

NNT : 2016SACLX067

**THESE DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY**

préparée à  
**L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

ÉCOLE DOCTORALE N°572

Ondes et Matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

par

**Guillaume Aoust**

Développements de sources infrarouges et de résonateurs en  
quartz pour la spectroscopie photoacoustique

**Thèse soutenue à Palaiseau, le 13 octobre 2016**

**Composition du jury :**

|                         |   |                    |
|-------------------------|---|--------------------|
| <b>Federico CAPASSO</b> | Professeur, HARVARD SEAS                | Examineur          |
| <b>Mathieu CARRAS</b>   | CEO, MirSense Palaiseau                 | Invité             |
| <b>Isabelle DUFOUR</b>  | Professeure, IMS Bordeaux               | Rapporteur         |
| <b>Claude FABRE</b>     | Professeur, LKB Paris                   | Rapporteur         |
| <b>François HACHE</b>   | Directeur de recherche, LOB Palaiseau   | Président          |
| <b>Michel LEFEBVRE</b>  | Directeur de recherche, ONERA Palaiseau | Directeur de thèse |
| <b>Aurore VICET</b>     | Maître de conférences, IES Montpellier  | Examineur          |



*À ma famille, à mes parents.*





# Remerciements

En cette fin de thèse, je peux enfin prendre le temps d'exprimer toute ma reconnaissance à ceux qui ont largement contribué à sa réussite.

En premier lieu, je tiens à remercier chaleureusement mon directeur de thèse Michel Lefebvre. Merci d'avoir accepté de diriger mon doctorat, tu as toujours été présent et tes conseils avisés m'ont toujours permis d'améliorer la qualité de mon travail. J'ai été très sensible à la confiance que tu m'as accordée dès la début, ainsi qu'à la liberté dont j'ai pu bénéficier tout au long de ces trois années de recherches. Ton intégrité et ta gestion très humaine des équipes sont pour moi une source immense de respect et d'inspiration pour l'avenir.

J'exprime ma profonde gratitude pour mes deux encadrants au quotidien Myriam Raybaut et Raphaël Levy. J'ai été heureux de partager ces trois années avec vous ; votre sympathie, votre ouverture et votre disponibilité constante ont été essentielles pour moi. Merci Myriam d'avoir accepté de construire ce projet de thèse avec moi lors de notre première rencontre. Ton sens pratique, tes conseils et ton savoir m'ont toujours guidé et m'ont permis d'apprendre le fonctionnement du monde de la recherche et de l'optique non linéaire. Je te dois entre autre ma première mise en oscillation d'un OPO, ce n'est pas rien ! Merci Raphaël, j'ai adoré nos discussions diverses et variées, que ce soit au tableau avec les feutres qui marchent à moitié, devant la pompe à vide ou autour de quelques M&Ms. Tu m'as vraiment apporté la remise en question permanente si importante à la recherche scientifique, et tes fortes compétences en électronique ont été essentielles à de nombreuses reprises.

Je tiens également à remercier Isabelle Dufour et Claude Fabre d'avoir accepté de rapporter ma thèse, sans même connaître la taille du manuscrit qui allait leur parvenir ! Vos questions pertinentes et votre analyse détaillée ont clairement témoigné de l'intérêt que vous y avez accordé. Je remercie également les autres membres de mon jury François Hache, Federico Capasso, Mathieu Carras et Aurore Vicet, pour avoir accepté d'évaluer mon travail et pour l'attention que vous y avez portée.

J'en viens maintenant à tous les collègues avec qui j'ai eu la chance travailler à l'ONERA. Merci à tous les ingénieurs de recherche de l'équipe SLM Antoine Godard, Jean-Michel Melkonian, Jean-Baptiste Dherbecourt, Ajmal Mohamed et Guillaume Gorju, ainsi qu'aux techniciens Jean-Pierre Faléni et Thomas Schmid. En plus de votre sympathie et de votre compétence, j'admire votre engagement au quotidien car vous n'hésitez jamais

