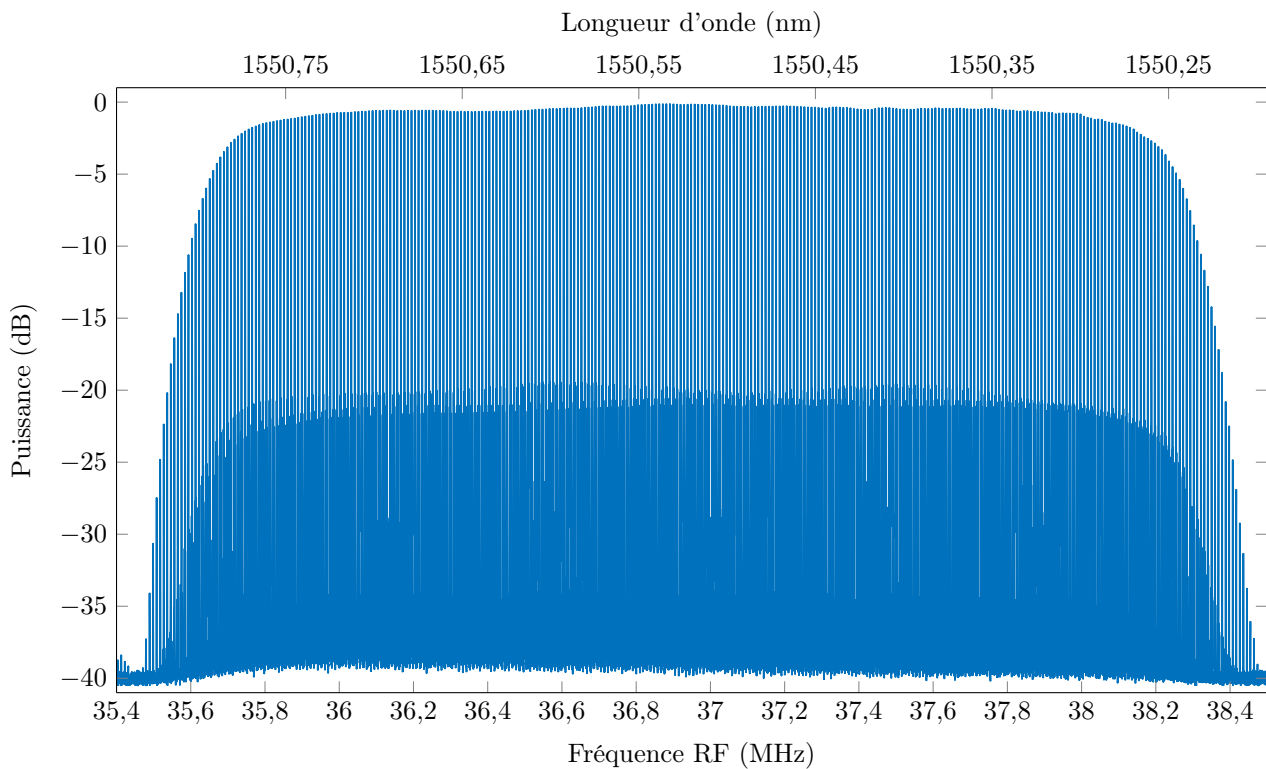


FIGURE 2.12 – Exemple de signal RF obtenu lorsque qu'un filtrage spectral de 0,650 nm est réalisé sur les peignes obtenus après élargissement spectral. Les paramètres utilisés ici sont les mêmes que ceux de la Figure 2.11.

Il est possible de visualiser la finesse des raies du peigne RF en enregistrant un interférogramme sur une durée relativement grande à un taux d'échantillonnage adéquat. Plus la cohérence entre les deux peignes est élevée, et plus les raies du spectre RF seront fines. La mesure de la largeur des raies RF permet donc de quantifier cette cohérence, ce que nous avons fait ici. En enregistrant un interférogramme d'une durée de 500 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns et en effectuant sa TF, il est possible d'observer une raie RF dont un exemple est montré à la [Figure 2.13](#). La largeur totale à mi-hauteur mesurée est de 3,3 Hz, mais cette valeur est une limite haute et il sans doute possible que la largeur de raie soit plus faible. En effet, le résultat obtenu dépend de la durée de l'interférogramme enregistré et avec les instruments à disposition, il nous était impossible d'enregistrer des interférogrammes plus long car ceux-ci nécessitent une mémoire de stockage plus grande, or nous avons atteint la limite de ce que les instruments pouvaient fournir.

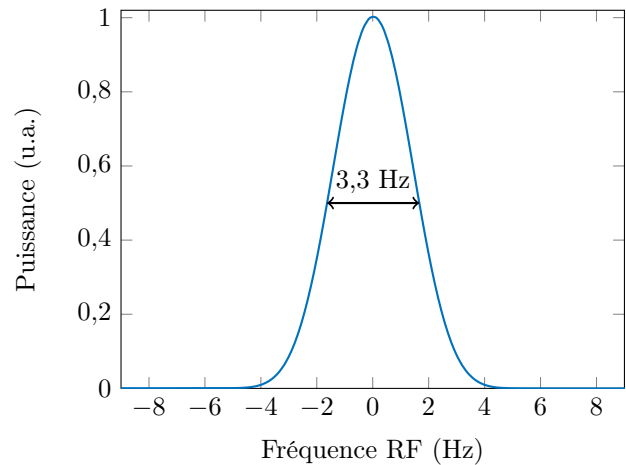


FIGURE 2.13 – Graphique montrant un zoom sur une raie de largeur 3,3 Hz d'un spectre RF obtenu par TF d'un interférogramme de durée 500 ms enregistré à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

2.4.2 Spectroscopie du cyanure d'hydrogène

Les résultats mis en évidence précédemment avaient pour but d'optimiser le spectromètre afin d'obtenir les meilleurs résultats possibles lorsque celui-ci sera utilisé pour la spectroscopie. Pour valider le bon fonctionnement du spectromètre, nous terminons nos études par l'analyse d'un gaz dont le spectre d'absorption peut être calculé grâce à différentes bases de données et articles déjà publiés. Aux alentours de 1,55 μm , la plupart des molécules absorbent peu et il faut alors disposer de grandes longueurs d'absorption. Par exemple, l'étude du CO_2 dans cette région spectrale requiert une longueur d'interaction proche de 50 m [71], ce qui est loin d'être immédiat à mettre en place. Une solution possible est d'injecter le gaz dans une fibre à cœur creux, mais cette solution requiert de faire au préalable le vide dans cette fibre, ce qui prend plusieurs heures, puis d'injecter le gaz, ce qui prend également plusieurs heures afin d'obtenir une pression homogène le long de la fibre. Toutefois, certaines molécules comme le cyanure d'hydrogène HCN absorbent de manière très intense dans cette région, et il est alors possible d'utiliser une longueur d'absorption inférieure au mètre, ce qui est bien plus pratique. De plus, des cuves à multiples passages contenant de l'HCN existent de manière commerciale, ce qui a un certain avantage pour la connaissance précise des paramètres du gaz et les futures analyses que nous effectuerons. Entre 1500 nm et 1600 nm, HCN possède une bande harmonique qui est la $2\nu_1$, composée de la branche R entre 1510 nm et 1534 nm et la branche P entre 1534 nm et 1570 nm. Comme nous le verrons, une deuxième bande moins intense et non fondamentale sera aussi observable, la $2\nu_1 + \nu_2 - \nu_2$.

Dans la suite, les résultats expérimentaux obtenus seront comparés à des spectres calculés en utilisant la base de données HITRAN pour l'isotope $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ [87], et pour l'isotope $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ les données publiées dans la Ref. [181] ainsi que la base de données ExoMol [182]. Ceci sera systématiquement le cas pour ce que nous dénommerons par la suite « spectre calculé ». Notons que pour $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$, certaines données telles que le coefficient d'élargissement collisionnel ne sont pas disponibles pour toutes les raies que nous rencontrerons, ce qui ne permet pas de les intégrer dans le calcul du spectre. Toutefois, les positions spectrales des raies sont connues, ce qui nous aidera à identifier certaines différences entre l'expérience et le calcul. Lorsque ce cas de figure se présentera, nous indiquerons qu'une raie de $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ non calculée est présente.

Tous les résultats suivants sont obtenus avec une cuve de longueur de 80 cm remplie d'HCN en abondance isotopique naturelle, soit 98,5114% de $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$, 1,1068% de $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ et 0,3622% $\text{H}^{12}\text{C}^{15}\text{N}$ comme indiqué par HITRAN [87], à une pression totale de 0,263 atm. En premier lieu, nous utilisons un montage sans filtre pour exploiter la totalité du spectre généré par notre montage expérimental, et nous nous plaçons dans la branche P de la bande $2\nu_1$ d' $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$, aux alentours de 1555 nm. Un exemple de spectre enregistré à partir de 220 interférogrammes de 8,4 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns, est présenté à la [Figure 2.14](#).

Ce spectre montre les raies intense de la bande $2\nu_1$, de la P(24) à la P(28), ainsi que quelques raies plus faibles en intensité de la bande $2\nu_1 + \nu_2 - \nu_2$, de la P(14) à la P(17). Il est aussi possible d'observer deux raies de la bande $2\nu_1$ d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$, la P(18) et la P(19). Comme nous l'avons déjà évoqué, les données sur $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ ne sont, à ce jour, pas répertoriées pour toutes les raies, ce qui explique pourquoi les raies P(18) et P(19) d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ ne se retrouvent pas dans le spectre calculé. Toutefois, il est possible de les identifier en comparant les fréquences centrales des raies, données qui sont quant à elles connues.

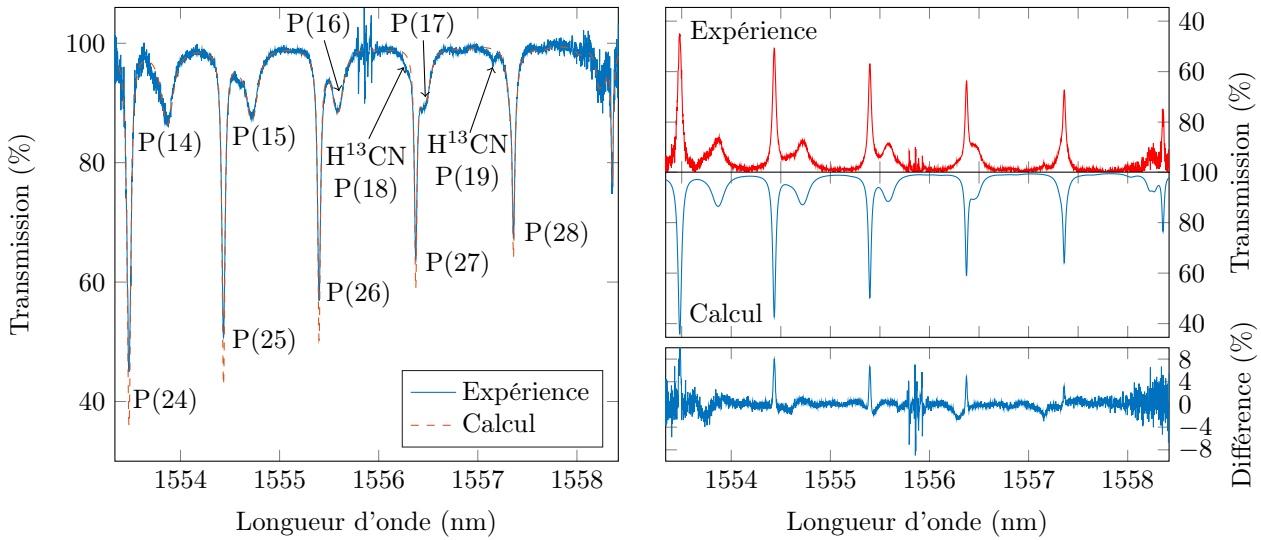


FIGURE 2.14 – Graphiques montrant un spectre d’absorption d’HCN enregistré à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 220 interférogrammes de 8,4 ms à un taux d’échantillonnage de 8 ns, et comparé à un spectre calculé.

Entre le spectre calculé et le spectre expérimental, il est possible d’observer des différences significatives. La première concerne l’intensité des raies, mais nous allons revenir sur ce point plus tard. La deuxième différence notable concerne les variations assez importantes au centre du spectre. Comme il est possible de le voir à la [Figure 2.11](#), celles-ci sont dues à la composante continue et ses alentours qui montrent de fortes variations d’intensité, ce qui rend donc la zone très sensible à toute fluctuation expérimentale. C’est un des désavantages notable à vouloir exploiter la totalité du spectre généré par notre montage. Cependant, il est possible de choisir judicieusement la longueur d’onde de la diode laser initiale pour éviter que la composante continue soit gênante, comme ce que nous avons fait pour le spectre de la [Figure 2.14](#). Pour finir sur ce spectre, il est aussi possible de remarquer que la ligne de base est assez bruitée, ce qui est dû au RSB relativement faible, notamment sur les bords du spectre. Comme nous l’avons déjà évoqué, ces deux problèmes peuvent être évités en filtrant une partie du spectre, ce que nous allons faire à partir de maintenant.

En utilisant un filtre de largeur 0,650 nm, et en changeant la longueur d’onde de la source laser initiale pour 1550 nm, il est possible d’observer le spectre de la [Figure 2.15](#) où deux raies de $H^{12}C^{14}N$ sont visibles, sur les mêmes bandes que précédemment. Celui-ci a été enregistré à partir de 220 interférogrammes de 16,78 ms à un taux d’échantillonnage de 4 ns. Ici, il est possible d’observer que la ligne de base est bien plus nette que ce que nous avons pu observer précédemment. Bien que le temps d’acquisition par spectre soit ici doublé, il

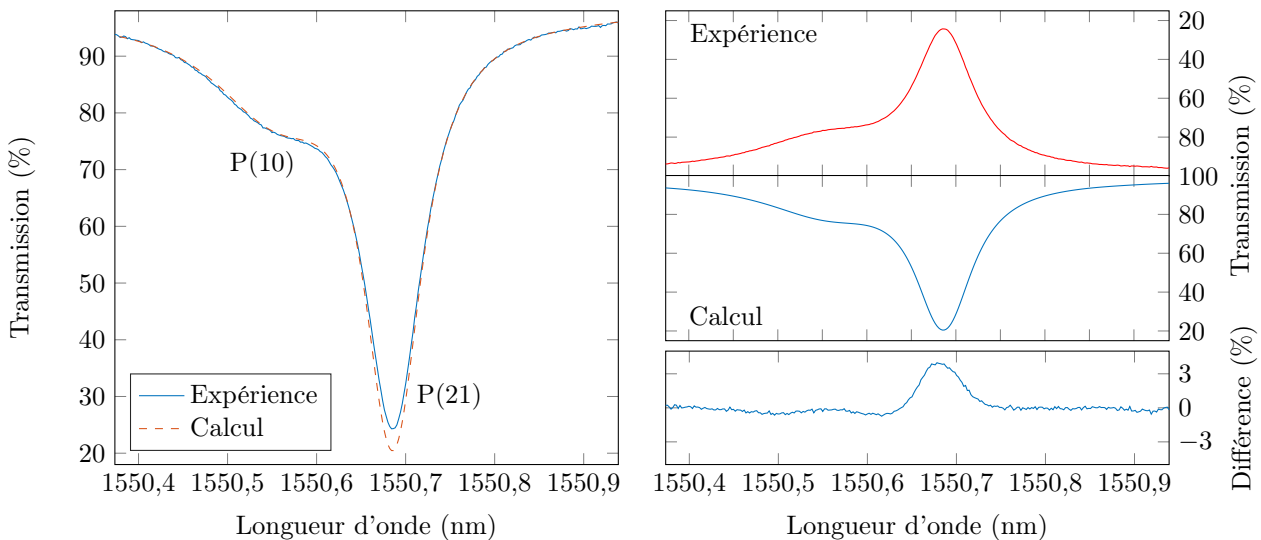


FIGURE 2.15 – Graphiques montrant un spectre d’absorption d’HCN enregistré à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 220 interférogrammes de 16,78 ms à un taux d’échantillonnage de 4 ns, et comparé à un spectre calculé.

a été vérifié qu'une durée égale donne lieu à un résultat similaire concernant la ligne de base. En utilisant un filtre, c'est surtout l'augmentation du RSB de 10 dB qui induit une forte diminution de cet effet délétère. Cette augmentation significative du RSB permet ainsi des temps d'acquisition plus courts, voire même d'éviter de moyennner plusieurs spectres, et toujours avec un très bon accord avec le spectre calculé. Pour s'en convaincre, la [Figure 2.16](#) présente un spectre unique utilisé dans le moyennage pour obtenir la [Figure 2.15](#), et enregistré à partir d'un seul interférogramme d'une durée de 16,78 ms à un taux d'échantillonnage de 4 ns.

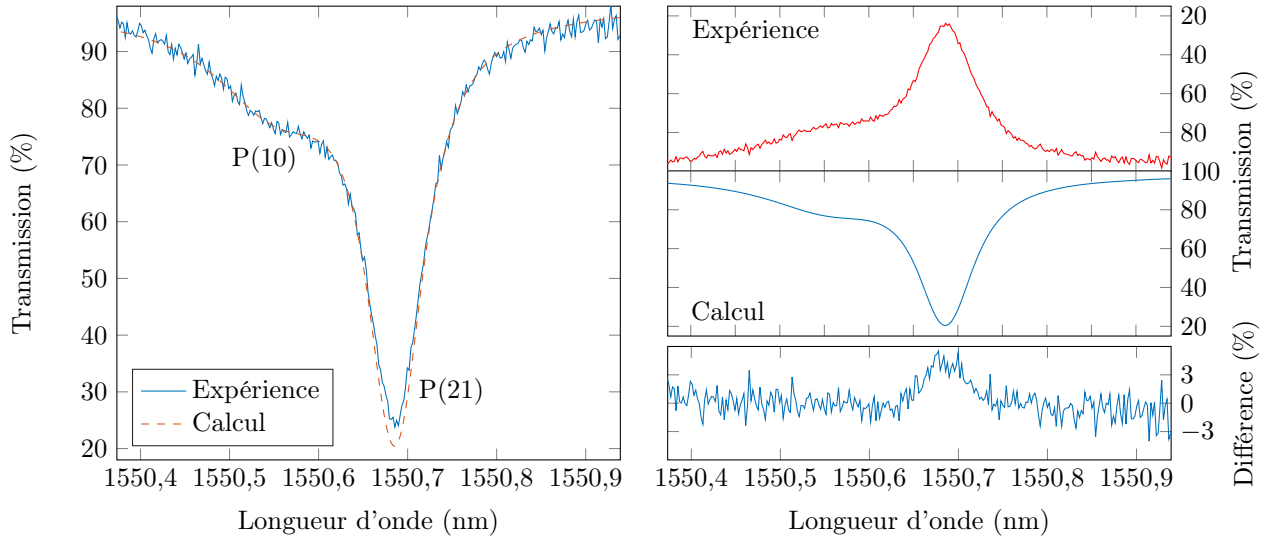


FIGURE 2.16 – Graphiques montrant un spectre d'absorption d'HCN enregistré à une résolution de 250 MHz à partir d'un seul interférogramme d'une durée de 16,78 ms à un taux d'échantillonnage de 4 ns, et comparé à un spectre calculé. Ce spectre est un des spectres utilisé dans le moyennage pour obtenir la [Figure 2.15](#).

De manière opposée, un RSB assez élevé comme les 40 dB que nous avons obtenus permet aussi, lorsque le temps d'acquisition est adéquat, d'observer des transmissions relativement faibles. Par exemple, la [Figure 2.17](#) montre un spectre obtenu lorsque que le laser continu est paramétré à 1557,5 nm. Celui-ci montre la double raie P(19) de la bande $2\nu_1 + \nu_2 - \nu_2$ d' $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ dont l'absorption est inférieure à 10%. Il est aussi possible d'observer la raie P(20) de la bande $2\nu_1$ d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$, dont l'absorption n'est que de quelques pourcents, et ce de manière très résolue. Ici, le temps d'acquisition est toujours relativement faible puisque le spectre est obtenu de la même manière que précédemment, c'est à dire à partir de 220 interférogrammes de 16,78 ms à un taux d'échantillonnage de 4 ns. Toutefois, si les raies deviennent encore moins intenses, un moyennage sur plusieurs minutes peut s'avérer nécessaire. Ceci est illustré avec le spectre placé à la [Figure 2.18](#), obtenu avec

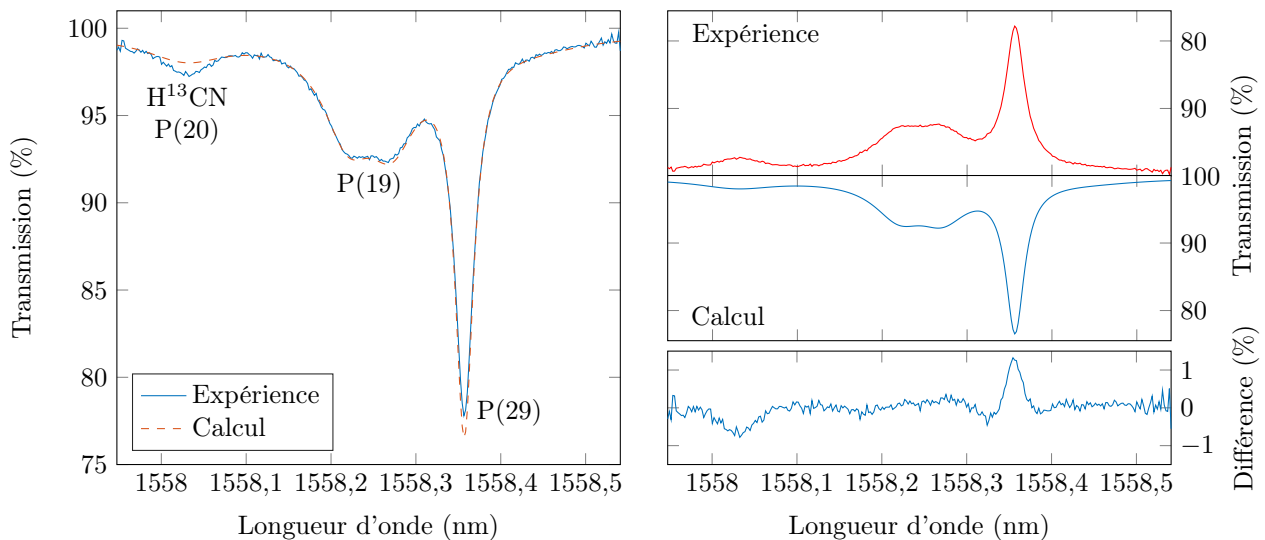


FIGURE 2.17 – Graphiques montrant un spectre d'absorption d'HCN enregistré à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 220 interférogrammes de 16,78 ms à un taux d'échantillonnage de 4 ns, et comparé à un spectre calculé.

une longueur d'onde du laser initial à 1560,3 nm, et moyenné sur 6 minutes. Sur ce spectre, la raie P(23) de la bande d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ est observable alors qu'elle absorbe à peine 2% du signal, de même pour la double raie P(22) d' $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ qui absorbe moins de 5%. Ce dernier exemple de spectre s'avère être le maximum de ce qu'il a été possible de tirer des expériences sur la spectroscopie d'HCN avec la cuve à disposition et notre montage. De ces résultats, nous déduisons une intensité minimum de détection de 10^{-23} cm par molécule, correspondant à la raie P(23) d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$.

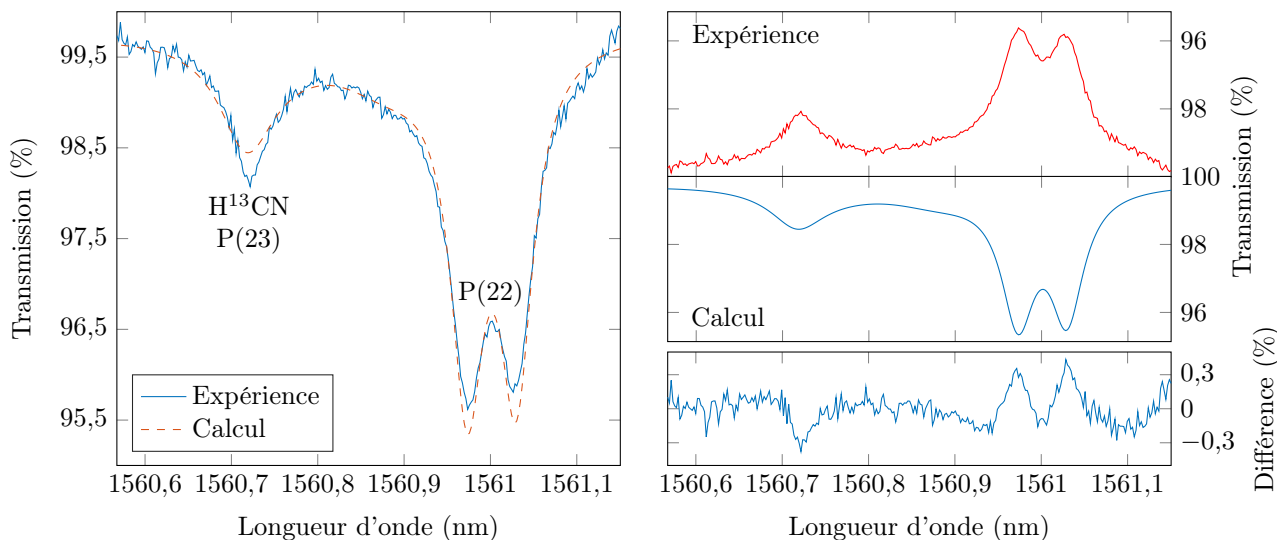


FIGURE 2.18 – Graphiques montrant un spectre d'absorption d'HCN enregistré à une résolution de 250 MHz, acquis sur une durée de 6 minutes, et comparé avec un spectre calculé.

Comme nous l'avons évoqué dès le premier spectre d'absorption présenté, des différences d'intensités sur les raies sont clairement observables entre les spectres expérimentaux et calculés. Pour les deux spectres de la [Figure 2.17](#) et [Figure 2.18](#), concernant les raies d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$, l'expérience semble montrer des raies plus intenses que celles calculées. Ces différences peuvent s'expliquer par le fait que les intensités utilisées pour calculer le spectre sont issues de calculs ab-initio [182, 183], et donc possèdent certaines limitations comparées à de pures mesures expérimentales. Concernant les raies d' $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$, l'expérience montre ici des raies moins intenses que celles calculées. De la même manière que pour les raies d' $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$, les intensités utilisées pour calculer le spectre sont issues de calculs ab-initio [87, 184], et la même hypothèse peut être mise en avant. D'une manière générale, comme il est possible de la voir dans la littérature, et contrairement à d'autres molécules comme CO_2 ou H_2O , HCN n'est pas une molécule très étudiée, en particulier aux alentours de 1,55 μm . De fait, les calculs ab-initio n'ont vraisemblablement été que peu raffinés avec des données expérimentales. Dans le but de valider cette hypothèse, des expériences sont en cours afin de mesurer précisément les intensités d'HCN et les comparer avec les données d'HITRAN [87]. Notons que l'hypothèse d'une contamination de la cuve par un autre gaz est aussi possible, par exemple à cause d'un défaut de fabrication ou bien d'une usure de son étanchéité. Cette hypothèse est aussi en cours d'étude.

2.4.3 Conclusion sur les applications du spectromètre

Dans cette partie, nous avons pu mettre en application notre montage à deux peignes de fréquences pour la spectroscopie du cyanure d'hydrogène HCN. Dans un premier temps, il a été nécessaire de façonner et d'optimiser les spectres délivrés par le montage afin de pouvoir en tirer le maximum, notamment sur l'élargissement des spectres. Ensuite, l'utilisation du montage pour la spectroscopie nous a permis de visualiser de manière concrète les différents points et limitations abordés dans ce chapitre et le précédent, comme la largeur spectrale, la dynamique/RSB du signal RF ou encore le temps d'acquisition. Concernant la spectroscopie d'HCN, nous avons aussi pu mettre en évidence les limites actuelles des données connues sur cette molécule, aussi bien sur $\text{H}^{12}\text{C}^{14}\text{N}$ que sur $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$. Une connaissance plus précise de ces données pourraient permettre certaines applications de type médicale comme la détection de bactéries [185], voire astronomiques pour la détection d'atmosphères d'exoplanètes [186].

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit les bases de la propagation d'impulsions dans les fibres optiques. Nous avons vu que différents phénomènes physiques existent et en particulier le phénomène d'ondes de choc dispersives. L'étude effectuée sur ce phénomène et les résultats obtenus s'avèrent très utiles puisqu'ils permettent de sélectionner quelle fibre optique utiliser pour élargir spectralement de manière optimale les peignes de notre montage à deux peignes de fréquences. Ces résultats ont été mis en application avec succès pour la spectroscopie du cyanure d'hydrogène HCN, et de relativement bons accords ont été obtenus avec les données issues de la littérature et bases de données. Toutefois, aux alentours de $1,55 \mu\text{m}$, les molécules qu'il est possible de sonder sans trop de contraintes sont peu nombreuses, et il est alors nécessaire de changer de gamme spectrale d'analyse. C'est ce que nous allons voir dans les prochains chapitres.

Chapitre 3

Spectromètre tout fibré à 2 μm

Dans le premier chapitre, nous avons vu que l'utilisation de MIs pouvait permettre de mettre en place un montage expérimental pour la spectroscopie à deux peignes de fréquences et ce, de manière simple et avantageuse comparé à d'autres montages plus usuels. Toutefois, comme nous l'avons aussi vu, ces montages sont en majorité conçus dans le proche infrarouge, ce qui n'est pas optimal pour effectuer de la spectroscopie car les molécules absorbent relativement peu dans ce domaine spectral. Pour contourner ce problème, il est possible d'utiliser de grandes longueurs d'absorption mais ceci complexifie le montage, ce qui n'est pas souhaité. La deuxième possibilité, plus intéressante, serait de pouvoir exploiter le montage dans une gamme de longueurs d'onde plus propice à la spectroscopie comme la région supérieure à 2 μm et jusque dans le moyen infrarouge (MIR) (3 μm à 50 μm). Dans ce chapitre, nous nous intéresserons donc aux moyens possibles pour que notre montage à deux peignes de fréquences puisse sonder les alentours des 2 μm , ce qui constituera une étape intermédiaire avant d'atteindre le MIR. Avant de voir quelles réalisations sont concevables, voyons plus en détail les motivations d'une telle extension.

3.1 Motivations d'une extension

Comme nous venons de l'évoquer, les applications spectroscopiques aux alentours de 1,55 μm sont difficiles à réaliser car les molécules absorbent relativement peu. En effet, dans cette gamme de longueurs d'onde, les molécules présentent des absorptions de faibles intensités et il faut alors disposer de longueurs d'absorption de plusieurs dizaines de mètres pour pouvoir mettre en évidence la signature spectroscopique de ces molécules. Dans le cas d'un montage tout fibré, ceci oblige alors l'emploi d'une cuve dont le fonctionnement peut être compliqué et long à mettre en place, comme l'utilisation d'une fibre optique à cœur creux dans laquelle le gaz à analyser est injecté. Pour ce dernier exemple, il faut disposer d'une fibre de 50 m de longueur pour observer les raies du CO_2 avec une dynamique adéquate [71].

Ce type de problème peut être fortement réduit si le montage opère dans une gamme de longueurs d'onde supérieure à 2 μm . Comme le montre la [Figure 3.1](#), un nombre important de molécules telles que le CO_2 ou encore le N_2O disposent d'absorptions rotationnelles-vibrationnelles intenses à partir de 2 μm . Par exemple, entre 1,55 μm et 2 μm , nous pouvons avoir une absorption multipliée jusqu'à un facteur 100 pour le CO_2 . Au delà de 3 μm , les bandes d'absorption des molécules sont encore beaucoup plus intenses et peuvent présenter une absorption 10000 fois plus élevées qu'à 1,55 μm . Il est aussi possible de remarquer que dans le MIR, de nouvelles espèces chimiques telle que l'ozone O_3 montrent des bandes d'absorption.

Il y a donc un certain intérêt à vouloir étendre le montage initial du proche infrarouge vers le MIR puisque les molécules sont en majorité bien plus facilement détectables. De nombreuses applications spectroscopiques sont alors possibles comme la détection de molécules dont la concentration est faible. Cependant, le caractère tout fibré de notre montage à deux peignes de fréquences étant relativement avantageux, nous souhaitons donc le conserver. Or, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent et plus particulièrement avec la [Figure 2.2](#), les fibres en silice présentent de fortes pertes linéiques à partir de 2 μm . Au delà, les fibres deviennent opaques et il n'est plus possible de transmettre un signal. Il y a donc une limite physique à l'utilisation des fibres optiques en silice si nous souhaitons garder un montage tout fibré. La région alentour à 2 μm semble donc être un bon compromis entre possibilité de réalisation des montages expérimentaux et applications spectroscopiques envisageables.

Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéressons donc aux moyens possibles pour que notre montage à deux peignes de fréquences puisse sonder jusqu'à 2 μm , tout en gardant un montage tout fibré. Nous verrons pour cela deux méthodes distinctes, la première étant la création d'un spectromètre fonctionnant directement à 2 μm utilisant des composants optiques spécialement adaptés, tout en conservant la base de l'architecture déjà

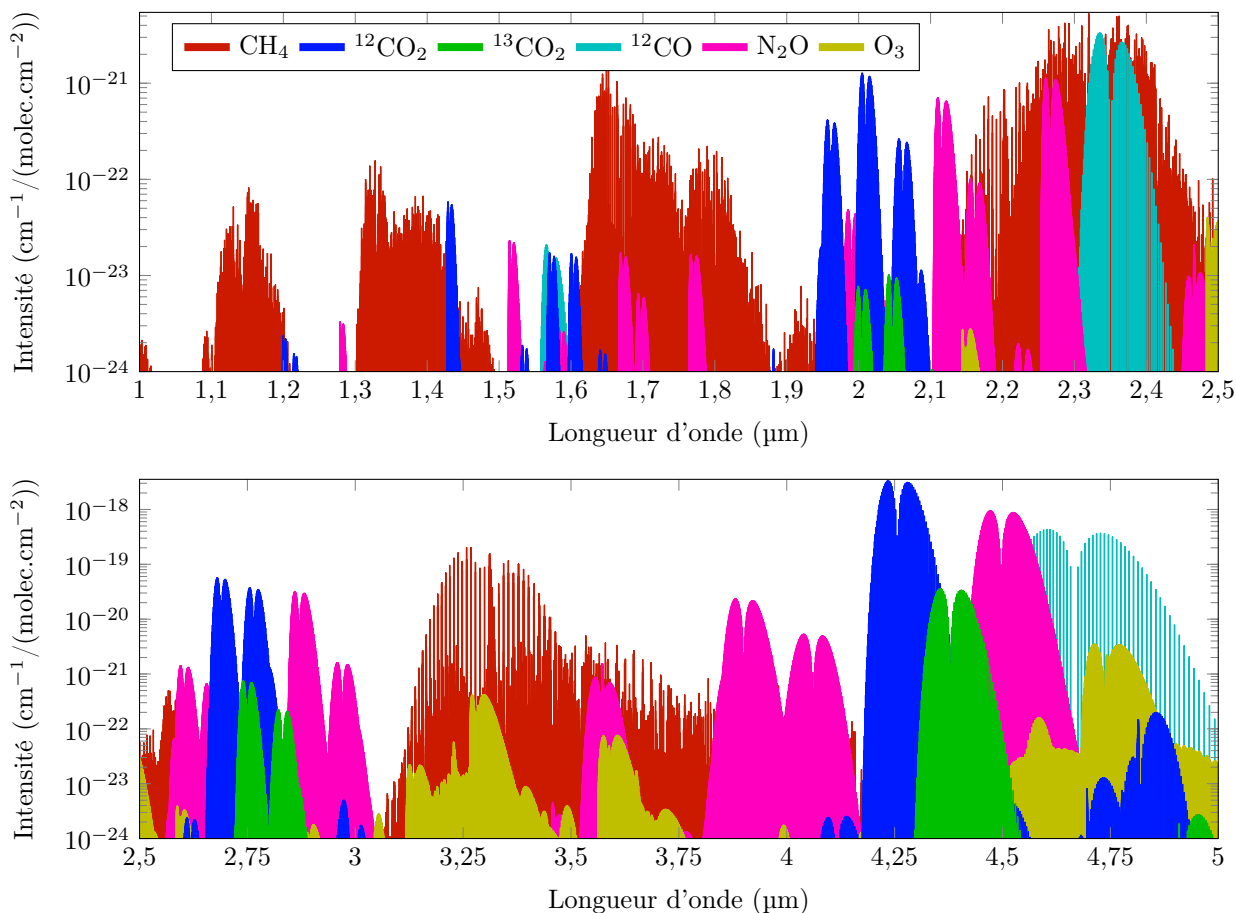


FIGURE 3.1 – Graphiques montrant quelques bandes d’absorption rotationnelles-vibrationnelles de certaines molécules dans le proche et moyen infrarouge. Les données utilisées sont issues de la base de données HITRAN [87], et les intensités sont relatives aux abondances isotopiques naturelles de la molécule considérée.

éprouvée à 1,55 μm . Quant à la seconde méthode, celle-ci se basera sur la conversion en fréquence des peignes initiaux créés à 1,55 μm dans une FHNL. Les deux techniques permettant de générer des peignes aux alentours de 2 μm , nous comparerons les avantages et les inconvénients de chaque méthode.

3.2 Modulation électro-optique directe à 2 μm

3.2.1 Introduction

Comme nous l’avons vu avec la Figure 3.1, de nombreuses molécules commencent à posséder de fortes absorptions rotationnelles-vibrationnelles à partir de 2 μm , en particulier le CO_2 qui possède une absorption 100 fois plus intense qu’à 1,55 μm . Pouvoir sonder le CO_2 aux alentours de 2 μm permettrait donc de contourner un désavantage de notre montage à deux peignes de fréquences qui est la nécessité de disposer de grandes longueurs d’absorption. À 2 μm , nous pourrions utiliser des cuves standards de quelques dizaines de centimètres, dont l’emploi est plus aisé qu’à 1,55 μm .

La première méthode à laquelle nous allons nous intéresser consiste à reprendre l’architecture du montage éprouvé à 1,55 μm , et de remplacer les différents composants par des fonctionnels à 2 μm . En pratique, ceci est possible puisque tous ces équipements existent et ce, même de manière commerciale. Toutefois, ces composants sont bien moins matures comparés aux équipements disponibles à 1,55 μm . En effet, ces derniers disposent de performances élevées car les applications pour les télécommunications par fibres optiques ont accéléré leur développement technologiques, ce qui n’a pas été le cas pour les équipements à 2 μm qui ne sont apparus sur le marché des télécommunications que très récemment. Ce fait implique, par exemple, qu’il est encore difficile de trouver des MIs fonctionnant à 2 μm avec une bande passante supérieure à 10 GHz. De plus ces composants montrent aussi un taux d’extinction plus faible (environ 20 dB) ce qui n’est pas avantageux pour notre montage. Enfin, ces désavantages sont accentués par le fait que l’effet électro-optique est moins performant pour une application à de hautes longueurs d’onde, la tension V_π d’un MEO étant proportionnelle à la longueur

d'onde λ .

Bien que de nombreux désavantages semblent compromettre la possibilité et l'efficacité d'un spectromètre à deux peignes de fréquences par modulation électro-optique directe à 2 μm , aucun verrou physique n'a été mis en évidence. En conséquence, l'expérience a donc été entreprise et nous commençons donc par détailler le montage expérimental du spectromètre.

3.2.2 Montage expérimental

3.2.2.1 Modulation électro-optique à 2 μm

Le montage expérimental du spectromètre est présenté à la Figure 3.2. Celui-ci est très semblable au montage fonctionnant à 1,55 μm que nous avons présenté dans le premier chapitre. Une diode laser continue accordable entre 1890 nm et 2020 nm est amplifiée avec un amplificateur dopé aux ions thulium (TDFA) à une puissance de 150 mW. Ces amplificateurs possèdent une bande d'amplification liée aux ions thulium Tm^{3+} de 1850 nm jusqu'à 2050 nm. Le signal continu est ensuite divisé en deux bras et chaque bras est modulé par un MI dont la bande passante est comprise entre 10 GHz et 20 GHz. De la même manière qu'à 1,55 μm , les MIs sont pilotés par des générateurs d'impulsions électriques délivrant des impulsions gaussiennes de largeur totale à mi-hauteur de 50 ps, eux-mêmes pilotés par des générateurs de tensions sinusoïdales fixant la fréquence de répétition des impulsions. Ici nous fixons les fréquences de répétition à $f_r = 300$ MHz et $f_r + \Delta f_r = 300,057$ MHz.

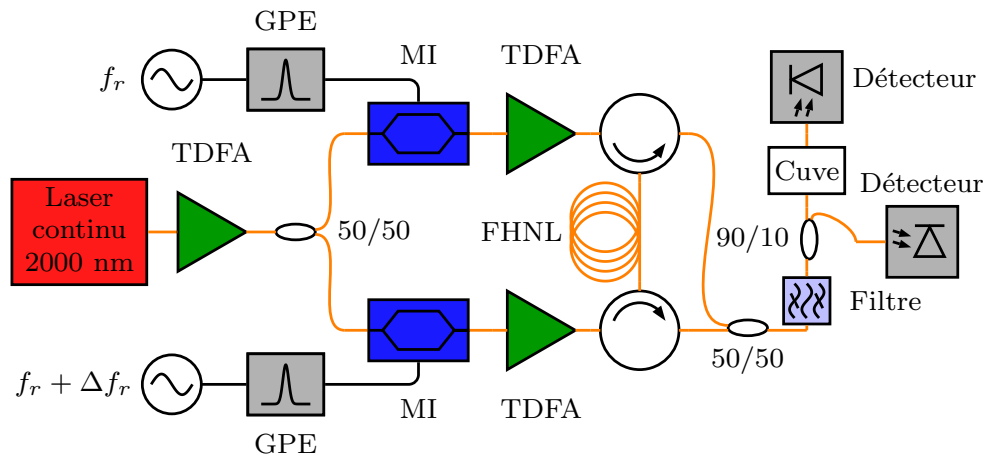


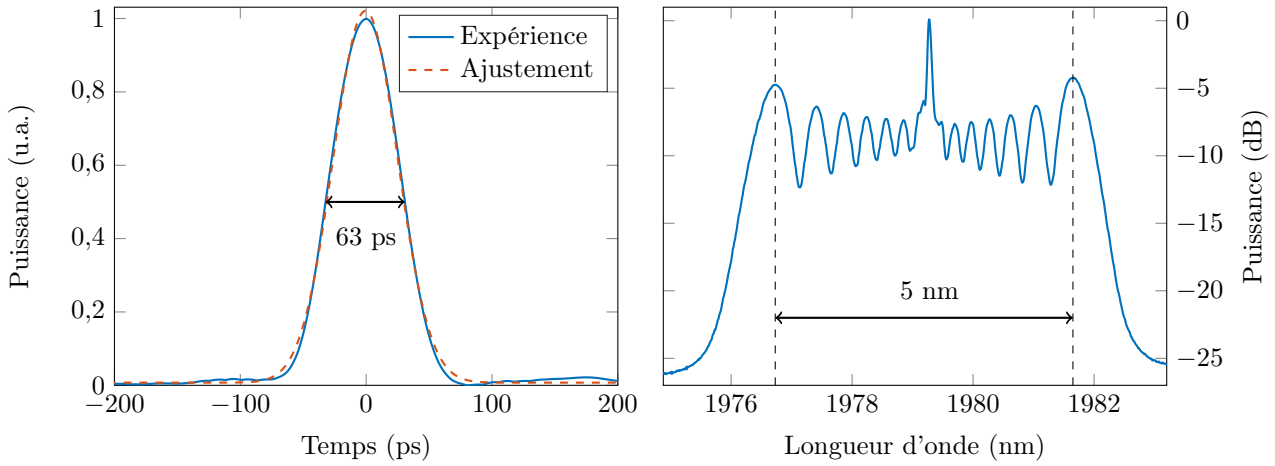
FIGURE 3.2 – Schéma représentant le montage expérimental d'un spectromètre à deux peignes de fréquences par modulation électro-optique à 2 μm . Les éléments TDFA sont des amplificateurs fibrés dopés aux ions thulium Tm^{3+} . GPE : générateur de pulses électriques.

Le signal temporel qu'il est possible d'observer à la sortie d'un MI avec un oscilloscope temps réel est présenté à la Figure 3.3a. Celui-ci montre une impulsion gaussienne de largeur totale à mi-hauteur 63 ps et possédant un écart-type $\sigma = 0,93\%$ comparé à une forme purement gaussienne utilisée pour ajuster les données expérimentales. Le profil temporel montre une largeur plus grande que celle des impulsions électriques, ce qui est dû au fait que les MIs ont une bande passante inférieure à 20 GHz. De fait, les MIs ne retranscrivent donc pas exactement les impulsions électriques et le signal optique se retrouve légèrement élargi. De plus, contrairement au montage à 1,55 μm , les impulsions générées ne sont pas des super-gaussiennes car la puissance RF nécessaire pour atteindre ce point de fonctionnement est plus grande que celle à 1,55 μm et donc plus difficile à obtenir avec des amplificateurs RF. Toutefois, ces deux différences ne sont pas désavantageuses comme nous allons le voir.

3.2.2.2 Caractérisations de la fibre et élargissement spectral

Une fois générés, les trains d'impulsions sont ensuite amplifiés avec deux TDFA pour atteindre une puissance crête d'une dizaine de watts, et élargis dans une FHNL de 500 m dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau 3.1. Un exemple de spectre obtenu en sortie est montré à la Figure 3.3b. Cette fibre bien particulière a été choisie pour cette expérience car elle présente un régime de dispersion normale aux alentours de 2 μm ce qui, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, est d'un certain avantage pour éviter tout effet néfaste qui pourrait détruire la cohérence mutuelle entre les deux peignes.

Toutefois, les paramètres à 1550 nm présentés dans le Tableau 3.1 sont insuffisants pour connaître le comportement de la fibre aux alentours de 2 μm puisque, par définition, ceux-ci ne sont valables qu'aux alentours de 1550 nm. L'estimation de la courbe de dispersion pour toutes longueurs d'onde à partir des données à 1550 nm



(a) Signal temporel enregistré à la sortie d'un MI et comparé avec un ajustement par moindres carrés d'une forme gaussienne.

(b) Spectre optique enregistré à la sortie de 500 m de FHNL dont les paramètres sont présentés dans le Tableau 3.1.

FIGURE 3.3 – Graphiques montrant les caractéristiques temporelles et spectrales des impulsions qu'il est possible de générer en sortie du montage présenté à la Figure 3.2.

Paramètre	λ (nm)	D ($\text{ps}\cdot\text{nm}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$)	S ($\text{ps}\cdot\text{nm}^{-2}\cdot\text{km}^{-1}$)	α ($\text{dB}\cdot\text{km}^{-1}$)	γ ($\text{W}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$)
Constructeur	1550	-3,9	0,021	0,8	27
Mesuré	1980	-0,8	Non mesuré	15	21

Tableau 3.1 – Données constructeurs à 1550 nm et mesurées à 1980 nm de la fibre hautement non-linéaire de longueur 500 m utilisée pour l'élargissement.

est présentée à la Figure 3.4a. Celle-ci montre un zéro de dispersion ainsi qu'un passage en régime anormal aux alentours de 1800 nm ce qui, comme nous allons le voir, est en désaccord avec les expériences que nous allons mener. La Figure 3.4a montre aussi la courbe de dispersion donnée par le constructeur de la fibre (aucun détail n'a été fourni concernant la manière d'obtention de cette courbe). En supposant que cette courbe est plus proche de la réalité que la précédente, nous voyons déjà apparaître de grandes différences : cette dernière montre que le zéro de dispersion est à une centaine de nanomètres plus loin. Toutefois, cette courbe montre toujours le passage à un régime de dispersion anormale aux longueurs d'onde supérieures à 2 μm .

Afin de déterminer plus précisément la dispersion de la fibre aux hautes longueurs d'onde, une expérience menée en parallèle consistant à élargir spectralement des impulsions générées par un MI à 1550 nm dans la FHNL a permis d'obtenir le spectre présenté à la Figure 3.4b. Ce spectre montre la présence de bandes incohérentes due au phénomène de diffusion Raman spontané qui se cascade, la création d'une bande Raman pouvant générer sa propre diffusion Raman lorsque celle-ci atteint une puissance suffisante. De plus, nous pouvons observer que les bandes Raman sont bien distinctes, et cette caractéristique montre que la dispersion ne peut pas être anormale sur cette plage de longueurs d'onde. Dans le cas où la fibre aurait présentée un zéro de dispersion et donc un passage dans le régime anormal, compte tenu de l'intensité des bandes Raman, celles-ci auraient produites de l'IM2 puisque ce phénomène apparaît généralement avant la diffusion Raman. Ceci aurait eu pour effet de créer un supercontinuum sur toute la plage spectrale, ce que nous n'observons pas ici. Nous pouvons donc en conclure que la fibre est en régime de dispersion purement normale et que la courbe de dispersion estimée et celle du constructeur présentées à la Figure 3.4a sont relativement loin de la réalité.

Afin d'estimer expérimentalement les paramètres de la fibre aux hautes longueurs d'onde, une seconde expérience a été entreprise pour caractériser la FHNL. Une source laser délivrant des impulsions 2 ps à 2077 nm a été injectée et comme ces impulsions peuvent être relativement intenses (jusqu'à quelques centaines de watts crête), nous pouvons observer un élargissement des impulsions par ondes de choc dispersives. En faisant varier la puissance injectée P_0 , et en mesurant la fréquence maximale d'élargissement, il est possible de remonter au rapport $\frac{\gamma}{\beta_2}$. En effet, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la fréquence maximale d'élargissement par ondes de choc est donnée par l'équation (2.66). En traçant la courbe $\Omega_{\text{max}} = f(\sqrt{P_0})$, nous devrions donc tomber sur une fonction linéaire de coefficient directeur $2\sqrt{\frac{\gamma}{\beta_2}}$. Les mesures obtenues sont placées à la Figure 3.5a avec une régression linéaire associée aux données.

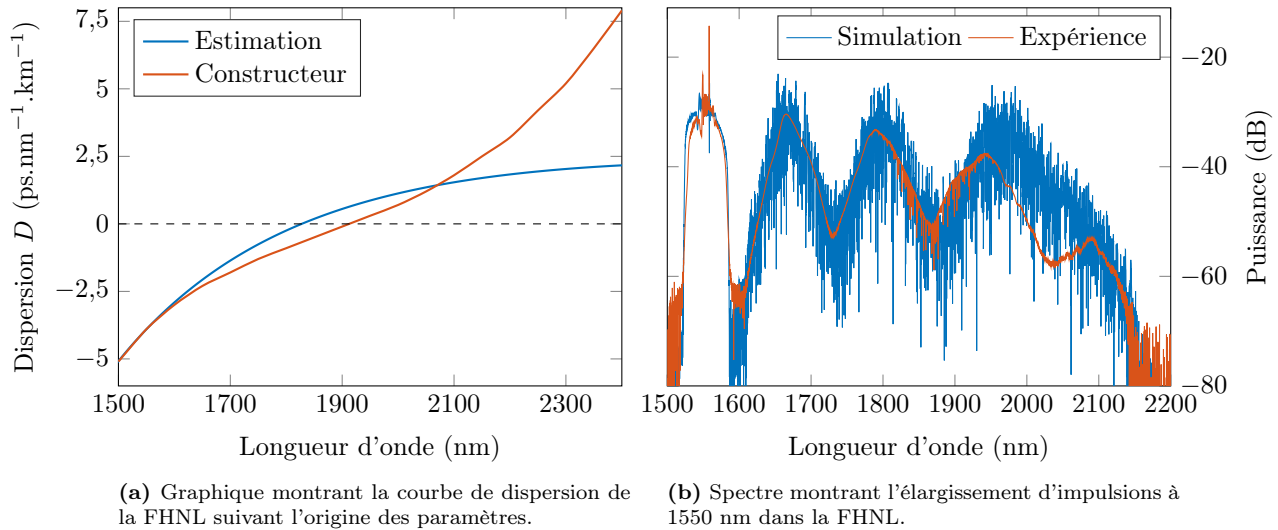


FIGURE 3.4 – Graphiques montrant les caractéristiques de la FHNL ainsi qu'un exemple d'élargissement spectral à 1550 nm permettant de mettre en évidence le régime de dispersion de la fibre.

En prenant en compte la dépendance en longueur d'onde du coefficient Kerr de la fibre, il nous est donc possible d'en déduire des mesures effectuées le coefficient de dispersion d'ordre 2 β_2 à 2077 nm. Cette mesure nous permet de corriger le calcul de la courbe de dispersion en ajoutant un coefficient de dispersion d'ordre 4 β_4 à 1550 nm permettant de fixer la dispersion à 2077 nm par celle que nous avons mesurée. Cette courbe est présentée à la Figure 3.5b et nous observons ici que la dispersion se retrouve totalement en régime normal et, qui plus est, se rapproche des données constructeurs aux basses longueurs d'onde. Pour valider cette courbe de dispersion, nous effectuons une simulation numérique de la propagation des impulsions à 1550 nm dans la fibre (car c'est à cette longueur d'onde que les paramètres de la fibre sont les mieux connus) en prenant en compte la correction de la courbe de dispersion. Les résultats sont placés à la Figure 3.4b et la comparaison au spectre enregistré montre un très bon accord. Notons que les légères différences peuvent être expliquées par le fait que les simulations numériques modélisent une fibre en silice pure, ce qui est rarement le cas des fibres disposant d'un haut coefficient Kerr, celui-ci étant généralement obtenu par l'ajout de dopants lors de la fabrication de la fibre.

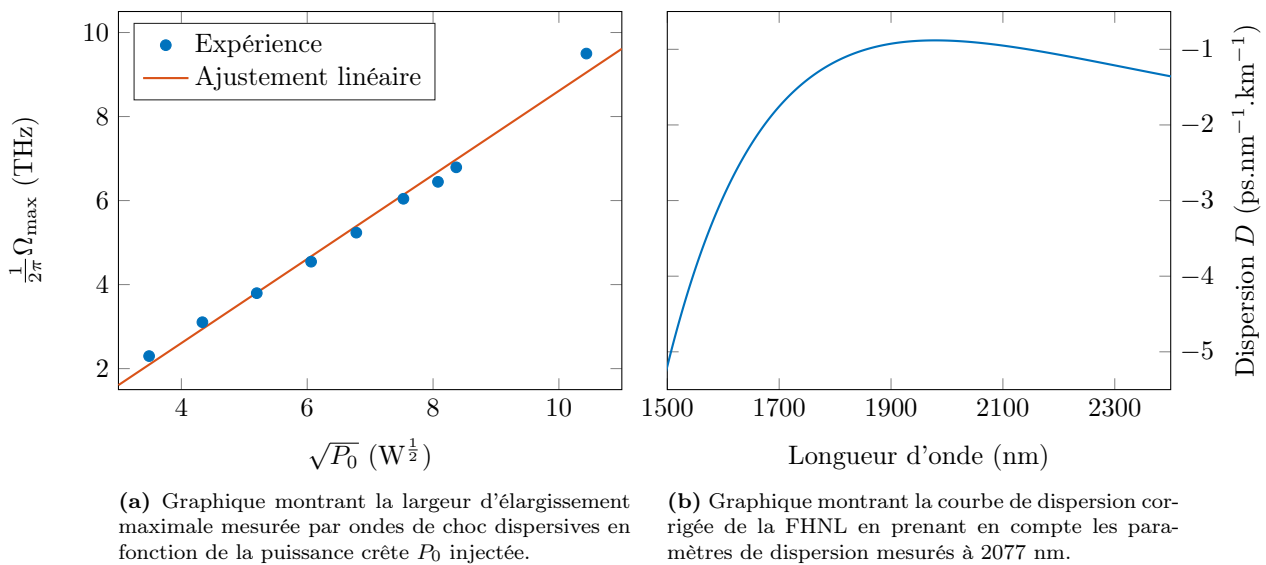


FIGURE 3.5 – Graphiques montrant les données issues de la caractérisation de la dispersion de la FHNL à 2077 nm ainsi que la courbe de dispersion associée.

Des résultats précédents, nous pouvons donc en déduire les paramètres de la FHNL à 1980 nm et ceux-ci sont placés dans le Tableau 3.1. Revenons aux impulsions générées avec les MIs aux alentours de 2 μm . Après

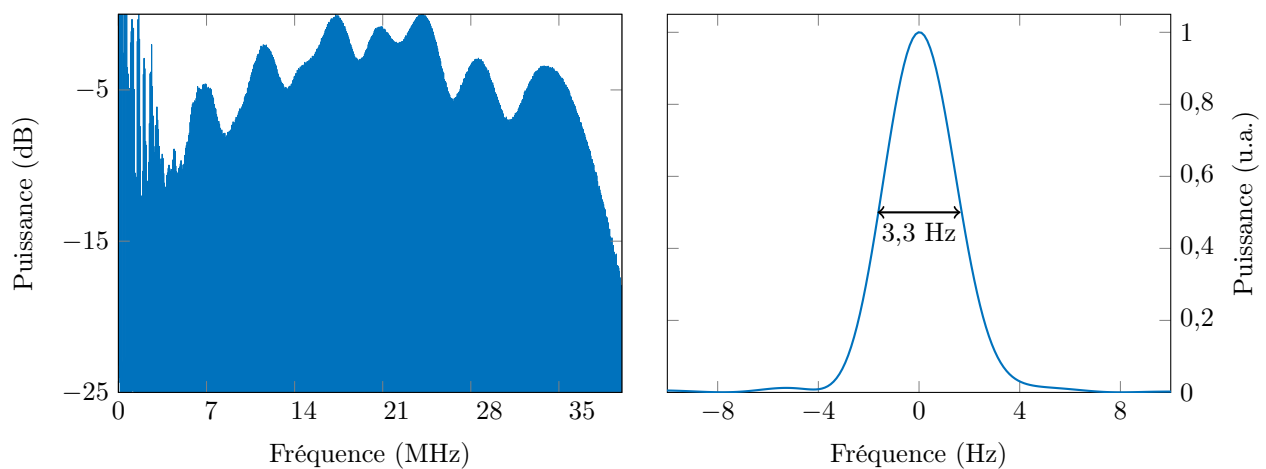
modulation, ceux-ci sont amplifiés jusqu'à une puissance de 12 W crête, injectés en contra-propagatif dans la FHNL et un exemple typique de spectre obtenu en sortie de la fibre a déjà été présenté à la [Figure 3.3b](#). L'absence d'observation de bandes spectrales telles que pourraient générer le phénomène d'IM2 confirme le fait que nous nous trouvons en régime de dispersion normale. De plus, nous pouvons observer que l'élargissement se fait dans un régime purement d'AMP. Les puissances crêtes dont nous disposons en entrée de FHNL étant relativement faibles, la dispersion étant elle-même trop faible à ces longueurs d'onde et les pertes de la fibre trop élevées, il nous est alors impossible d'obtenir un élargissement par ondes de choc dispersives. Notons que l'élargissement obtenu est en accord avec les prévisions théoriques au niveau de la largeur spectrale [25], ce qui prouve que les paramètres de la fibre dont nous disposons après corrections sont en relativement bon accord avec la réalité.

3.2.3 Applications spectroscopiques

3.2.3.1 Spectre RF

Une fois élargis, les peignes sont couplés puis filtrés. Dans le cas de ce montage, nous avons choisis de filtrer les peignes pour éviter le problème du repliement car nous ne disposons pas d'un modulateur acousto-optique fonctionnant à 2 μm . Ensuite, les peignes sont dirigés vers une photodiode et nous vérifions en premier lieu que nous disposons bien d'un signal RF et que celui-ci est exploitable. Un exemple de signal RF observé est présenté à la [Figure 3.6a](#) et celui-ci montre bien un peigne de fréquences, ce qui signifie que le montage génère bien deux peignes de fréquences mutuellement cohérents aux alentours de 2 μm . Ce spectre est obtenu avec l'enregistrement de 200 interférogrammes d'une durée de 2,1 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns. Nous pouvons observer de fortes oscillations dans l'enveloppe du spectre dues à l'élargissement par AMP. Toutefois, ces oscillations sont moins contrastées que sur le spectre optique de la [Figure 3.3b](#). Ceci peut être expliqué par de légères asymétries entre les bras du montage dues, par exemple, au fait que les MIs ne disposent pas exactement du même taux d'extinction, que les TDFAs ne sont pas strictement équivalents, etc. Toutes ces légères différences font que les spectres optiques des deux peignes ne seront pas exactement égaux, en particulier dans les caractéristiques des lobes générés par AMP. Ceci implique que lorsque les peignes sont couplés, le spectre RF ne reflète pas exactement le spectre optique. Toutefois, les asymétries peuvent être exploitées afin de diminuer le contraste des fortes oscillations des lobes générés par AMP. Ceci peut être fait en manipulant la polarisation des peignes dans le montage, les puissances délivrées par les TDFAs, la position du filtre, etc. De cette manière, l'enveloppe du spectre RF est plus lisse et il est aussi possible d'éviter la présence de zones RF où la dynamique du peigne serait très peu exploitable.

En enregistrant un interférogramme d'une durée de 500 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns, et en effectuant sa TF, il est possible de zoomer sur une raie particulière du peigne. Un exemple est montré à la [Figure 3.6b](#) et nous observons une raie de largeur totale à mi-hauteur de 3,3 Hz. Comme déjà évoqué dans le chapitre précédent, la finesse des raies est caractéristique d'une excellente cohérence mutuelle entre les deux peignes générés. Rappelons que cette valeur est une limite haute et que la largeur des raies est sans doute plus



(a) Exemple de spectre RF qu'il est possible d'obtenir avec le spectromètre à 2 μm .

(b) Zoom sur une raie du peigne RF obtenue par TF d'un interférogramme de 500 ms.

FIGURE 3.6 – Graphiques montrant les caractéristiques du spectre RF qu'il est possible d'obtenir avec le spectromètre à deux peignes de fréquences par modulation électro-optique directe à 2 μm présenté à la [Figure 3.2](#).

faible car nous sommes limités par la durée de l'interférogramme enregistré.

3.2.3.2 Spectroscopie du CO_2

Le spectromètre étant opérationnel, nous pouvons donc l'utiliser pour effectuer de la spectroscopie. Après filtrage des peignes, nous ajoutons un coupleur 90/10 afin de pouvoir disposer d'une référence des peignes avant absorption. Les 90% du signal sont dirigés vers une cuve fibrée à multiples passages de longueur d'absorption totale de 78,1 cm, et la sortie est dirigée vers une photodiode. Le signal de référence est de même dirigé vers une photodiode dans le but d'enregistrer simultanément l'absorption et la référence afin d'éviter tout problème de fluctuations du spectre entre les deux mesures. Ceci est particulièrement utile lorsque les spectres RF ne sont pas plats, ce qui est notre cas.

La cuve est remplie avec du CO_2 jusqu'à une pression de 520 mbar, à température ambiante, et en abondance isotopique naturelle, c'est à dire avec une proportion de $^{12}\text{CO}_2$ et de $^{13}\text{CO}_2$ de respectivement 98,4204% et 1,1057% [87]. Une première mesure effectuée à une longueur d'onde centrale de 1996,1 nm sur 2 nm environ, est présentée à la Figure 3.7. Le spectre obtenu est enregistré à partir de 200 interférogrammes d'une durée de 2,1 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

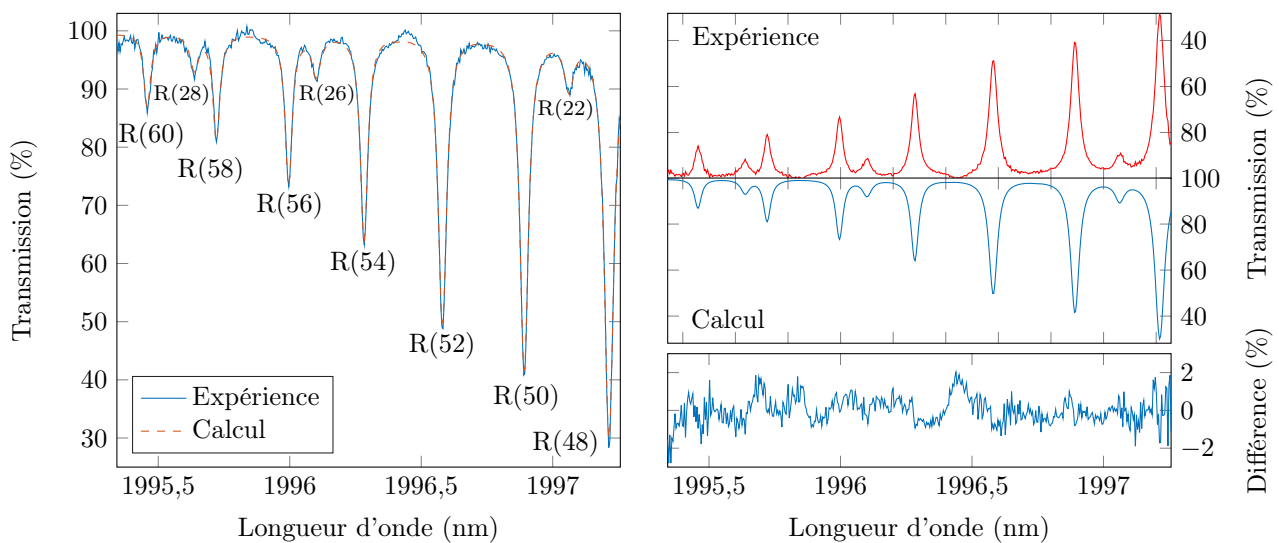


FIGURE 3.7 – Graphiques montrant un spectre d'absorption du CO_2 enregistré à une pression de 520 mbar, à une résolution de 300 MHz, à partir de 200 interférogrammes d'une durée de 2,1 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns. Celui-ci est comparé avec un spectre calculé d'après les données de HITRAN et la différence entre les deux jeux de données montre un écart-type est $\sigma = 0,72\%$.

Le spectre d'absorption montre plusieurs raies de la branche R associée à la bande rotationnelle-vibrationnelle $\nu_1 + 2\nu_2 + \nu_3$ du $^{12}\text{CO}_2$ ainsi que plusieurs raies de la branche R associée à la bande $2\nu_1 + \nu_3$ du $^{13}\text{CO}_2$ (les moins intenses). Cette détection du $^{13}\text{CO}_2$ est relativement intéressante car celle-ci se fait en abondance naturelle du rapport $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$, ce qui ne pouvait être fait à 1550 nm compte tenu de la faible intensité de ces raies. Le spectre expérimental de la Figure 3.7 est comparé avec un spectre calculé dont les données sont issues de HITRAN [87], et la différence entre les deux jeux de données montre un très bon accord puisque l'écart-type est de $\sigma = 0,72\%$. Étant donné que le montage opère en free-running, la calibration en fréquence a été effectuée en recalant la fréquence centrale de la raie R(54) avec celle donnée par HITRAN.

En changeant la longueur d'onde centrale du laser initial, il est possible de sonder d'autres régions spectrales. Avec une longueur d'onde centrale de 2009,1 nm, il est possible d'observer le spectre d'absorption présenté à la Figure 3.8. Ici nous pouvons observer l'intersection entre la branche P+R de la bande $\nu_1 + 2\nu_2 + \nu_3$ du $^{12}\text{CO}_2$, des transitions venant de la branche R de la bande $\nu_1 + 3\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ du $^{12}\text{CO}_2$ et une transition venant de la bande P de la bande $2\nu_1 + \nu_3$ du $^{13}\text{CO}_2$. La calibration en longueur d'onde a ici été faite en recalant la fréquence centrale de la raie R(17) avec celle donnée par HITRAN. Comme pour le précédent spectre, une comparaison avec un spectre calculé dont les données proviennent de HITRAN montre un très bon accord puisque la différence possède un écart-type de $\sigma = 0,99\%$. Notons que d'autres zones spectrales pourraient être observées car le laser continu initial est accordable en longueur d'onde entre 1890 nm et 2020 nm. Ainsi nous avons vérifié la possibilité de sonder la bande $2\nu_1 + \nu_3$ située aux alentours de 1960 nm. Comme celle-ci se verra étudiée plus en détail avec notre prochain montage, nous avons seulement constaté qu'il était possible de l'observer. De ces résultats, nous en avons déduit une intensité minimum de détection de 5×10^{-24} cm par

molécule, correspondant à la raie R(28) de $^{13}\text{CO}_2$.

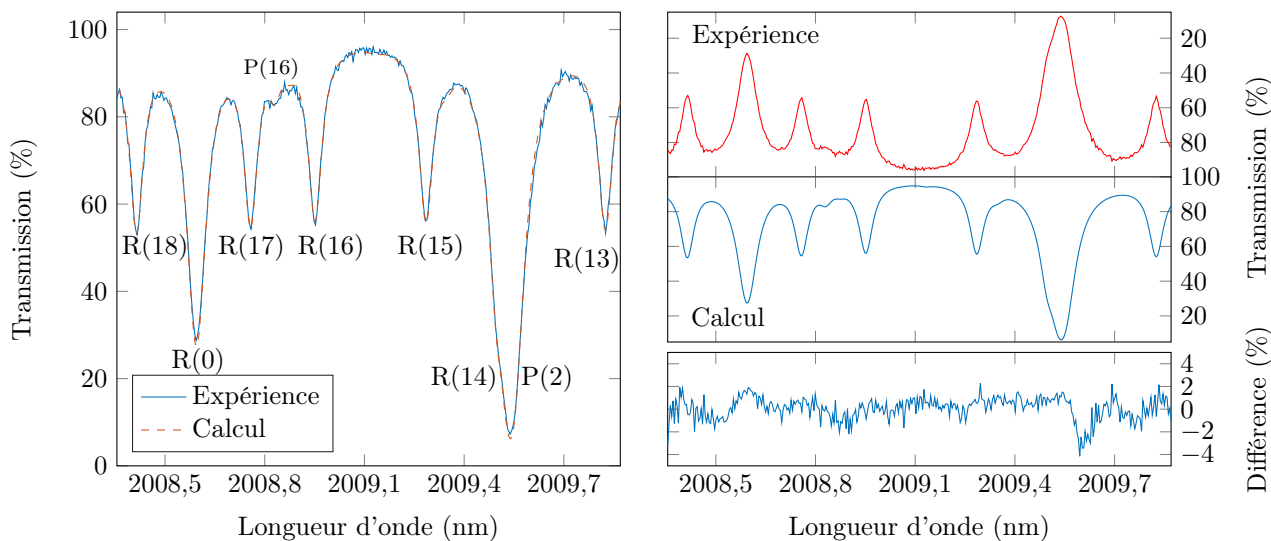


FIGURE 3.8 – Graphiques montrant un spectre d’absorption du CO_2 obtenu à une pression de 520 mbar, à une résolution de 300 MHz, à partir de 200 interférogrammes d’une durée de 2,1 ms à un taux d’échantillonnage de 8 ns. Celui-ci est comparé avec un spectre calculé d’après les données de HITRAN et la différence entre les deux jeux de données montre un écart-type de $\sigma = 0,99\%$.

3.2.4 Conclusion sur la technique de modulation directe à 2 μm

Dans cette partie, nous avons présenté un spectromètre à deux peignes de fréquences tout fibré fonctionnant sur la modulation d’intensité d’un laser continu à 2 μm . Nous avons montré que, bien que moins mature que la technologie à 1,55 μm , le matériel à 2 μm peut être utilisé pour développer des instruments de détection permettant d’effectuer des mesures spectroscopiques. Dans sa conception actuelle, le montage est limité par la diode laser initiale dont la longueur d’onde maximale est de 2020 nm et par la bande spectrale d’amplification des ions Tm^{3+} . Cependant, l’utilisation d’une diode adéquate et l’échange des amplificateurs pour d’autres basés sur les ions holmium Ho^{3+} pourrait permettre de sonder une gamme de longueur d’onde jusqu’à 2150 nm [187, 188], et donc la possibilité de sonder la bande $4\nu_2 + \nu_3$ du $^{12}\text{CO}_2$, la bande $\nu_1 + 2\nu_2 + \nu_3$ du $^{13}\text{CO}_2$ mais aussi d’autres gaz comme le N_2O . Il faut toutefois garder à l’esprit que d’autres problèmes pourraient survenir à ces longueurs d’onde encore plus hautes, notamment concernant la propagation dans les fibres puisque les pertes linéiques deviennent très élevées, ce qui rendrait l’élargissement spectral des peignes très difficile.

Les résultats présentés dans cette partie ont été publiés sous la référence suivante : **Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic dual-comb spectrometer in the thulium amplification band for gas sensing applications”**. Dans : *Opt. Lett.* 44.17 (2019), p. 4335–4338 [189].

3.3 Extension à 2 μm par conversion de fréquences

3.3.1 Introduction

Bien qu’un spectromètre à deux peignes de fréquences par modulation électro-optique directe à 2 μm soit fonctionnel, celui-ci possède quelques désavantages comme nous l’avons vu. Nous rappelons que les composants à 2 μm sont bien moins matures que ceux à 1,55 μm et plus coûteux. D’une manière plus générale, nous pouvons remarquer que le design d’un spectromètre à une longueur d’onde particulière oblige l’utilisation de composants dédiés à cette longueur d’onde, ce qui n’est pas pratique si un montage polyvalent est souhaité. De plus, comme nous l’avons vu, l’élargissement des peignes à 2 μm ne peut se faire que dans un régime d’AMP car les puissances disponibles sont faibles, la dispersion de la fibre faible, et les pertes à 2 μm dans les fibres sont élevées. Ceci oblige l’utilisation de fibres bien précises pour l’élargissement ce qui est moins immédiat.

De fait, nous cherchons et étudions une autre méthode pour générer des peignes à 2 μm . Il serait intéressant de pouvoir changer uniquement la zone spectrale de fonctionnement du montage initial fonctionnant à 1,55 μm afin d’obtenir un spectromètre polyvalent, ou tout du moins étendre sa gamme d’analyse vers les hautes longueurs d’onde. De cette manière, les performances du montage, la maturité et le bas coût des composants seraient

conservés, et celui-ci pourra alors sonder un domaine spectral très approprié à la spectroscopie. Pour ce faire, nous nous intéressons à des phénomènes de conversion de fréquences comme vu à la [section 1.4.3.1](#). Étant donné que nous cherchons à aller aux alentours de 2 μm , nous pouvons toujours tirer parti des fibres optiques et en particulier des phénomènes non-linéaires qui peuvent exister. Dans notre cas, nous allons nous intéresser au phénomène d'instabilité de modulation pour la conversion de peignes de fréquences.

3.3.2 Instabilité de modulation pour une conversion de fréquences

3.3.2.1 Généralités

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en évidence le phénomène d'instabilité de modulation dans les fibres optiques. Nous avons vu que le phénomène pouvait permettre de créer de nouvelles fréquences dans une certaine bande de gain dont les caractéristiques sont données par les paramètres de la fibre et les conditions initiales des impulsions injectées. Dans le but de générer un peigne à 2 μm , nous pouvons donc imaginer convertir notre peigne à 1,55 μm en utilisant ce phénomène d'instabilité de modulation. Le peigne initial à 1,55 μm constituera notre pompe et, en utilisant une fibre dont les paramètres sont judicieusement choisis, nous pourrions disposer d'une réplique de la pompe à la fréquence désirée.

Sachant que notre pompe est de fréquence alentour à 191 THz (1,56 μm) et que nous désirons la convertir vers 150 THz (2 μm), nous avons donc besoin d'induire un décalage en fréquence de 40 THz environ. Comme nous avons pu le voir avec la [Figure 2.5](#), si nous cherchons à utiliser l'IM2 pour effectuer une telle conversion, cela sera impossible car l'IM2 ne permet d'induire un gain important qu'à quelques THz de la pompe [25]. Toutefois, si nous considérons le phénomène d'IM4, alors la conversion que nous cherchons à effectuer pourrait être envisageable. Toujours suivant ce que nous montre la [Figure 2.5](#), l'IM4 présente une fréquence Ω_{opt} (2.47), où le gain est maximal, pouvant se situer à plusieurs dizaines de THz de la pompe. Avec les paramètres β_2 , β_4 , γ et P_0 bien choisis, il est donc possible d'obtenir un gain non-négligeable de la perturbation à la fréquence Ω_{opt} . Tout le but de l'expérience est donc d'induire de l'IM4 avec des paramètres qui font que $\Omega_{\text{opt}} \approx 40$ THz. De cette manière, nous obtiendrions un peigne exploitable à la fréquence désirée.

Comme la fréquence où se situe le gain optimum est fixée par l'expression de Ω_{opt} (2.47), il nous faut initier une conversion qui permet d'obtenir un signal proche de cette même fréquence, dans la bande de gain de l'IM4 (cf [Figure 2.5](#)). Pour cela, nous pouvons utiliser le phénomène d'instabilité de modulation induite. En combinant une contribution continue idler à notre pompe, il est envisageable de trouver les bons paramètres adaptés à la bande de gain. Soit ν_i la fréquence de l'idler et ν_p la fréquence de la pompe, alors par instabilité de modulation induite, il est possible d'avoir $2\nu_p - \nu_i = \nu_s$ avec ν_s la fréquence du signal. Sachant que notre pompe a une fréquence $\nu_p = 191,34$ THz et que nous souhaitons obtenir un signal de fréquence $\nu_s \in [149,5; 153]$ THz (1,95 μm à 2 μm), alors l'application numérique de la fréquence de l'idler à considérer nous donne $\nu_i \in [229,68; 233,18]$ THz (1,286 μm à 1,305 μm). Il faut donc considérer un idler de longueur d'onde alentour à 1,3 μm , dans la bande O des télécommunications.

Pour résumer l'expérience, il convient d'utiliser une fibre optique avec les bons paramètres pour que la bande de gain de l'IM4 soit bien placée, et de stimuler le processus à la bonne longueur d'onde. Pour obtenir une conversion de fréquence efficace et assez large bande (au moins aussi large que le peigne à convertir), les non-linéarités devront jouer un rôle important et nous devons donc disposer d'une FHNL. Un schéma théorique de l'expérience est présenté à la [Figure 3.9](#). Les points théoriques ayant été traités, il serait possible de commencer les expériences. Cependant, il convient mieux de vérifier la faisabilité de celles-ci en effectuant les simulations numériques adéquates, ce que nous allons maintenant aborder.

3.3.2.2 Simulations numériques

L'expérience de conversion à 2 μm par IM4 peut être simulée numériquement afin de vérifier sa faisabilité par intégration numérique de l'ESNLG (2.3) et selon les méthodes que nous avons développées à la [section 2.1.5](#). Ici nous voulons vérifier que nous obtenons bien un signal exploitable à la longueur d'onde voulue. Le but de la simulation est aussi de vérifier que les bons paramètres ont été choisis pour les futures expériences (puissances

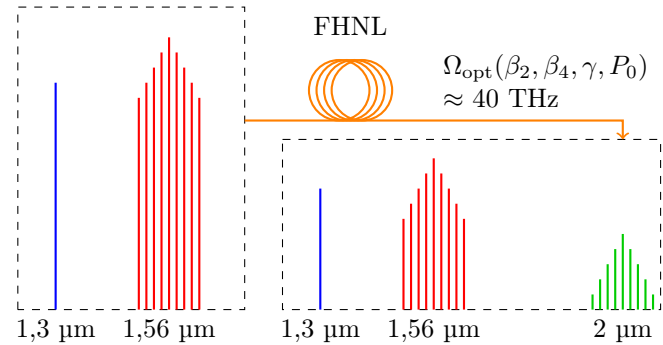


FIGURE 3.9 – Schéma montrant le principe de la conversion d'un peigne de fréquences à 2 μm par instabilité de modulation d'ordre 4.

injectées, longueurs d'onde de la pompe et de l'idler, paramètres des fibres...). Pour cela, quelques paramètres expérimentaux sont à prendre en compte. Le peigne que nous désirons convertir, notre pompe, a une puissance qui ne peut typiquement pas dépasser 50 W crête. La longueur d'onde de l'idler qu'il est possible de générer est comprise en 1,29 μm et 1,31 μm et sa puissance ne peut dépasser 120 mW. Enfin, la FHNL que nous pouvons utiliser pour réaliser la conversion possède les paramètres disposés dans le [Tableau 3.2](#).

Longueur (km)	β_2 ($\text{ps}^2.\text{km}^{-1}$)	β_3 ($\text{ps}^3.\text{km}^{-1}$)	β_4 ($\text{ps}^4.\text{km}^{-1}$)	α ($\text{dB}.\text{km}^{-1}$)	γ ($\text{W}^{-1}.\text{km}^{-1}$)
0 \rightarrow 0,1	0,77	$3,6 \times 10^{-2}$	-4×10^{-5}	0,8	20

Tableau 3.2 – Données constructeurs à 1550 nm de la FHNL utilisée pour la conversion par IM4.

Avant de stimuler l'IM4 en ajoutant l'idler, il est important de vérifier que sa bande de gain est bien positionnée si la FHNL présentée ci-dessus est utilisée. Pour cela, il suffit de faire propager la pompe seule et de regarder si nous obtenons bien un gain à 2 μm . Ce gain, qualifié alors de *spontané*, peut se manifester même si l'IM4 n'est pas stimulée car il existe toujours du bruit quantique possiblement sujet au gain. En effectuant la simulation numérique, nous observons le spectre de la [Figure 3.10](#) : le gain se situe bien où nous l'attendons. De plus, cette première simulation numérique permet de vérifier que la diffusion Raman n'est pas problématique.