à apporter votre aide quand on vous sollicite. J'ai beaucoup appris en optique à vos côtés, et je vous en suis très reconnaissant. Merci Antoine, tu as été une vraie référence pour moi en particulier pour toutes les recherches que l'on a mené sur les OPOs. Ta connaissance profonde de l'optique non linéaire m'a beaucoup enrichi, et ta recommandation Bijan à CLEO vaut de l'or elle aussi ! Merci Jean-Michel, ta rigueur et ton sens du détail m'ont beaucoup apporté. Tu as toujours répondu présent pour résoudre les problèmes sur mon banc expérimental, ce qui signifie beaucoup pour moi. Merci JB, j'ai bien ri avec toi ces trois dernières années, que ce soit dans le bus ONERA, à CLEO ou ailleurs. Nos séances de badminton le midi avec Thomas vont me manquer c'est certain ! Merci Thomas pour ta sympathie. Ta maîtrise de la CAO et de la mécanique ont permis à mes idées de devenir réalité. J'ai pris beaucoup de plaisir à fabriquer des camemberts avec toi, qu'ils soient rond ou en étoile ! Merci à tous les ingénieurs de CMT à Châtillon, je me suis vraiment régalé parmi vous ces trois années, en particulier le vendredi matin. Merci Denis Janiaud pour ta bienveillance, je suis heureux d'avoir pu travailler avec toi avant ton départ à la retraite. J'ai tellement appris des résonateurs mécaniques à tes côtés. Merci Béatrice Verlhac, pour ton engagement au quotidien et notre entraide dans les galères informatiques ! Merci aussi à Pierre Lavenus, Jean Guerard et Olivier Le Traon, pour compléter cette équipe si compétente et complémentaire. Je n'oublie pas non plus ceux sans qui je n'aurais pas pu réaliser toutes mes expériences : merci Claude Chartier, Marc Pernice et Vincent Gaudineau.

J'adresse aussi toute ma sympathie aux doctorants, stagiaires et post-doctorants avec qui j'ai pu interagir : Delphine Descloux, Erwan Cadiou, Jessica Pellegrino, Quentin Clément, Thomas Perrier, Adrien Piot, Thomas Saint-Paul, Julie Armougom, Dominique Mammez, Fabien Theron, Alexis Bonnin, Robert George, Malik Nafa, Gautier Vilmart, Olivier Carrivain, Guillaume Walter, Quentin Lagrelle et Hélène Coudert-Alteirac. Merci Delphine pour ta bonne humeur et ta sympathie au quotidien, préparer ce doctorat avec toi a été un vrai plaisir pour moi.

J'en profite également pour remercier les équipes du DOTA qui m'ont toujours bien accueilli et avec qui j'ai eu le plaisir d'échanger, à savoir Paul Chevalier, Patrick Bouchon, Sébastien Héron, Mathilde Makhsiyani, Julien Jaeck et Guillaume Canat. Merci également à l'équipe CMT de Palaiseau, à savoir Yannick Bidet, Nassim Zahzam, Cédric Blanchard, Michael Scherman et Brigitte Attal-Trétout.

Je remercie aussi la hiérarchie scientifique, à savoir Alexandre Bresson pour ta bonne humeur et ton humour et Pierre Touboul pour l'intérêt porté à mes travaux. Je remercie également le professeur Emmanuel Rosencher, pour avoir su allumer la flamme de la recherche appliquée en moi. Je remercie enfin toute l'équipe administrative Florence Baumgartner, Hélène Meler, Sylvie Nicolle et François Charbonnier, pour votre gentillesse au quotidien.

J'exprime toute ma gratitude Federico Capasso pour m'avoir proposé de venir travailler dans son groupe de recherche à Harvard. Ces huit mois passés à Boston m'ont tellement

apporté, tant du point de vue humain que du point de vue scientifique. Merci à toute l'équipe avec qui j'ai pu travailler sur la partie laser à cascade quantique : Tobias Mansuripur, Guy-Maël de Naurois, Camille Vernet et Benedikt Schwarz. Une pensée également pour Mohammadreza Khorasaninejad, Maxence Ernoult, Antonio Ambrosio, Robert Devlin et Élodie Stupichonski, grâce à qui l'ambiance du laboratoire fut si agréable. Merci également à tous ceux qui ont rendu cette expériences inoubliable hors du laboratoire : merci à Olivier Wang, Pierre Baduel, Hadrien Laubie et Romain Blanchard.

Je tiens enfin à remercier les inconditionnels, ceux à qui je dois tant. Merci à tous mes amis qui se reconnaîtront, vos encouragements constants et votre intérêt m'ont beaucoup touché. Merci Isabelle, pour ton soutien infailible. Merci à ma famille, mes frères et ma sœur, mes parents, qui ont toujours respecté et accompagné mes choix, et grâce à qui j'aime ce que je fais aujourd'hui dans ma vie.