Nous pouvons maintenant simuler l'expérience de conversion par IM4 avec l'idler. Nous choisissons une puissance crête pour la pompe en entrée de DCF de 12 W, ce qui est typiquement ce dont nous disposons expérimentalement lorsque la fréquence de répétition des impulsions est fixée à 300 MHz. Concernant la DCF, nous la choisissons avec une longueur de 222 m car, d'après les études que nous avons menées dans le chapitre précédent, cette longueur permet d'avoir un bon compromis entre élargissement spectral obtenu et puissance crête en sortie de fibre. Notons que la fibre TrueWave, dont l'emploi a été décrit dans la [section 2.4](#) pour une optimisation optimale du spectromètre à 1,55 μm , n'a pas été utilisée ici car les études avec cette fibre n'ont été faites qu'après l'expérience de conversion par IM4. Hormis l'obtention d'une largeur spectrale plus élevée, les résultats suivants sont très peu affectés par ce choix. En entrée de la FHNL, les impulsions sont d'une puissance d'environ 5,5 W crête avec un idler dont nous fixons la puissance à 50 mW. Pour une longueur de FHNL de 25 m, nous obtenons à sa sortie le spectre simulé de la [Figure 3.11](#). Nous observons bien un signal à 2 μm . Toutefois, celui-ci se déforme au fur à mesure de la propagation, notamment avec l'apparition de lobes sur les flancs du spectre. La création de ces lobes est due à un phénomène de walk-off entre les différentes composantes de la pompe et du signal [190]. En effet, ces composantes ne se propagent pas à la même vitesse ce qui, cumulé avec le phénomène IM4, induit des oscillations dans le spectre lors de la propagation. Cette caractéristique pourrait être assez gênante et doit être vérifiée expérimentalement. Le phénomène de walk-off étant en majorité dû à la dispersion d'ordre 3 β_3 , les simulations numériques ont permis de constater qu'une réduction d'au moins un ordre de grandeur de ce paramètre pouvait permettre de réduire grandement ce phénomène parasite. Ceci est illustré à la [Figure 3.11](#) où le signal à 2 μm en sortie d'une FHNL similaire à celle que nous avons considérée précédemment, mais possédant une dispersion d'ordre 3 β_3 d'un ordre de grandeur plus faible, est montré. Dans ce cas, nous observons qu'aucune oscillation n'est visible sur l'enveloppe du spectre, mais il faut noter que le phénomène finira tout de même par survenir avec une longueur de fibre plus grande.

D'autres simulations ont montrées que des longueurs plus grandes de FHNL ne pouvaient pas permettre d'obtenir un gain à 2 μm beaucoup plus élevé. En effet, les pertes linéiques aux alentours de 2 μm étant proches de $20 \text{ dB}.\text{km}^{-1}$, l'utilisation de plusieurs centaines de mètres de fibre n'est pas une solution pour obtenir un gain plus élevé. De plus, comme nous l'avons déjà fait remarquer, le phénomène de walk-off est amplifié avec la distance de propagation et l'enveloppe du spectre devient alors de plus en plus déformée. Bien que les simulations ne montrent pas une conversion parfaite de la pompe, celles-ci sont tout de même encourageantes car nous obtenons un signal à 2 μm avec une bonne dynamique et donc potentiellement exploitable. Nous pouvons donc maintenant envisager les expériences.

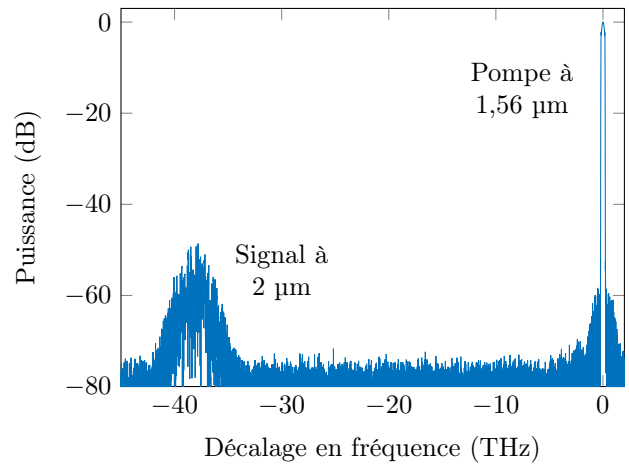


FIGURE 3.10 – Spectre en sortie de FHNL d'une longueur de 45 m obtenu par intégration numérique de l'ESNLG (2.3) lors de la propagation seule de la pompe.

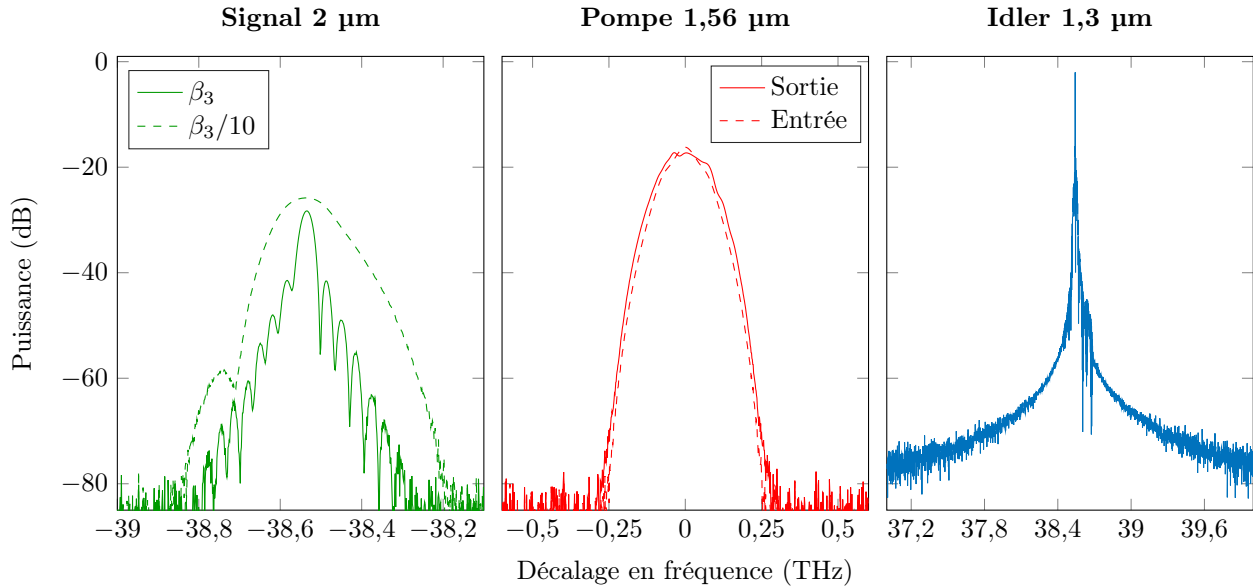


FIGURE 3.11 – Spectre simulé en sortie de la FHNL d’une longueur de 25 m dont les paramètres sont disposés dans le [Tableau 3.2](#), obtenu par intégration numérique de l’ESNLG (2.3). Le signal obtenu à 2 μm présente de fortes oscillations qu’il est possible de réduire si la fibre possède une dispersion d’ordre 3 β_3 plus faible d’au moins un ordre de grandeur.

3.3.3 Montage expérimental pour la conversion d’un peigne

3.3.3.1 Mise en place et résultats de la conversion

Le montage expérimental permettant de convertir un peigne de fréquences à 2 μm par IM4 est schématisé à la [Figure 3.12](#). Celui-ci commence par la création d’un peigne à 1,55 μm avec un MI comme décrit au premier chapitre. Ce peigne est ensuite dirigé vers une fibre optique DCF pour élargir son spectre grâce au phénomène d’ondes de choc. Ensuite, à l’aide d’un multiplexeur, le peigne est couplé à un signal continu à 1,3 μm constituant l’onde idler et le tout est injecté dans la FHNL présentée précédemment d’une longueur de 60 m. Une fois le montage de la [Figure 3.12](#) mis en place, nous regardons à l’analyseur de spectre optique si nous observons bien un signal issu de la conversion. Un exemple de spectre optique qu’il est possible d’observer est placé à la [Figure 3.13](#). Comme nous pouvons le voir, nous avons bien un signal à 2 μm .

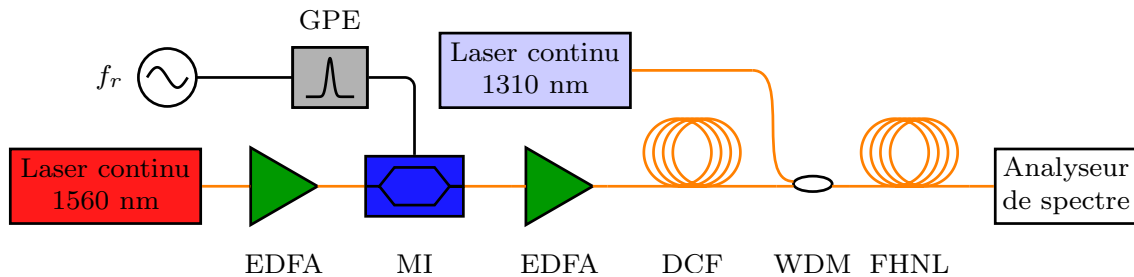


FIGURE 3.12 – Schéma représentant le montage expérimental permettant de générer un peigne de fréquences à 2 μm par instabilité de modulation d’ordre 4. GPE : générateur de pulses électriques, WDM : multiplexeur en longueurs d’onde.

Le spectre obtenu à 2 μm possède une forme difficile à analyser. Nous observons de fortes oscillations dont l’origine pourrait coïncider avec le phénomène de walk-off mis en évidence dans les simulations numériques, mais nous avons remarqué expérimentalement que le contraste des oscillations ainsi que leurs positions dépendaient fortement de la polarisation de l’idler et de celle du peigne en entrée de la FHNL. Les comparaisons entre expériences et simulations sont alors difficiles à effectuer puisqu’elles ne prenaient pas en compte les caractères vectoriels dus à la polarisation, car nous ne disposons d’aucune information sur le caractère biréfringent de la fibre. De plus, la résolution de l’analyseur de spectre optique à cette longueur d’onde est assez faible ce qui ne permet pas d’observer des détails très finement. Toutefois, il est possible de jouer sur cet aspect vectoriel pour obtenir un spectre le plus plat possible, le but étant de l’utiliser plus tard pour de la spectroscopie. Ce degré de liberté supplémentaire peut, dans une certaine mesure, nous éviter d’obtenir un spectre trop cannelé comme nous l’observons. Pour ce faire, nous rajoutons dans le montage plusieurs contrôleurs de polarisation fibrés.

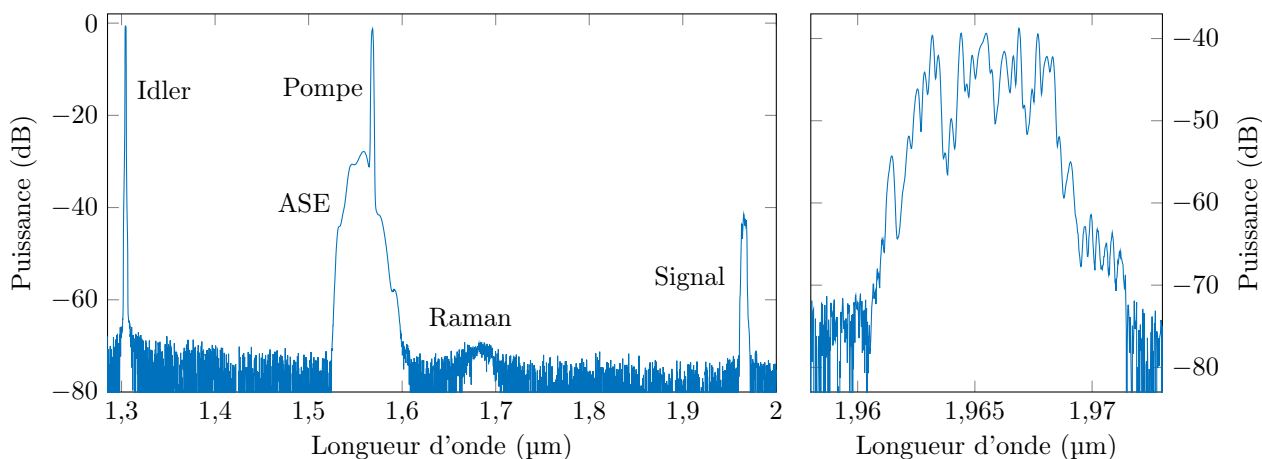


FIGURE 3.13 – Spectre optique observé à la sortie de 60 m de FHNL avec $P_0 = 5,5$ W et $P_{\text{idler}} = 100$ mW. Le spectre de droite est un zoom sur le signal généré aux alentours de 2 μm résultant de la conversion de la pompe par IM4 stimulée.

Comparées aux simulations numériques faites sur 25 m de fibre, le spectre de la [Figure 3.13](#) obtenu en sortie de 60 m de fibre montre une efficacité de conversion relativement faible. Celle-ci, définie comme le rapport entre la puissance de pompe et la puissance du signal, est ici de -40 dB ce qui est très faible par rapport à ce qui est attendu. L'origine de cette faible efficacité est liée à un phénomène que nous n'avons pas pris en compte qui est la fluctuation des paramètres de dispersion de la fibre, ce que nous abordons maintenant.

3.3.3.2 Fluctuation des paramètres de dispersion

En plus des caractères vectoriels qui influencent la forme du signal généré, la fluctuation des paramètres de dispersion de la fibre est un deuxième phénomène induisant un autre effet néfaste lors de la conversion. En effet, la dispersion d'une fibre étant liée à son indice de réfraction et donc au rayon de la fibre (cœur et gaine), des fluctuations longitudinales du rayon pouvant apparaître lors de la fabrication de la fibre induisent donc des fluctuations des paramètres de dispersion. À titre d'exemple, une FHNL sujette à une variation du rayon de son cœur de 10 nm entraîne un décalage de la dispersion de $0,35 \text{ ps}\cdot\text{nm}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$ [191]. Dans le cas de notre FHNL, sa dispersion à 1550 nm étant de $D = -0,6 \text{ ps}\cdot\text{nm}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$, ceci implique que des variations du rayon très faibles peuvent modifier drastiquement sa dispersion, et donc les caractéristiques de la bande de gain d'IM4. Avec ce type de variations, la fibre peut être considérée comme une somme de tronçons possédant une dispersion différente, et la bande de gain IM4 résultante en sortie de cette fibre sera constituée de la somme des bandes de gain prises pour chaque paramètre de dispersion. Au final, le signal converti se retrouvera déformé (déformations à ajouter au phénomène de walk-off mis en évidence précédemment), et l'efficacité de conversion totale se retrouvera diminuée [192]. Pour être plus précis, le signal converti ne s'accumule pas uniformément le long de la fibre sur une même bande de gain, ce qui implique que la puissance de sortie du signal se retrouve plus faible par rapport à l'utilisation d'une fibre idéale sans fluctuation de sa dispersion [193, 194]. Toutefois, ce problème est contournable. Il est difficile voire même impossible de contrôler le rayon de la fibre lors de sa fabrication pour que les fluctuations soient nulles, mais il est possible de concevoir des fibres avec un profil d'indice bien spécifique qui montrent une atténuation drastique du phénomène [191, 192, 194, 195].

3.3.3.3 Élargissement de la bande de gain

Comme nous l'avons vu, la fluctuation des paramètres de dispersion implique une diminution de l'efficacité de conversion puisque différentes bandes de gain associées à différents paramètres de dispersion sont stimulées lors de la propagation dans la fibre. Ceci a pour deuxième conséquence d'élargir globalement la bande spectrale sur laquelle il est possible d'obtenir une conversion. Toutefois, comme nous souhaitons limiter le problème du walk-off et que l'efficacité de conversion n'est pas linéaire en fonction de la longueur de la fibre (à cause des fluctuations de la dispersion), nous réduisons la longueur de la fibre de 60 m à 5 m. Cette longueur a été choisie afin de ne plus observer d'oscillations néfastes dans le spectre optique du signal à 2 μm . Dans un même temps, cette réduction de longueur implique une limitation dans les fluctuations de la dispersion, et donc sur la bande spectrale totale sur laquelle il est possible d'obtenir un signal. Cependant, dans le cas de notre expérience, un autre phénomène élargit la bande de gain et nous permet d'obtenir des peignes sur une large bande spectrale, ce qui nous sera utile pour les applications spectroscopiques.

Dans notre montage, la pompe utilisée est une pompe chirpée puisque les peignes, avant d'être convertis, sont élargis par ondes de choc dans une fibre DCF. En conséquence, chaque fréquence instantanée ω_i va pouvoir contribuer à la génération de sa propre bande de gain puisque chaque fréquence voit une dispersion différente [196, 197]. Notons que cet effet a été étudié et démontré expérimentalement dans les Refs. [196, 197], et ici nous nous intéressons au cas particulier relatif à notre configuration expérimentale, et plus précisément à la largeur totale $\Delta\omega$ sur laquelle il est possible d'obtenir un signal, car cette dernière peut être calculée analytiquement. En effet, la largeur de la pompe $\Delta\omega_p$, dans le cas d'un élargissement par ondes de choc dispersives, est donnée par $2\Omega_{\max}$ avec Ω_{\max} définie par l'équation (2.66). Notons que dans un cas plus général, $\Delta\omega_p$ est difficile à connaître analytiquement, mais cette largeur peut être déterminée expérimentalement.

Comme nous l'avons évoqué, chaque composante spectrale de la pompe va être sujette à une dispersion différente. Ainsi, le paramètre β_2 va varier sur une plage $\beta_2 \pm \Delta\beta_2$ avec $\Delta\beta_2 = \frac{1}{2}\Delta\omega_p\beta_3$, et les valeurs minimales et maximales de β_2 vues par la pompe sont donc de :

$$\beta_2^{\min} = \beta_2 - \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \quad \text{et} \quad \beta_2^{\max} = \beta_2 + \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \quad . \quad (3.1)$$

L'utilisation de ces formules plutôt qu'un calcul en utilisant la courbe de dispersion, pour des largeurs de pompes relativement faibles, montre une erreur de 1% ce qui est une approximation acceptable. Une application numérique en utilisant les paramètres de notre FHNL montre que pour une pompe de largeur 0,5 THz, $\Delta\beta_2 \approx \frac{\beta_2}{10}$. Notons qu'il aurait été possible de prendre en compte la dépendance de β_3 en longueur d'onde, mais les calculs montrent que celle-ci est négligeable pour une pompe relativement peu large comme celle que nous considérons. Ainsi, β_3 et β_4 seront considérées comme des constantes sur la largeur spectrale de la pompe.

Sous ces conditions, la largeur spectrale totale sur laquelle il est possible d'induire un gain par IM4 $\Delta\omega$ est donnée par :

$$\Delta\omega = \Omega_1(\beta_2^{\max}) - \Omega_1(\beta_2^{\min}) + \Delta\Omega(\beta_2^{\max}) + \Delta\omega_p \quad (3.2)$$

où Ω_1 et $\Delta\Omega$ ont déjà été définies dans le chapitre précédent. Le développement de cette expression donne :

$$\Delta\omega = \sqrt{\frac{12\beta_2^{\max}}{-\beta_4}} - \sqrt{\frac{12\beta_2^{\min}}{-\beta_4}} + \gamma P_0 \sqrt{\frac{-\beta_4}{3(\beta_2^{\max})^3}} + \Delta\omega_p \quad . \quad (3.3)$$

En utilisant les équations (3.1), nous obtenons :

$$\Delta\omega = \sqrt{\frac{12}{-\beta_4} \left(\beta_2 + \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \right)} - \sqrt{\frac{12}{-\beta_4} \left(\beta_2 - \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \right)} + \gamma P_0 \sqrt{\frac{-\beta_4}{3 \left(\beta_2 + \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \right)^3}} + \Delta\omega_p \quad (3.4)$$

$$= \sqrt{\frac{12\beta_2}{-\beta_4} \left(\sqrt{1 + \frac{\beta_3\Delta\omega_p}{2\beta_2}} - \sqrt{1 - \frac{\beta_3\Delta\omega_p}{2\beta_2}} \right)} + \gamma P_0 \sqrt{\frac{-\beta_4}{3 \left(\beta_2 + \frac{1}{2}\beta_3\Delta\omega_p \right)^3}} + \Delta\omega_p \quad (3.5)$$

et sachant que $\frac{\beta_3\Delta\omega_p}{2\beta_2} \ll 1$ nous avons au final :

$$\Delta\omega \approx \frac{\beta_3\Delta\omega_p}{\beta_2} \sqrt{\frac{3\beta_2}{-\beta_4}} + \gamma P_0 \sqrt{\frac{-\beta_4}{3\beta_2^3}} \left(1 - \frac{3}{4} \frac{\beta_3\Delta\omega_p}{\beta_2} \right) + \Delta\omega_p \quad . \quad (3.6)$$

Ce que nous venons de voir est illustré avec le [Figure 3.14](#) qui présente le phénomène d'IM4 dans le cas où une pompe large spectralement est considérée.

Une application numérique des formules que nous venons de mettre en évidence nous donne, dans le cadre de notre FHNL, avec une pompe de largeur 0,5 THz et de puissance crête $P_0 = 5,5$ W, $\Delta\omega \approx 13$ THz. Ce résultat est à comparer avec la largeur de bande que nous pourrions trouver si la pompe était une onde continue, ce qui nous donnerait $\Delta\omega = \Delta\Omega(\beta_2) = 0,76$ THz. Notons que dans le cas où la dispersion serait constante sur toute la plage spectrale de la pompe, c'est à dire pour $\beta_3 = 0$, l'équation (3.6) se réduit au résultat $\Delta\omega = \Delta\Omega(\beta_2) + \Delta\omega_p$. De plus, nous retombons bien sur la largeur induite par une pompe continue $\Delta\Omega(\beta_2)$ en posant $\Delta\omega_p = 0$.

Nous avons vu que l'élargissement de la bande de gain peut être dû au phénomène de fluctuations des paramètres de dispersion ainsi qu'au fait que la dispersion n'est pas constante sur la largeur spectrale de la pompe. Toutefois, dans le cadre de nos expériences, nous avons pu constater qu'en utilisant la FHNL présentée plus haut, c'est le phénomène de fluctuation qui est prépondérant dans l'élargissement de la bande de gain, même en utilisant uniquement quelques mètres de fibre. Pour mettre ceci en évidence, nous avons injecté une pompe continue plutôt qu'un peigne et étudié la largeur spectrale sur laquelle il était possible d'obtenir un gain. À part un lissage de la courbe de gain dans le cas où nous utilisons un peigne, les résultats n'ont pas montré de différence significative de largeur avec une pompe continue. Ceci montre que les fluctuations des paramètres

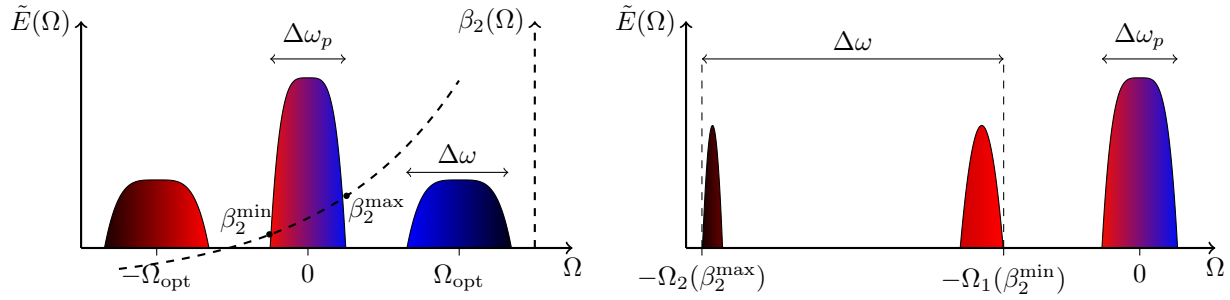


FIGURE 3.14 – (Gauche) Schéma montrant une pompe de largeur spectrale $\Delta\omega_p$ et la largeur totale $\Delta\omega$ à $\pm\Omega_{\text{opt}}$ sur laquelle il est possible d'induire un gain par IM4. La ligne en pointillés représente la courbe de dispersion de la FHNL β_2 : la pompe est en dispersion normale et expérimente une dispersion non constante sur toute sa largeur variant entre β_2^{min} et β_2^{max} . (Droite) Autre représentation de la bande de gain générée par la pompe comme une somme de bandes générées par chacune de ses composantes spectrales. Tel que donné à l'équation (3.2), $\Delta\omega$ s'écrit alors $\Delta\omega = \Omega_2(\beta_2^{\text{max}}) - \Omega_1(\beta_2^{\text{min}})$.

de dispersion sont relativement importantes et que le phénomène n'est pas négligeable, notamment concernant son impact sur la réduction du gain. Cependant, l'élargissement dû au fait que la dispersion est non constante sur la largeur spectrale de la pompe est un résultat tout de même intéressant qui pourrait être utilisé dans le cas d'une fibre optimisée pour éviter les fluctuations longitudinales, comme nous l'avons déjà évoqué [191, 192, 194, 195].

3.3.4 Montage à deux peignes de fréquences

L'expérience précédente nous a montré que nous pouvions bien générer un signal à 2 μm par IM4. Cependant, nous ne pouvons pas vérifier dans l'état actuel que nous avons bien un peigne, la résolution de l'analyseur de spectre ne permettant pas de pouvoir résoudre les raies. Avec le matériel à notre disposition, le seul moyen de vérifier qu'un peigne est généré est de convertir le second peigne et de faire battre les deux, autrement dit, réaliser le montage à deux peignes de fréquences. Si nous observons un peigne dans le domaine RF, c'est que les peignes sont bien créés à 2 μm .

3.3.4.1 Contraintes expérimentales soulevées

En plus de vérifier que le peigne est bien converti à 2 μm , nous avons besoin d'un deuxième peigne qui va interférer avec le premier pour réaliser des applications spectroscopiques. Comme nous parlons d'interférences, il y a besoin d'une grande cohérence entre les deux peignes. Or celle-ci est difficile à obtenir si nous convertissons séparément les deux peignes dans deux FHNLs, les chemins optiques suivis par les peignes étant alors différents. Nous devons donc utiliser la même FHNL afin de garder la cohérence initiale entre les deux peignes, de la même manière que nous utilisons la même fibre pour élargir les peignes à 1,56 μm .

Cependant, des effets non-linéaires néfastes pourraient survenir si le battement se crée dans la FHNL. Ceci pourrait même détruire la cohérence mutuelle des peignes. Une façon de palier au problème serait de propager de façon contra-propagative les impulsions provenant de chaque train dans la fibre, comme déjà réalisé avec fibre pour élargir les peignes à 1,56 μm . Dans ce cas, les peignes verraient un même chemin optique, seraient convertis de la même manière, mais n'interféreraient pas dans la fibre. Cette méthode est toutefois difficile à mettre en place car nous devrions disposer de circulateurs avec une grande bande passante afin de transmettre idler, pompe et signal sans pertes, soit environ 80 THz. Or ces types de circulateurs ne sont pas commercialisés pour le moment.

Une autre méthode envisagée pour contourner le problème serait de polariser les deux peignes orthogonalement avant la propagation dans la FHNL. De cette manière, les peignes seraient convertis en suivant un même chemin optique mais ne battraient pas dans la fibre. En sortie, il suffirait de projeter un peigne sur l'autre pour qu'ils puissent interférer. Bien que la technique soit possible, elle semble difficilement réalisable avec précision dans un montage tout fibré. Un passage à l'air libre pourrait permettre un contrôle plus précis de la polarisation mais nous perdriions alors le caractère tout fibré du montage. De plus, rien ne nous dit que la polarisation sera maintenue lors de la propagation dans la FHNL. Cette méthode n'est donc pas optimale car sujette à beaucoup de contraintes mais pourra toutefois être testée ultérieurement.

3.3.4.2 Montage contra-propagatif sans circulateurs

Une dernière solution envisagée, et celle qui sera utilisée, est de réaliser un montage en contra-propagatif dans la FHNL mais sans circulateurs. Comme nous l'avons fait remarquer plus haut, utiliser des circulateurs avec la FHNL n'est pas possible puisque nous devrions disposer d'une bande passante de plus de 80 THz. Or les circulateurs n'ont en général qu'une bande passante de quelques THz ce qui n'est absolument pas suffisant pour nos expériences. Pour palier à ce problème, nous pourrions envisager l'utilisation de multiplexeurs afin de réaliser un montage fonctionnant quasiment de la même manière que si nous utilisions des circulateurs.

Toutefois, les composants de type multiplexeur sont aussi sujets au même problème de bande passante que les circulateurs : ceux-ci ne fonctionnent de façon optimale que sur une plage de longueur d'onde donnée. Cela ne veut cependant pas dire que ces composants ne fonctionnent pas en dehors de leur plage d'utilisation recommandée : un signal dont la longueur d'onde ne rentre pas dans cette plage se verra juste sujet à des pertes plus ou moins importantes lors de la propagation. Bien que ce caractère d'atténuation semble néfaste, ceci peut ne pas être critique si ces pertes sont anticipées, par exemple en amplifiant davantage l'onde idler avant injection dans la fibre. Ainsi, nous parvenons à la mise en place du montage présenté à la Figure 3.15.

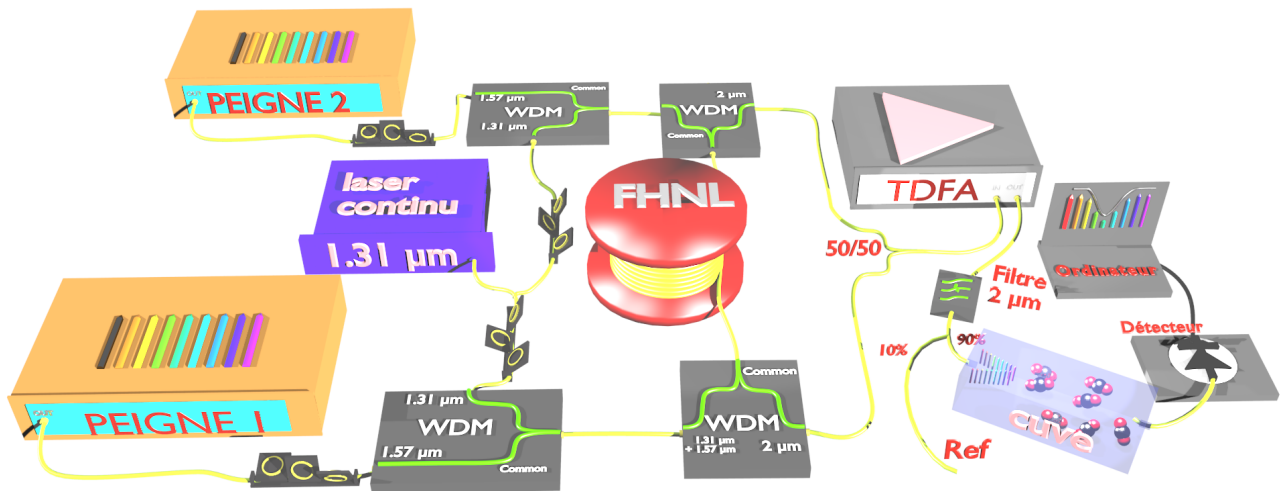


FIGURE 3.15 – Schéma représentant le montage à deux peignes de fréquences à 2 μm issus de la conversion de deux peignes à 1,56 μm par instabilité de modulation d'ordre 4.

Ce montage montre que, à la place d'utiliser des circulateurs pour la propagation dans la FHNL, nous utilisons des multiplexeurs mélangeant des signaux à 1,5 μm et 2 μm . Le principe de fonctionnement est le suivant. En entrée d'un de ces multiplexeurs, nous injectons la pompe et l'idler. L'idler, n'étant pas spécialement compatible avec ce multiplexeur, va subir une atténuation d'environ 3 dB mais va tout de même être transmis et dirigé avec la pompe dans la FHNL. En sortie de la fibre, le signal à 2 μm créé par IM4 est séparé de la pompe et de l'idler par le deuxième multiplexeur. La même chose se déroule en parallèle en entrée avec ce dernier multiplexeur et nos deux peignes à 2 μm devraient donc être créés de façon contra-propagative. Le reste de pompe et d'idler étant redirigés vers l'entrée, il convient de disposer d'isolateurs car ce retour à l'origine pourrait endommager les différents lasers.

3.3.4.3 Désavantages, contournements et résultats

La mise en place du montage présenté à la Figure 3.15 fait apparaître certains désavantages. Premièrement, comme nous l'avons déjà vu précédemment, le signal à 2 μm est trop faible dû aux fluctuations de la dispersion qui nous empêchent d'obtenir une efficacité de conversion suffisante. Dans notre cas, ce problème peut être contourné en utilisant un T DFA après le couplage à 2 μm . L'utilisation d'un amplificateur après conversion est aussi une raison pour laquelle nous pouvons nous permettre de perdre de la puissance sur l'idler avec les multiplexeurs.

Après couplage des signaux à 2 μm , nous utilisons un filtre passe bande afin d'éviter le problème de repliement du spectre RF. Notons que nous avons essayé d'utiliser un modulateur acousto-optique à 1,56 μm pour éviter d'avoir à filtrer les signaux à 2 μm mais étant donné la faible puissance des signaux obtenus par IM4 et donc l'utilisation d'un T DFA, il était impossible de s'affranchir d'un filtre car celui-ci permettait de supprimer une bonne partie de l'émission spontanée amplifiée venant du T DFA. En effet, sans filtre, ce signal incohérent dégradait le RSB et en conséquence, nous avons choisi de ne pas utiliser le modulateur acousto-optique et de ne garder que le filtre, ce qui simplifiait le montage expérimental. Même si cette technique implique une perte d'au

moins 50% du signal, son emploi nous avantage pour la détection. Après le filtre, les signaux sont dirigés vers une photodiode et un exemple de spectre RF qu'il est possible d'obtenir est présenté à la Figure 3.16a. Ce spectre est obtenu avec l'enregistrement de 200 interférogrammes d'une durée de 2,1 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns. La caractérisation de ce peigne nous indique qu'il se situe bien à 2 μm . Les deux peignes sont donc bien convertis dans la FHNL et fait remarquable, ils ont conservé leur cohérence mutuelle puisque nous observons bien un battement en sortie. De plus, l'enregistrement d'un interférogramme d'une durée de 500 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns nous permet de visualiser la finesse des raies du peigne. Un exemple présenté à la Figure 3.16b nous montre que ces raies ont une largeur totale à mi-hauteur de 3,3 Hz. Notons que cette valeur est la même que dans l'expérience précédente car nous travaillons avec les mêmes contraintes sur l'acquisition. Les résultats obtenus étant très satisfaisants, nous allons maintenant les utiliser pour réaliser des applications spectroscopiques.

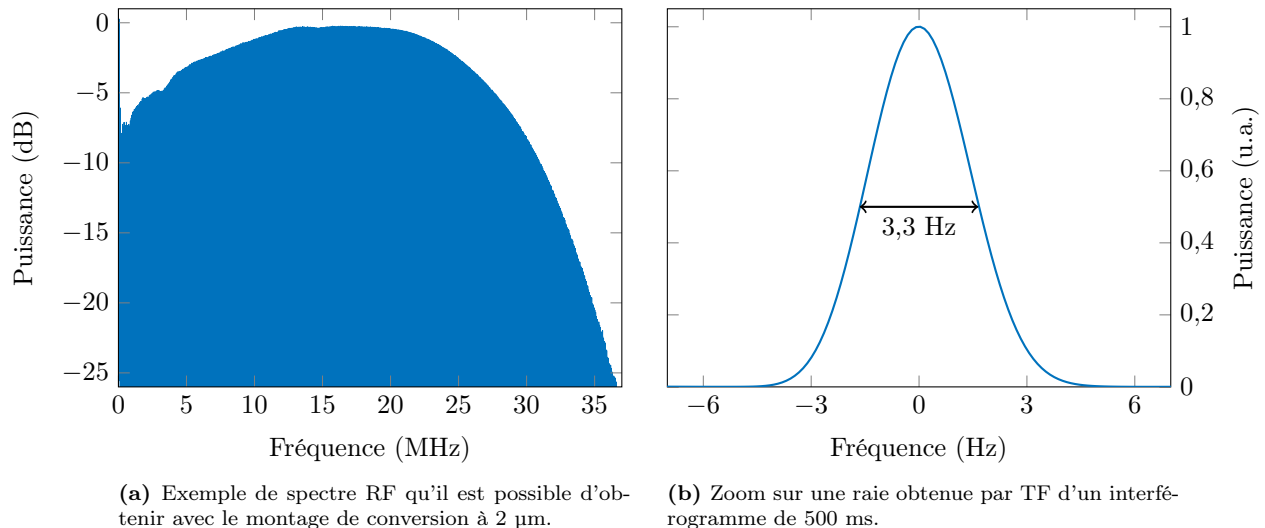


FIGURE 3.16 – Spectre RF du battement entre les deux peignes de fréquences créés à 1,96 μm par IM4 avec le montage de la Figure 3.15 ($f_{\text{rep}} = 300 \text{ MHz}$ et $\Delta f_{\text{rep}} = 57 \text{ kHz}$). Le zoom sur une raie particulière montre une largeur de 3,3 Hz.

3.3.5 Applications spectroscopiques

Comme nous avons un spectre RF avec un bon RSB, nous pouvons maintenant utiliser le montage pour effectuer de la spectroscopie à deux peignes de fréquences à 2 μm . Dans la gamme du signal que nous avons généré, nous pourrions observer certaines bandes d'absorption de la molécule de CO_2 , en particulier la bande $2\nu_1 + \nu_3$ située aux alentours de 1960 nm. C'est donc ce que nous cherchons maintenant à réaliser et les paramètres en longueurs d'onde de l'idler et de la pompe sont faits en sorte que le signal généré soit aux alentours de 1960 nm. Pour cela, nous mettons en sortie d'amplificateur une cuve fibrée à multiples passages dont la longueur d'absorption est de 78,1 cm. Cette longueur est suffisante à 2 μm pour de telles observations contrairement à 1,55 μm où nous devons disposer d'une longueur de 50 m environ pour la même molécule.

Une fois mis en place, nous enregistrons le spectre d'absorption du CO_2 sur quelques dizaines de nanomètres ce qui nous permet d'étudier la branche P et R de la bande $2\nu_1 + \nu_3$. Pour ce faire, nous utilisons les bénéfices associés à la largeur spectrale de la pompe ainsi que des fluctuations des paramètres de dispersion qui sont responsables de l'élargissement de la bande d'amplification IM4. De cette manière, en utilisant l'agilité en longueur d'onde de l'idler dans la bande O aux alentours de 1,3 μm , les signaux peuvent être convertis sur une largeur d'environ 3 THz ce qui couvre la largeur spectrale 1,9435 μm –1,9803 μm . Cette valeur est très inférieure à la valeur que nous avons pu calculer de 13 THz, mais cela peut se comprendre de par le fait que le faible gain IM4 que nous obtenons avec 5 m de FHNL ne permet pas d'exploiter toute la largeur de la bande. Notons que des études avec 60 m de FHNL nous ont permis de constater une agilité bien plus grande et ce, sur plus de 17 THz. Cette valeur est d'ailleurs sûrement plus élevée mais ceci n'a pu être mis en évidence car nous avons atteint les limites de l'agilité en longueur d'onde de l'idler.

La Figure 3.17 montre le spectre d'absorption du CO_2 obtenu en concaténant une quarantaine de spectres avec un recouvrement d'au moins une raie d'absorption entre chaque spectre enregistré. Le temps total d'acquisition pour obtenir le spectre reconstruit est de 0,8 s, mais cette durée ne prend pas en compte le temps nécessaire pour déplacer la longueur d'onde centrale de l'idler et du filtre, ni le temps de traitement des données.

Concernant les spectres individuels, ceux-ci sont enregistrés à partir de 10 interférogrammes de 2,1 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

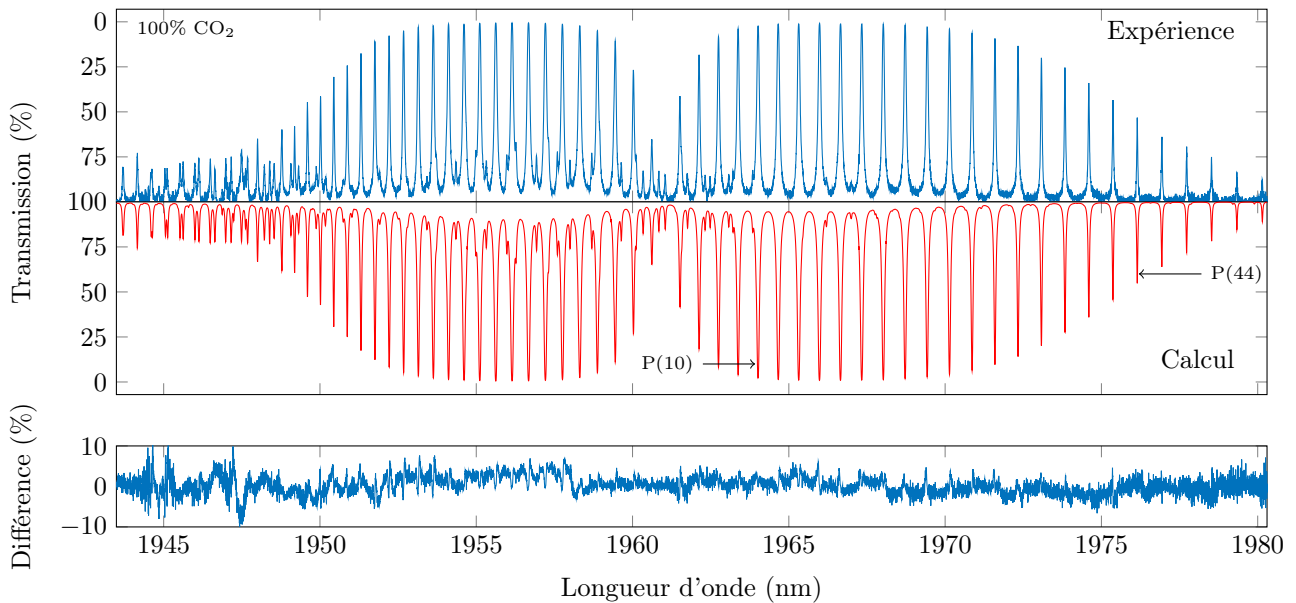


FIGURE 3.17 – En haut, spectre d'absorption du CO_2 enregistré à une pression de 0,582 atm avec le montage présenté à la figure Figure 3.15. Au milieu se trouve un spectre théorique calculé d'après la base de données HITRAN et en bas se trouve une différence entre les deux jeux de données. L'écart-type calculé est $\sigma = 2,3\%$ ce qui montre un bon accord.

Une comparaison du spectre expérimental avec un spectre calculé en utilisant la base de données HITRAN est aussi présentée à la Figure 3.17, et la différence entre les deux jeux de données montre un bon accord puisque l'écart-type calculé est $\sigma = 2,3\%$. Celui-ci est toutefois relativement élevé par rapport aux autres résultats obtenus jusqu'à présent, à 1,55 μm ou 2 μm , car la concaténation par recouvrement de raies issues de spectres différents possède une certaine limite, et que le temps d'acquisition des spectres n'est pas aussi élevé que dans les autres enregistrements. Comme notre montage expérimental opère en free-running, la calibration du spectre en longueur d'onde a été faite en recalant la fréquence centrale d'une raie avec celle donnée par HITRAN. Le spectre enregistré montre aussi des raies d'intensité assez faible, comme celles associées à la bande $2\nu_1 + \nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ avec une intensité de détection minimale de 3×10^{-24} cm par molécule, correspondant à la raie P(41).

Un autre exemple de spectre d'absorption obtenu avec un mélange de gaz de 15% de CO_2 et 85% de O_2 est présenté à la Figure 3.18. Ce spectre a été enregistré dans les mêmes conditions que le spectre présenté à la Figure 3.17, et il est possible de voir les branches P et R de la bande $2\nu_1 + \nu_3$. Sur cette même figure, un ensemble de raies lorentziennes a été ajusté aux données expérimentales et la différence entre les deux jeux de données montre un très bon accord puisque l'écart-type calculé est $\sigma = 1,24\%$. Cette mesure a été entreprise dans le but d'observer jusqu'à quelle pression partielle de CO_2 il était possible d'obtenir un signal d'absorption de cette molécule avec notre montage. Les résultats nous ont montré qu'une pression partielle de 1,5% de CO_2 sur 1 bar permettait de détecter les raies les plus intenses de la bande $2\nu_1 + \nu_3$. Ceci implique que, pour notre montage, la région alentour à 2 μm n'est pas la plus adaptée pour étudier précisément des gaz dont la pression partielle de CO_2 n'est que de quelques pourcents, comme il est possible de le trouver dans l'air ambiant ou l'air expiré.

Étant donné que les enregistrements effectués sont basés sur la concaténation de plusieurs spectres, la question de la stabilité du montage dans le temps se pose naturellement. Des résultats obtenus, nous n'avons observé aucune déviation des signaux RF durant les enregistrements et ce pendant plusieurs heures. De plus, nous avons observé que lorsque le montage est éteint après avoir été optimisé, le relancer après plusieurs jours ne requiert qu'un ajustement des contrôleurs de polarisation pour une utilisation optimale.

Pour finir, nous utilisons notre montage pour des applications spectroscopiques orientées vers l'étude de raies individuelles. Par exemple, nous pouvons focaliser notre attention sur les raies P(10) et P(44) (leurs positions sont indiquées à la Figure 3.17) afin de pouvoir mesurer leur coefficient d'élargissement collisionnel Γ à température ambiante. Pour ce faire, nous enregistrons différents spectres d'absorption à différentes pressions P et un profil de Voigt est ajusté aux données expérimentales. Un exemple de raie enregistrée avec une superposition à un profil de Voigt ajusté est montré à la Figure 3.19a. De ces profils ajustés, il est possible d'en déduire la largeur totale à mi-hauteur de la raie $\Delta\sigma_L$ en fonction de la pression et donc Γ puisque $\Delta\sigma_L = \Gamma P$ (comme défini

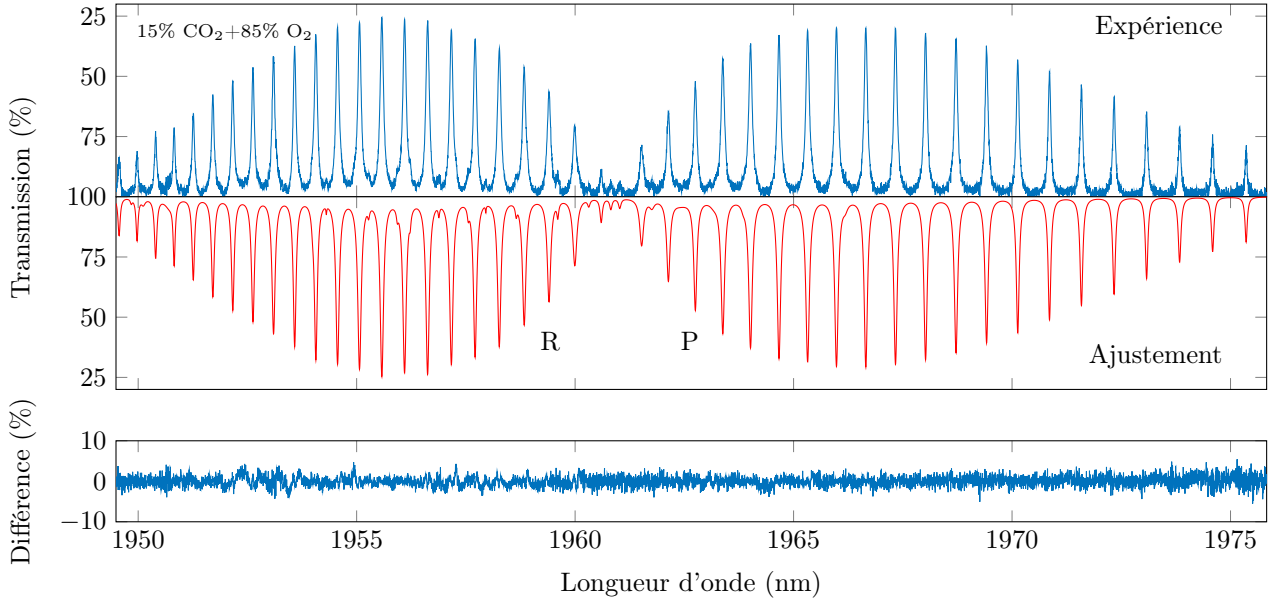
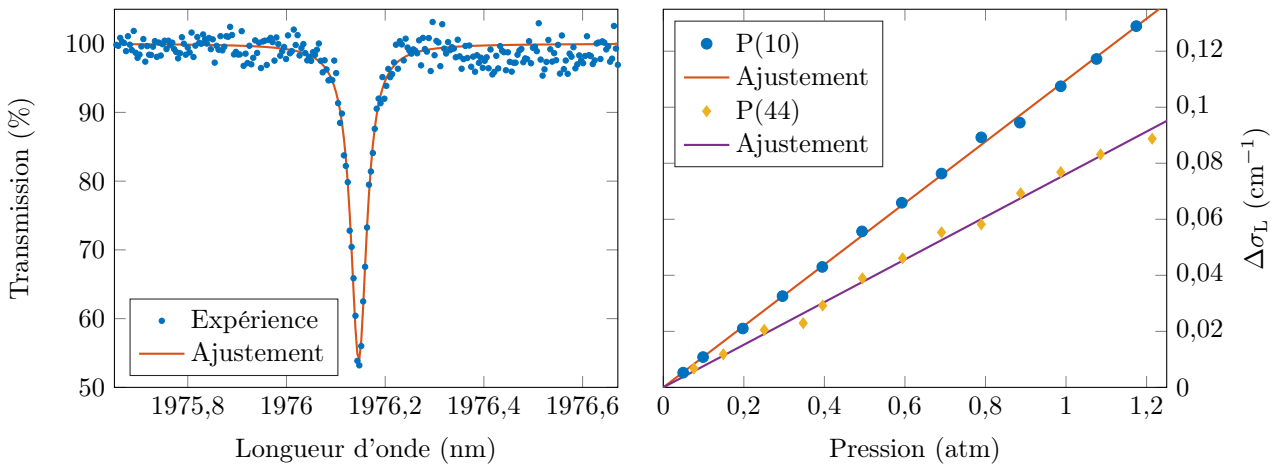


FIGURE 3.18 – En haut, spectre d’absorption d’un mélange de 15% de CO_2 et 85% de O_2 à une pression de 1,283 atm enregistré avec le montage présenté à la figure Figure 3.15. Au milieu se trouve un ajustement numérique composé d’une superposition de formes lorentziennes et en bas se trouve une différence entre les deux jeux de données. L’écart-type calculé est $\sigma = 1,24\%$ ce qui montre un très bon accord.



(a) Spectre d’absorption de la raie P(44) du CO_2 à une pression de 0,58 atm comparée à l’ajustement d’un profil de Voigt.

(b) Largeurs à mi-hauteur $\Delta\sigma_L$ des raies P(10) et P(44) du CO_2 en fonction de la pression P et à température ambiante.

FIGURE 3.19 – Graphiques montrant les données expérimentales associées à la mesure de coefficients d’élargissements collisionnels des raies P(10) et P(44) de la bande $2\nu_1 + \nu_3$ du CO_2 .

à l’équation (1.30)). La Figure 3.19b montre les largeurs totales à mi-hauteur des raies P(10) et P(44) en fonction de la pression. Les coefficients d’élargissements collisionnels Γ sont déduits de ces courbes et nous mesurons $\Gamma_{\text{P}(10)} = (0,1097 \pm 0,0011) \text{ cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$ et $\Gamma_{\text{P}(44)} = (0,0761 \pm 0,0017) \text{ cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$, les incertitudes correspondant à un intervalle de confiance à 95%. Ces valeurs sont en très bon accord avec les valeurs données par HITRAN qui sont $\Gamma_{\text{P}(10)}^{\text{HITRAN}} = 0,109 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$ et $\Gamma_{\text{P}(44)}^{\text{HITRAN}} = 0,078 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$ [87].

3.3.6 Conclusion sur la technique de conversion à 2 μm

Dans cette partie, nous avons démontré expérimentalement une nouvelle technique de conversion de peignes de fréquences générés par des MEOs à 1,55 μm par IM4 dans une FHNL en régime de dispersion normale. En utilisant un laser continu de quelques dizaines de milliwatts de puissance, et sachant que la FHNL utilisée est commune à la conversion des deux peignes, nous avons montré que la conversion peut s’effectuer en présen-

vant une excellente cohérence mutuelle tout en gardant un montage fonctionnant en free-running. Les peignes convertis dans la région alentour à 1,96 μm ont permis d'effectuer des applications spectroscopiques avec une sensibilité proche de ce que nous avons obtenu à 1,55 μm , et une fiabilité importante grâce aux composants tout fibrés disponibles dans les bandes des télécommunications O, C et L. De plus, ces composants étant large bande, l'utilisation de diodes lasers agiles en longueurs d'onde permet d'obtenir des signaux à différents endroits du spectre, ce qui nous a permis de sonder du CO_2 sur 3 THz ainsi que des raies particulières pour la mesure de certains paramètres. D'une manière générale, les résultats sont en très bon accord avec la base de données HITRAN.

Les résultats présentés ici ont été publiés sous la référence suivante : **Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. "Two-micron all-fibered dual-comb spectrometer based on electro-optic modulators and wavelength conversion". Dans : *Communications Physics* 1.17 (2018) [198].**

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté deux montages expérimentaux permettant de générer des peignes de fréquences aux alentours de 2 μm dans le but de développer un spectromètre à deux peignes de fréquences. Ces deux techniques basées sur des MIs ont chacune montré des avantages et des inconvénients. Concernant la première technique de génération de peignes avec des MEOs fonctionnant à 2 μm , il a été démontré que la technologie actuelle à 2 μm est tout à fait utilisable pour développer un spectromètre à deux peignes de fréquences et les analyses spectroscopiques obtenues sont en très bon accord avec la base de données HITRAN. Ces résultats peuvent ouvrir la voie vers une possible extension dans le MIR. En effet, au détriment de l'avantage tout fibré du montage, la modulation directe d'un laser continue dans le MIR pourrait être entreprise en sachant que des modulateurs optiques ont été reportés dans la littérature jusqu'à 8 μm en utilisant la technologie Si-on-LiNbO₃ [104], phosphore noir [105] ou encore Ge-on-Si [199]. Bien que théoriquement possible, le problème principal de ces montages serait l'élargissement spectral qui ne pourrait être fait de manière simple. Toutefois, des fibres exotiques ou des guides d'onde pourraient être utilisés dans ce but [200, 201].

Concernant la seconde technique consistant à étendre la zone spectrale de fonctionnement du spectromètre par conversion de fréquences de peignes à 1,55 μm , il a été démontré que l'utilisation d'une fibre optique adéquate pouvait permettre de sonder la région spectrale désirée, ici les alentours des 2 μm . Toutefois, l'utilisation d'une autre fibre optique avec les bons paramètres pourrait permettre d'étendre le spectromètre dans n'importe quelle région du proche infrarouge. De plus, en sachant que l'existence du phénomène d'instabilité de modulation a été démontré dans d'autres matériaux, il serait possible de remplacer la fibre en silice par une fibre en chalcogénure ou en tellure ce qui pourrait étendre le montage dans le MIR [202]. Comme nous l'avons déjà fait remarquer, le contrôle des paramètres de dispersion de la fibre devra être essentiel mais cela est tout à fait possible, de la même manière qu'avec des fibres silices [191, 192, 194], avec des fibres exotiques [203]. Dans le même but, la fibre pourrait être remplacée par des guides d'onde ce qui ouvrirait de nouvelles opportunités dans le MIR [54, 204–207].

Chapitre 4

Extension du spectromètre dans le moyen-infrarouge

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il était possible de générer des peignes de fréquences aux alentours de 2 μm en utilisant des MEOs fonctionnant dans cette région spectrale, ou bien en exploitant des effets non-linéaires tel que l'IM4 pour convertir la longueur d'onde centrale de peignes générés avec des MEOs à 1,55 μm . Cependant, comme nous l'avons déjà évoqué, ces deux techniques sont limitées par la fenêtre de transparence de la silice et elles ne sont donc pas utilisables pour atteindre de plus hautes longueurs d'onde. De plus, bien que la région des 2 μm soit propice à la spectroscopie du CO_2 , elle l'est moins pour d'autres molécules qui absorbent peu voire pas du tout, comme illustré à la [Figure 3.1](#). Pour ces molécules, de grandes longueurs d'absorption sont nécessaires, ce qui n'est pas forcément simple, comme nous l'avons déjà abordé pour la spectroscopie du CO_2 à 1,55 μm . Toutefois, ces problèmes peuvent être palliés en privilégiant les analyses dans le MIR, où les molécules absorbent encore bien plus qu'à 2 μm .

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la conversion dans le MIR de peignes générés avec des MEOs à 1,55 μm par GDF dans des cristaux non-linéaires. Pour illustrer les avantages du MIR par rapport aux précédents domaines étudiés, nous effectuerons des mesures mettant en évidence la capacité de notre montage à détecter de faibles concentrations de gaz. De plus, nous verrons des applications plus spécifiques permettant par exemple d'analyser l'air expiré par un humain ou encore des gaz d'échappement. Pour commencer, rappelons quelques fondamentaux sur les cristaux qui seront utilisés pour exploiter le phénomène de GDF.

4.1 Introduction et rappels

4.1.1 Rappels sur les cristaux polarisés périodiquement

À la [section 1.4.3.1](#), nous avons vu que la fréquence centrale d'un peigne généré avec des MEOs pouvait être convertie en utilisant différents phénomènes. Afin de pouvoir atteindre le MIR, la GDF est un de ces phénomènes utilisables et sûrement le plus propice. Nous rappelons que la GDF est un phénomène non-linéaire du second ordre permettant de générer un signal de fréquence ν_s en utilisant une onde idler de fréquence ν_i et une pompe de fréquence ν_p selon la relation $\nu_p - \nu_i = \nu_s$.

Comme la GDF est un phénomène non-linéaire du second ordre, celui-ci est impossible à exploiter dans une fibre optique car c'est un matériau centrosymétrique. Ainsi, pour la conversion de peignes générés avec des MEOs, il faut donc renoncer au caractère tout fibré de notre montage. Notons toutefois qu'il existe des cristaux connectés avec des fibres chalcogénures ou fluorées, fibres transparentes jusqu'à 5 μm environ, ce qui permettrait de garder un montage tout fibré. Cependant, ces fibres sont relativement coûteuses et possèdent de fortes atténuations linéiques, de l'ordre de quelques dB par mètre, ce qui pourrait impacter la qualité du signal généré. De plus, les composants tels que les multiplexeurs ou coupleurs fonctionnant dans le MIR n'existent pour l'instant que peu en dehors du domaine de la recherche, ce qui implique que la conception d'un montage tout fibré serait complexe.

Plusieurs types de milieux peuvent être utilisés pour réaliser de la GDF, mais nous opterons ici pour des cristaux PPLNs dont l'utilisation est relativement simple. La [Figure 4.1a](#) montre une plateforme de LiNbO_3 conçue de façon à accueillir plusieurs cristaux ainsi que leurs caractéristiques physiques. Les deux cristaux présentés sur le schéma diffèrent de par la longueur Λ associée à la variation périodique de la polarisation du cristal. Comme illustré à la [Figure 4.1b](#), lorsque ce type de cristal est utilisé pour exploiter un phénomène non-linéaire (ici la GDF), la variation de polarisation permet d'alterner périodiquement le signe de l'accord de

phase, et donc d'obtenir un quasi-accord de phase lorsque la période est judicieusement choisie [88].

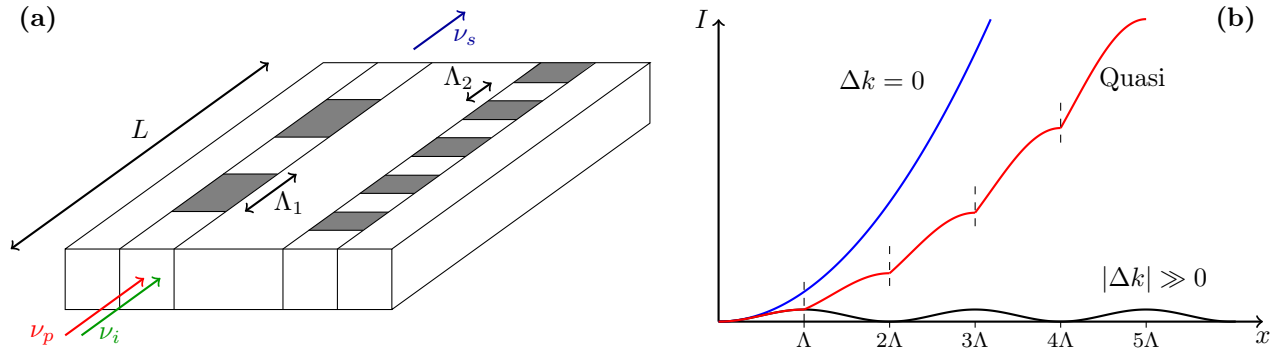


FIGURE 4.1 – (a) Schéma représentant une plateforme de LiNbO_3 accueillant deux cristaux PPLNs de longueur L et de périodicité Λ , pour une application à la génération par différence de fréquences. (b) Graphique montrant l'intensité de l'onde signal issue d'une différence de fréquences en fonction de la distance et suivant l'accord de phase réalisé. $\Delta k = 0$ représente un accord de phase parfait, tandis que $|\Delta k| \gg 0$ représente un cas où l'accord de phase est loin d'être réalisé. En utilisant un cristal orienté Λ -périodiquement, il est possible de réaliser un quasi-accord de phase.

4.1.2 Relations et contraintes physiques

4.1.2.1 Accord de phase

Comme nous venons de l'évoquer, la périodicité du cristal est le paramètre clé pour obtenir un quasi-accord de phase. Dans le cas de la GDF, le désaccord de phase Δk dans un cristal PPLN est donné par la relation suivante [208] :

$$\Delta k = 2\pi \left(\frac{1}{\lambda_p} \sqrt{n_e^2(T, \lambda_p)} - \frac{1}{\lambda_i} \sqrt{n_e^2(T, \lambda_i)} - \frac{1}{\lambda_s} \sqrt{n_e^2(T, \lambda_s)} - \frac{1}{\Lambda} \right) \quad (4.1)$$

où n_e est l'indice extraordinaire du cristal. L'axe extraordinaire du cristal est privilégié car sa non-linéarité est maximale sur cet axe, ce qui permet d'exploiter au mieux ce dernier. Expérimentalement, ceci implique que la polarisation des ondes pompe et idler doivent être alignées avec le moment dipolaire du cristal. L'indice extraordinaire n_e peut être calculé en utilisant la formule de Sellmeier [208] :

$$n_e^2(T, \lambda) = a_1 + b_1 f(T) + \frac{a_2 + b_2 f(T)}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f(T))^2} + \frac{a_4 + b_4 f(T)}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2 \quad (4.2)$$

avec a_i, b_i tels que $i \in \mathbb{N}^*$ les paramètres de Sellmeier et f une fonction donnée par :

$$f(T) = (T - 24,5)(T + 570,82) \quad (4.3)$$

où T est la température du cristal. Pour le cristal que nous utiliserons, c'est à dire un cristal PPLN dopé à 5% d'oxyde de magnésium MgO, les paramètres de Sellmeier sont présentés dans le [Tableau 4.1](#).

	$i = 1$	$i = 2$	$i = 3$	$i = 4$	$i = 5$	$i = 6$
a_i	5,756	0,0983	0,2020	189,32	12,52	$1,32 \times 10^{-2}$
b_i	$2,860 \times 10^{-6}$	$4,700 \times 10^{-8}$	$6,113 \times 10^{-8}$	$1,516 \times 10^{-4}$		

Tableau 4.1 – Paramètres de Sellmeier permettant de calculer l'indice extraordinaire d'un cristal PPLN dopé à 5% de MgO selon l'équation (4.2) [208].

4.1.2.2 Bande d'acceptance spectrale

Les relations précédentes, en particulier l'équation (4.1) donnant le désaccord de phase, ne prennent pas en compte le fait d'avoir une pompe ou un idler large spectralement : elles ne sont strictement valables que pour des longueurs d'onde uniques. Or dans notre expérience, nous cherchons à convertir les peignes générés à $1,55 \mu\text{m}$ avec des MEOs, c'est à dire des spectres larges. Sachant que nous utiliserons une onde idler continue, seule la fréquence centrale des peignes satisfera donc parfaitement à $\Delta k = 0$. Toutefois, en calculant le gain induit par

GDF en fonction de la longueur d'onde du signal il est possible d'observer que, même si l'accord de phase n'est pas strictement parfait, une conversion est possible. Ce gain g est caractérisé par la relation suivante :

$$g \propto I_p I_i L^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\Delta k \frac{L}{2} \right) \quad (4.4)$$

où L est la longueur du cristal et I_p et I_i sont respectivement l'intensité de la pompe et de l'idler. En utilisant l'équation (4.1) et les paramètres de notre future expérience que nous verrons en détail plus bas, il est possible de voir avec la Figure 4.2a que le gain possède une certaine largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda$ appelée *bande d'acceptance spectrale*. Cette bande peut être considérée comme la largeur maximale de conversion par GDF, car le spectre converti ne se retrouve alors que peu déformé à cause de la forme du gain donné par la fonction sinus cardinal. D'un autre côté, l'équation (4.4) montre aussi que le gain dépend de la longueur totale du cristal. Une conversion avec un spectre large doit donc se faire en accord avec ce paramètre, et comme le montre la Figure 4.2b, plus le cristal est petit et plus la bande d'acceptance spectrale sera grande. Toutefois, ceci se fera au détriment de l'intensité du signal généré car le gain est proportionnel au carré de la longueur du cristal. Un compromis relatif à l'expérience est donc à trouver.

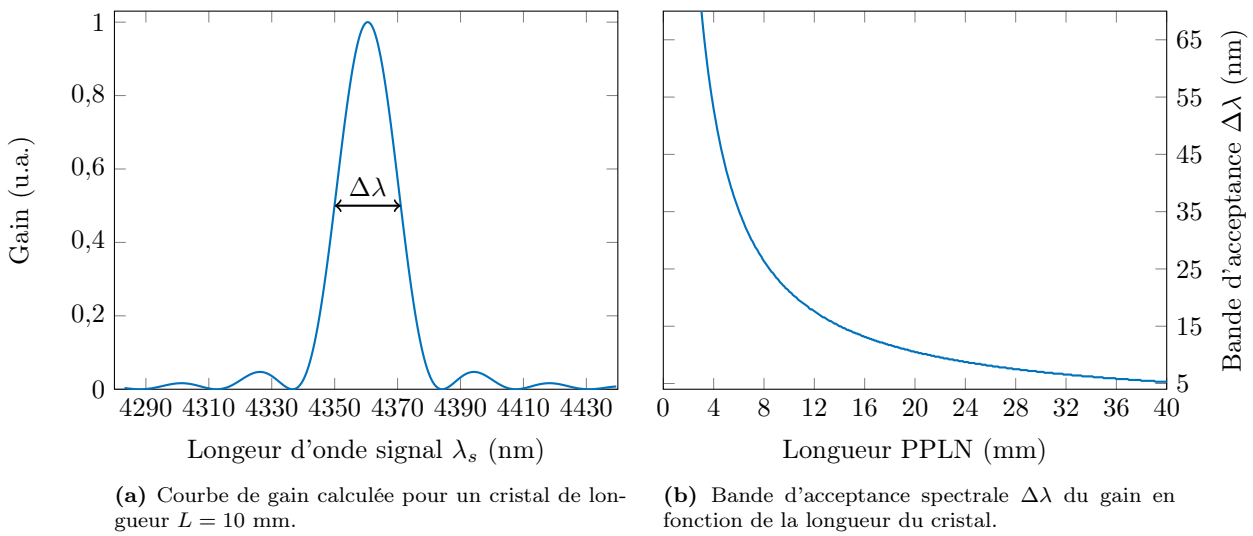


FIGURE 4.2 – Graphiques montrant différentes caractéristiques du gain du phénomène de génération par différence de fréquences en fonction de la longueur du cristal L avec $\lambda_p = 1560$ nm, $\lambda_i = 2429$ nm, $\Lambda = 31,02$ μm et $T = 191^\circ\text{C}$. Pour un cristal de longueur 10 mm, $\Delta\lambda = 21$ nm.

4.2 Montage expérimental

4.2.1 Mise en place et description du montage

L'expérience que nous souhaitons réaliser est de convertir par GDF nos peignes générés avec des MEOs aux alentours de $\lambda_p = 1560$ nm dans le MIR, et plus précisément à $\lambda_s = 4360$ nm. Ce choix est motivé par la présence de la bande fondamentale ν_3 du $^{12}\text{CO}_2$ et du $^{13}\text{CO}_2$, et en particulier du fait qu'à cette longueur d'onde, il est possible de trouver des raies de $^{12}\text{CO}_2$ et $^{13}\text{CO}_2$ d'intensités similaires dans un mélange en abondance naturelle. Afin d'obtenir une conversion par GDF à λ_s avec une pompe à λ_p , deux solutions idler sont possibles : $\lambda_i = 1149$ nm ou $\lambda_i = 2429$ nm. Étant donné qu'il s'avère être difficile de trouver commercialement une diode continue fine spectralement et relativement puissante (quelques watts) à 1149 nm, nous opterons pour la deuxième solution. Au niveau du cristal PPLN, les calculs montrent qu'un accord de phase est possible pour la GDF envisagée si $\Lambda = 31,02$ μm . Concernant la température du cristal, la Figure 4.3 montre la branche signal et idler qui satisfont un accord de phase en fonction de la température du cristal, et nous pouvons voir qu'une solution existe si $T = 191^\circ\text{C}$ avec cette période. Notons que la plateforme de LiNbO_3 utilisée accueille plusieurs cristaux de périodes différentes, ce qui permet d'obtenir des signaux sur une large bande spectrale, entre 4,2 μm et 4,85 μm , si l'idler dispose d'une longueur d'onde adéquate, entre 2,3 μm et 2,5 μm , comme le montre aussi la Figure 4.3.

Le montage expérimental utilisé pour la conversion par GDF est présenté à la Figure 4.4. La partie fibrée permettant de générer les peignes à 1560 nm avec des MEOs est équivalente à ce que nous avons déjà vu dans les

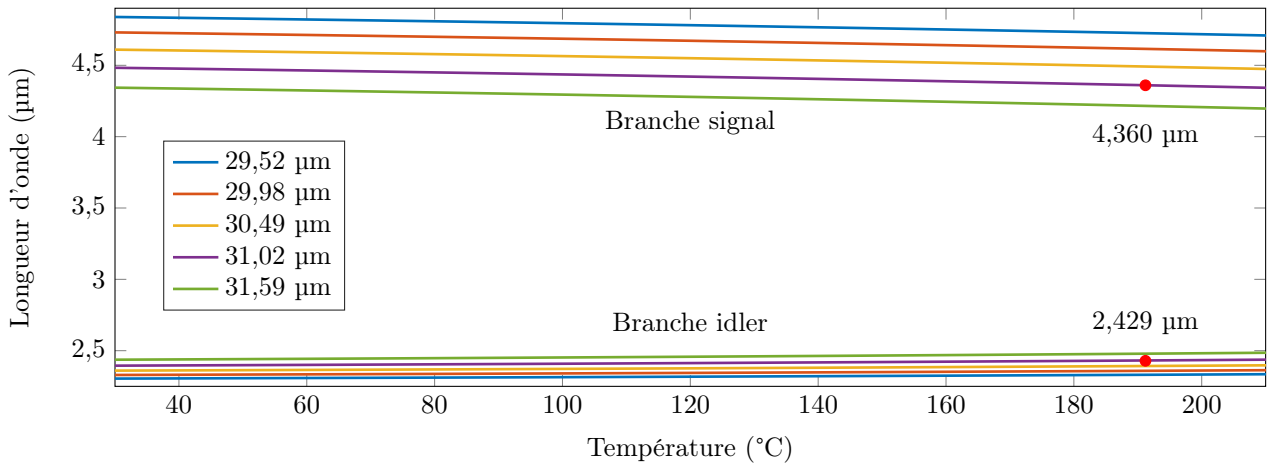


FIGURE 4.3 – Graphique montrant la branche signal et idler satisfaisant un accord de phase pour un cristal de période donnée, et pour une pompe de longueur d'onde $\lambda_p = 1560$ nm.

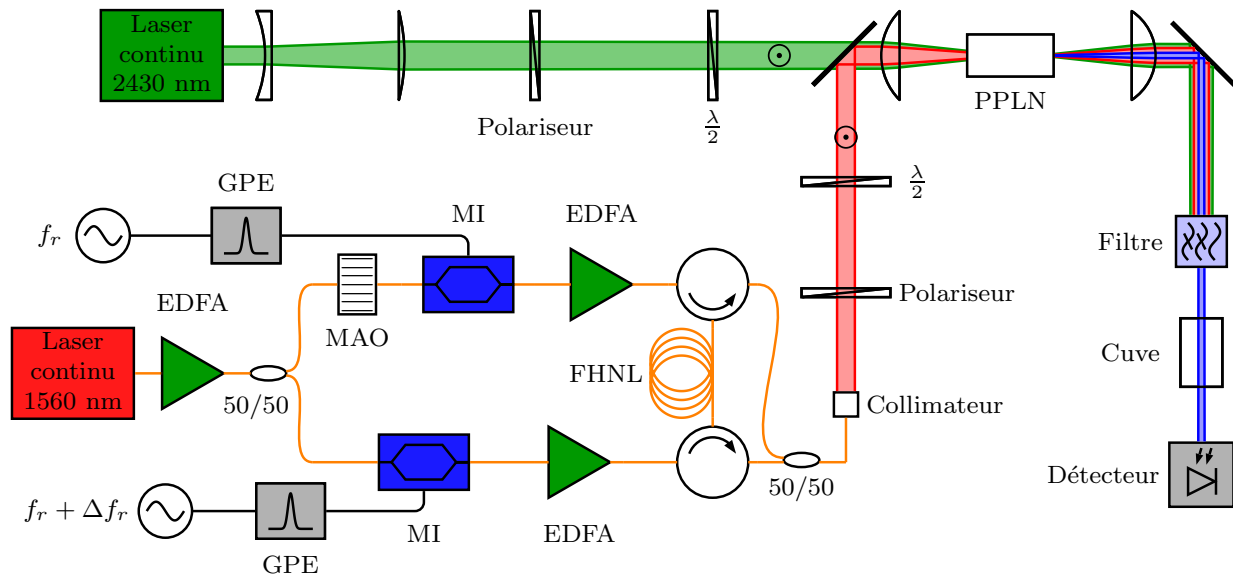


FIGURE 4.4 – Schéma montrant le montage expérimental permettant la conversion à 4360 nm de peignes générés par modulation électro-optique à 1560 nm par différence de fréquences avec un laser continu à 2429 nm dans le but d'effectuer de la spectroscopie. GPE : générateur de pulsés électriques, MAO : modulateur acousto-optique.

chapitres précédents. Toutefois, quelques spécificités sont propres à ce montage. Premièrement, et contrairement aux expériences faites à 1,55 μm et 2 μm , il n'est ici pas possible de filtrer finement une seule moitié du spectre qui sera converti dans le MIR. Une solution possible aurait été de filtrer le spectre à 1560 nm puis d'effectuer sa conversion par GDF mais cette technique fait perdre beaucoup de puissance aux peignes. Or le gain par GDF étant proportionnel à la puissance crête des ondes idler et pompe, une conversion optimale est difficile à obtenir avec des peignes peu intenses. De fait, nous devons utiliser un modulateur acousto-optique à 1560 nm afin d'éviter le problème du recouvrement.

Deuxièmement, dans le même but d'obtenir une conversion optimisée, la FHNL est choisie judicieusement afin que les spectres générés soient les plus larges possibles mais, contrainte supplémentaire, tout en conservant des impulsions avec une puissance crête élevée après élargissement spectral. Pour ce faire, différentes expériences et simulations numériques par résolution de l'ESNL ont été réalisées pour trouver les paramètres optimaux de la fibre à utiliser. Les résultats indiquent qu'une fibre optique TrueWave d'une longueur de 1 km est adéquate, c'est à dire que nous nous replaçons dans la même configuration que celle utilisée dans la [section 2.4.2](#). En effet, la fibre TrueWave ayant une dispersion relativement faible ($D = -14,970$ ps.nm $^{-1}$.km $^{-1}$ à 1550 nm, voir le [Tableau 2.2](#) pour ses autres paramètres), au bout d'un kilomètre les effets de dispersion impactent peu la largeur des impulsions qui s'y propagent, ce qui permet de garder une puissance crête relativement élevée. Dans notre cas, nous injectons des peignes d'une puissance crête de 31 W aux cadences définies par $f_r = 250$ MHz et $\Delta f_r = 9,5$ kHz. En sortie de la fibre, les impulsions possèdent une largeur totale à mi-hauteur de 78 ps et leurs

spectres sont d'une largeur d'environ 4 nm.

Les deux peignes élargis sont ensuite couplés puis envoyés en espace libre afin d'être mélangés sur un miroir dichroïque avec l'onde idler continue à 2429 nm. Juste avant injection dans le PPLN, les peignes à 1560 nm disposent d'une puissance crête de 6,35 W et l'idler une puissance de 2,5 W. Pour l'onde pompe et idler, la polarisation est contrôlée avec un polariseur et une lame demi-onde sur chaque bras car la conversion par GDF sur le PPLN n'est réalisée de manière optimale que si la polarisation est parallèle au moment dipolaire du cristal. Dans notre cas, cela implique que la polarisation doit être linéaire et parallèle à la hauteur du cristal. Une conversion optimisée est aussi atteinte lorsque les faisceaux associés aux ondes pompe et idler sont contrôlés avec des jeux de lentilles de manière à ce qu'ils présentent une taille équivalente. Un télescope est donc réalisé en amont sur le bras à 2429 nm afin que la taille du faisceau soit la plus proche de celui à 1560 nm.

En sortie du PPLN, un filtre est mis en place de façon à séparer le signal de la pompe et de l'idler. Le signal est ensuite dirigé vers une cuve puis vers un détecteur pour récupérer l'interférogramme. Notons que le montage utilisé ici permet de convertir les deux peignes avec un seul PPLN. Ceci présente certains avantages comme la réduction des coûts, du matériel à utiliser, de l'encombrement du montage ainsi que d'une certaine facilité puisque l'alignement spatial est moins complexe que pour un montage avec deux PPLNs, un pour convertir chaque peigne. Toutefois, puisque les peignes sont intrinsèquement couplés spatialement, cette configuration ne permet pas de faire de la spectroscopie de dispersion, mais uniquement de la spectroscopie d'absorption.

4.2.2 Spectre radio-fréquence

La largeur des peignes à 1560 nm étant de 4 nm, ceci correspond à une largeur de 31,25 nm à 4360 nm, ce qui donne une condition sur la longueur du cristal à utiliser pour convertir la totalité du spectre. En utilisant la Figure 4.2b, il est possible de voir qu'une bande d'acceptance $\Delta\lambda$ du cristal correspondant à la largeur de spectre converti implique qu'il faudrait utiliser une longueur du cristal de maximum 7 mm. Cependant, les seuls cristaux à notre disposition étant des cristaux de 10 mm et 40 mm, nous utiliserons le plus court afin de pouvoir convertir le maximum de la largeur du spectre possible.

La Figure 4.5 montre un exemple de spectre RF obtenu après conversion des peignes à 1560 nm par GDF ainsi que le spectre RF avant conversion à des fins de comparaisons. La différence entre les deux spectres est clairement visible et s'explique par la longueur du cristal trop grande qui impacte sur la bande d'acceptance spectrale qui est alors trop petite comparée à la largeur du spectre converti. Notons que le spectre RF fait déjà apparaître la signature du CO_2 présent dans l'air ambiant, dû à la propagation du faisceau sur une dizaine de centimètres.

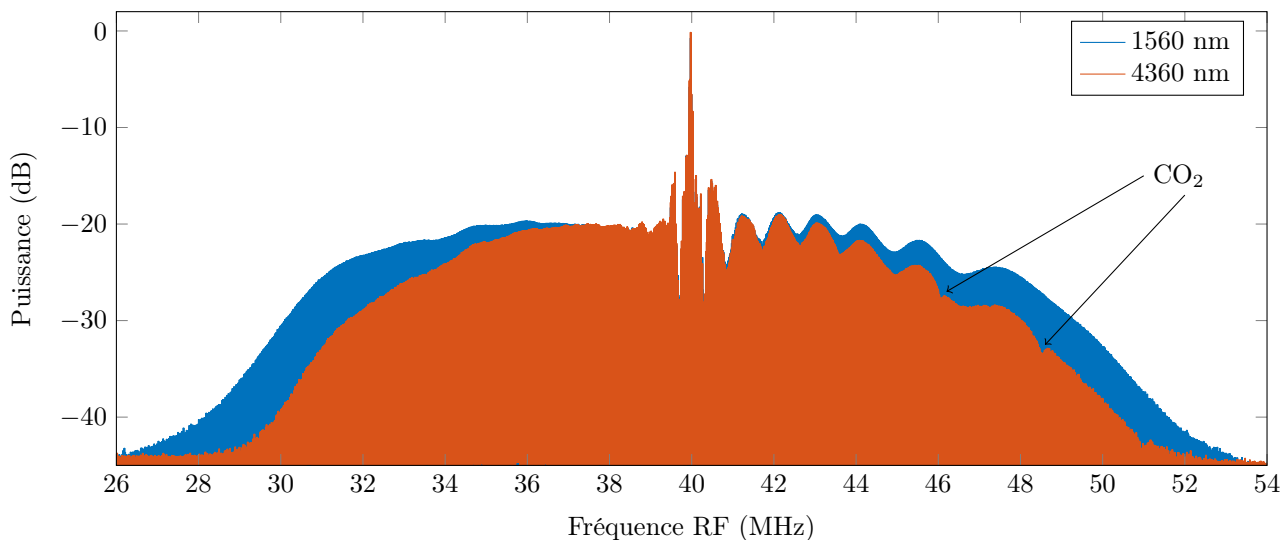


FIGURE 4.5 – Graphique montrant une comparaison entre le spectre RF à 1560 nm et le spectre RF obtenu après conversion à 4360 nm avec un cristal de 10 mm. La différence entre les deux spectres s'explique par la bande d'acceptance du cristal trop restreinte comparée à la largeur du spectre converti. Deux raies d'absorption du CO_2 sont visibles à cause de la propagation dans l'air du faisceau à 4360 nm sur un dizaine de centimètres.