# Table des matières

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Introduction générale</b>   | <b>1</b>  |
| <b>I Développement de l'instrumentation QEPAS</b>                        | <b>15</b> |
| <b>1 Modélisation analytique de la technique photoacoustique QEPAS</b>   | <b>17</b> |
| 1.1 Principe et modélisation par blocs du QEPAS . . . . .                | 17        |
| 1.1.1 Présentation de la démarche . . . . .                              | 17        |
| 1.1.1.1 État de l'art . . . . .  | 17        |
| 1.1.1.2 Bilan et démarche . . . . .                                      | 22        |
| 1.1.1.3 Principe de la modélisation par blocs . . . . .                  | 23        |
| 1.1.2 Le bloc de source optique cohérente . . . . .                      | 24        |
| 1.1.3 Le bloc cinétique et absorption-relaxation des gaz . . . . .       | 25        |
| 1.1.3.1 L'absorption . . . . .   | 26        |
| 1.1.3.2 Relaxation vibrationnelle-translationnelle . . . . .             | 29        |
| 1.2 Bloc vibro-acoustique . . . . .                                      | 31        |
| 1.2.1 Le cas du QEPAS non résonant . . . . .                             | 31        |
| 1.2.1.1 Le bloc acoustique . . . . .                                     | 32        |
| 1.2.1.2 Mouvement d'un résonateur dans le vide . . . . .                 | 35        |
| 1.2.2 Bloc vibro-acoustique : QEPAS résonant . . . . .                   | 41        |
| 1.2.2.1 Équation fondamentale du QEPAS . . . . .                         | 42        |
| 1.2.2.2 Solutions résonantes . . . . .                                   | 43        |
| 1.3 Bloc électronique et extension au cas du diapason . . . . .          | 45        |
| 1.3.1 Équivalent électrique des résonateurs . . . . .                    | 45        |
| 1.3.2 Amplification et sensibilité de détection . . . . .                | 47        |
| 1.3.2.1 Signal et bruit après amplification . . . . .                    | 48        |
| 1.3.2.2 Sensibilité de détection . . . . .                               | 49        |
| 1.3.3 Extension au cas particulier du diapason . . . . .                 | 51        |
| 1.4 Validation numérique et expérimentale du modèle analytique . . . . . | 54        |
| 1.4.1 Présentation des résonateurs . . . . .                             | 54        |
| 1.4.2 Étude de l'influence de la position du faisceau . . . . .          | 56        |
| 1.4.3 Étude du bruit . . . . .   | 59        |
| 1.4.4 Expérience photoacoustique typique et ordres de grandeur . . . . . | 60        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 1.4.5    | Influence théorique de tubes acoustiques résonants . . . . .                   | 65         |
| 1.4.5.1  | Simulation numérique du signal photoacoustique . . . . .                       | 65         |
| 1.4.5.2  | Influence de la longueur et du diamètre interne . . . . .                      | 70         |
| 1.4.5.3  | Prise en compte des effets thermiques et visqueux . . . . .                    | 74         |
| 1.4.6    | Conclusion . . . . .   | 76         |
| <b>2</b> | <b>Modélisation du facteur de qualité des résonateurs en flexion et détec-</b> |            |
|          | <b>teur photoacoustique optimal dans l'air</b>                                 | <b>79</b>  |
| 2.1      | Modélisation analytique du facteur de qualité des résonateurs en flexion . .   | 79         |
| 2.1.1    | Problématique de l'amortissement des résonateurs . . . . .                     | 80         |
| 2.1.2    | Le facteur de qualité associé à la viscosité . . . . .                         | 83         |
| 2.1.2.1  | Problématique de l'amortissement visqueux . . . . .                            | 83         |
| 2.1.2.2  | Présentation du modèle de la poutre simple . . . . .                           | 84         |
| 2.1.2.3  | Le cas du diapason . . . . .   | 89         |
| 2.1.3    | Le facteur de qualité lié à la radiation acoustique . . . . .                  | 91         |
| 2.1.3.1  | État de l'art de l'amortissement acoustique . . . . .                          | 92         |
| 2.1.3.2  | L'amortissement acoustique de la poutre simple . . . . .                       | 92         |
| 2.1.3.3  | Le cas du diapason . . . . .   | 97         |
| 2.1.4    | Facteur de qualité total et expressions approchées . . . . .                   | 99         |
| 2.2      | Validation expérimentale de l'amortissement des résonateurs . . . . .          | 102        |
| 2.2.1    | Comparaisons avec la littérature . . . . .                                     | 102        |
| 2.2.2    | Comparaisons expérimentales en laboratoire . . . . .                           | 103        |
| 2.3      | Optimisation de forme et géométrie optimale pour la photoacoustique . . .      | 112        |
| 2.3.1    | Diapason optimal pour le facteur de qualité . . . . .                          | 113        |
| 2.3.1.1  | Optimisation à longueur fixée . . . . .  | 113        |
| 2.3.1.2  | Optimisation à épaisseur fixée . . . . .                                       | 116        |
| 2.3.2    | Diapason optimal pour la photoacoustique en espace libre . . . . .             | 119        |
| 2.3.2.1  | Optimisation à longueur fixée . . . . .  | 119        |
| 2.3.2.2  | Optimisation à épaisseur fixée . . . . .                                       | 121        |
| 2.3.3    | Diapason optimal pour la photoacoustique en milieu résonant . . .              | 121        |
| 2.3.3.1  | Récupération des ondes acoustiques . . . . .                                   | 122        |
| 2.3.3.2  | Application à la photoacoustique . . . . .                                     | 130        |
| 2.3.4    | Etude comparative des différents résonateurs optimisés . . . . .               | 133        |
| 2.3.4.1  | Comparaison des sensibilités en milieu non résonant . . . . .                  | 133        |
| 2.3.4.2  | Comparaison de mises en œuvre . . . . .  | 135        |
| 2.3.4.3  | Conclusion . . . . .   | 136        |
| <b>3</b> | <b>Expériences photoacoustiques QEPAS à l'aide de résonateurs optimisés</b>    | <b>137</b> |
| 3.1      | Détection QEPAS de $CO_2$ avec une diode laser en milieu non résonant . .      | 137        |
| 3.1.1    | Mise en place de l'expérience type . . . . .                                   | 137        |
| 3.1.2    | Les schémas de modulation utilisés . . . . .                                   | 141        |