La comparaison entre les deux spectres RF permet de mesurer la bande d'acceptance du cristal, ce que nous réalisons à des fins de comparaisons avec la théorie présentée plus tôt. Pour cela, les enveloppes des deux spectres RF à 1560 nm et 4360 nm sont extraites, et comparées entre elles avec un ajustement numérique selon

la forme du gain de l'équation (4.4). Ceci nous permet d'en déduire la largeur à mi-hauteur du gain, c'est à dire $\Delta\lambda$, et nous trouvons $\Delta\lambda = 27$ nm. Pour un cristal de 10 mm, la bande d'acceptance théorique d'après la Figure 4.2b est de $\Delta\lambda = 21$ nm, ce qui est assez proche.

Dues aux limitations induites par la bande d'acceptance du cristal qui ne nous permet pas de convertir tout le spectre, suivant les expériences que nous effectuerons et la zone spectrale étudiée, nous pourrions modifier la température du cristal de quelques degrés. Ceci a pour but de centrer la conversion non pas sur la composante continue mais sur la zone spectrale associée aux fréquences RF les plus basses de la Figure 4.5, c'est à dire la zone spectrale la plus plate. De fait la partie du spectre la plus propre sera exploitée, ce qui n'est pas possible si la conversion est centrée à cause de la composante continue et des oscillations issues de l'élargissement par ondes de choc à 1560 nm.

Comme pour les montages précédents, nous enregistrons un interférogramme de 500 ms à un taux d'échantillonnage de 8 ns afin de pouvoir visualiser la largeur des raies du peigne RF. Après traitement, nous pouvons typiquement obtenir des raies dont un exemple est montré à la Figure 4.6. Celle-ci possède une largeur de 3,3 Hz, ce qui est la même valeur que celle mise en évidence à 1560 nm dans le chapitre 2 et le chapitre 3 toujours à cause des limitations de notre système d'acquisition.

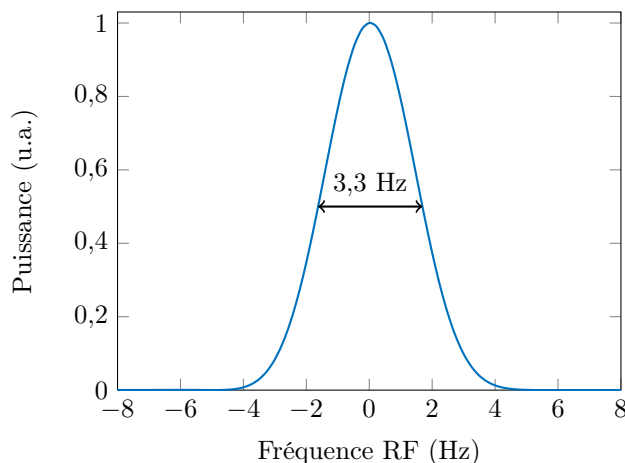


FIGURE 4.6 – Graphique montrant un zoom sur une raie de largeur 3,3 Hz d'un spectre RF obtenu par TF d'un interférogramme de durée 500 ms enregistré à un taux d'échantillonnage de 8 ns.

4.3 Applications spectroscopiques

Maintenant que le spectromètre fonctionne dans le MIR, il est possible d'étudier de nombreuses molécules qui absorbent de manière intense. Comme nous l'avons vu avec la Figure 3.1, au dessus de 4000 nm, plusieurs bandes peuvent être observées comme celles du CO₂, du protoxyde d'azote N₂O ou encore du monoxyde de carbone CO. Ces bandes sont très intenses puisqu'il s'agit de bandes fondamentales, ce qui permet de détecter ces espèces chimiques sur de petites longueurs d'absorption ou bien de détecter de faibles concentrations. Dans la suite, nous allons montrer la faisabilité de plusieurs applications qu'il est possible d'effectuer avec notre montage fonctionnant entre 4,2 μ m et 4,85 μ m. Pour commencer, nous allons nous intéresser encore une fois au CO₂ ce qui, dans un premier temps, nous permettra d'observer simplement quelques spectres d'absorption et donc de vérifier que notre montage fonctionne de manière optimale pour la spectroscopie. Ensuite, toujours avec le CO₂, nous allons aborder une application tournée vers le domaine médical via l'étude de ce gaz dans l'air expiré. Pour finir, nous aborderons une dernière application orientée vers l'analyse de gaz d'échappement de voitures, ce qui nous permettra d'observer des spectres d'absorption du CO à des longueurs d'onde plus élevées.

4.3.1 Spectroscopie du CO₂

4.3.1.1 Dans l'air ambiant

Comme nous l'avons vu à la Figure 4.5, sur une dizaine de centimètres de propagation dans l'air, il est déjà possible de voir les raies d'absorption du CO₂ appartenant à la bande fondamentale ν_3 . Ces quelques raies observables ne sont toutefois pas les plus intenses de la bande. En effet, pour effectuer une première conversion dans le MIR, nous avons ciblé la zone où il est possible d'observer des raies de ¹²CO₂ et de ¹³CO₂ ayant une intensité similaires lorsque ces deux espèces sont en abondance naturelle, c'est à dire environ 3×10^{-20} cm par molécule. Cependant, les raies les plus intenses de la bande ν_3 du ¹²CO₂ absorbent 1000 fois plus que les raies que nous venons de décrire et ce, aux alentours de 4235 nm et 4281 nm, respectivement les pics des branches R et P. Afin d'observer ces raies plus intenses dans l'air ambiant, nous déplaçons donc la longueur d'onde de l'idler à $\lambda_i = 2447$ nm, toujours avec une pompe à $\lambda_p = 1560$ nm, ce qui nous donne un signal à $\lambda_s = 4304$ nm (nous reviendrons plus tard aux alentours de 4360 nm). Pour cela, nous sélectionnons une période pour le cristal de $\Lambda = 31,59$ μ m et une température de 40°C. Ce changement de période se fait par changement du cristal qui s'effectue uniquement par un déplacement horizontal de la plateforme de LiNbO₃, aucune reprise d'alignement n'est nécessaire, ce qui montre un certain avantage pour modifier rapidement la gamme d'analyse de notre spectromètre. Ici, la longueur d'absorption qui correspond à la distance entre la sortie du cristal et le détecteur

est de $L = 13,4$ cm. À la pression partielle attendue du CO_2 dans l'air ambiant, cette longueur est suffisante pour observer la bande ν_3 sans que certaines raies ne saturent.

Pour tous les spectres d'absorption obtenus jusqu'à présent, il était nécessaire d'enregistrer une référence afin de corriger l'enveloppe du spectre RF qui n'est pas strictement plate. Cependant, dans le cas présent, il est impossible d'obtenir une référence à la même longueur d'onde que le signal d'absorption puisque le CO_2 n'est pas dans une cuve mais dans l'air ambiant. Toutefois, il est possible de contourner ce problème en utilisant le spectre RF à 1560 nm. Comme nous l'avons vu avec la Figure 4.5, la différence entre les deux spectres RF ne réside que dans la déformation de l'enveloppe par la forme du gain donnée par l'équation (4.4). De fait, il est possible d'utiliser le spectre RF à 1560 nm comme référence si son enveloppe est ajustée par la forme typique du gain du phénomène de GDF. Cette méthode est la même que celle utilisée précédemment pour mesurer la bande d'acceptance du cristal.

Un exemple de spectre obtenu à partir de 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d'échantillonnage de 1 ns est présenté à la Figure 4.7. Celui-ci montre des raies de la bande ν_3 mais aussi plusieurs raies de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$. Le spectre expérimental est comparé avec un spectre ajusté en utilisant les données de HITRAN [87]. Ici, la pression partielle est ajustée car elle n'est pas connue précisément. En effet, l'air ambiant d'un espace clos comme un laboratoire ou une maison montre une pression partielle de CO_2 pouvant aller jusqu'à 800 ppm, voire plus si l'air de la pièce est mal renouvelé. Ceci est à comparer avec une valeur d'environ 400 ppm dans l'air ambiant extérieur. L'ajustement du spectre de la Figure 4.7 donne une pression partielle de 756 ppm, ce qui est cohérent avec les attentes. La précision sur l'ajustement de la pression partielle est, pour un intervalle de confiance à 95%, de $\pm 1\%$ (nous verrons plus bas comment cette valeur a été déterminée).

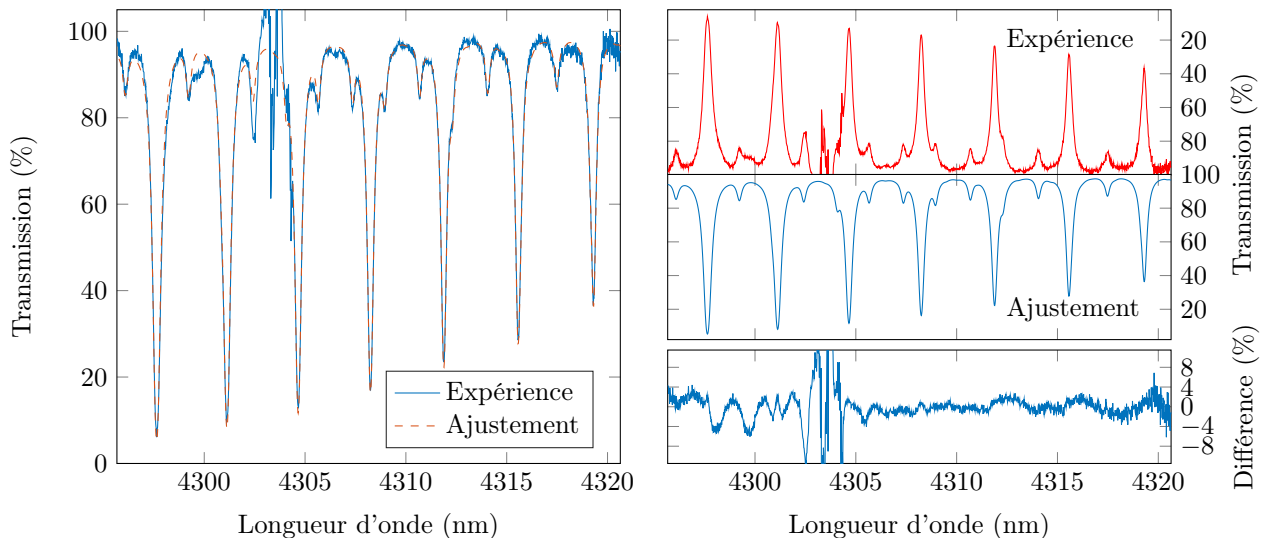


FIGURE 4.7 – Graphiques montrant un exemple de spectre d'absorption du CO_2 dans l'air ambiant à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d'échantillonnage de 1 ns, et comparé avec un spectre ajusté numériquement.

Entre l'ajustement et l'expérience, il est possible d'observer des différences significatives, notamment aux basses longueurs d'onde. Ceci peut être expliqué par le fait que la bande de gain de GDF n'est pas centrée sur cette zone spectrale, ce qui affecte son RSB. En effet, proche de la zone spectrale où le gain est maximal, le RSB atteint en moyenne presque 35 dB, tandis que plus loin de cette zone, il est en moyenne de 25 dB. De plus, les fortes oscillations dues à l'élargissement par ondes de choc à 1560 nm sont également nuisibles, comme nous l'avons déjà vu. Enfin, l'ajustement de l'enveloppe avec la forme du gain n'étant sans doute pas parfaite, ceci peut aussi créer des différences, cette remarque étant valable pour tout le spectre.

En déplaçant la longueur d'onde de l'idler à $\lambda_i = 2464$ nm et en augmentant la température du cristal à 110°C , il est possible d'obtenir un signal centré en $\lambda_s = 4251$ nm, ce qui permet d'observer l'intersection des branches R et P de la bande ν_3 . Un exemple de spectre, toujours obtenu avec 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d'échantillonnage de 1 ns, est présenté à la Figure 4.8 et montre aussi plusieurs raies de la bande $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$. Comme précédemment, un ajustement du spectre avec les données de HITRAN est présenté, et celui-ci montre une pression partielle de $(714 \pm 1\%)$ ppm, ce qui est tout aussi cohérent avec les attentes. Les mêmes remarques et analyses que précédemment peuvent être émises concernant les différences entre le spectre ajusté et expérimental. Notons que les deux valeurs de pression partielles dans l'air ambiant obtenues ici sont légèrement différentes, mais ceci peut s'expliquer par le fait que les spectres ont été enregistrés à des temps relativement espacés, et donc que l'air ambiant sondé dans la première mesure n'est sans doute pas le même

que celui sondé lors de la deuxième mesure, mais nous allons revenir sur la précision des pressions extraites des ajustements.

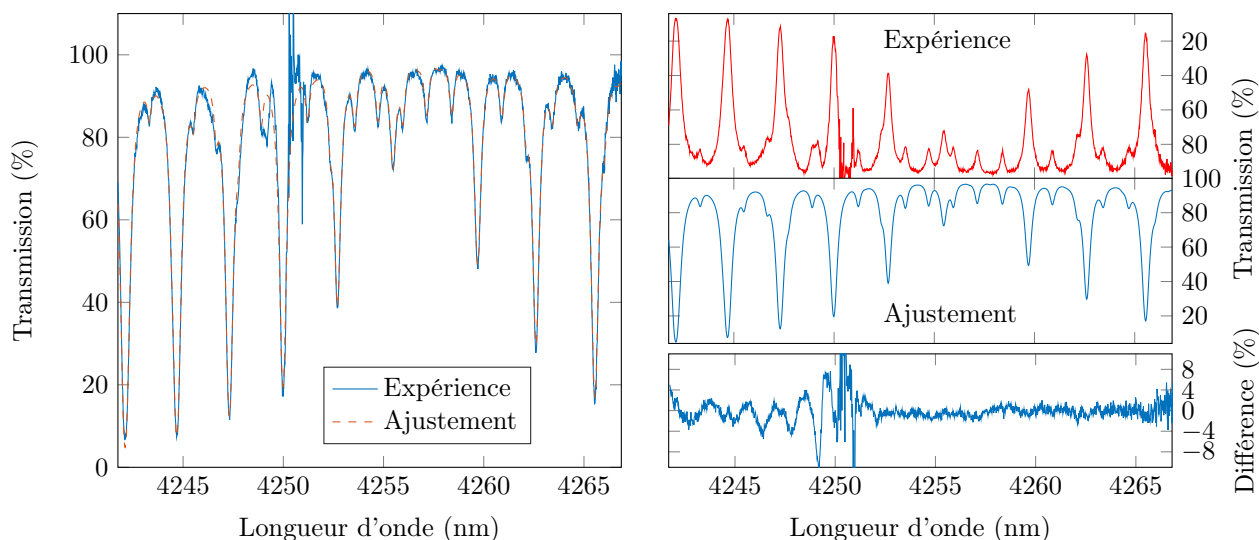


FIGURE 4.8 – Graphiques montrant un exemple de spectre d’absorption du CO_2 dans l’air ambiant à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d’échantillonnage de 1 ns, et comparé avec un spectre ajusté numériquement.

4.3.1.2 Dans une cuve

Bien que les résultats obtenus dans l’air ambiant soient très satisfaisants, les ajustements effectués ne permettent pas pour l’instant d’être sûr des pressions extraites. En effet, même si les résultats sont proches des attentes, une vérification avec une méthode déjà éprouvée est nécessaire afin de valider nos résultats. Il y a donc une étape de calibration à effectuer avant d’entreprendre d’autres applications. Pour cela, nous allons effectuer le même type de mesures que nous avons réalisé dans l’air ambiant mais à la place, nous allons analyser un gaz déjà caractérisé. Le but ici est de vérifier que nos ajustements numériques donnent des résultats en adéquation avec les attentes, et par la même occasion de quantifier les incertitudes sur nos mesures. Pour cela, nous utilisons du CO_2 pur à l’intérieur d’une cuve, ce qui permet d’éviter le maximum d’incertitudes possibles, notamment sur la longueur d’absorption, ainsi que de possibles contaminations du gaz. Cette expérience est réalisée en remettant en place la configuration du montage avec la cuve présentée à la Figure 4.4. Pour analyser du CO_2 pur, une attention particulière doit être prise afin que notre signal ne soit pas saturé par les raies très intenses du CO_2 , ce qui était déjà presque le cas dans l’air ambiant. Ainsi, nous nous plaçons aux alentours de 4466 nm, en utilisant un idler à $\lambda_i = 2397$ nm et un cristal de période $\Lambda = 30,49$ μm à une température de $T = 195^\circ\text{C}$. Aux alentours de cette longueur d’onde, les raies de CO_2 sont peu intenses contrairement aux raies étudiées précédemment, de l’ordre de 5×10^{-22} cm par molécule.

La cuve, dont la longueur est de 10 cm, est remplie à une pression totale de 402 mbar de CO_2 en abondance naturelle. Un exemple de spectre obtenu à partir de 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d’échantillonnage de 1 ns est présenté à la Figure 4.9. Celui-ci ne montre que des raies de $^{13}\text{CO}_2$ issues des bandes ν_3 , $\nu_2 + \nu_3 - \nu_2$ et $2\nu_2 + \nu_3 - 2\nu_2$. Un ajustement du spectre en utilisant les données de HITRAN nous permet d’en déduire une pression de 399 mbar, ce qui est proche des attentes. Concernant l’incertitude associée, l’écart-type issu de l’ajustement permet de la définir en supposant une distribution gaussienne. Ainsi, dans un intervalle de confiance à 95%, l’incertitude déduite est de $\pm 0,93\%$. La valeur connue de la pression est donc incluse dans la barre d’incertitude, ce qui indique un bon accord. Ces résultats ont été confirmés avec d’autres ajustements effectués avec d’autres spectres enregistrés à différentes pressions entre 200 mbar et 950 mbar.

Dans la suite de nos expériences, la pression ne pourra être mesurée à l’aide d’une jauge car nous n’emploierons pas de cuve, les gaz que nous analyserons n’étant pas forcément compatibles avec cette configuration. De fait, nous utiliserons les résultats obtenus ici pour en déduire la pression, et notamment les incertitudes sur l’ajustement que nous prendrons à $\pm 1\%$, ce qui explique l’emploi de cette valeur pour les mesures précédentes de la pression du CO_2 dans l’air ambiant. Notons que pour les mesures effectuées ici, la référence du signal est prise sous les mêmes conditions expérimentales mais avec le vide fait dans la cuve. Comme nous pouvons le voir, la différence entre le spectre expérimental et l’ajustement est beaucoup plus propre et ne fait pas apparaître les oscillations que nous avons pu voir dans les spectres enregistrés dans l’air ambiant. La composante continue

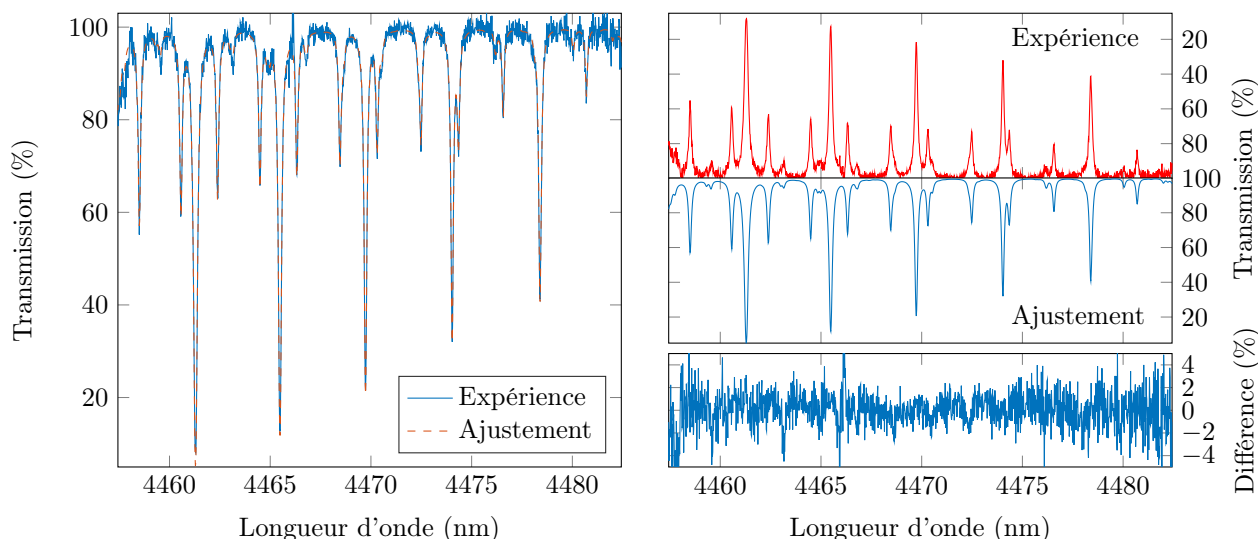


FIGURE 4.9 – Graphiques montrant un exemple de spectre d’absorption sur 10 cm de CO_2 pur à une pression de 402 mbar en abondance naturelle à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 18 interférogrammes de 50 ms à un taux d’échantillonnage de 1 ns, et comparé avec un spectre ajusté numériquement.

reste toutefois problématique, même si beaucoup moins, celle-ci étant observable à 4466 nm notamment sur le graphique montrant la différence entre expérience et ajustement.

Maintenant que notre montage a montré ses capacités à effectuer de la spectroscopie dans le MIR avec des résultats très satisfaisants, nous pouvons l’utiliser pour des applications plus poussées, ce que nous allons voir maintenant à travers un exemple lié au domaine médical.

4.3.2 Analyse de l’air expiré

4.3.2.1 Introduction

Dans le domaine des sciences médicales, l’analyse de l’air expiré est utile en tant qu’outil de monitoring, d’aide au diagnostic, ou d’évaluation des thérapeutiques [209]. Dans le premier cas, un des exemples les plus courants est, en contexte de ventilation artificielle, l’analyse du taux de CO_2 expiré, aussi appelée *capnographie*. Celle-ci permet un monitoring du statut ventilatoire à chaque instant et de prévenir précocement une défaillance respiratoire [210]. Dans le deuxième cas, l’analyse de l’air expiré peut permettre la détection de biomarqueurs spécifiques, ou de variations isotopiques dans l’élaboration de diagnostics microbiologiques au cours de tests dédiés ce qui, par exemple, renseigne sur la présence d’organismes tels que des bactéries. Ainsi, l’analyse de l’air expiré intervient à chaque étape de la démarche médicale et traverse plusieurs champs physiopathologiques. Les instruments permettant ces mesures répondent à différents impératifs : monitorer un cycle respiratoire nécessite une certaine résolution temporelle, tandis que l’analyse de faibles variations de biomarqueurs priorise un taux de détection fort, c’est à dire une capacité à pouvoir mesurer de faibles modifications de concentrations ou de compositions. Les techniques actuelles généralement utilisées pour ce genre d’analyses sont la chromatographie en phase gazeuse ou encore la spectroscopie de masse [211, 212]. Malgré leur intérêt au cours de la démarche diagnostique, les instruments associés à ces techniques sont relativement coûteux et complexes, ce qui limite leur disponibilité dans les structures de soins, même si ces techniques semblent prometteuses pour détecter de nombreuses maladies [209, 213–215].

Pour répondre à ces problématiques, les techniques d’analyse basées sur des instruments optiques pourraient potentiellement être une solution, mais elles doivent tout d’abord montrer leurs capacités à être compétitives avec les instruments déjà employés, et ce en suivant un cahier des charges très précis, ce qui est loin d’être immédiat [212]. Ici, nous allons nous intéresser aux possibilités que peut potentiellement représenter la spectroscopie à deux peignes de fréquences pour l’analyse de l’air expiré avec un exemple bien particulier. Notons que l’utilisation de peignes de fréquences pour ce genre d’analyses n’est pas nouvelle [216, 217], mais peu de démonstrations ont été effectuées, encore moins avec une technique à base de deux peignes.

L’analyse de l’air expiré peut se faire sur différentes espèces chimiques comme le méthane CH_4 , l’ammoniac NH_3 , ou encore le CO_2 [214]. Ici, nous nous intéresserons au CO_2 puisque c’est une molécule simple à manipuler pour effectuer une démonstration de principe, et en particulier son monitoring dans l’air expiré. Comme nous le verrons, les résultats suivants sont encore au stade préliminaire, et donc de nombreuses améliorations peuvent

être incorporées.

4.3.2.2 Capnographie

Comme nous l'avons vu en introduction, la mesure de la concentration du CO_2 au cours du cycle de respiration d'un patient, la capnographie, est une donnée relativement intéressante. Ce monitoring peut être réalisé pour surveiller un patient respirant naturellement comme artificiellement [210]. Les techniques utilisées pour effectuer de la capnographie sont diverses et variées [210]. Un exemple courant repose sur l'utilisation d'une source émettant un spectre discret entre $4,2 \mu\text{m}$ et $4,35 \mu\text{m}$ correspondant au spectre d'émission des raies de la bande ν_3 du CO_2 (technologie microstream [218]). Cette source est divisée en deux bras, un passant dans une cuve contenant de l'air expiré, et l'autre servant de référence. Les deux bras sont ensuite détectés avec deux capteurs et la différence d'intensité due à l'absorption du CO_2 est reliée à sa pression [218].

La courbe délivrée par un capnographe est nommée *capnogramme*, et la Figure 4.10 en montre un exemple théorique sur 3 cycles de respiration pour un patient en bonne santé. Cette figure montre aussi plusieurs caractéristiques propres à un capnogramme standard. Nous pouvons noter la présence de deux angles α et β , dont les valeurs normales sont respectivement proches de 106° et 90° [210]. Le point où la pression de CO_2 est maximale correspond à la fin d'expiration et se nomme EtCO_2 (end tidal CO_2). La valeur de cette pression, toujours pour un patient en bonne santé, se situe aux alentours de 37 mmHg [210]. Étant donné que le mmHg est l'unité utilisée en capnographie, nous l'utiliserons aussi ici en sachant que $1 \text{ mmHg} = 1,333 \text{ mbar}$.

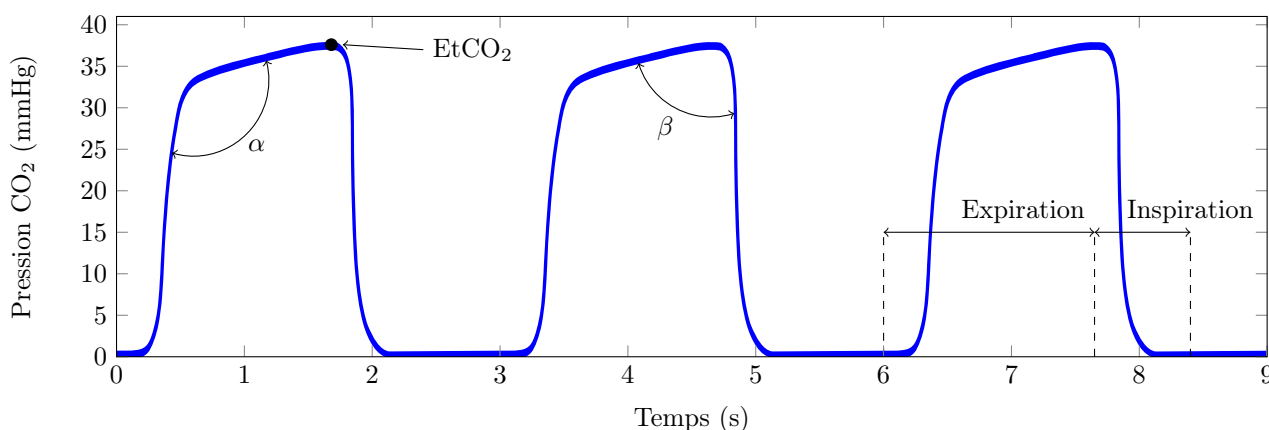


FIGURE 4.10 – Schéma présentant le capnogramme théorique d'un patient en bonne santé, c'est à dire la pression de CO_2 expirée en fonction du temps, ainsi que quelques caractéristiques de cette courbe [210].

L'étude d'un capnogramme, notamment de sa forme par l'intermédiaire de l'angle α et du point EtCO_2 , permet de détecter plusieurs complications chez un patient. La liste suivante en donne quelques unes courantes [210] :

- Si EtCO_2 est supérieur à sa valeur normale (hypercapnie), cela signe une hypoventilation alvéolaire, c'est à dire une diminution du renouvellement de l'air dans les alvéoles pulmonaires,
- Si EtCO_2 est inférieur à sa valeur normale (hypocapnie), cela signe le plus fréquemment une hyperventilation alvéolaire induite, une défaillance circulatoire (le transfert de CO_2 entre le sang et les poumons n'est plus optimal), ou encore un défaut dans le système de ventilation mécanique,
- Si α est supérieur à sa valeur normale, cela peut signer un spasme des muscles des parois des bronches,
- Etc.

Pour obtenir un capnogramme utilisable, il est nécessaire de disposer d'un instrument permettant de mesurer assez précisément et sensiblement la concentration de CO_2 dans l'air expiré. Comme nous l'avons vu, celle-ci varie entre 0 et 40 mmHg , ce qui correspond à une pression partielle de CO_2 dans l'air expiré variant entre 0% et 5% environ. De plus, comme déjà évoqué, il faut disposer d'une résolution temporelle suffisante pour obtenir un enregistrement propre, notamment pour obtenir une bonne définition des angles α et β sur le capnogramme. Dans la suite, nous allons voir si le montage expérimental que nous avons mis en place plus tôt satisfait ces conditions, et donc s'il est capable de réaliser de la capnographie. Un point intéressant dans l'enregistrement de capnogrammes est qu'il faut effectuer des mesures sur des intervalles de temps courts, proche du temps réel. Or cet aspect est caractéristique des études qu'il est possible de faire avec la spectrométrie à deux peignes de fréquences, et nous allons donc voir si ceci est aussi accessible avec notre montage.

Dans le but de pouvoir sonder de manière précise le CO_2 dans l'air expiré, nous choisissons la longueur d'onde de l'onde idler à $\lambda_i = 2433$ nm, ce qui permet d'obtenir un signal centré à $\lambda_s = 4346$ nm avec une pompe à $\lambda_p = 1560$ nm et une période du cristal de $\Lambda = 31,02$ μm . Compte tenu des limitations de bandes passantes vues précédemment, nous obtenons un signal exploitable entre 4348 nm et 4362 nm. Ce choix est motivé par la présence des raies P(54), P(56) et P(58) de la bande ν_3 de $^{12}\text{CO}_2$, celles-ci étant suffisamment intenses pour être détectées avec de petites concentrations de gaz. De plus, il s'avère que la raie P(54), la plus intense sur cette bande spectrale, ne sature pas notre signal tant que la pression partielle de CO_2 reste inférieure à 7%. Cette valeur correspond à une pression de 53,2 mmHg, c'est à dire plus que ce que nous devrions expérimentalement observer dans l'air expiré. Une fois les paramètres de l'expérience fixés, nous positionnons une cuve rudimentaire de 2 cm de longueur entre le détecteur et le filtre. En premier lieu, celle-ci est laissée à l'air libre, et nous enregistrons une centaine d'interférogrammes de longueur 20 ms ce qui constituera la référence de notre signal. Contrairement aux expériences précédentes, ici il est important que la référence soit réalisée à la longueur d'onde du signal et avec de l'air ambiant à l'intérieur de la cuve afin de soustraire les ≈ 700 ppm de CO_2 présent naturellement. Si cette soustraction n'est pas effectuée, un décalage de la pression partielle de CO_2 dans l'air expiré serait alors observé, celle-ci étant non négligeable puisque 700 ppm correspond à 5,3 mmHg. De fait, le point Et CO_2 se retrouverait alors faussé. Notons que la référence est enregistrée avant la mesure, et non pendant la mesure en même temps que le signal traversant la cuve, car il faudrait disposer de deux détecteurs identiques.

Une fois le signal de référence enregistré, l'expérimentateur inspire et expire dans un tuyau relié à la cuve. Dans un même temps, une centaine d'interférogrammes de 20 ms de durée sont enregistrés à un taux d'échantillonnage de 4 ns. Différents tests ont permis de constater que ce couple longueur d'interférogramme/taux d'échantillonnage permettait d'avoir un RSB suffisant pour obtenir des spectres d'absorption utilisables. Un meilleur RSB pourrait être obtenu avec des enregistrements plus longs, mais ceci ne convient pas aux contraintes de l'expérience car la période typique d'un capnogramme obtenu avec un patient au repos est d'environ 3 s. Ainsi, les durées d'interférogrammes doivent être suffisamment courtes pour obtenir un capnogramme bien résolu en temps. En théorie, avec des interférogrammes de 20 ms, il serait possible d'obtenir 150 points par cycle de respiration, ce qui est raisonnable. Cependant, le système d'acquisition utilisé dans notre montage expérimental étant un oscilloscope, celui-ci n'est pas aussi performant qu'une carte d'acquisition. De fait, il montre un temps mort entre chaque capture d'interférogramme, et l'acquisition d'un interférogramme de 20 ms prend un temps supplémentaire de 55 ms. Ceci réduit le nombre de points échantillonnant un cycle de respiration à 40, ce qui est toujours relativement raisonnable pour décrire correctement un cycle. Un autre désavantage dans l'utilisation d'un oscilloscope est que les données sont stockées dans sa mémoire interne assez limitée. De fait, plus le taux d'échantillonnage d'un interférogramme est élevé, moins il est possible de stocker d'interférogrammes car ceux-ci sont alors plus volumineux. Le temps d'acquisition total s'en retrouve impacté et il ne nous est alors possible d'observer que quelques cycles de respiration à la fois sur un capnogramme. Cependant, ces désavantages sont purement dus à des limites du matériel qu'il est possible d'améliorer, notamment par l'utilisation d'une carte d'acquisition adéquate.

Une fois les interférogrammes enregistrés, ceux-ci sont traités pour obtenir le spectre RF et comparés à la référence enregistrée précédemment, ce qui nous permet d'obtenir le signal d'absorption à chaque temps d'acquisition des interférogrammes. Les spectres d'absorption sont ensuite comparés individuellement à un spectre ajusté numériquement. Pour cet ajustement, seule la pression partielle est un paramètre libre. Les autres paramètres sont connus soit par une mesure précédent l'expérience, soit par l'utilisation de la base de données HITRAN concernant les paramètres de CO_2 [87]. Un tel ajustement nous permet donc d'en déduire la pression partielle de CO_2 dans l'air expiré dans la cuve. La Figure 4.11 montre un exemple de spectre RF obtenu après la TF d'un interférogramme de 20 ms et comparé avec un spectre ajusté.

Bien que le spectre expérimental soit relativement bruité, nous avons vérifié que les valeurs de pressions déduites des ajustements sont conformes aux prévisions. Ceci a été fait en comparant la valeur des pressions obtenues entre un spectre issu d'un interférogramme de 20 ms, et un spectre moyenné issu d'une centaine d'interférogrammes de 20 ms chacun. Notons que ce test a été réalisé par analyse d'un échantillon d'air expiré dans un sachet hermétiquement fermé, afin que la concentration de CO_2 ne varie pas durant l'enregistrement des interférogrammes. En supposant que le spectre moyenné est bien plus proche de la réalité, et en se rappelant que les expériences effectuées en cuve donnaient des résultats proches des mesures réalisées avec une jauge, les écarts entre la pression déduite de l'ajustement du spectre moyenné et des spectres individuels ne dépassent pas $\pm 1,7$ mmHg, cette mesure ayant été réalisée plusieurs fois avec différents enregistrements.

Ceci est confirmé par l'enregistrement de différents spectres à l'air ambiant (toujours à base d'interférogrammes de 20 ms) afin de vérifier que nos outils d'analyses définissent bien une ligne de base proche de la pression nulle en absence de CO_2 autre que celui de l'air ambiant. Ici, les valeurs recueillies montrent un écart-type $\sigma = 0,84$ mmHg, ce qui donne un intervalle de confiance à 98% de ± 2 mmHg. Notons que l'ajustement numérique des spectres issus d'un interférogramme unique de 20 ms donne également un écart-type similaire à

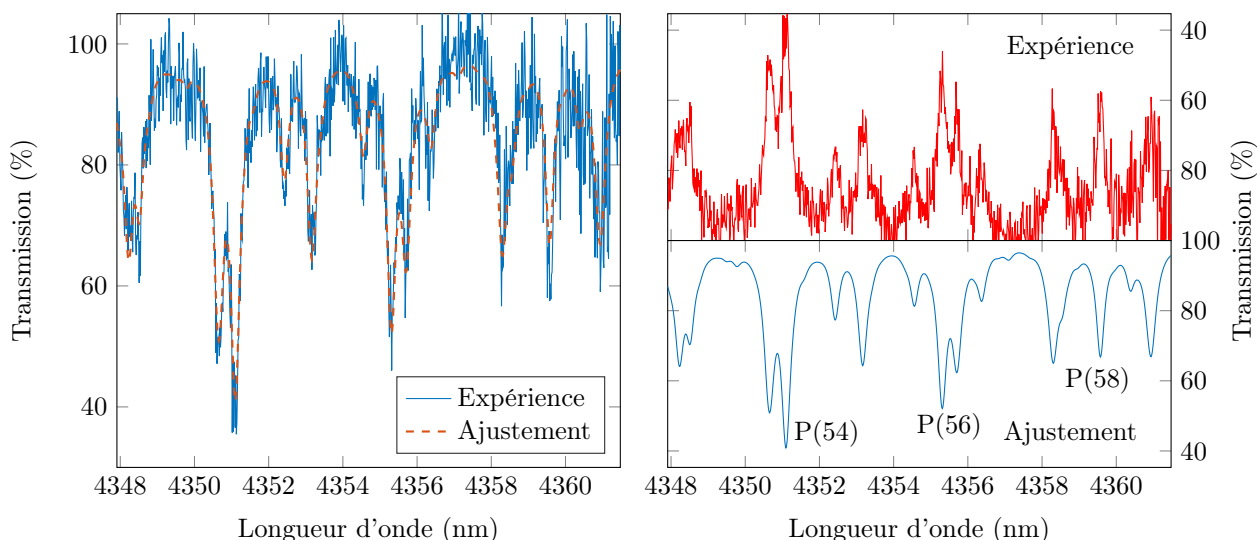


FIGURE 4.11 – Graphiques montrant un spectre d’absorption de CO_2 dans l’air expiré par l’expérimentateur. Celui-ci est obtenu par transformée de Fourier d’un interférogramme de durée 20 ms à un taux d’échantillonnage de 4 ns, et comparé avec un spectre ajusté numériquement à l’aide de la base de données HITRAN. Pour ce spectre, l’ajustement permet d’en déduire une pression partielle de (39 ± 2) mmHg.

ce que nous venons de voir, ce qui conforte dans l’idée que nos analyses sont correctes. Ainsi, l’incertitude sur les pressions déduites des ajustements peut être définie à ± 2 mmHg, ce qui semble relativement peu mais ce qui correspond à une incertitude relative supérieure à $\pm 5\%$ pour les pressions les plus élevées du capnogramme, cette dernière remarque étant à comparer avec l’incertitude de $\pm 1\%$ obtenue avec les expériences en cuve.

Une fois les pressions partielles relevées pour tous les interférogrammes enregistrés, le capnogramme est alors obtenu puisqu’il suffit alors de tracer les différentes pressions partielles en fonction du temps d’acquisition. Deux exemples de capnogrammes, enregistrés à un jour d’intervalle, sont présentés à la Figure 4.12. Nous remarquons que la valeur de EtCO_2 obtenue est en très bon accord avec les attentes, de même pour la valeur de l’angle α qui est respectivement de 109° , 107° , 110° et 107° .

D’autres capnogrammes ont été enregistrés et montrent une bonne reproductibilité dans les valeurs d’ EtCO_2 et de α mesurées. La forme globale du capnogramme est aussi en relativement bon accord avec la forme théorique présentée à la Figure 4.10. Toutefois, certaines caractéristiques peuvent légèrement différer. Par exemple, il est possible de voir que la période de respiration n’est pas strictement égale entre deux enregistrements de capnogrammes. Ceci peut s’expliquer par le fait que l’expérimentateur n’est pas totalement au repos lors des mesures, et donc que sa respiration peut s’en retrouver affectée. Notons que la Figure 4.10 représente un capnogramme qui est plutôt observé pour un patient ventilé artificiellement, ce qui explique le caractère très périodique de la courbe.

À titre d’exemple, il est possible d’enregistrer des capnogrammes différents en simulant une possible complication d’un patient. Par exemple, l’hypoventilation que nous avons déjà abordée peut être simulée en bouchant la quasi-totalité de la sortie de la cuve, ce qui a pour effet d’accumuler le CO_2 expiré dans celle-ci. Après quelques cycles de respiration, l’air inspiré est donc bien plus riche en CO_2 que dans l’air ambiant, provoquant une hypercapnie similaire à ce que provoquerait une hypoventilation. Une autre manière de le faire, sans toucher à la cuve, aurait été de diminuer artificiellement le cycle de respiration, mais nos contraintes sur la durée totale d’acquisition nous l’en empêche. La Figure 4.13 montre deux exemples de capnogrammes enregistrés dans ces conditions expérimentales, toujours à partir d’une centaine d’interférogrammes de 20 ms de durée. Ces deux exemples montrent clairement une valeur de EtCO_2 supérieure à la valeur normale, signe d’une hypercapnie. De plus, il est possible de remarquer que l’inspiration prend plus de temps par rapport à un capnogramme standard comme celui-ci présenté à la Figure 4.12. Ici, cette durée double car l’inspiration, qui se fait à travers la cuve partiellement bouchée, se retrouve être plus difficile et donc plus longue.

Pour terminer sur la capnographie, nous pouvons donc conclure que notre montage expérimental permet de mesurer relativement bien l’air expiré de l’expérimentateur même si, comme nous l’avons déjà abordé, de nombreuses améliorations pourraient être effectuées afin d’obtenir des résultats plus propres et précis. Comparé aux capnographes commerciaux basés sur la technologie microstream [218], par exemple celui dont la brochure est placée à la Ref. [219], les performances de notre montage en sont très proches. Pour ce capnogramme, la résolution temporelle est fixée à 20 échantillons par seconde, soit un point tous les 50 ms, et la résolution sur EtCO_2 est donnée à ± 1 mmHg. Notons que la réalisation de capnogrammes est quelque chose d’assez courant

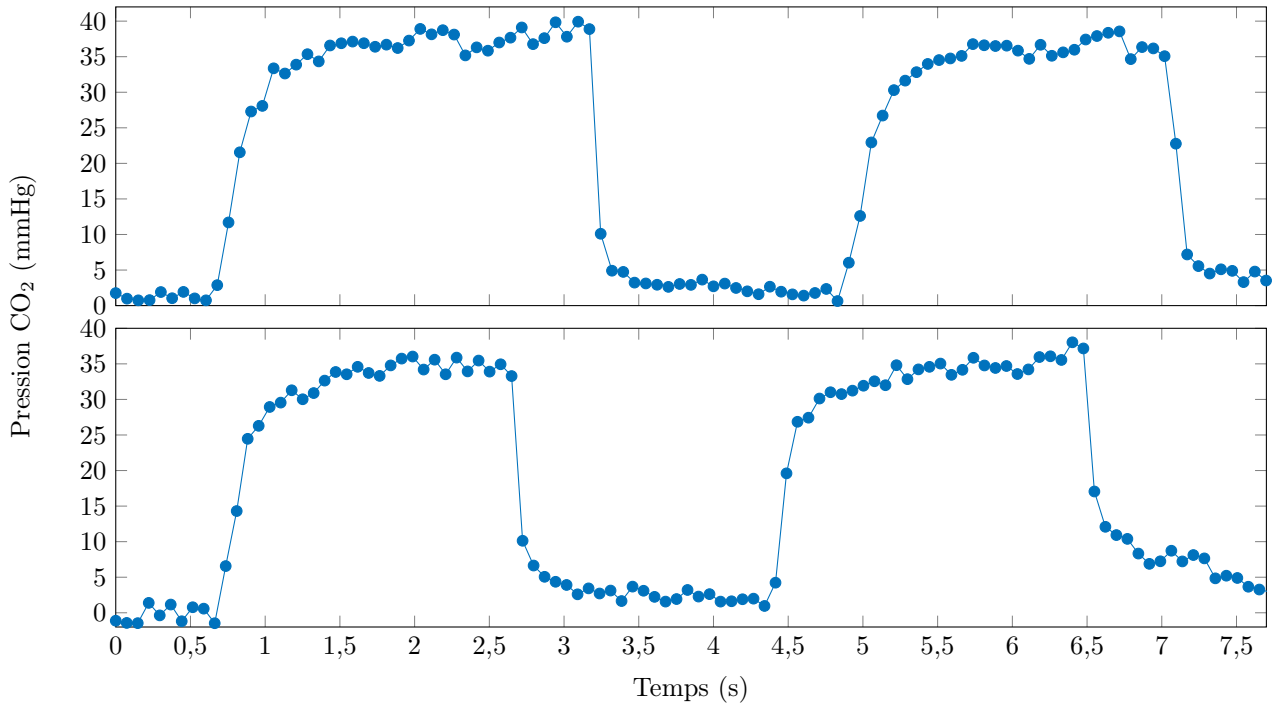


FIGURE 4.12 – Graphiques montrant deux exemples de capnogrammes obtenus à un jour d’intervalle. Ceux-ci sont obtenus à partir d’une centaine d’interférogrammes de 20 ms de durée qui sont traités numériquement et ajustés pour obtenir la valeur de la pression partielle.

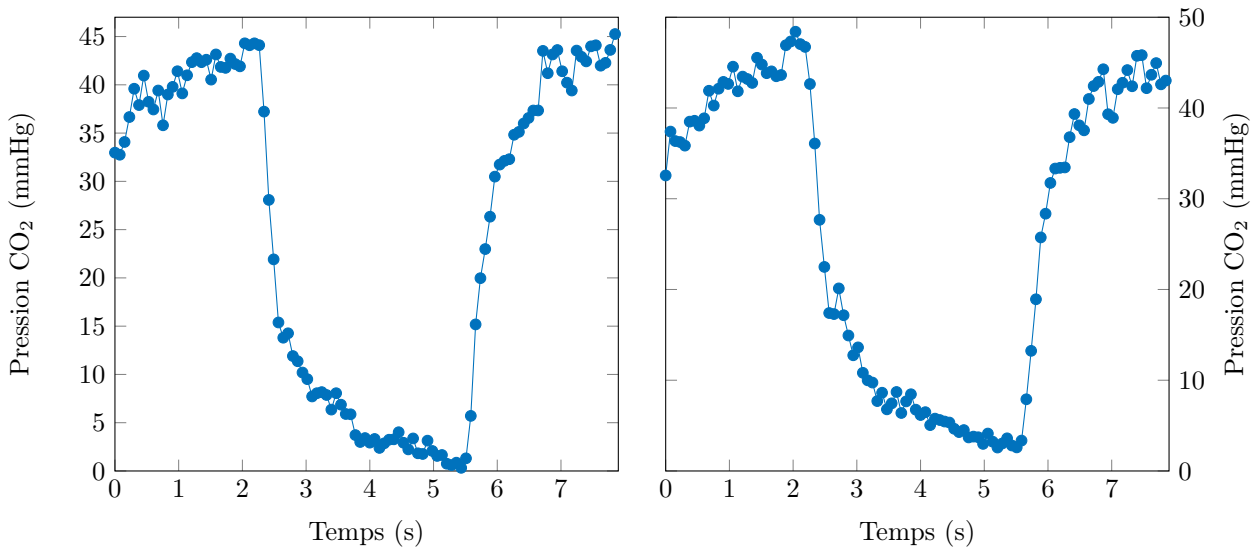


FIGURE 4.13 – Graphiques montrant deux exemples de capnogrammes enregistrés avec une sortie de cuve partiellement bouchée afin de simuler une complication respiratoire. Les enregistrements sont faits de manière à mettre en valeur l’inspiration, d’où la forme tronquée des périodes de respiration.

pour tester la capacité d’un montage à mesurer la concentration de CO_2 en temps réel ou quasi-réel. Plusieurs exemples récents ont été publiés, que ce soit avec des diodes laser agiles en fréquence [217], ou des guides creux [220, 221].

4.3.2.3 Ouverture sur l’analyse de l’air expiré et mesures de rapports isotopiques

En introduction, nous avons vu que l’analyse de l’air expiré pouvait permettre la détection de bactéries. En guise d’ouverture sur l’analyse de l’air expiré, nous abordons ici cette technique ainsi que les possibilités que la spectroscopie à deux peignes de fréquences pourrait apporter. La présence de bactéries dans le corps humain peut être détectée indirectement avec certains protocoles médicaux, notamment par étude de rapports isotopiques.

Par exemple, en ingérant une substance marquée par un isotope bien précis, celui-ci peut se retrouver dans l'air expiré à cause de la présence d'une bactérie bien particulière. De fait, en mesurant le rapport isotopique dans l'air expiré de la substance marquée ingérée précédemment, il est possible d'en conclure qu'une bactérie est présente dans le corps humain si le rapport isotopique détecté est différent du rapport isotopique naturel.

Le choix initial pour la conversion que nous avons fait à 4360 nm était motivé par la présence des raies de $^{12}\text{CO}_2$ et $^{13}\text{CO}_2$ dont les intensités étaient similaires, mais plus précisément, car l'étude de cette région peut permettre de quantifier le rapport $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$. L'étude de ce rapport peut être utilisée pour la détection de la bactérie *Helicobacter pylori* (HP), dont une photographie prise au microscope électronique est présentée à la Figure 4.14a. Cette bactérie colonisant l'estomac humain et plus spécifiquement la muqueuse gastrique, est à l'origine d'une inflammation de celle-ci, nommée gastrite aiguë, qui peut éventuellement devenir chronique. Cette gastrite peut avoir comme conséquence le développement d'ulcères gastriques ou duodénaux, voire même aboutir à un cancer de l'estomac. Plusieurs schémas thérapeutiques couplant des associations d'antibiotiques et des inhibiteurs de la pompe à proton sont possibles afin d'éradiquer HP. La découverte d'HP [222], ou plutôt redécouverte [223], son étude, ainsi que l'établissement du traitement associé à son éradication s'est fait au début des années 1980 par J. ROBIN WARREN et BARRY J. MARSHALL qui furent, en 2005, récompensés du prix Nobel de médecine pour ces travaux.

Le diagnostic de la présence d'HP dans l'estomac d'un patient peut se faire de différentes manières comme par biopsie, culture, sérologie, techniques d'amplification génique (PCR), etc., mais c'est le diagnostic par l'analyse de l'air expiré qui nous intéresse. Cette méthode diagnostique est particulièrement judicieuse, notamment lorsque l'endoscopie n'est pas nécessaire, et limite la possibilité de biopsie. Le test repose sur l'ingestion par un patient d'urée (de formule $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$) dont l'atome de carbone est marqué avec un isotope ^{13}C [224] ou ^{14}C [225], le marquage au ^{13}C étant plus couramment employé, ainsi que sur la sécrétion physiologique et abondante d'uréase par HP. Cette enzyme lui permet ainsi de métaboliser l'urée spontanément présente dans l'estomac en ammonium et bicarbonate, augmentant le pH environnant, ce qui fournit à la bactérie une protection temporaire à l'acidité gastrique. La Figure 4.14b montre un schéma récapitulatif de ce mode de vie. Les bicarbonates, quant à eux, sont majoritairement transformés en dioxyde de carbone, puis évacué par les poumons par expiration. Ainsi, le marquage au ^{13}C qui au départ se trouvait sur l'urée ingérée se retrouve au final sur le CO_2 expiré. En mesurant le rapport isotopique entre les différents carbones expirés par le patient, la présence d'HP dans l'estomac se matérialisera alors par une modification de ce rapport entre avant et après l'ingestion d'urée marquée. Comme vu en introduction, l'analyse de l'air expiré peut se faire par spectrométrie de masse isotopique ou encore par spectroscopie infrarouge non dispersive [226], et la présence d'HP est considérée comme positive si un seuil de 5‰ est atteint dans l'enrichissement au ^{13}C mesuré.

L'utilisation de la spectroscopie à deux peignes de fréquences pourrait être une solution optique permettant de détecter HP s'il est possible de démontrer que la précision de l'instrument est suffisante pour mettre en évidence un enrichissement de 5‰ de ^{13}C . De fait, le montage doit être encore plus sensible que cette simple limite, et il peut être visé un enrichissement de 1‰, cet objectif étant loin d'être trivial. Même si celui-ci n'est pas atteint, il peut être tout aussi intéressant de quantifier les limites de notre montage pour la mesure de rapports isotopiques. Les mesures préliminaires effectuées montrent que les sources d'incertitudes doivent être minimisées au maximum, notamment sur la mesure de la pression totale et de la longueur d'absorption. De plus, le RSB du peigne RF doit être bien plus élevé que ce que nous avons eu jusqu'à présent afin d'obtenir une ligne de base de meilleure qualité, et donc un ajustement numérique plus propre. De même pour la largeur

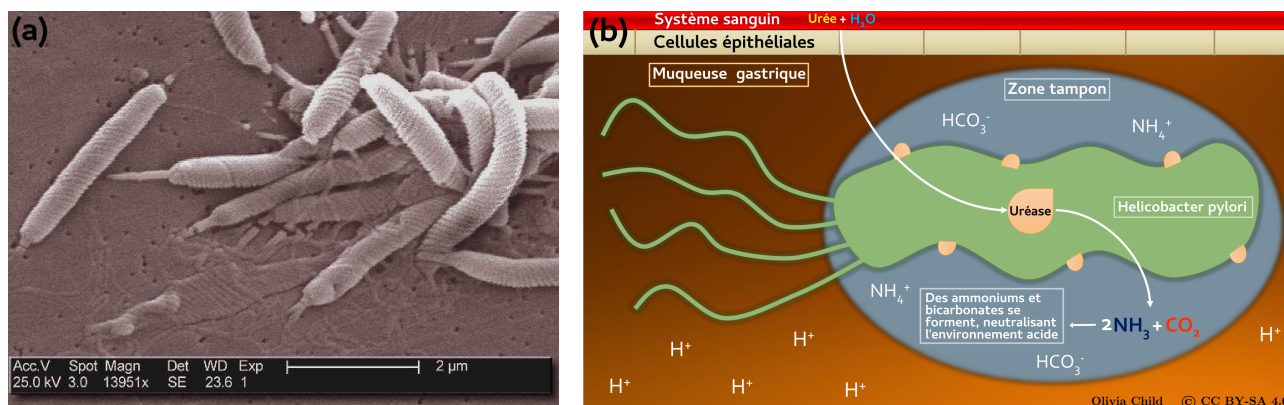


FIGURE 4.14 – (a) Photographie d'*Helicobacter pylori* prise au microscope électronique. (b) Schéma récapitulatif le mode de vie d'*Helicobacter pylori* et notamment le mécanisme lui permettant de s'adapter aux conditions acides de l'estomac humain.

du spectre, celle-ci doit être aussi large que possible afin de pouvoir observer le plus de raies de CO_2 possible, ce qui réduit les incertitudes sur l'ajustement. Enfin, la résolution actuelle des peignes de 250 MHz est très certainement trop faible pour effectuer des mesures avec des précisions élevées. Ainsi, des améliorations doivent être effectuées sur la partie à 1,55 μm tant que sur la partie conversion dans le MIR.

Un exemple de spectre de CO_2 obtenu dans l'air expiré de l'expérimentateur aux alentours de 4360 nm à partir de 40 interférogrammes de 50 ms à un taux d'échantillonnage de 2 ns est présenté à la Figure 4.15. Afin de pouvoir mesurer le rapport isotopique $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$, la plage spectrale étudiée est judicieusement choisie pour visualiser le plus de raies possible de $^{13}\text{CO}_2$, celles-ci étant indiquées par un point vert sur le graphique de gauche de la Figure 4.15, le but étant de pouvoir obtenir une précision plus grande sur la mesure de la pression partielle de $^{13}\text{CO}_2$. Un ajustement numérique du spectre permet d'extraire simplement le rapport $r = ^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ puisqu'il correspond au rapport des pressions partielles p_{13} de $^{13}\text{CO}_2$ et p_{12} de $^{12}\text{CO}_2$. En ne considérant que les quatre isotopes de CO_2 les plus abondants $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$, $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$, $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ et $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{17}\text{O}$, dont l'abondance naturelle est respectivement de $a_{12} = 98,4204\%$, $a_{13} = 1,1057\%$, $a_{18} = 0,3947\%$ et $a_{17} = 0,07339890\%$, et ayant une pression partielle respective p_{12} , p_{13} , p_{18} et p_{17} , la pression partielle de CO_2 tout isotopes confondus p_{CO_2} est donnée par la somme des pressions partielles des différents isotopes. Notons que le fait de ne sélectionner que les quatre isotopes les plus abondants induit une erreur sur la pression totale de CO_2 de 0,01%, ce qui est raisonnable dans une première approche. En utilisant le fait que $r = \frac{p_{13}}{p_{12}}$, nous avons alors :

$$p_{12} = (1 - a_{18} - a_{17}) \frac{1}{1+r} p_{\text{CO}_2} \quad \text{et} \quad p_{13} = (1 - a_{18} - a_{17}) \frac{r}{1+r} p_{\text{CO}_2} \quad . \quad (4.5)$$

L'analyse du spectre présenté à la Figure 4.15 se fait par ajustement numérique de p_{CO_2} et du rapport isotopique r . Notons que la pression partielle doit être ajustée puisque, comme nous l'avons vu dans l'application à la capnographie, cette pression varie au cours du cycle de respiration et ne peut donc être connue précisément, sauf à l'aide d'un moyen de mesure externe, mais ceci est difficilement implantable lorsque les échantillons ne sont pas analysés à l'intérieur d'une cuve étanche. Les résultats obtenus avec l'ajustement montrent une pression partielle de CO_2 de $(46,6 \pm 0,4)$ mmHg dans un intervalle de confiance à 95%, ce qui est cohérent avec le fait que l'échantillon d'air expiré ait été obtenu de façon à ce que l'expérimentateur montre une hypercapnie, le but étant d'obtenir une absorption adaptée du CO_2 sur une longueur d'absorption de 2,5 cm. Concernant le rapport isotopique, les résultats donnent ici $r = (0,0103 \pm 0,0001)$ dans un intervalle de confiance à 95%, ce qui est à comparer avec un rapport en abondance naturelle de $r_{\text{nat}} = 0,0112$, soit une erreur de 8% qui n'est pas incluse dans la barre d'incertitude.

D'autres spectres enregistrés sous les mêmes conditions montrent des résultats similaires avec des erreurs relatives à l'abondance isotopique naturelle en moyenne aux alentours de 5%. Ces écarts, qui n'incluent pas r_{nat} dans un intervalle de confiance à 95%, peuvent être expliqués par les contraintes expérimentales expliquées plus haut. De plus, il est aussi possible que les incertitudes sur les paramètres de HITRAN soient trop importantes pour en déduire des paramètres expérimentaux comme voulu ici. Enfin, il est nécessaire de noter que certains

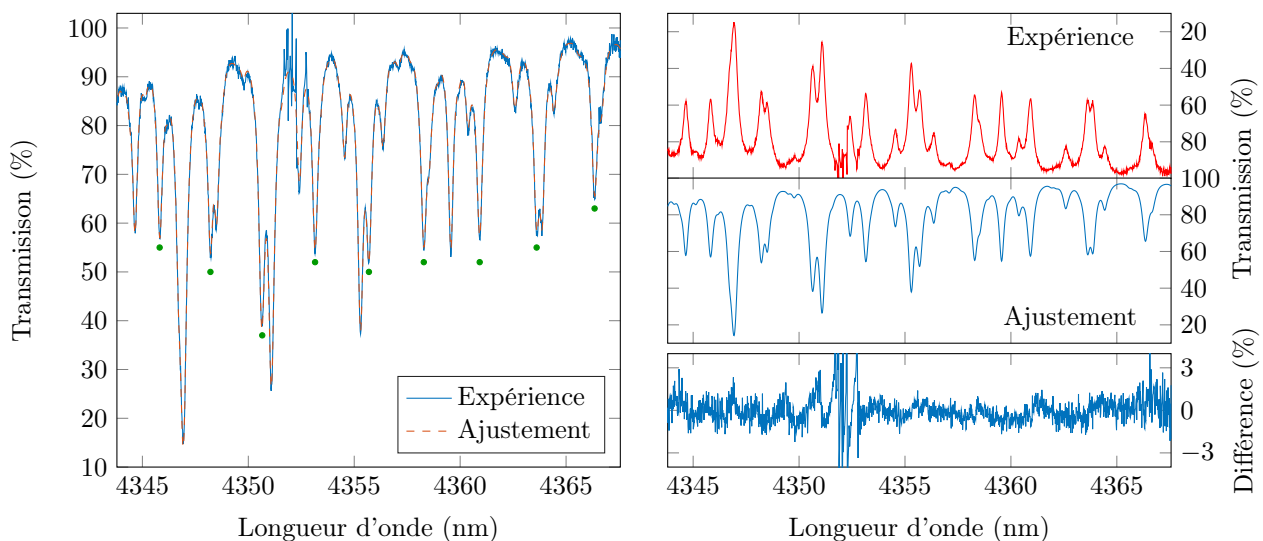


FIGURE 4.15 – Graphiques montrant un exemple de spectre d'absorption de CO_2 dans l'air expiré par l'expérimentateur à une résolution de 250 MHz, enregistré à partir de 40 interférogrammes de 50 ms à un taux d'échantillonnage de 2 ns, et comparé avec un spectre ajusté numériquement. Les points verts sur le graphique de gauche indiquent les raies de la bande ν_3 du $^{13}\text{CO}_2$.

paramètres ne sont pas encore inclus dans la base de données, ce qui est notamment le cas avec le coefficient de décalage en pression $\delta_{\text{CO}_2-\text{CO}_2}$ sur la bande ν_3 . Toutes ces hypothèses sont actuellement en cours d'approfondissement afin d'étudier quelles sont les sources d'incertitudes les plus importantes, ce qui nous permettra peut être de rapprocher nos mesures de rapports isotopiques de r_{nat} dans un premier temps. Afin de raffiner nos conclusions, il peut aussi être considéré l'étude de mélanges de gaz avec une modification du rapport isotopique importante, par exemple 90% de $^{12}\text{CO}_2$ et 10% de $^{13}\text{CO}_2$, ce que nous prévoyons de faire dans un second temps.

Notons toutefois que, pour une application type détection d'HP, c'est la variation du rapport isotopique qui importe. Même si nos mesures précédentes ne permettent pas de remonter à r_{nat} , elles semblent indiquer une erreur systématique, c'est à dire que les mesures en absolu ne sont pas justes. De fait, si les mesures sont fidèles, ce point étant encore à démontrer, la mesure de la variation du rapport isotopique ne sera pas affectée par l'erreur systématique sur les mesures en absolu, car celle-ci sera soustraite. Si tel est le cas, nos mesures préliminaires du rapport r montrent actuellement une précision d'environ 1%, ce qui n'est pas suffisant pour détecter la présence d'HP mais une marge de progression est possible et semble à portée.

4.3.3 Ouverture sur l'analyse de gaz d'échappement

Comme nous l'avons déjà évoqué, de nombreuses applications peuvent être effectuées en ciblant la bonne molécule dans le MIR. En guise d'ouverture, une dernière application que nous abordons ici est l'étude de gaz d'échappement de voitures. L'analyse de ces gaz est relativement importante puisqu'elle permet de se renseigner sur les types de polluants émis, leur quantités, mais aussi sur les fonctionnements de la machinerie puisque certains composants, comme le pot catalytique, sont exclusivement dédiés à la réduction des composants toxiques issus de la combustion dans le moteur, ce qui permet de contrôler les performances de ce type de composants.

Pour aller sur ce terrain d'applications, nous changeons la période du cristal utilisée précédemment pour $\Lambda = 30,49 \mu\text{m}$ et nous utilisons une onde idler à $\lambda_i = 2371 \text{ nm}$. Toujours avec une pompe à $\lambda_p = 1560 \text{ nm}$, il est possible d'obtenir un signal centré à $\lambda_s = 4562 \text{ nm}$. Ce choix est motivé par l'intersection entre la bande fondamentale ν_1 du monoxyde de carbone CO et la bande fondamentale ν_3 du protoxyde d'azote N_2O (voir [Figure 3.1](#)), ces deux espèces pouvant être retrouvées dans les gaz d'échappement. Le CO et le N_2O ne sont pas majoritaires puisque la composition typique de gaz d'échappement d'une voiture essence est d'environ 71% de N_2 , 14% de CO_2 , 13% de H_2O [227]. Dans les 2% maximum restants, plus de 80% est composé de CO tandis que le reste est constitué d'oxydes d'azote NO_x et d'hydrocarbures [227]. Bien que le CO soit en faible proportion, les raies de la bande ν_1 du CO devraient néanmoins être détectables avec notre montage compte tenu de leur fortes intensités, aux alentours de $4 \times 10^{-19} \text{ cm}$ par molécule pour les raies les plus intenses. Concernant le N_2O , celui-ci se retrouve en quantité bien moindre puisqu'il est surtout produit par une réaction parasite en dehors du moteur, et dépend beaucoup des composants installés et de leur température [228]. Nous allons donc essayer de voir dans quelles proportions il est possible d'observer du CO et du N_2O .

Ici, l'analyse se fait en récoltant dans un sachet hermétique assez transparent à la longueur d'onde du signal, du gaz d'échappement d'une voiture assez ancienne (Citroën ZX essence) après avoir roulé en ville une vingtaine de minutes. Le sachet est ensuite disposé à la place de la cuve utilisée dans les expériences précédentes, et placé de telle sorte que la longueur d'absorption se retrouve bien définie. Ici elle sera de 2,5 cm. La [Figure 4.16](#) montre la photographie d'une partie du montage expérimental utilisé pour l'analyse de gaz d'échappement.

Pour cette étude, nous enregistrons 18 interférogrammes de 50 ms, chacun à un taux d'échantillonnage de 1 ns, soit un temps total d'acquisition de 0,9 s. Les interférogrammes sont ensuite traités pour obtenir les spectres RF associés, et ces spectres sont ensuite moyennés entre eux. Le spectre d'absorption est ensuite obtenu par comparaison avec une référence enregistrée sous les mêmes conditions mais sans gaz dans le sachet, et celui-ci est présenté à la [Figure 4.17](#). Le spectre obtenu montre exclusivement des raies d'absorption de CO, et plus précisément la branche R de la bande ν_1 . Concernant le N_2O , celui-ci est soit absent de l'échantillon, soit en trop faible quantité pour être détecté avec une longueur d'absorption de 2,5 cm. En effet, les émissions de N_2O par une voiture ne sont pas systématiques, et les concentrations attendues sont de l'ordre de la dizaine à la centaine de ppm [228], ce qui est difficilement détectable pour le N_2O dont les raies les plus intenses le sont 3,5 fois moins que celles du CO_2 .

Comme pour les mesures sur CO_2 que nous avons présentées plus haut, la zone aux alentours de 4562 nm est dégradée à cause de la présence de la composante continue. Toutefois, la référence étant ici prise à la même longueur d'onde, la ligne de base est beaucoup plus propre et les oscillations dues à l'élargissement par ondes de choc à 1560 nm ne ressortent que peu. Notons que pour ces mesures, nous avons pu centrer la conversion sur la composante continue et non sur la partie basse fréquences du spectre seulement. En effet, une plus grande largeur spectrale est exploitable car notre laser est plus puissant à $\lambda_i = 2371 \text{ nm}$ qu'à $\lambda_i = 2433 \text{ nm}$, ce qui fait que la conversion et le RSB sont meilleurs sur les bords du spectre RF. Ainsi, et étant donné qu'il nous est possible de moyennner nos spectres pour cette application, nous avons pu exploiter la largeur RF entre les 30 MHz et 50 MHz (voir [Figure 4.5](#) pour comparer au cas à 4360 nm), ce qui correspond à une largeur comprise

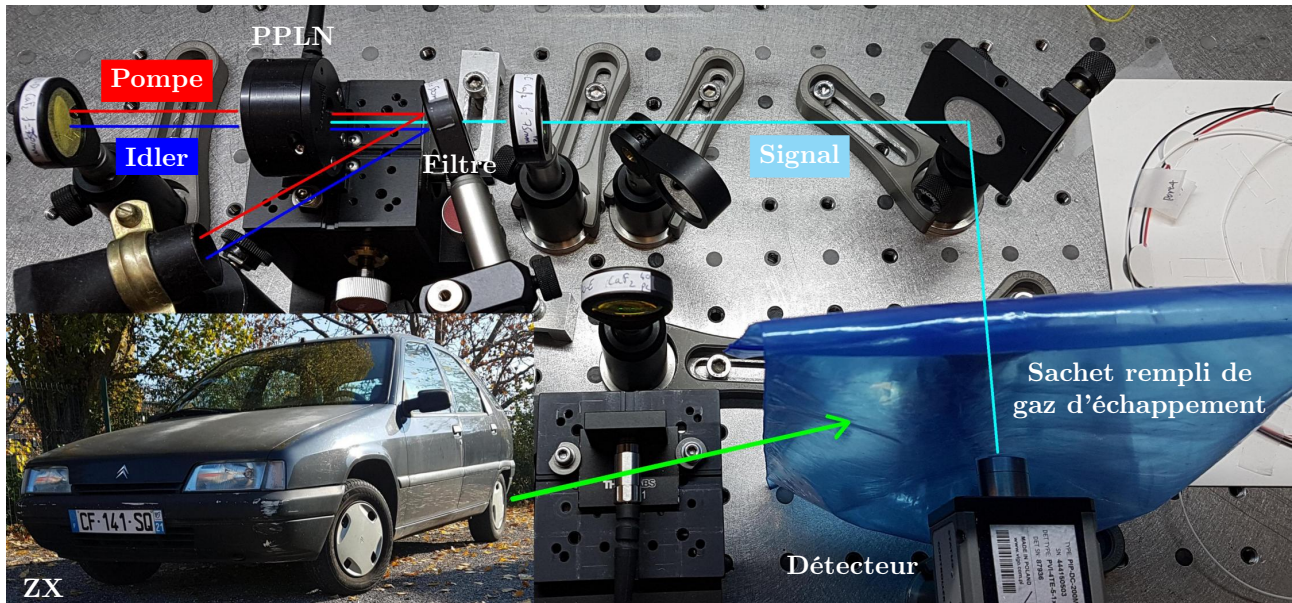


FIGURE 4.16 – Photographie d'une partie du montage expérimental montrant les éléments permettant la conversion des peignes dans le MIR et la spectroscopie de gaz d'échappement produit par une Citroën ZX essence.

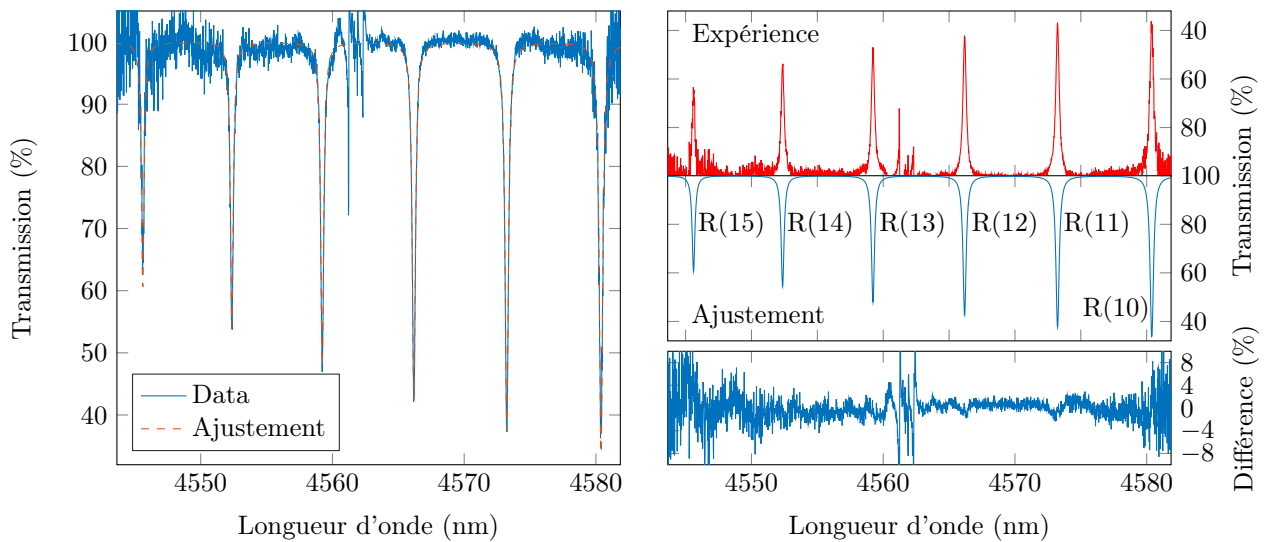


FIGURE 4.17 – Graphiques présentant un spectre d'absorption de gaz d'échappement produit par une Citroën ZX essence. Celui-ci est obtenu avec 18 interférogrammes de 50 ms enregistrés à un taux d'échantillonnage de 1 ns. Le spectre montre quelques raies de la branche R de la bande ν_1 du monoxyde de carbone CO.

entre 4544 nm 4581 nm.

Un ajustement du spectre en utilisant les données issues de HITRAN a permis d'en déduire une pression partielle de CO dans l'échantillon analysé de 9,3 mbar (soit 0,92%). L'incertitude donnée par l'ajustement est de $\pm 1,74\%$ dans un intervalle de confiance à 95%. Celle-ci est plus élevée que pour les mesures de CO₂ mais les spectres sont relativement différents, celui de CO ne montrant que quelques raies, ce qui affecte la précision de l'ajustement. Toutefois, les valeurs obtenues sont cohérentes avec les émissions typiques d'une voiture essence. L'accord entre le spectre ajusté et expérimental est relativement bon, même si au niveau des raies il est possible de voir de légères différences de quelques pourcents, notamment sur la raie R(11) et R(12). Ceci peut s'expliquer par le fait que pour ajuster le spectre, il est approximé que le mélange analysé est constitué de CO et d'air ambiant car HITRAN ne dispose pas d'autres données. Or comme nous l'avons vu, un gaz d'échappement est assez différent de l'air ambiant, notamment par l'absence de dioxygène O₂ et par une présence marquée d'eau. Ainsi, les limites de l'approximation pourraient expliquer les petites différences observées ainsi que l'incertitude plus élevée sur l'ajustement de la pression partielle.

Pour terminer sur cette expérience, nous pouvons en conclure que notre spectromètre, lorsqu'il est utilisé à la bonne longueur d'onde, permet d'effectuer des analyses sur les gaz d'échappement. L'étude présentée ici est relativement simple puisqu'elle ne peut détecter que le CO et le N₂O, mais celle-ci pourrait être plus complète, notamment en comparant les spectres avec une voiture diesel, ou encore en essayant de détecter d'autres oxydes d'azote tel que le monoxyde d'azote NO ou dioxyde d'azote NO₂. Cependant, pour détecter des raies de ces espèces chimiques avec une même intensité que les raies de CO que nous avons étudiées, il faudrait générer des signaux au delà de 5 μm , ce qui est hors de la portée de notre montage. Notons que des analyses en temps réel, de la même manière que ce qui a été fait avec le CO₂ dans l'air expiré, pourraient aussi être effectuées pour analyser l'émission des gaz d'échappement relativement au temps de fonctionnement de la machine étudiée. En effet, des différences devraient apparaître, notamment car la température du moteur et d'autres composants varie, ce qui implique des émissions de gaz différentes. Cependant, ceci dépasse de loin les analyses qu'il nous est possible d'effectuer en laboratoire.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté un montage expérimental permettant la conversion dans le moyen infrarouge de peignes de fréquences générés à 1,55 μm . À l'aide de cristaux non-linéaires, le phénomène de génération par différence de fréquences a été utilisé pour atteindre les alentours de 4,3 μm . Toutefois, étant donné l'utilisation de lasers agiles en longueur d'onde, d'une plateforme de LiNbO₃ disposant de cristaux avec plusieurs périodes et d'une température facilement ajustable à l'aide d'un four adapté à la plateforme, le montage est capable de couvrir une gamme spectrale s'étendant de 4,2 μm à 4,85 μm , ce qui permet de cibler des molécules qui absorbent intensément. De fait, il est donc possible de détecter des concentrations relativement faibles de gaz, comme le CO₂ dans l'air ambiant qui avoisine les 700 ppm. Ces avantages au niveau de la détection, contrairement à 1,55 μm ou 2 μm , font que les applications sont légions. En particulier, nous avons vu que l'analyse de la concentration de CO₂ trouve une place assez importante dans le domaine médical, et nous avons montré l'exemple de la capnographie et abordé les mesures de rapports isotopiques. De plus, nous avons vu d'autres applications possible à travers l'étude du CO, comme l'analyse de gaz d'échappement qui peut être orientée vers le contrôle de polluants. Pour finir, notons que l'utilisation d'autres cristaux périodiques et de sources lasers adéquates pourrait permettre de sonder encore plus loin dans le moyen infrarouge. Par exemple, les semi-conducteurs GaAs et GaP possèdent une bande de transparence allant jusqu'à 12 μm [229, 230], et des démonstrations expérimentales avec des peignes générés par modulation électro-optique ont même déjà été rapportées [231]. Notons toutefois que ces cristaux ont une efficacité qui diminue avec la longueur d'onde, et donc que cette approche n'est pas forcément la plus adaptée pour atteindre la région supérieure à 10 μm .

Conclusion générale et ouverture

La spectrométrie à deux peignes de fréquences, depuis les premiers travaux théoriques et expérimentaux menés respectivement en 2002 et 2008 [46, 48], a beaucoup évolué [52, 232]. Les progrès techniques ont fait que les montages sont devenus de plus en plus performants, ce qui pourrait permettre de nombreuses applications, certaines pouvant même aller jusque dans des domaines très appliqués comme le médical. D'un autre côté, ceci n'est possible que si ces montages expérimentaux sont relativement compacts et transportables sans trop de contraintes. Sur ce point, la génération de peignes par modulation électro-optique d'un laser continu peut s'avérer très avantageuse puisqu'elle repose, comme nous l'avons vu, sur des composants d'optique tout fibrés et électroniques issus de l'industrie des télécommunications, c'est à dire des composants robustes et éprouvés [97].

Dans ce manuscrit, nous avons étudié un montage à deux peignes de fréquences bien particulier reposant sur des modulateurs électro-optiques [71]. Bien que celui-ci ne soit pas le seul existant à base de tels composants [97], les résultats présentés dans ce manuscrit peuvent être transposés sur d'autres configurations. Tout au long de ce manuscrit, nous avons vu différents aspects de notre montage, notamment ses capacités initiales mais aussi comment il est possible de l'améliorer. Sur ce point, nous nous sommes surtout intéressés à la gamme spectrale qu'il était possible de sonder, et comment il est possible de l'étendre, que ce soit aux alentours de 1550 nm, de 2000 nm ou encore dans le moyen-infrarouge entre 4200 nm et 4850 nm. En effet, cet aspect est un des points clef du spectromètre, et les techniques employées montrent différentes possibilités pour répondre à cette question. Toutefois, sur d'autres aspects, de nombreuses améliorations sont aussi possibles afin de rendre le spectromètre plus performant, notamment sur sa stabilité, ce qui permettrait de sortir le montage hors du laboratoire. C'est dans cette optique qu'un programme de maturation avec la SATT SAYENS a été initié afin d'élaborer un prototype mobile du spectromètre, le but étant de valoriser les travaux présentés dans cette thèse, mais aussi d'utiliser les acquis obtenus pour optimiser au maximum le montage et constater ainsi ses limites ultimes.