|         |   |     |
|---------|---|-----|
| 3.1.3   | Les diapasons utilisés pour la comparaison . . . . .              | 145 |
| 3.1.4   | Performances photoacoustiques comparées des diapasons . . . . .   | 147 |
| 3.1.5   | Conclusion . . . . .  | 152 |
| 3.2     | Détection QEPAS avec une diode laser en milieu résonant . . . . . | 153 |
| 3.2.1   | Influence de la géométrie du résonateur acoustique . . . . .      | 153 |
| 3.2.1.1 | Dispositif expérimental . . . . .                                 | 153 |
| 3.2.1.2 | Le diapason Euro 1 . . . . .                                      | 154 |
| 3.2.1.3 | Le diapason C2-A . . . . .  | 157 |
| 3.2.1.4 | Le diapason U1X-B . . . . .                                       | 161 |
| 3.2.2   | Performance optimale des résonateurs optimisés . . . . .          | 161 |
| 3.2.2.1 | Optimisation des conditions de fonctionnement . . . . .           | 162 |
| 3.2.2.2 | Détection de $C_2H_2$ avec la diode EM4 . . . . .                 | 163 |
| 3.2.3   | Projections de performances et conclusion . . . . .               | 166 |

## II Sources optiques infrarouges pour la photoacoustique 169

|       |  |     |
|-------|--|-----|
| 4     | Ingénierie spectrale des QCLs par synthèse pseudo-périodique de rétroactions réparties . . . . . | 171 |
| 4.1   | Présentation du QCL . . . . .  | 171 |
| 4.2   | La problématique du spectre d'émission . . . . .   | 173 |
| 4.3   | Observations spectrales de lasers avec section de phase à rétroactions réparties                 | 177 |
| 4.4   | Caractéristiques spectrales en régime stationnaire . . . . .                                     | 180 |
| 4.4.1 | Détails de la simulation . . . . .   | 181 |
| 4.4.2 | Interprétation qualitative . . . . .   | 182 |
| 4.4.3 | Compétition de modes dans les QCLs . . . . .   | 186 |
| 4.5   | Conclusions et perspectives . . . . .  | 191 |
| 5     | Développement des Oscillateurs Paramétriques Optiques . . . . .                                  | 193 |
| 5.1   | L'utilisation des Oscillateurs Paramétriques Optiques pour la spectrométrie                      | 193 |
| 5.1.1 | Introduction . . . . .   | 193 |
| 5.1.2 | Un outil adapté à la spectrométrie optique . . . . .   | 195 |
| 5.2   | Optimisation théorique de la forme et de la durée de l'impulsion de pompe                        | 199 |
| 5.2.1 | Position du problème en régime transitoire . . . . .   | 199 |
| 5.2.2 | Les équations dynamiques : hypothèses, formulation et résolution .                               | 201 |
| 5.2.3 | Résultats et discussion . . . . .  | 205 |
| 5.2.4 | Impulsion optimale et temps de construction . . . . .  | 208 |
| 5.2.5 | Rendement de conversion . . . . .  | 216 |
| 5.3   | Étude expérimentale de l'influence de la forme et de la durée des impulsions de pompe . . . . .  | 217 |
| 5.3.1 | Le MOFPA : caractérisation et performances . . . . .   | 217 |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 5.3.2    | Dispositif expérimental d'un DRO pompé par un MOFPA . . . . .          | 219        |
| 5.3.3    | Influence de la forme de l'impulsion . . . . .                         | 221        |
| 5.3.4    | Investigation de la forme optimale . . . . .                           | 222        |
| 5.3.5    | Puissance et rendement d'impulsions rectangulaires . . . . .           | 224        |
| 5.3.6    | Conséquences spectrales des impulsions longues . . . . .               | 226        |
| <b>6</b> | <b>Modélisation numérique universelle des OPOs</b>                     | <b>229</b> |
| 6.1      | État de l'art sur la modélisation numérique des OPO . . . . .          | 229        |
| 6.2      | Un nouveau modèle pseudo-modal . . . . .                               | 236        |
| 6.2.1    | Amplification paramétrique pseudo-modale . . . . .                     | 237        |
| 6.2.2    | Principe de la simulation numérique . . . . .                          | 240        |
| 6.2.3    | Simulations en cavité résonantes . . . . .                             | 244        |
| 6.3      | Application au cas du NesCOPO . . . . .                                | 249        |
| 6.3.1    | Présentation détaillée du NesCOPO . . . . .                            | 249        |
| 6.3.2    | Étude de l'impulsion optimale du NesCOPO . . . . .                     | 254        |
| 6.3.3    | Utilisation du nouveau solveur FDTD . . . . .                          | 260        |
| 6.3.4    | Conclusion . . . . .   | 264        |
|          | <br>   |            |
|          | <b>Conclusion et perspectives</b>                                      | <b>267</b> |
|          | <br>   |            |
|          | <b>Bibliographie</b>   | <b>277</b> |
|          | <br>   |            |
|          | <b>Annexes</b>   | <b>295</b> |
| <b>A</b> | <b>Modes propres des poutres en flexion</b>                            | <b>295</b> |
| A.1      | Méthode de résolution générale . . . . .                               | 295        |
| A.2      | La poutre encastree-libre . . . . .                                    | 296        |
| A.3      | La poutre encastree-encastree . . . . .                                | 297        |
| A.4      | La poutre articulée-articulée . . . . .                                | 298        |
| A.5      | Formulaire . . . . .   | 299        |
| <b>B</b> | <b>Formalisme ABCD pour la propagation des faisceaux gaussiens</b>     | <b>301</b> |
| B.1      | Formalisme ABCD pour la propagation paraxiale . . . . .                | 301        |
| B.2      | Modes gaussiens paraxiaux en cavité optique complexe . . . . .         | 304        |
| B.3      | Modes gaussiens paraxiaux en cavité optique réelle et stable . . . . . | 306        |



---

|   |            |
|---|------------|
| <b>C L’outil de simulation numérique OOFELIE</b>              | <b>309</b> |
| C.1 Résonance et facteur de qualité . . . . .                 | 309        |
| C.2 Paramètres équivalents électriques . . . . .              | 310        |
| C.3 Utilisation dans le cadre de la vibroacoustique . . . . . | 310        |
| <b>D Publications et Communications</b>                       | <b>311</b> |



# Introduction générale

L'un des objectifs majeurs du domaine de la détection de gaz consiste à identifier les différentes espèces chimiques présentes dans un mélange donné et à en obtenir les concentrations.

## Les besoins pour la détection de gaz

De manière générale, la composition du mélange est très complexe, et la présence d'espèces chimiques même fortement minoritaires peut entraîner des effets observables importants.