Au niveau du montage à 1550 nm, une première amélioration possible est le référencement précis de la diode laser initiale. Ceci permettrait notamment une calibration en fréquence du spectromètre sans utiliser une référence externe, une raie d'absorption déjà connue dans notre cas. Ensuite, une étude approfondie sur les sources de bruits électriques comme optiques permettrait une amélioration de l'étendue spectrale ainsi que du rapport signal sur bruit. Ainsi, une fenêtre spectrale plus importante pourrait être sondée et des analyses spectroscopiques plus fines pourraient être réalisées. Pour continuer, l'utilisation exclusive de fibres à maintien de polarisation pourrait améliorer sensiblement la stabilité du montage puisqu'elle permettrait de minimiser certaines sources de bruits optiques. De plus, en exploitant le degré de polarisation dans les fibres, il serait en théorie possible de concevoir un montage dont l'élargissement spectral se fait de manière co-propagative, ce qui aurait pour but de diminuer la décohérence entre les peignes et donc d'améliorer le rapport signal sur bruit. Cependant, toute une étude en ce sens reste à faire pour démontrer la faisabilité, notamment au niveau de l'élargissement spectral, car des fibres optiques à maintien de polarisation présentant une forte non-linéarité et une dispersion relativement élevée ne sont pas courantes et relativement coûteuses. Pour finir sur le montage dans sa configuration initiale, à 1550 nm ou 2000 nm, de nettes améliorations pourraient être observées si la durée des impulsions générées par modulation électro-optique était très inférieure aux 50 ps actuel, de l'ordre de quelques picosecondes par exemple. En effet, contrairement aux montages basés sur des lasers femtosecondes, la durée relativement longue des impulsions oblige un élargissement spectral assez conséquent qui nécessite de fortes puissances moyennes et des longueurs de fibres relativement longues. Toutefois, une diminution des largeurs d'impulsions, ou de manière équivalente une augmentation de la bande passante des modulateurs utilisés, ne peut passer que par des études complètes sur la conception de modulateurs électro-optiques. Bien que ceci dépasse le cadre de nos recherches, nous pouvons noter que des études ont déjà réalisées dans ce sens, avec des résultats prometteurs qui plus est. Par exemple, l'utilisation de matériaux comme le titanate de baryum BaTiO_3 montre des bandes passantes jusqu'à 65 GHz [93]. Le silicium est un autre exemple de matériau étudié pour remplacer le LiNbO_3 , avec des performances assez similaires au BaTiO_3 [233, 234].

L'amélioration des composants électro-optiques, et donc du spectromètre dans sa version de base, ne peut toutefois se faire que jusqu'à une certaine limite. En effet, une restriction importante est la fenêtre de transparence des modulateurs et des fibres optiques, dont la limite haute est environ située à 2100 nm. Même si, comme

nous l'avons déjà vu, des recherches sont effectuées pour concevoir des modulateurs au delà de cette limite [104, 105], obtenir des performances aussi élevées que celles disponibles actuellement pour les modulateurs à base de LiNbO_3 risque de prendre un certain temps et un investissement élevé. De plus, des recherches doivent aussi être effectuées sur la conception d'amplificateurs, de lasers continus fins spectralement, ainsi que des fibres optiques, ce qui est loin d'être immédiat. De fait, étant donné la situation de la recherche sur ces différents points, l'extension de la gamme d'analyse du spectromètre par conversion de fréquences est la solution la plus adaptée. Des études que nous avons effectuées, l'utilisation de cristaux polarisés périodiquement semble être la solution la plus efficace, notamment pour des raisons d'efficacité de conversion. Bien que la conversion par instabilité de modulation d'ordre 4 ait montré sa faisabilité, elle reste néanmoins tout aussi limitée à la bande de transparence de la silice. Même si des travaux ont déjà démontré la possibilité d'effectuer de l'instabilité de modulation d'ordre 4 dans d'autres types de fibres telles les chalcogénures ou les tellures [202], les modestes puissances crêtes que nous pouvons obtenir après amplification des trains d'impulsions générés par modulation électro-optique font qu'il sera très difficile d'obtenir une conversion dans le moyen infrarouge avec cette technique. L'utilisation de cristaux polarisés périodiquement pour atteindre le moyen infrarouge dispose donc de certains avantages, notamment de par le fait que ces composants sont éprouvés mais aussi que les plateformes de LiNbO_3 existantes permettent d'obtenir des signaux sur une gamme très large, de 4200 nm à 4850 nm dans le cas des études que nous avons menées. Ce genre d'agilité en longueur d'onde est plus compliqué à obtenir avec un montage tout fibré puisqu'elle repose sur les paramètres stricts de la fibre utilisée. Un compromis pourrait cependant exister entre la fibre optique et les cristaux polarisés, par exemple avec l'utilisation de guides d'onde en nitrure de silicium SiN transparent jusqu'à 8 μm . Ces guides ont déjà montré un certain potentiel pour la génération de supercontinuum [122], ou de génération de troisième harmonique [109]. Des phénomènes de mélanges à quatre ondes ont également été démontrés dans ces guides [235, 236], mais une étape d'adaptation serait nécessaire pour pouvoir les implémenter dans un montage à deux peignes de fréquences disposant de modestes puissances crêtes comme le nôtre. En particulier, l'étude de l'utilisation de guides couplés a été entreprise, non pas pour la génération de supercontinuum comme déjà rapportée dans la littérature [207], mais pour la génération de signaux par mélange à quatre ondes. Comme nous l'avons vu avec l'exemple de l'instabilité de modulation d'ordre 4 dans une fibre hautement non-linéaire, des paramètres précis et non fluctuants de dispersion sont nécessaires afin d'obtenir un accord de phase de bonne qualité. Des études théoriques et numériques préliminaires ont été effectuées dans des guides d'onde, et celles-ci montrent que l'utilisation de guides couplés permettrait de contrôler précisément le degré de liberté associé à la dispersion, notamment en modifiant l'écart spatial entre les deux guides. Cette technique de contrôle précis de la dispersion a permis le dépôt d'un brevet, et des échantillons sont actuellement en cours de développement et de tests, la fabrication étant une étape cruciale. À plus long terme, si la technique s'avère être exploitable pour convertir nos peignes de fréquences générés par modulation électro-optique, le but est d'obtenir des signaux aux alentours de 2,7 μm , région spectrale montrant la bande $\nu_1 + \nu_3$ du $^{12}\text{CO}_2$ et $^{13}\text{CO}_2$, par mélange des peignes à 1550 nm avec une pompe à 2 μm ou inversement.

Des études effectuées dans le moyen infrarouge, nous avons pu voir que les limites de notre système d'acquisition ont été atteintes. Comme nous l'avons déjà évoqué, une amélioration significative consisterait en l'utilisation d'une carte d'acquisition. Cette amélioration matérielle simple éviterait, entre autres, les problèmes de temps morts ou de saturation de la mémoire du matériel. De fait, la levée de ce verrou permettrait une possible utilisation de notre montage pour effectuer des analyses en temps réel. Toutefois, une carte d'acquisition représente un coût non négligeable contrairement à l'oscilloscope numérique que nous avons utilisé pour obtenir les résultats présentés dans ce manuscrit, et de ce côté nous pouvons tout de même en conclure que celle-ci n'est pas essentielle pour l'étude de phénomènes ne présentant pas ou peu de dynamiques.

La conception de spectromètres à deux peignes de fréquences basés sur la modulation électro-optique d'un laser continu a donc vraisemblablement encore beaucoup à montrer, puisque nombre d'améliorations sont théoriquement réalisables, sans pour autant présenter des contraintes physiques. Ces possibles futurs systèmes peuvent a priori se retrouver dans de nombreuses applications nécessitant des analyses rapides à haute résolution spectrale, par spectroscopie linéaire ou non-linéaire [237], comme la biologie, le médical, l'automobile pour l'analyse de gaz d'échappement, etc.

Bibliographie

- [1] T. H. MAIMAN. “Stimulated Optical Radiation in Ruby”. Dans : *Nature* 187 (1960), p. 493.
- [2] P. A. FRANKEN, A. E. HILL, C. W. PETERS et G. WEINREICH. “Generation of Optical Harmonics”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 7 (1961), p. 118–119.
- [3] B. P. ABBOTT et al. “Observation of Gravitational Waves from a Binary Black Hole Merger”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 116 (2016), p. 061102.
- [4] L. E. HARGROVE, R. L. FORK et M. A. POLLACK. “Locking of He–Ne Laser Modes Induced by Synchronous Intracavity Modulation”. Dans : *Applied Physics Letters* 5.1 (1964), p. 4–5.
- [5] J. N. ECKSTEIN, A. I. FERGUSON et T. W. HÄNSCH. “High-Resolution Two-Photon Spectroscopy with Picosecond Light Pulses”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 40 (1978), p. 847–850.
- [6] Th. UDEM, J. REICHERT, R. HOLZWARTH et T. W. HÄNSCH. “Absolute Optical Frequency Measurement of the Cesium D_1 Line with a Mode-Locked Laser”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), p. 3568–3571.
- [7] Th. UDEM, J. REICHERT, R. HOLZWARTH et T. W. HÄNSCH. “Accurate measurement of large optical frequency differences with a mode-locked laser”. Dans : *Opt. Lett.* 24.13 (1999), p. 881–883.
- [8] J. REICHERT, R. HOLZWARTH, Th. UDEM et T.W. HÄNSCH. “Measuring the frequency of light with mode-locked lasers”. Dans : *Optics Communications* 172.1 (1999), p. 59–68.
- [9] H. SCHNATZ, B. LIPPHARDT, J. HELMCKE, F. RIEHLE et G. ZINNER. “First Phase-Coherent Frequency Measurement of Visible Radiation”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996), p. 18–21.
- [10] Tobias WILKEN et al. “A spectrograph for exoplanet observations calibrated at the centimetre-per-second level”. Dans : *Nature* 485 (2012), p. 611.
- [11] Arthur MATVEEV et al. “Precision Measurement of the Hydrogen $1S-2S$ Frequency via a 920-km Fiber Link”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 110 (2013), p. 230801.
- [12] John L. HALL. “Nobel Lecture : Defining and measuring optical frequencies”. Dans : *Rev. Mod. Phys.* 78 (2006), p. 1279–1295.
- [13] Theodor W. HÄNSCH. “Nobel Lecture : Passion for precision”. Dans : *Rev. Mod. Phys.* 78 (2006), p. 1297–1309.
- [14] Th. UDEM, R. HOLZWARTH et T. W. HÄNSCH. “Optical frequency metrology”. Dans : *Nature* 416 (2002), p. 233.
- [15] D. E. SPENCE, P. N. KEAN et W. SIBBETT. “60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti :sapphire laser”. Dans : *Opt. Lett.* 16.1 (1991), p. 42–44.
- [16] Steven T. CUNDIFF et Jun YE. “Colloquium : Femtosecond optical frequency combs”. Dans : *Rev. Mod. Phys.* 75 (2003), p. 325–342.
- [17] V. J. MATSAS, T. P. NEWSON, D. J. RICHARDSON et D. N. PAYNE. “Selfstarting passively mode-locked fibre ring soliton laser exploiting nonlinear polarisation rotation”. Dans : *Electronics Letters* 28.15 (1992), p. 1391–1393.
- [18] K. TAMURA, H. A. HAUS et E. P. IPPEN. “Self-starting additive pulse mode-locked erbium fibre ring laser”. Dans : *Electronics Letters* 28.24 (1992), p. 2226–2228.
- [19] U. KELLER, K. J. WEINGARTEN, F. X. KARTNER, D. KOPF, B. BRAUN, I. D. JUNG, R. FLUCK, C. HONNINGER, N. MATUSCHEK et J. AUS DER AU. “Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM’s) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers”. Dans : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 2.3 (1996), p. 435–453.
- [20] Stefan DROSTE, Gabriel YCAS, Brian R. WASHBURN, Ian CODDINGTON et Nathan R. NEWBURY. “Optical Frequency Comb Generation based on Erbium Fiber Lasers”. Dans : *Nanophotonics* 5.2 (2016).

- [21] P. DEL'HAYE, A. SCHLIESSER, O. ARCIZET, T. WILKEN, R. HOLZWARTH et T. J. KIPPENBERG. "Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator". Dans : *Nature* 450.7173 (2007), p. 1214–1217.
- [22] Guoping LIN, Aurélien COILLET et Yanne K. CHEMBO. "Nonlinear photonics with high-Q whispering-gallery-mode resonators". Dans : *Adv. Opt. Photon.* 9.4 (2017), p. 828–890.
- [23] Alessia PASQUAZI et al. "Micro-combs : A novel generation of optical sources". Dans : *Physics Reports* 729 (2018), p. 1–81.
- [24] Tobias J. KIPPENBERG, Alexander L. GAETA, Michal LIPSON et Michael L. GORODETSKY. "Dissipative Kerr solitons in optical microresonators". Dans : *Science* 361.6402 (2018).
- [25] G.P. AGRAWAL. *Nonlinear Fiber Optics*. 6^e éd. Optics and Photonics Series. Academic Press, 2019.
- [26] M. Imrul KAYES et Martin ROCHETTE. "Optical frequency comb generation with ultra-narrow spectral lines". Dans : *Opt. Lett.* 42.14 (2017), p. 2718–2721.
- [27] Evgeny MYSLIVETS, Bill P.P. KUO, Nikola ALIC et Stojan RADIC. "Generation of wideband frequency combs by continuous-wave seeding of multistage mixers with synthesized dispersion". Dans : *Opt. Express* 20.3 (2012), p. 3331–3344.
- [28] Aku ANTIKAINEN et Govind P. AGRAWAL. "Dual-pump frequency comb generation in normally dispersive optical fibers". Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 32.8 (2015), p. 1705–1711.
- [29] A. BENDAHMANE, J. FATOME, C. FINOT, G. MILLOT et B. KIBLER. "Selective generation of Kerr combs induced by asymmetrically phase-detuned dual pumping of a fiber ring cavity". Dans : *Opt. Lett.* 43.18 (2018), p. 4449–4452.
- [30] Vicente DURÁN, Côme SCHNÉBELIN et Hugues Guillet de CHATELLUS. "Coherent multi-heterodyne spectroscopy using acousto-optic frequency combs". Dans : *Opt. Express* 26.11 (2018), p. 13800–13809.
- [31] Tao CHEN, Wei KONG, Hao LIU et Rong SHU. "Frequency-stepped pulse train generation in an amplified frequency-shifted loop for oxygen A-band spectroscopy". Dans : *Opt. Express* 26.26 (2018), p. 34753–34762.
- [32] D. A. JENNINGS, K. M. EVENSON et D. J. E. KNIGHT. "Optical frequency measurements". Dans : *Proceedings of the IEEE* 74.1 (1986), p. 168–179.
- [33] David J. JONES, Scott A. DIDDAMS, Jinendra K. RANKA, Andrew STENTZ, Robert S. WINDELER, John L. HALL et Steven T. CUNDIFF. "Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis". Dans : *Science* 288.5466 (2000), p. 635–639.
- [34] J. REICHERT, M. NIERING, R. HOLZWARTH, M. WEITZ, Th. UDEM et T. W. HÄNSCH. "Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser". Dans : *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), p. 3232–3235.
- [35] Richard A. MCCracken, Jake M. CHARLESLEY et Derryck T. REID. "A decade of astrocombs : recent advances in frequency combs for astronomy [Invited]". Dans : *Opt. Express* 25.13 (2017), p. 15058–15078.
- [36] Ewelina OBRZUD et al. "A microphotonic astrocomb". Dans : *Nature Photonics* 13.1 (2019), p. 31–35.
- [37] Myoung-Gyun SUH et al. "Searching for exoplanets using a microresonator astrocomb". Dans : *Nature Photonics* 13.1 (2019), p. 25–30.
- [38] M. FISCHER et al. "New Limits on the Drift of Fundamental Constants from Laboratory Measurements". Dans : *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), p. 230802.
- [39] Eiji HASE et al. "Scan-less confocal phase imaging based on dual-comb microscopy". Dans : *Optica* 5.5 (2018), p. 634–643.
- [40] Xingchen JI, Xinwen YAO, Alexander KLENNER, Yu GAN, Alexander L. GAETA, Christine P. HENDON et Michal LIPSON. "Chip-based frequency comb sources for optical coherence tomography". Dans : *Opt. Express* 27.14 (2019), p. 19896–19905.
- [41] Chengying BAO, Myoung-Gyun SUH et Kerry VAHALA. "Microresonator soliton dual-comb imaging". Dans : *Optica* 6.9 (2019), p. 1110–1116.
- [42] Zebin ZHU et Guanhao WU. "Dual-Comb Ranging". Dans : *Engineering* 4.6 (2018), p. 772–778.
- [43] P. TROCHA et al. "Ultrafast optical ranging using microresonator soliton frequency combs". Dans : *Science* 359.6378 (2018), p. 887–891.
- [44] Steven T. CUNDIFF et Andrew M. WEINER. "Optical arbitrary waveform generation". Dans : *Nature Photonics* 4.11 (2010), p. 760–766.

- [45] D. HAYES, D. N. MATSUKEVICH, P. MAUNZ, D. HUCUL, Q. QURAIHI, S. OLMSCHENK, W. CAMPBELL, J. MIZRAHI, C. SENKO et C. MONROE. “Entanglement of Atomic Qubits Using an Optical Frequency Comb”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010), p. 140501.
- [46] S. SCHILLER. “Spectrometry with frequency combs”. Dans : *Opt. Lett.* 27.9 (2002), p. 766–768.
- [47] Fritz KEILMANN, Christoph GOHLE et Ronald HOLZWARTH. “Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer”. Dans : *Opt. Lett.* 29.13 (2004), p. 1542–1544.
- [48] Ian CODDINGTON, William C. SWANN et Nathan R. NEWBURY. “Coherent Multiheterodyne Spectroscopy Using Stabilized Optical Frequency Combs”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), p. 013902.
- [49] Seok-Jeong LEE, Bambang WIDIYATMOKO, Motonobu KOUROGI et Motoichi OHTSU. “Ultrahigh Scanning Speed Optical Coherence Tomography Using Optical Frequency Comb Generators”. Dans : *Japanese Journal of Applied Physics* 40.Part 2, No. 8B (2001), p. L878–L880.
- [50] D. S. ELLIOTT, Rajarshi ROY et S. J. SMITH. “Extracavity laser band-shape and bandwidth modification”. Dans : *Phys. Rev. A* 26 (1982), p. 12–18.
- [51] Gianni Di DOMENICO, Stéphane SCHILT et Pierre THOMANN. “Simple approach to the relation between laser frequency noise and laser line shape”. Dans : *Appl. Opt.* 49.25 (2010), p. 4801–4807.
- [52] Ian CODDINGTON, Nathan NEWBURY et William SWANN. “Dual-comb spectroscopy”. Dans : *Optica* 3.4 (2016), p. 414–426.
- [53] Avik DUTT, Chaitanya JOSHI, Xingchen JI, Jaime CARDENAS, Yoshitomo OKAWACHI, Kevin LUKE, Alexander L. GAETA et Michal LIPSON. “On-chip dual-comb source for spectroscopy”. Dans : *Science Advances* 4.3 (2018).
- [54] Mengjie YU, Yoshitomo OKAWACHI, Austin G. GRIFFITH, Nathalie PICQUÉ, Michal LIPSON et Alexander L. GAETA. “Silicon-chip-based mid-infrared dual-comb spectroscopy”. Dans : *Nature Communications* 9.1 (2018), p. 1869.
- [55] Byungmoon CHO, Tai Hyun YOON et Minhaeng CHO. “Dual-comb spectroscopy of molecular electronic transitions in condensed phases”. Dans : *Phys. Rev. A* 97 (2018), p. 033831.
- [56] Arman CINGÖZ, Dylan C. YOST, Thomas K. ALLISON, Axel RUEHL, Martin E. FERMAN, Ingmar HARTL et Jun YE. “Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet”. Dans : *Nature* 482 (2012), p. 68.
- [57] Samuel A. MEEK, Arthur HIPKE, Guy GUELACHVILI, Theodor W. HÄNSCH et Nathalie PICQUÉ. “Doppler-free Fourier transform spectroscopy”. Dans : *Opt. Lett.* 43.1 (2018), p. 162–165.
- [58] E.E. WHITING. “An empirical approximation to the Voigt profile”. Dans : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 8.6 (1968), p. 1379–1384.
- [59] Mohammadreza GHARAVI et Steven G. BUCKLEY. “Single Diode Laser Sensor for Wide-Range H₂O Temperature Measurements”. Dans : *Appl. Spectrosc.* 58.4 (2004), p. 468–473.
- [60] Gary C. BJORKLUND. “Frequency-modulation spectroscopy : a new method for measuring weak absorptions and dispersions”. Dans : *Opt. Lett.* 5.1 (1980), p. 15–17.
- [61] Vicente DURÁN, Peter A. ANDREKSON et Víctor TORRES-COMPANY. “Electro-optic dual-comb interferometry over 40 nm bandwidth”. Dans : *Opt. Lett.* 41.18 (2016), p. 4190–4193.
- [62] Elena L. TELEANU, Vicente DURÁN et Víctor TORRES-COMPANY. “Electro-optic dual-comb interferometer for high-speed vibrometry”. Dans : *Opt. Express* 25.14 (2017), p. 16427–16436.
- [63] Zaijun CHEN, Ming YAN, Theodor W. HÄNSCH et Nathalie PICQUÉ. “A phase-stable dual-comb interferometer”. Dans : *Nature Communications* 9.1 (2018), p. 3035.
- [64] Takuro IDEGUCHI, Antonin POISSON, Guy GUELACHVILI, Nathalie PICQUÉ et Theodor W. HÄNSCH. “Adaptive real-time dual-comb spectroscopy”. Dans : *Nature Communications* 5 (2014), p. 3375.
- [65] Gustavo VILLARES, Andreas HUGI, Stéphane BLASER et Jérôme FAIST. “Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs”. Dans : *Nature Communications* 5 (2014), p. 5192.
- [66] X. SHEN, M. YAN, Q. HAO, K. YANG et H. ZENG. “Adaptive Dual-Comb Spectroscopy With 1200-h Continuous Operation Stability”. Dans : *IEEE Photonics Journal* 10.5 (2018), p. 1–9.
- [67] Myoung-Gyun SUH, Qi-Fan YANG, Ki Youl YANG, Xu YI et Kerry J. VAHALA. “Microresonator soliton dual-comb spectroscopy”. Dans : *Science* 354.6312 (2016), p. 600–603.

- [68] P. MARTIN-MATEOS, M. RUIZ-LLATA, J. POSADA-ROMAN et P. ACEDO. “Dual-Comb Architecture for Fast Spectroscopic Measurements and Spectral Characterization”. Dans : *IEEE Photonics Technology Letters* 27.12 (2015), p. 1309–1312.
- [69] Adam J. FLEISHER, David A. LONG, Zachary D. REED, Joseph T. HODGES et David F. PLUSQUELLIC. “Coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy”. Dans : *Opt. Express* 24.10 (2016), p. 10424–10434.
- [70] Pedro MARTIN-MATEOS, Borja JEREZ, Pedro LARGO-IZQUIERDO et Pablo ACEDO. “Frequency accurate coherent electro-optic dual-comb spectroscopy in real-time”. Dans : *Opt. Express* 26.8 (2018), p. 9700–9713.
- [71] Guy MILLOT, Stéphane PITOIS, Ming YAN, Tatevik HOVHANNISYAN, Abdelkrim BENDAHMANE, Theodor W. HÄNSCH et Nathalie PICQUÉ. “Frequency-agile dual-comb spectroscopy”. Dans : *Nature Photonics* 10 (2016), p. 27.
- [72] D. A. LONG, A. J. FLEISHER, K. O. DOUGLASS, S. E. MAXWELL, K. BIELSKA, J. T. HODGES et D. F. PLUSQUELLIC. “Multiheterodyne spectroscopy with optical frequency combs generated from a continuous-wave laser”. Dans : *Opt. Lett.* 39.9 (2014), p. 2688–2690.
- [73] Philippe GUAY, Jérôme GENEST et Adam J. FLEISHER. “Precision spectroscopy of $H^{13}CN$ using a free-running, all-fiber dual electro-optic frequency comb system”. Dans : *Opt. Lett.* 43.6 (2018), p. 1407–1410.
- [74] Adam J. FLEISHER, David A. LONG et Joseph T. HODGES. “Quantitative modeling of complex molecular response in coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy”. Dans : *Journal of Molecular Spectroscopy* 352 (2018), p. 26–35.
- [75] Lucas DENIEL, Erwan WECKENMANN, Diego Pérez GALACHO, Carlos ALONSO-RAMOS, Frédéric BOEUF, Laurent VIVIEN et Delphine MARRIS-MORINI. “Frequency-tuning dual-comb spectroscopy using silicon Mach-Zehnder modulators”. Dans : *Opt. Express* 28.8 (2020), p. 10888–10898.
- [76] Vicente DURÁN, Santiago TAINTA et Victor TORRES-COMPANY. “Ultrafast electrooptic dual-comb interferometry”. Dans : *Opt. Express* 23.23 (2015), p. 30557–30569.
- [77] Shuai WANG, Xinyu FAN, Bingxin XU et Zuyuan HE. “Dense electro-optic frequency comb generated by two-stage modulation for dual-comb spectroscopy”. Dans : *Opt. Lett.* 42.19 (2017), p. 3984–3987.
- [78] Vicente DURAN, Leo DJEVARHIDJIAN et Hugues Guillet de CHATELLUS. “Bidirectional frequency-shifting loop for dual-comb spectroscopy”. Dans : *Opt. Lett.* 44.15 (2019), p. 3789–3792.
- [79] Xin ZHAO, Guoqing HU, Bofeng ZHAO, Cui LI, Yingling PAN, Ya LIU, Takeshi YASUI et Zheng ZHENG. “Picometer-resolution dual-comb spectroscopy with a free-running fiber laser”. Dans : *Opt. Express* 24.19 (2016), p. 21833–21845.
- [80] M Imrul KAYES, Nurmemet ABDUKERIM, Alexandre REKIK et Martin ROCHETTE. “Free-running mode-locked laser based dual-comb spectroscopy”. Dans : *Opt. Lett.* 43.23 (2018), p. 5809–5812.
- [81] Shuai WANG, Xinyu FAN, Bingxin XU, Bin WANG, Jiangbing DU et Zuyuan HE. “Hybrid dual-comb interferometer with easily established mutual coherence and a very high refresh rate”. Dans : *Opt. Lett.* 43.14 (2018), p. 3441–3444.
- [82] M. Imrul KAYES et Martin ROCHETTE. “Fourier transform spectroscopy by repetition rate sweeping of a single electro-optic frequency comb”. Dans : *Opt. Lett.* 43.5 (2018), p. 967–970.
- [83] David R. CARLSON, Daniel D. HICKSTEIN, Daniel C. COLE, Scott A. DIDDAMS et Scott B. PAPP. “Dual-comb interferometry via repetition rate switching of a single frequency comb”. Dans : *Opt. Lett.* 43.15 (2018), p. 3614–3617.
- [84] Shuai WANG, Xinyu FAN, Bingxin XU et Zuyuan HE. “Fast MHz spectral-resolution dual-comb spectroscopy with electro-optic modulators”. Dans : *Opt. Lett.* 44.1 (2019), p. 65–68.
- [85] I. CODDINGTON, W. C. SWANN et N. R. NEWBURY. “Coherent dual-comb spectroscopy at high signal-to-noise ratio”. Dans : *Phys. Rev. A* 82 (2010), p. 043817.
- [86] Nathan R. NEWBURY, Ian CODDINGTON et William SWANN. “Sensitivity of coherent dual-comb spectroscopy”. Dans : *Opt. Express* 18.8 (2010), p. 7929–7945.
- [87] The HITRAN database : <http://www.cfa.harvard.edu/hitran/>.
- [88] Robert W. BOYD. *Nonlinear Optics, Third Edition*. 3rd. Academic Press, Inc., 2008.
- [89] Friedrich POCKELS. “Ueber den Einfluss elastischer Deformationen, speciell einseitigen Druckes, auf das optische Verhalten krystallinischer Körper”. Dans : *Annalen der Physik* 273.5 (1889), p. 144–172.

- [90] A. KUNDT. “Ueber das optische Verhalten des Quarzes im electrischen Felde”. Dans : *Annalen der Physik* 254.2 (1883), p. 228–233.
- [91] Wilhelm Conrad RÖNTGEN. “Ueber die durch elektrische Kräfte erzeugte Aenderung der Doppelbrechung des Quarzes”. Dans : *Bericht der Oberhessischen Gesellschaft für Natur- und Heilkunde* 22 (1883), p. 49–64.
- [92] John KERR. “XL. A new relation between electricity and light : Dielectric media birefringent”. Dans : *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 50.332 (1875), p. 337–348.
- [93] Stefan ABEL et al. “Large Pockels effect in micro- and nanostructured barium titanate integrated on silicon”. Dans : *Nature Materials* 18.1 (2018), p. 42–47.
- [94] Ludwig ZEHNDER. “Ein neuer Interferenzrefractor”. Dans : *Zeitschrift für Instrumentenkunde* 11 (1891), p. 275–285.
- [95] Ludwig MACH. “Über einer Interferenzrefractor”. Dans : *Zeitschrift für Instrumentenkunde* 12 (1892), p. 89–93.
- [96] W. STEIER. “A push-pull optical amplitude modulator”. Dans : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 3.12 (1967), p. 664–667.
- [97] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic frequency combs”. Dans : *Adv. Opt. Photon.* 12.1 (2020), p. 223–287.
- [98] George B. ARFKEN, Hans J. WEBER et Frank E. HARRIS. *Mathematical Methods for Physicists*. 7^e éd. Academic Press, 2013.
- [99] Atsushi ISHIZAWA, Tadashi NISHIKAWA, Akira MIZUTORI, Hidehiko TAKARA, Hidetoshi NAKANO, Tetsuomi SOGAWA, Atsushi TAKADA et Masafumi KOGA. “Generation of 120-fs laser pulses at 1-GHz repetition rate derived from continuous wave laser diode”. Dans : *Opt. Express* 19.23 (2011), p. 22402–22409.
- [100] Victor TORRES-COMPANY et Andrew M. WEINER. “Optical frequency comb technology for ultra-broadband radio-frequency photonics”. Dans : *Laser & Photonics Reviews* 8.3 (2014), p. 368–393.
- [101] M. FUJIWARA, M. TESHIMA, J. KANI, H. SUZUKI, N. TAKACHIO et K. IWATSUKI. “Optical carrier supply module using flattened optical multicarrier generation based on sinusoidal amplitude and phase hybrid modulation”. Dans : *Journal of Lightwave Technology* 21.11 (2003), p. 2705–2714.
- [102] Y. DOU, H. ZHANG et M. YAO. “Generation of Flat Optical-Frequency Comb Using Cascaded Intensity and Phase Modulators”. Dans : *IEEE Photonics Technology Letters* 24.9 (2012), p. 727–729.
- [103] T. KOBAYASHI, H. YAO, K. AMANO, Y. FUKUSHIMA, A. MORIMOTO et T. SUETA. “Optical pulse compression using high-frequency electrooptic phase modulation”. Dans : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 24.2 (1988), p. 382–387.
- [104] Jeff CHILES et Sasan FATHPOUR. “Mid-infrared integrated waveguide modulators based on silicon-on-lithium-niobate photonics”. Dans : *Optica* 1.5 (2014), p. 350–355.
- [105] Ruoming PENG, Kaveh KHALIJI, Nathan YOUNGBLOOD, Roberto GRASSI, Tony LOW et Mo LI. “Mid-infrared Electro-optic Modulation in Few-Layer Black Phosphorus”. Dans : *Nano Letters* 17.10 (2017), p. 6315–6320.
- [106] Ken KASHIWAGI, Sho OKUBO et Hajime INABA. “High Repetition Rate Visible Frequency Comb Generation From Electro-Optic Modulation in the 1550 nm Region”. Dans : *Conference on Lasers and Electro-Optics*. Optical Society of America, 2019, JW2A.97.
- [107] Gang XU, Vincent PÊCHEUR, Julien FATOME, Mathieu CHAUVET et Bertrand KIBLER. “Optical cavity-less 40-GHz picosecond pulse generator in the visible wavelength range”. Dans : *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*. Optical Society of America, 2019, cd_12_5.
- [108] Andrew J. METCALF, Connor D. FREDRICK, Ryan C. TERRIEN, Scott B. PAPP et Scott A. DIDDAMS. “30 GHz electro-optic frequency comb spanning 300 THz in the near infrared and visible”. Dans : *Opt. Lett.* 44.11 (2019), p. 2673–2676.
- [109] Ewelina OBRZUD, Victor BRASCH, Thibault VOUMARD, Anton STROGANOV, Michael GEISELMANN, François WILDI, Francesco PEPE, Steve LECOMTE et Tobias HERR. “Visible blue-to-red 10 GHz frequency comb via on-chip triple-sum-frequency generation”. Dans : *Opt. Lett.* 44.21 (2019), p. 5290–5293.

- [110] Ming YAN, Pei-Ling LUO, Kana IWAKUNI, Guy MILLOT, Theodor W. HÄNSCH et Nathalie PICQUÉ. “Mid-infrared dual-comb spectroscopy with electro-optic modulators”. Dans : *Light : Science & Applications* 6 (2017), e17076.
- [111] Borja JEREZ, Pedro MARTÍN-MATEOS, Frederik WALLA, Cristina de DIOS et Pablo ACEDO. “Flexible Electro-Optic, Single-Crystal Difference Frequency Generation Architecture for Ultrafast Mid-Infrared Dual-Comb Spectroscopy”. Dans : *ACS Photonics* 5.6 (2018), p. 2348–2353.
- [112] Pei-Ling LUO, Er-Chien HORNG et Yu-Chan GUAN. “Fast molecular fingerprinting with coherent, rapidly tunable dual-comb spectrometer near 3 μm ”. Dans : *Phys. Chem. Chem. Phys.* (2019), p. -.
- [113] V. R. SUPRADEEPA et Andrew M. WEINER. “Bandwidth scaling and spectral flatness enhancement of optical frequency combs from phase-modulated continuous-wave lasers using cascaded four-wave mixing”. Dans : *Opt. Lett.* 37.15 (2012), p. 3066–3068.
- [114] V. R. SUPRADEEPA, Christopher M. LONG, Rui WU, Fahmida FERDOUS, Ehsan HAMIDI, Daniel E. LEAIRD et Andrew M. WEINER. “Comb-based radiofrequency photonic filters with rapid tunability and high selectivity”. Dans : *Nature Photonics* 6.3 (2012), p. 186–194.
- [115] Yang LIU, Andrew J. METCALF, Victor Torres COMPANY, Rui WU, Li FAN, Leo T. VARGHESE, Minghao QI et Andrew M. WEINER. “Bandwidth scaling of a phase-modulated continuous-wave comb through four-wave mixing in a silicon nano-waveguide”. Dans : *Opt. Lett.* 39.22 (2014), p. 6478–6481.
- [116] Franz X. KÄRTNER, Uwe MORGNER, Thomas SCHIBLI, Richard ELL, Hermann A. HAUS, James G. FUJIMOTO et Erich P. IPPEN. “Few-Cycle Pulses Directly from a Laser”. Dans : *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications*. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2004, p. 73–136.
- [117] Jungwon KIM et Youjian SONG. “Ultralow-noise mode-locked fiber lasers and frequency combs : principles, status, and applications”. Dans : *Adv. Opt. Photon.* 8.3 (2016), p. 465–540.
- [118] Shijun XIAO, Leo HOLLBERG, Nathan R. NEWBURY et Scott A. DIDDAMS. “Toward a low-jitter 10 GHz pulsed source with an optical frequency comb generator”. Dans : *Opt. Express* 16.12 (2008), p. 8498–8508.
- [119] A. J. METCALF, F. QUINLAN, T. M. FORTIER, S. A. DIDDAMS et A. M. WEINER. “Broadly tunable, low timing jitter, high repetition rate optoelectronic comb generator”. Dans : *Electronics Letters* 51.20 (2015), p. 1596–1598.
- [120] Zhi TONG, Andreas O. J. WIBERG, Evgeny MYSLIVETS, Bill P. P. KUO, Nikola ALIC et Stojan RADIC. “Spectral linewidth preservation in parametric frequency combs seeded by dual pumps”. Dans : *Opt. Express* 20.16 (2012), p. 17610–17619.
- [121] Katja BEHA, Daniel C. COLE, Pascal DEL’HAYE, Aurélien COILLET, Scott A. DIDDAMS et Scott B. PAPP. “Electronic synthesis of light”. Dans : *Optica* 4.4 (2017), p. 406–411.
- [122] David R. CARLSON, Daniel D. HICKSTEIN, Wei ZHANG, Andrew J. METCALF, Franklyn QUINLAN, Scott A. DIDDAMS et Scott B. PAPP. “Ultrafast electro-optic light with subcycle control”. Dans : *Science* 361.6409 (2018), p. 1358–1363.
- [123] Atsushi ISHIZAWA, Tadashi NISHIKAWA, Akira MIZUTORI, Hidehiko TAKARA, Atsushi TAKADA, Tetsuomi SOGAWA et Masafumi KOGA. “Phase-noise characteristics of a 25-GHz-spaced optical frequency comb based on a phase- and intensity-modulated laser”. Dans : *Opt. Express* 21.24 (2013), p. 29186–29194.
- [124] R. T. WATTS, S. G. MURDOCH et L. P. BARRY. “Phase Noise Reduction of an Optical Frequency Comb Using a Feed-Forward Heterodyne Detection Scheme”. Dans : *IEEE Photonics Journal* 8.1 (2016), p. 1–7.
- [125] Andrew J. METCALF et al. “Stellar spectroscopy in the near-infrared with a laser frequency comb”. Dans : *Optica* 6.2 (2019), p. 233–239.
- [126] Nicolas Bourbeau HÉBERT, Vincent MICHAUD-BELLEAU, Christopher PERRELLA, Gar-Wing TRUONG, James D. ANSTIE, Thomas M. STACE, Jérôme GENEST et Andre N. LUITEN. “Real-Time Dynamic Atomic Spectroscopy Using Electro-Optic Frequency Combs”. Dans : *Phys. Rev. Applied* 6 (2016), p. 044012.
- [127] D. A. LONG, A. J. FLEISHER, D. F. PLUSQUELLIC et J. T. HODGES. “Multiplexed sub-Doppler spectroscopy with an optical frequency comb”. Dans : *Phys. Rev. A* 94 (2016), p. 061801.
- [128] Nathaniel WILSON, Nicolas Bourbeau HÉBERT, Christopher PERRELLA, Philip LIGHT, Jérôme GENEST, Szymon PUSTELNY et André LUITEN. “Simultaneous Observation of Nonlinear Magneto-Optical Rotation in the Temporal and Spectral Domains with an Electro-Optic Frequency Comb”. Dans : *Phys. Rev. Applied* 10 (2018), p. 034012.
- [129] Zhi JIANG, D. E. LEAIRD et A. M. WEINER. “Optical processing based on spectral line-by-line pulse shaping on a phase-modulated CW laser”. Dans : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 42.7 (2006), p. 657–665.