Au niveau environnemental, il est connu que l'atmosphère terrestre est principalement constituée de diazote  $N_2$  (78%), de dioxygène  $O_2$  (21%) et d'Argon  $Ar$  (0,95%). Les 0,05% restants (ou 500 ppm pour parties par million) rassemblent environ 400 ppm de  $CO_2$  et 100 ppm très variables. Il s'avère que la qualité de l'air respiré par les êtres vivants dépend directement de la composition de ces 100 ppm résiduels, et des traces même infimes de certains composés sont en mesure d'impacter leur santé. La surveillance de la composition précise de l'atmosphère est donc d'une importance capitale pour des questions de santé publique ou plus largement pour la préservation de la biodiversité. Elle passe entre autres par la surveillance des rejets anthropiques (automobiles, industries, ...) ainsi que naturels à court terme (éruptions volcaniques, ...) et à long terme (surveillance des gaz à effet de serre, radioactivité,...). De nombreuses normes visent justement à définir des seuils maximaux d'exposition auxquels les populations peuvent être exposées sans courir de risques.

Au niveau sécuritaire, des menaces peuvent également être détectées en décelant des agents chimiques inhabituels. Cela concerne les gaz de combats dans le cadre d'applications militaires, pour lesquels quelques ppb (parties par milliard) peuvent constituer une dose létale pour l'homme. Des menaces peuvent également être anticipées, comme par exemple lors de la détection préventive de résidus d'explosifs dans le cadre de la sécurité civile. Ces contrôles existent aujourd'hui principalement dans les aéroports, mais la menace terroriste grandissante devrait entraîner leur généralisation.

Au niveau industriel, le suivi en temps réel de la composition chimique d'un milieu permet de mesurer l'efficacité des processus, le bon déroulement des étapes de transformation,... Par exemple, le contrôle de la qualité de production des réacteurs de synthèse

industriels peut s'effectuer par l'analyse des gaz qu'ils émettent.

Au niveau biologique et sanitaire, de nombreux processus naturels (respiration des organismes, évapotranspiration,...) peuvent désormais être observés en temps réel. La nature et les quantités de gaz échangés fournissent des informations précieuses sur les processus biologiques internes. Des diagnostics médicaux sont directement réalisables par la détection de marqueurs spécifiques d'un agent pathogène, en analysant simplement les expirations ou les rejets des patients. On peut citer notamment la détection des composés organiques volatils pour la détection précoce de certains cancers, tâche qui incombe parfois à des chiens dont l'odorat est très développé pour ces composés.

De manière générale, on peut donc dire qu'il est possible d'obtenir de l'information sur un système physique en analysant les échanges qu'il réalise avec son environnement direct. C'est dans ce cadre que le développement des moyens métrologiques trouve tout son sens, et va permettre de réaliser des observations non destructives.

Puisque les gaz recherchés sont bien souvent à l'état de trace, toutes les applications que nous venons de passer en revue ne sont possibles qu'à condition de disposer d'instruments de détection ultra-sensibles (C. K. PATEL 2008). La nécessité technique doit également être assortie à d'autres critères d'ordre pratique qui permettraient à la technologie d'être largement diffusée. Ainsi, l'instrument idéal serait économiquement accessible, transportable et donc compact, garantirait une analyse en temps réel et nécessiterait une maintenance réduite. C'est en ce sens que vont de nombreux programmes de recherches publiques, lancés en France par exemple avec PRIMEQUAL ou encore les PNSE. Plus généralement, le nombre important de start-up se lançant sur cet enjeu actuellement dans le monde reflète à lui seul la demande croissante, avec par exemple Owlstone (technique de détection FAIMS), MirSense, Blue Industry and Science, Gasera, Aérovia (techniques de détection photoacoustique), Pranalytica, Pendar technologies,...