- [130] Z. JIANG, D. E. LEAIRD, C. HUANG, H. MIAO, M. KOUROGI, K. IMAI et A. M. WEINER. “Spectral Line-by-Line Pulse Shaping on an Optical Frequency Comb Generator”. Dans : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 43.12 (2007), p. 1163–1174.
- [131] Zhi JIANG, Chen-Bin HUANG, Daniel E. LEAIRD et Andrew M. WEINER. “Optical arbitrary waveform processing of more than 100 spectral comb lines”. Dans : *Nature Photonics* 1.8 (2007), p. 463–467.
- [132] V. TORRES-COMPANY, A. J. METCALF, D. E. LEAIRD et A. M. WEINER. “Multichannel Radio-Frequency Arbitrary Waveform Generation Based on Multiwavelength Comb Switching and 2-D Line-by-Line Pulse Shaping”. Dans : *IEEE Photonics Technology Letters* 24.11 (2012), p. 891–893.
- [133] Christophe FINOT. “40-GHz photonic waveform generator by linear shaping of four spectral sidebands”. Dans : *Opt. Lett.* 40.7 (2015), p. 1422–1425.
- [134] Julien FATOME, Kamal HAMMANI, Bertrand KIBLER et Christophe FINOT. “80 GHz waveform generated by the optical Fourier synthesis of four spectral sidebands”. Dans : *Laser Physics Letters* 13.1 (2015), p. 015102.
- [135] Andrew J. METCALF, Hyoungh-Jun KIM, Daniel E. LEAIRD, Jose A. JARAMILLO-VILLEGAS, Keith A. MCKENZIE, Vikrant LAL, Amir HOSSEINI, Gloria E. HOEFLER, Fred KISH et Andrew M. WEINER. “Integrated line-by-line optical pulse shaper for high-fidelity and rapidly reconfigurable RF-filtering”. Dans : *Opt. Express* 24.21 (2016), p. 23925–23940.
- [136] Xihua ZOU, Bing LU, Wei PAN, Lianshan YAN, Andreas STÖHR et Jianping YAO. “Photonics for microwave measurements”. Dans : *Laser & Photonics Reviews* 10.5 (2016), p. 711–734.
- [137] Isao MOROHASHI, Ikufumi KATAYAMA, Mayu KIRIGAYA, Yoshihisa IRIMAJIRI, Norihiko SEKINE et Iwao HOSAKO. “High precision frequency measurement of terahertz waves using optical combs from a Mach-Zehnder-modulator-based flat comb generator”. Dans : *Opt. Lett.* 44.3 (2019), p. 487–490.
- [138] Joseph M. LUKENS, Daniel E. LEAIRD et Andrew M. WEINER. “A temporal cloak at telecommunication data rate”. Dans : *Nature* 498.7453 (2013), p. 205–208.
- [139] Joseph M. LUKENS, Andrew J. METCALF, Daniel E. LEAIRD et Andrew M. WEINER. “Temporal cloaking for data suppression and retrieval”. Dans : *Optica* 1.6 (2014), p. 372–375.
- [140] Feng ZHOU, Jianji DONG, Siqi YAN et Ting YANG. “Temporal cloak with large fractional hiding window at telecommunication data rate”. Dans : *Optics Communications* 388 (2017), p. 77–83.
- [141] Lars LUNDBERG, Magnus KARLSSON, Abel LORENCES-RIESGO, Mikael MAZUR, Victor TORRES-COMPANY, Jochen SCHRÖDER et Peter ANDREKSON. “Frequency Comb-Based WDM Transmission Systems Enabling Joint Signal Processing”. Dans : *Applied Sciences* 8.5 (2018), p. 718.
- [142] X. YI et al. “Demonstration of a near-IR line-referenced electro-optical laser frequency comb for precision radial velocity measurements in astronomy”. Dans : *Nature Communications* 7 (2016), p. 10436.
- [143] E. OBRZUD et al. “Broadband near-infrared astronomical spectrometer calibration and on-sky validation with an electro-optic laser frequency comb”. Dans : *Opt. Express* 26.26 (2018), p. 34830–34841.
- [144] Pedro MARTIN-MATEOS, Borja JEREZ et Pablo ACEDO. “Dual electro-optic optical frequency combs for multiheterodyne molecular dispersion spectroscopy”. Dans : *Opt. Express* 23.16 (2015), p. 21149–21158.
- [145] David R. CARLSON, Daniel D. HICKSTEIN, Scott A. DIDDAMS et Scott B. PAPP. “High-speed ultra-broadband dual-comb spectroscopy using electro-optics”. Dans : *Conference on Lasers and Electro-Optics*. Optical Society of America, 2018, SW4L.2.
- [146] T. NISHIKAWA, A. OOHARA, S. UDA, A. ISHIZAWA, K. HITACHI, N. PICQUÉ et T.W. HÄNSCH. “Automatic Interpolation of 25 GHz Mode Spacing in Dual EOM Comb Spectroscopy”. Dans : *Conference on Lasers and Electro-Optics*. Optical Society of America, 2019, SF1I.3.
- [147] Khaoula FDIL, Vincent MICHAUD-BELLEAU, Nicolas Bourbeau HÉBERT, Philippe GUAY, Adam J. FLEISHER, Jean-Daniel DESCHÊNES et Jérôme GENEST. “Dual electro-optic frequency comb spectroscopy using pseudo-random modulation”. Dans : *Opt. Lett.* 44.17 (2019), p. 4415–4418.
- [148] Jiqiang KANG, Pingping FENG, Bowen LI, Chi ZHANG, Xiaoming WEI, Edmund Y. LAM, Kevin K. TSIA et Kenneth K. Y. WONG. “Video-rate centimeter-range optical coherence tomography based on dual optical frequency combs by electro-optic modulators”. Dans : *Opt. Express* 26.19 (2018), p. 24928–24939.
- [149] Pingping FENG, Jiqiang KANG, Sisi TAN, Yu-Xuan REN, Chi ZHANG et Kenneth K. Y. WONG. “Dual-comb spectrally encoded confocal microscopy by electro-optic modulators”. Dans : *Opt. Lett.* 44.11 (2019), p. 2919–2922.

- [150] Pedro MARTÍN-MATEOS, Farid Ullah KHAN et Oscar Elías BONILLA-MANRIQUE. “Direct hyperspectral dual-comb imaging”. Dans : *Optica* 7.3 (2020), p. 199–202.
- [151] Pedro MARTÍN-MATEOS, Dovile CIBIRAITE-LUKENSKIENE, Roberto BARREIRO, Cristina de DIOS, Alvydas LISAUSKAS, Viktor KROZER et Pablo ACEDO. “Hyperspectral terahertz imaging with electro-optic dual combs and a FET-based detector”. Dans : *Scientific Reports* 10.1 (2020).
- [152] Farid Ullah KHAN, Guillermo GUARNIZO et Pedro MARTÍN-MATEOS. “Direct hyperspectral dual-comb gas imaging in the mid-infrared”. Dans : *Opt. Lett.* 45.19 (2020), p. 5335–5338.
- [153] O. P. LAY, S. DUBOVITSKY, R. D. PETERS, J. P. BURGER, S.-W. AHN, W. H. STEIER, H. R. FETTERMAN et Y. CHANG. “MSTAR : a submicrometer absolute metrology system”. Dans : *Opt. Lett.* 28.11 (2003), p. 890–892.
- [154] Julio E. POSADA-ROMAN, Hania ANGELINA, Borja JEREZ, Marta RUIZ-LLATA et Pablo ACEDO. “Laser range finder approach based on a fieldable electro-optic dual optical frequency comb : a proof of concept”. Dans : *Appl. Opt.* 56.22 (2017), p. 6087–6093.
- [155] Hanzhong WU, Tuo ZHAO, Zhiyang WANG, Kai ZHANG, Bin XUE, Jianshuang LI, Mingzhao HE et Xinghua QU. “Long distance measurement up to 1.2 km by electro-optic dual-comb interferometry”. Dans : *Applied Physics Letters* 111.25 (2017), p. 251901.
- [156] Xianyu ZHAO, Xinghua QU, Fumin ZHANG, Yuhang ZHAO et Guoqing TANG. “Absolute distance measurement by multi-heterodyne interferometry using an electro-optic triple comb”. Dans : *Opt. Lett.* 43.4 (2018), p. 807–810.
- [157] B. XUE, Z. WANG, H. ZHANG, K. ZHANG, Y. CHEN, M. HE, B. LIN et H. WU. “Absolute Distance Measurement by Self-Heterodyne EO Comb Interferometry”. Dans : *IEEE Photonics Technology Letters* 30.9 (2018), p. 861–864.
- [158] C. WEIMANN, A. MESSNER, T. BAUMGARTNER, S. WOLF, F. HOELLER, W. FREUDE et C. KOOS. “Fast high-precision distance metrology using a pair of modulator-generated dual-color frequency combs”. Dans : *Opt. Express* 26.26 (2018), p. 34305–34335.
- [159] M. I. KAYES et M. ROCHETTE. “Precise Distance Measurement by a Single Electro-Optic Frequency Comb”. Dans : *IEEE Photonics Technology Letters* 31.10 (2019), p. 775–778.
- [160] Q. LIN et Govind P. AGRAWAL. “Raman response function for silica fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 31.21 (2006), p. 3086–3088.
- [161] A. A. RIEZNIK, A. M. HEIDT, P. G. KONIG, V. A. BETTACHINI et D. F. GROSZ. “Optimum Integration Procedures for Supercontinuum Simulation”. Dans : *IEEE Photonics Journal* 4.2 (2012), p. 552–560.
- [162] T. Brooke BENJAMIN et J. E. FEIR. “The disintegration of wave trains on deep water Part 1. Theory”. Dans : *Journal of Fluid Mechanics* 27.3 (1967), p. 417–430.
- [163] P. J. EVERITT et al. “Observation of a modulational instability in Bose-Einstein condensates”. Dans : *Phys. Rev. A* 96 (2017), p. 041601.
- [164] Stéphane PITOIS et Guy MILLOT. “Experimental observation of a new modulational instability spectral window induced by fourth-order dispersion in a normally dispersive single-mode optical fiber”. Dans : *Opt. Commun.* 226.1 (2003), p. 415–422.
- [165] John D. HARVEY, Rainer LEONHARDT, Stéphane COEN, Gordon K. L. WONG, Jonathan C. KNIGHT, William J. WADSWORTH et Philip St.J. RUSSELL. “Scalar modulation instability in the normal dispersion regime by use of a photonic crystal fiber”. Dans : *Opt. Lett.* 28.22 (2003), p. 2225–2227.
- [166] G. B. WHITHAM. *Linear and Nonlinear Waves*. John Wiley & Sons, Inc., 1999.
- [167] G.A. EL et M.A. HOEFER. “Dispersive shock waves and modulation theory”. Dans : *Physica D : Nonlinear Phenomena* 333 (2016), p. 11–65.
- [168] Stefano TRILLO et Matteo CONFORTI. “Shock Waves”. Dans : *Handbook of Optical Fibers*. Sous la dir. de Gang-Ding PENG. Singapore : Springer Singapore, 2017, p. 1–48.
- [169] Stefano TRILLO et Matteo CONFORTI. “Wave-Breaking and Dispersive Shock Wave Phenomena in Optical Fibers”. Dans : *Shaping Light in Nonlinear Optical Fibers*. John Wiley & Sons, Ltd, 2017. Chap. 11, p. 325–349.
- [170] W. J. TOMLINSON, R. H. STOLEN et A. M. JOHNSON. “Optical wave breaking of pulses in nonlinear optical fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 10.9 (1985), p. 457–459.

- [171] Christophe FINOT, Bertrand KIBLER, Lionel PROVOST et Stefan WABNITZ. “Beneficial impact of wave-breaking for coherent continuum formation in normally dispersive nonlinear fibers”. Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 25.11 (2008), p. 1938–1948.
- [172] D. ANDERSON, M. DESAIX, M. LISAK et M. L. QUIROGA–TEIXEIRO. “Wave breaking in nonlinear-optical fibers”. Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 9.8 (1992), p. 1358–1361.
- [173] G. XU, A. MUSSOT, A. KUDLINSKI, S. TRILLO, F. COPIE et M. CONFORTI. “Shock wave generation triggered by a weak background in optical fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 41.11 (2016), p. 2656–2659.
- [174] Gang XU, Matteo CONFORTI, Alexandre KUDLINSKI, Arnaud MUSSOT et Stefano TRILLO. “Dispersive Dam-Break Flow of a Photon Fluid”. Dans : *Phys. Rev. Lett.* 118 (2017), p. 254101.
- [175] Bastien VARLOT, Stefan WABNITZ, Julien FATOME, Guy MILLOT et Christophe FINOT. “Experimental generation of optical flaticon pulses”. Dans : *Opt. Lett.* 38.19 (2013), p. 3899–3902.
- [176] J. NUÑO, C. FINOT, G. XU, G. MILLOT, M. ERKINTALO et J. FATOME. “Vectorial dispersive shock waves in optical fibers”. Dans : *Communications Physics* 2.1 (2019).
- [177] David CASTELLÓ-LURBE, Pedro ANDRÉS et Enrique SILVESTRE. “Dispersion-to-spectrum mapping in nonlinear fibers based on optical wave-breaking”. Dans : *Opt. Express* 21.23 (2013), p. 28550–28558.
- [178] A. ZEYTUNYAN, G. YESAYAN, L. MOURADIAN, P. KOCKAERT, P. EMPLIT, F. LOURADOUR et A. BARTHÉLÉMY. “Nonlinear-dispersive similariton of passive fiber”. Dans : *Journal of the European Optical Society - Rapid publications* 4.0 (2009).
- [179] Sergii O. IAKUSHEV, Oleksiy V. SHULIKA et Igor A. SUKHOIVANOV. “Passive nonlinear reshaping towards parabolic pulses in the steady-state regime in optical fibers”. Dans : *Optics Communications* 285.21 (2012), p. 4493–4499.
- [180] A. PARRIAUX, M. CONFORTI, A. BENDAHMANE, J. FATOME, C. FINOT, S. TRILLO, N. PICQUÉ et G. MILLOT. “Spectral broadening of picosecond pulses forming dispersive shock waves in optical fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 42.15 (2017), p. 3044–3047.
- [181] William C. SWANN et Sarah L. GILBERT. “Line centers, pressure shift, and pressure broadening of 1530–1560 nm hydrogen cyanide wavelength calibration lines”. Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 22.8 (2005), p. 1749–1756.
- [182] The ExoMol database : <http://exomol.com/>.
- [183] G. J. HARRIS, F. C. LARNER, J. TENNYSON, B. M. KAMINSKY, Ya. V. PAVLENKO et H. R. A. JONES. “A H¹³CN/HN¹³C linelist, model atmospheres and synthetic spectra for carbon stars”. Dans : *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* 390.1 (2008), p. 143–148.
- [184] R. J. BARBER, J. K. STRANGE, C. HILL, O. L. POLYANSKY, G. Ch. MELLAU, S. N. YURCHENKO et Jonathan TENNYSON. “ExoMol line lists – III. An improved hot rotation-vibration line list for HCN and HNC”. Dans : *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* 437.2 (2013), p. 1828–1835.
- [185] D. MARCHENKO, A. H. NEERINCX, J. MANDON, J. ZHANG, M. BOERKAMP, J. MINK, S. M. CRISTESCU, S. te LINTEL HEKKERT et F. J. M. HARREN. “A compact laser-based spectrometer for detection of C₂H₂ in exhaled breath and HCN in vitro”. Dans : *Applied Physics B* 118.2 (2014), p. 275–280.
- [186] A. TSIARAS et al. “Detection Of An Atmosphere Around The Super-Earth 55 Cancri E”. Dans : *The Astrophysical Journal* 820.2 (2016), p. 99.
- [187] Nikita SIMAKOV et al. “High gain holmium-doped fibre amplifiers”. Dans : *Opt. Express* 24.13 (2016), p. 13946–13956.
- [188] R. E. TENCH, C. ROMANO, G. M. WILLIAMS, J. DELAVALUX, T. ROBIN, B. CADIER et A. LAURENT. “Two-Stage Performance of Polarization-Maintaining Holmium-Doped Fiber Amplifiers”. Dans : *Journal of Lightwave Technology* 37.4 (2019), p. 1434–1439.
- [189] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic dual-comb spectrometer in the thulium amplification band for gas sensing applications”. Dans : *Opt. Lett.* 44.17 (2019), p. 4335–4338.
- [190] M. LILLIEHOLM, M. GALILI, L. GRÜNER-NIELSEN et L. K. OXENLØWE. “Detailed characterization of CW- and pulsed-pump four-wave mixing in highly nonlinear fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 41.21 (2016), p. 4887–4890.
- [191] Bill P.-P. KUO et Stojan RADIC. “Highly nonlinear fiber with dispersive characteristic invariant to fabrication fluctuations”. Dans : *Opt. Express* 20.7 (2012), p. 7716–7725.
- [192] Bill P.-P. KUO, Masaaki HIRANO et Stojan RADIC. “Continuous-wave, short-wavelength infrared mixer using dispersion-stabilized highly-nonlinear fiber”. Dans : *Opt. Express* 20.16 (2012), p. 18422–18431.

- [193] Mitra FARAHMAND et Martijn de STERKE. “Parametric amplification in presence of dispersion fluctuations”. Dans : *Opt. Express* 12.1 (2004), p. 136–142.
- [194] Faezeh GHOLAMI, Bill P.-P. KUO, Sanja ZLATANOVIC, Nikola ALIC et Stojan RADIC. “Phase-preserving parametric wavelength conversion to SWIR band in highly nonlinear dispersion stabilized fiber”. Dans : *Opt. Express* 21.9 (2013), p. 11415–11424.
- [195] Bill P.-P. KUO, John M. FINI, Lars GRÜNER-NIELSEN et Stojan RADIC. “Dispersion-stabilized highly-nonlinear fiber for wideband parametric mixer synthesis”. Dans : *Opt. Express* 20.17 (2012), p. 18611–18619.
- [196] Damien BIGOURD, Patrick Beauré D’AUGERÈS, Jérôme DUBERTRAND, Emmanuel HUGONNOT et Arnaud MUSSOT. “Ultra-broadband fiber optical parametric amplifier pumped by chirped pulses”. Dans : *Opt. Lett.* 39.13 (2014), p. 3782–3785.
- [197] Olivier VANVINCQ, Coralie FOURCADE-DUTIN, Arnaud MUSSOT, Emmanuel HUGONNOT et Damien BIGOURD. “Ultrabroadband fiber optical parametric amplifiers pumped by chirped pulses. Part 1 : analytical model”. Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 32.7 (2015), p. 1479–1487.
- [198] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Two-micron all-fibered dual-comb spectrometer based on electro-optic modulators and wavelength conversion”. Dans : *Communications Physics* 1.17 (2018).
- [199] Tiantian LI et al. “Ge-on-Si modulators operating at mid-infrared wavelengths up to 8 μm ”. Dans : *Photon. Res.* 7.8 (2019), p. 828–836.
- [200] Arnaud LEMIÈRE et al. “Mid-infrared two-octave spanning supercontinuum generation in a Ge–Se–Te glass suspended core fiber”. Dans : *Laser Physics Letters* 16.7 (2019), p. 075402.
- [201] Nima NADER et al. “Versatile silicon-waveguide supercontinuum for coherent mid-infrared spectroscopy”. Dans : *APL Photonics* 3.3 (2018), p. 036102.
- [202] Thomas GODIN, Yves COMBES, Raja AHMAD, Martin ROCHETTE, Thibaut SYLVESTRE et John M. DUDLEY. “Far-detuned mid-infrared frequency conversion via normal dispersion modulation instability in chalcogenide microwires”. Dans : *Opt. Lett.* 39.7 (2014), p. 1885–1888.
- [203] Hoang Tuan TONG, Trung Hoa NGUYEN PHUOC, Takenobu SUZUKI et Yasutake OHISHI. “Suppressing chromatic dispersion fluctuation for broadband optical parametric gain in highly nonlinear tellurite microstructured optical fibers”. Dans : *Optical Review* 24.6 (2017), p. 757–764.
- [204] Xiaoping LIU, Bart KUYKEN, Gunther ROELKENS, Roel BAETS, Richard M. OSGOOD et William M. J. GREEN. “Bridging the mid-infrared-to-telecom gap with silicon nanophotonic spectral translation”. Dans : *Nature Photonics* 6.10 (2012), p. 667–671.
- [205] Kamal HAMMANI, Mohamed A. ETTABIB, Adonis BOGRIS, Alexandros KAPSALIS, Dimitris SYVRIDIS, Mickael BRUN, Pierre LABEYE, Sergio NICOLETTI et Periklis PETROPOULOS. “Towards nonlinear conversion from mid- to near-infrared wavelengths using Silicon Germanium waveguides”. Dans : *Opt. Express* 22.8 (2014), p. 9667–9674.
- [206] Hairun GUO, Clemens HERKOMMER, Adrien BILLAT, Davide GRASSANI, Chuankun ZHANG, Martin H. P. PFEIFFER, Wenle WENG, Camille-Sophie BRÈS et Tobias J. KIPPENBERG. “Mid-infrared frequency comb via coherent dispersive wave generation in silicon nitride nanophotonic waveguides”. Dans : *Nature Photonics* 12.6 (2018), p. 330–335.
- [207] Hairun GUO, Wenle WENG, Junqiu LIU, Fan YANG, Wolfgang HÄNSEL, Camille Sophie BRÈS, Luc THÉVENAZ, Ronald HOLZWARH et Tobias J. KIPPENBERG. “Nanophotonic supercontinuum-based mid-infrared dual-comb spectroscopy”. Dans : *Optica* 7.9 (2020), p. 1181–1188.
- [208] O. GAYER, Z. SACKS, E. GALUN et A. ARIE. “Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO_3 ”. Dans : *Applied Physics B* 91.2 (2008), p. 343–348.
- [209] K.-H. KIM, Shamin Ara JAHAN et Ehsanul KABIR. “A review of breath analysis for diagnosis of human health”. Dans : *TrAC Trends in Analytical Chemistry* 33 (2012), p. 1–8.
- [210] J. S. GRAVENSTEIN. *Capnography*. Cambridge New York : Cambridge University Press, 2011.
- [211] Anil S MODAK. “Barriers to overcome for transition of breath tests from research to routine clinical practice”. Dans : *Journal of Breath Research* 5.3 (2011), p. 030202.
- [212] Paula Regina FORTES, João Flávio da SILVEIRA PETRUCI et Ivo Milton RAIMUNDO. *Optical Gas Sensors for Exhaled Breath Analysis*. SPIE Press, 2017.

- [213] Célia LOURENÇO et Claire TURNER. “Breath Analysis in Disease Diagnosis : Methodological Considerations and Applications”. Dans : *Metabolites* 4.2 (2014), p. 465–498.
- [214] Simon J DAVIES, Patrik ŠPANĚL et David SMITH. “Breath analysis of ammonia, volatile organic compounds and deuterated water vapor in chronic kidney disease and during dialysis”. Dans : *Bioanalysis* 6.6 (2014), p. 843–857.
- [215] Reef EINOCH AMOR, Morad K. NAKHLEH, Orna BARASH et Hossam HAICK. “Breath analysis of cancer in the present and the future”. Dans : *European Respiratory Review* 28.152 (2019).
- [216] Michael J. THORPE, David BALSLEV-CLAUSEN, Matthew S. KIRCHNER et Jun YE. “Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy : application to human breath analysis”. Dans : *Opt. Express* 16.4 (2008), p. 2387–2397.
- [217] Ben HENDERSON et al. “Laser spectroscopy for breath analysis : towards clinical implementation”. Dans : *Applied Physics B* 124.8 (2018).
- [218] Yehoshua COLMAN et Baruch KRAUSS. “Microstream Capnography Technology : A New Approach to an Old Problem”. Dans : *Journal of Clinical Monitoring and Computing* 15.6 (1999), p. 403–409.
- [219] Brochure Medtronic Capnostream 20p bedside capnography monitor : <https://www.medtronic.com/content/dam/covidien/library/us/en/product/capnography-monitoring/capnostream-20p-bedside-monitor-brochure.pdf>.
- [220] Iain ROBINSON, Helen L. BUTCHER, Neil A. MACLEOD et Damien WEIDMANN. “Hollow waveguide integrated laser spectrometer for $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ analysis”. Dans : *Opt. Express* 27.24 (2019), p. 35670–35688.
- [221] Tao ZHOU, Tao WU, Qiang WU, Chenwen YE, Rongjing HU, Weidong CHEN et Xingdao HE. “Real-time measurement of CO_2 isotopologue ratios in exhaled breath by a hollow waveguide based mid-infrared gas sensor”. Dans : *Opt. Express* 28.8 (2020), p. 10970–10980.
- [222] Barry J. MARSHALL et J. Robin WARREN. “Unidentified curved bacilli in the stomach of patients with gastritis and peptic ulceration”. Dans : *The Lancet* 323.8390 (1984), p. 1311–1315.
- [223] Barry MARSHALL, éd. *Helicobacter Pioneers : Firsthand Accounts from the Scientists who Discovered Helicobacters 1892 - 1982*. Wiley-Blackwell, 2002.
- [224] David Y. GRAHAM, Doyle J. EVANS, Lesley C. ALPERT, Peter D. KLEIN, Dolores G. EVANS, Antone R. OPEKUN et Thomas W. BOUTTON. “Campylobacter pylori detected noninvasively by the ^{13}C -urea breath test”. Dans : *The Lancet* 329.8543 (1987), p. 1174–1177.
- [225] Ivor SURVEYOR, C. Stewart GOODWIN, Brian P. MULLAN, Elizabeth GEELHOED, J. Robin WARREN, Raymond N. MURRAY, Tom E. WATERS et Christopher R. SANDERSON. “The ^{14}C -urea breath-test for the detection of gastric Campylobacter pylori infection”. Dans : *Medical Journal of Australia* 151.8 (1989), p. 435–439.
- [226] M. HAISCH, P. HERING, W. FUSS et W. FABINSKI. “A Sensitive Isotope Selective Nondispersive Infrared Spectrometer for $^{13}\text{CO}_2$ and $^{12}\text{CO}_2$ Concentration Measurements in Breath Samples”. Dans : *Isotopenpraxis Isotopes in Environmental and Health Studies* 30.2-3 (1994), p. 247–251.
- [227] Self-Study Programme 230, Motor Vehicle Exhaust Emissions : http://www.volkspage.net/technik/ssp/ssp/SSP_230.pdf.
- [228] Timothy E. LIPMAN et Mark A. DELUCCHI. Dans : *Climatic Change* 53.4 (2002), p. 477–516.
- [229] Weidong CHEN, Julien COUSIN, Emmanuelle POULLET, Jean BURIE, Daniel BOUCHER, Xiaoming GAO, Markus W. SIGRIST et Frank K. TITTEL. “Continuous-wave mid-infrared laser sources based on difference frequency generation”. Dans : *Comptes Rendus Physique* 8.10 (2007), p. 1129–1150.
- [230] Peter G. SCHUNEMANN, Kevin T. ZAWILSKI, Leonard A. POMERANZ, Daniel J. CREEDEN et Peter A. BUDNI. “Advances in nonlinear optical crystals for mid-infrared coherent sources”. Dans : *J. Opt. Soc. Am. B* 33.11 (2016), p. D36–D43.
- [231] Abijith S. KOWLIGY, David R. CARLSON, Daniel D. HICKSTEIN, Henry TIMMERS, Alexander J. LIND, Peter G. SCHUNEMANN, Scott B. PAPP et Scott A. DIDDAMS. “Mid-infrared frequency combs at 10 GHz”. Dans : *Opt. Lett.* 45.13 (2020), p. 3677–3680.
- [232] Nathalie PICQUÉ et Theodor W. HÄNSCH. “Frequency comb spectroscopy”. Dans : *Nature Photonics* 13.3 (2019), p. 146–157.
- [233] Miaofeng LI, Lei WANG, Xiang LI, Xi XIAO et Shaohua YU. “Silicon intensity Mach-Zehnder modulator for single lane 100 Gb/s applications”. Dans : *Photon. Res.* 6.2 (2018), p. 109–116.

- [234] H. SEPEHRAN, J. LIN, L. A. RUSCH et W. SHI. “Silicon Photonic IQ Modulators for 400 Gb/s and Beyond”. Dans : *Journal of Lightwave Technology* 37.13 (2019), p. 3078–3086.
- [235] Abijith S. KOWLIGY et al. “Tunable mid-infrared generation via wide-band four-wave mixing in silicon nitride waveguides”. Dans : *Opt. Lett.* 43.17 (2018), p. 4220–4223.
- [236] Manon LAMY, Christophe FINOT, Alexandre PARRIAUX, Cosimo LACAVA, Thalia Dominguez BUCIO, Frederic GARDES, Guy MILLOT, Periklis PETROPOULOS et Kamal HAMMANI. “Si-rich Si nitride waveguides for optical transmissions and toward wavelength conversion around 2 μm ”. Dans : *Appl. Opt.* 58.19 (2019), p. 5165–5169.
- [237] David R. CARLSON, Daniel D. HICKSTEIN et Scott B. PAPP. “Broadband, electro-optic, dual-comb spectrometer for linear and nonlinear measurements”. Dans : *Opt. Express* 28.20 (2020), p. 29148–29154.

Annexes

Annexe A

Exemple de code numérique

Le code suivant, écrit en langage MATLAB, permet de résoudre l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (2.3) selon ce que nous avons vu à la section 2.1.5, c'est à dire en utilisant la technique de transformée de Fourier à pas divisés. Les paramètres de la fibre utilisée ici sont ceux d'une fibre DCF (voir [Tableau 2.1](#)).

```
1 close all;
2 clear all;
3
4 clum=299792458; % Vitesse de la lumière (m/s)
5 hbar=1.05457e-34; % Constante de planck réduite (J.s)
6
7 %Caractéristiques impulsions
8 lambda=1550; % Longueur d'onde en nm
9 w0=2*pi*clum./(lambda*1e-9); % Pulsation associée à lambda
10
11 larg=25; % Largeur à mi-hauteur en ps
12 larg0=larg./(2*log(2)^1/2); % Demi-largeur à 1/e pour gaussienne
13
14 Pinit=50; % Puissance initiale crête
15
16 %Caractéristiques fibre (ici DCF)
17 L=2000; % Longueur de la fibre en m
18
19 lambdaD=1550; % Longueur d'onde des paramètres
20 DatlambdaD=-91; % Dispersion à lambdaD
21 slope=-0.11; % Pente de dispersion (ps/km/nm^2)
22 D=DatlambdaD+slope*(lambda-lambdaD); % Dispersion à lambda
23
24 beta2=-(lambda^2)*D/(2*pi*clum); % Dispersion ordre 2 (ps^2/m)
25 beta3=(10^3)*(slope+2*D/lambda)*((lambda^2)/(2*pi*clum))^2; % Dispersion ordre 3 (ps^3/m)
26 beta4=0; % Dispersion ordre 4 (ps^4/m)
27
28 alphadb=0.55; % Pertes linéaires de la fibre en intensité (dB/km)
29 alpha=log(10)*alphadb*10^-4; % Pertes lineaires en intensite en m^-1
30
31 gamma=4.6*10^-3; % Coefficient Kerr (W-1.m-1)
32
33 Ldisp=larg0.^2/abs(beta2); % Longueur de dispersion en m
34 Ln1=1./(gamma*Pinit); % Longueur non-linéaire en m
35
36 %Paramètres numériques
37 nplot=100; % Nombre d'observation
38 Np=2^16; % Nombre de points (puissance de 2)
39
40 fencalc=1000; % Fenêtre de calcul en ps
41 dt=fencalc/Np; % Pas de temps en ps
42 t=(-Np/2:Np/2-1)*dt; % Vecteur temporel en ps
43
44 dw=2*pi./fencalc; % Pas fréquentiel
45 w=(-Np/2:Np/2-1)*dw; % Vecteur fréquentiel
46
47 dz=0.001*min([Ln1,Ldisp]); % Pas d'espace en m
48 nz=round(L/(nplot*dz)); % Nombre d'itération entre deux plots
49 z=0; % Distance de propagation
50
51 %Paramètres Raman
52 t1 = 12.2e-3; % ps
```

```

53 t2 = 32e-3;           % ps
54 tb = 96e-3;         % ps
55 fr = 0.245;         % fraction de retard Raman
56 fb = 0.21;
57 TT=t-min(t);
58
59 hra=t1*(t1^-2+t2^-2).*exp(-TT/t2).*sin(TT/t1);
60 hrb=((2*tb-TT)/tb^2).*exp(-TT/tb);
61 hr=fb*hrb+(1-fb)*hra;
62
63 hrw=ifftshift(fft(hr));
64 hrw=hrw./real(hrw(Np/2+1));
65
66
67 %Conditions initiales (enveloppe)
68 Punphoton=hbar*w0./(dt*1e-12);           % Puissance d'un photon
69 bruit=sqrt(Punphoton).*(randn(1,Np)+i.*randn(1,Np))./2; % Ajout bruit amplitude et phase
70 env=sqrt(Pinit).*(exp(-0.5*(t/larg0).^2) + bruit; % Pulse initial
71
72 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
73 %%% Résolution NLSE par Split Step Fourier %%%
74 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
75
76 arglin=exp(i*(beta2.*(w.^2)+beta3/3.*(w.^3)+beta4./12.*(w.^4)+i*alpha)*dz/2); % Phase linéaire
77 argnl=i.*gamma.*dz; % Phase non-linéaire
78
79 for n=1:nplot % On boucle sur le nombre de visualisation
80
81     for m=1:nz % Entre deux visualisations
82
83         tfenv=fftshift(fft(fftshift(env)));
84         tfenv=tfenv.*arglin;
85         env=ifftshift(fft(ifftshift(tfenv)));
86
87         ITw=fftshift(fft(fftshift(abs(env).^2))); %Convolution Raman
88         convolution=ifftshift(fft(ifftshift(hrw.*ITw)));
89         Ram=(1-fr).*abs(env).^2 +fr.*convolution;
90         env=env.*exp(argnl.*Ram);
91
92         z=z+dz
93
94     end
95
96 %%% Affichage
97 maxpenv=max(abs(env).^2);
98 maxptfenv=max(abs(tfenv).^2);
99
100 figure(1)
101 subplot(2,1,1);
102 plot(t,abs(env).^2/maxpenv);
103 xlim([-400 400]);
104 ylim([0 1.05]);
105 ylabel('Power (a.u)');
106 xlabel('Time (ps)')
107
108 subplot(2,1,2);
109 plot(w*0.5/pi,10*log10(abs(tfenv).^2/maxptfenv));
110 ylim([-100 5]);
111 xlim([-30 30]);
112 xlabel('Frequency detuning (THz)');
113 ylabel('Intensity (dB)');
114
115 drawnow
116
117 end

```

Annexe B

Publications, brevets et présentations

Publications internationales

- [1] Y. LEVENTOUX, A. PARRIAUX et al. “Highly efficient few-mode spatial beam self-cleaning at 1.5 μm ”. Dans : *Opt. Express* 28.10 (2020), p. 14333–14344.
- [2] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic frequency combs”. Dans : *Adv. Opt. Photon.* 12.1 (2020), p. 223–287.
- [3] Katarzyna KRUPA, Kilian BAUDIN, Alexandre PARRIAUX, Gil FANJOUX et Guy MILLOT. “Intense stimulated Raman scattering in CO₂-filled hollow-core fibers”. Dans : *Opt. Lett.* 44.21 (2019), p. 5318–5321.
- [4] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-optic dual-comb spectrometer in the thulium amplification band for gas sensing applications”. Dans : *Opt. Lett.* 44.17 (2019), p. 4335–4338.
- [5] Manon LAMY, Christophe FINOT, Alexandre PARRIAUX, Cosimo LACAVA, Thalia Dominguez BUCIO, Frederic GARDES, Guy MILLOT, Periklis PETROPOULOS et Kamal HAMMANI. “Si-rich Si nitride waveguides for optical transmissions and toward wavelength conversion around 2 μm ”. Dans : *Appl. Opt.* 58.19 (2019), p. 5165–5169.
- [6] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Two-micron all-fibered dual-comb spectrometer based on electro-optic modulators and wavelength conversion”. Dans : *Communications Physics* 1.1 (2018), p. 17.
- [7] A. PARRIAUX, M. CONFORTI, A. BENDAHMANE, J. FATOME, C. FINOT, S. TRILLO, N. PICQUÉ et G. MILLOT. “Spectral broadening of picosecond pulses forming dispersive shock waves in optical fibers”. Dans : *Optics Letters* 42.15 (2017), p. 3044–3047.

Brevets

- [1] Pierre COLMAN, Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Transposition en fréquence d’un signal optique par mélange de plusieurs ondes”. Brevet FR1900450. 18 janvier 2019.
- [2] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Procédé et dispositif de transfert spectral pour produire un signal optique utile”. Brevet FR1852478. 22 mars 2018.

Conférences orales

- [1] ALEXANDRE PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Electro-Optic Dual-Comb Spectroscopy For Carbon Dioxide Sensing”. Dans : *The 26th Colloquium on High-Resolution Molecular Spectroscopy*. 2019.
- [2] ALEXANDRE PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Frequency Comb Generation at 2 μm with Electro-Optic Modulators for Spectroscopic Applications”. Dans : *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*. Optical Society of America, 2019, ed_4_5.
- [3] Y. LEVENTOUX et al. “Multimode fiber beam self-cleaning in the anomalous dispersion regime”. Dans : *Conference on Lasers and Electro-Optics*. Optical Society of America, 2019, STh4L.2.

- [4] M. LAMY, C. FINOT, C. LACAVA, G. ROELKENS, B. KUYKEN, A. PARRIAUX, G. MILLOT, P. PETROPOULOS et K. HAMMANI. “Si and Si-Rich Silicon-Nitride Waveguides for Optical Transmissions and Nonlinear Applications Around 2 μm ”. Dans : *2019 21st International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON)*. 2019, p. 1–4.
- [5] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et GUY MILLOT. “Nonlinear fiber optics for near and mid infrared dual comb spectroscopy”. Dans : *Recent advances in ultrafast nonlinear fiber optics*. 2018.
- [6] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et GUY MILLOT. “Two micron dual-comb spectroscopy with electro-optic modulators”. Dans : *Emerging Trends in Nonlinear Optics*. 2018.
- [7] Alexandre PARRIAUX, Kamal HAMMANI et GUY MILLOT. “Spectroscopie par peignes de fréquences à deux microns”. Dans : *COLOQ*. 2018.
- [8] ALEXANDRE PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “Dual-Comb Spectroscopy around 2 μm Based on Intensity Modulators and Parametric Conversion”. Dans : *Advanced Photonics 2018 (BGPP, IPR, NP, NOMA, Sensors, Networks, SPPCom, SOF)*. Optical Society of America, 2018, JW2I.6.
- [9] ALEXANDRE PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “2 μm Dual-Comb Generation by Modulation Instability for Spectroscopic Applications”. Dans : *High-Brightness Sources and Light-driven Interactions*. Optical Society of America, 2018, MW4C.4.
- [10] G. MILLOT, A. BENDAHDANE, A. PARRIAUX, S. PITOIS, M. YAN, P. LUO, K. IWAKUNI, T. W. HÄNSCH et N. PICQUÉ. “Electro-Optic Dual-Comb Spectroscopy”. Dans : *21st Annual Symposium of the IEEE Photonics Benelux Chapter*. 2016.

Posters

- [1] KATARZYNA KRUPA, Kilian BAUDIN, Alexandre PARRIAUX, Gil FANJOUX et Guy MILLOT. “Intense Stimulated Raman Scattering in CO₂-filled Hollow Core Fiber”. Dans : *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*. Optical Society of America, 2019, cd_p_47.
- [2] YANN LEVENTOUX et al. “Kerr beam self-cleaning in the telecom band”. Dans : *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*. Optical Society of America, 2019, ef_p_36.
- [3] ALEXANDRE PARRIAUX, Kamal HAMMANI et Guy MILLOT. “2 μm dual-comb generation by modulation instability for spectroscopic applications”. Dans : *Complexity In Nonlinear Photonics*. 2017.
- [4] A. PARRIAUX, M. CONFORTI, A. BENDAHDANE, J. FATOME, C. FINOT, S. TRILLO, N. PICQUÉ et G. MILLOT. “Élargissement spectral d’impulsions par ondes de choc dispersives dans les fibres optiques”. Dans : *Journées Nationales d’Optique Guidée*. 2017.

Génération de peignes de fréquences par modulation électro-optique et applications

Mots clés : peigne de fréquences ; fibre optique ; photonique ; spectroscopie

Résumé :

Les travaux présentés dans cette thèse rapportent le développement d'un spectromètre à deux peignes de fréquences basé sur la modulation électro-optique d'un laser continu, ainsi que son utilisation pour la spectroscopie dans le proche et le moyen infrarouge.

Depuis leur découverte dans les années 1960, les peignes de fréquences ont révolutionné le domaine de la physique, que ce soit en métrologie comme en spectroscopie, ce qui a valu le prix Nobel de physique en 2005. Dans ce dernier domaine d'applications, les spectromètres basés sur des peignes de fréquences demeurent toutefois relativement complexes à développer et à utiliser. Une possibilité pour pallier à ces désavantages est de concevoir le spectromètre à partir de modulateurs électro-optiques, ce qui rend le montage expérimental plus simple d'utilisation, notamment en raison de son caractère tout fibré et de l'absence de système d'asservissement.

Les travaux effectués et rapportés dans cette thèse décrivent dans un premier temps la conception d'un spectromètre à deux peignes de fréquences à base de modulateurs électro-optiques. Nous verrons les avantages et inconvénients de cette technique, notamment pour les applications spectroscopiques, ainsi que les apports des phénomènes non-linéaires dans les fibres optiques pour améliorer le montage expérimental. Dans une seconde partie, nous verrons comment il est possible d'étendre les capacités d'analyses du spectromètre aux alentours de $2\ \mu\text{m}$, soit directement par modulation électro-optique adaptée, soit par conversion de fréquences dans des fibres optiques spécifiques. Enfin, dans une troisième partie, nous montrerons la possibilité d'étendre notre montage expérimental dans le moyen infrarouge grâce à l'utilisation de cristaux non-linéaires. Cette dernière extension dans un domaine spectral très propice à la spectroscopie nous permettra d'aborder des applications très particulières comme l'analyse de l'air expiré par le corps humain.

Frequency comb generation by electro-optic modulation and applications

Keywords: frequency combs ; optical fibers ; photonics ; spectroscopy

Abstract:

The work presented in this thesis relates the development of a dual frequency comb spectrometer based on the electro-optic modulation of a continuous wave laser, and its utilisation for spectroscopic applications in the near- and mid-infrared.

Since their discovery in the 1960s, frequency combs have revolutionised the physics, especially in metrology but also in spectroscopy, which lead to the Nobel Prize in Physics in 2005. In this domain of applications, dual frequency comb spectrometers are known to be complex to develop and use. A possibility to bypass these constraints is to build the spectrometer with electro-optic modulators. This particular architecture makes the experimental setup easy to use, thanks to the all-fibered feature and the lack of enslavement needed.

In this manuscript, the work related describe first the architecture of a dual-comb spectrometer based on electro-optic modulators. We will see the advantages and disadvantages of the technique, especially for spectroscopic applications. We will also see the benefits of nonlinear phenomena in optical fibers to improve the experimental setup. Then, we show how the spectral range of the spectrometer can be extended around $2\ \mu\text{m}$, either by direct electro-optic modulation, or by frequency conversion in specific optical fibers. Finally, we will see the possibility to reach the mid-infrared by using nonlinear crystals. This last spectral extension will allow us to probe a spectral region highly suitable for spectroscopy, and hence to realise specific applications such as exhaled breath analysis.