## La spectroscopie laser infrarouge

### Des sources cohérentes infrarouges toujours plus performantes

Pour répondre à ce besoin, la spectroscopie laser constitue aujourd'hui une approche crédible pour atteindre de tels critères de performances combinés (FIDDLER et al. 2009). La mécanique quantique prévoit que tout composé (élément physique élémentaire ou molécule) est caractérisé par un ensemble unique de niveaux d'énergie, et qu'il peut effectuer des transitions entre ces niveaux à la suite d'un couplage avec son environnement. La spectroscopie optique repose sur l'étude de ces transitions suite à un couplage avec un rayonnement électromagnétique, et seules certaines longueurs d'onde ou, de manière équivalente, certains quanta d'énergie  $\hbar\omega$  correspondront à l'écart entre deux niveaux d'énergie distincts. Chaque composé présentera donc un spectre unique et caractéristique, qui constitue donc en quelque sorte son identité propre et que l'on peut appeler signature

spectrale. A partir du spectre d'un mélange inconnu, il est donc possible de combiner des signatures élémentaires connues avec des pondérations à ajuster. Ces pondérations révéleront ensuite leurs concentrations relatives. Si le principe semble aisé, encore faut-il disposer d'une source de longueurs d'onde adaptée, et d'une méthode ou d'un moyen de récupérer le spectre une fois l'interaction laser-composé terminée.

L'utilisation de sources électromagnétiques cohérentes permet justement de venir révéler une partie du spectre d'un mélange inconnu et donc de procéder à des identifications d'espèces. Depuis leur démonstration expérimentale en 1960 par Théodore Maiman (MAIMAN 1960), les lasers ont bénéficié d'un essor remarquable et l'enjeu majeur des 60 dernières années a été d'étendre le plus largement possible leur couverture du spectre électromagnétique. Des solutions existent désormais pour des longueurs d'onde de moins de 100 nm jusqu'au ondes millimétriques. On représente sur la figure 1 les solutions disponibles sur le proche et le moyen infrarouge. En revanche, toutes ces sources ne présentent pas ou peu les qualités d'utilisation requises pour des mises en applications réalistes.

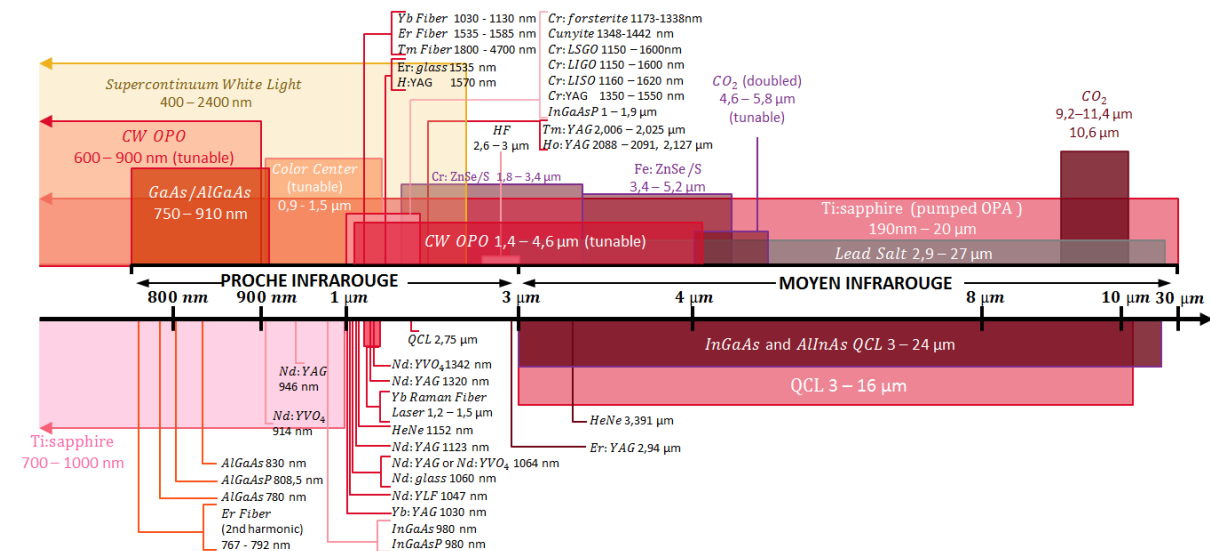


FIGURE 1 – Principales longueurs d'onde disponibles sur des lasers commerciaux en 2016. Données extraites de : The Photonics Spectrum Reference Chart 2015.

Toutes les molécules non homonucléaires (comme  $N_2$ ,  $O_2$ , ...) absorbent efficacement le rayonnement du proche ou du moyen infrarouge, et cette région spectrale est particulièrement adaptée à la spectroscopie optique moléculaire d'absorption. S'étalant de 0,8 à 30 µm (ces deux bornes peuvent légèrement différer suivant les auteurs), elle abrite les raies d'absorption les plus intenses de la majorité des molécules simples (telles que  $H_2O$ ,  $CH_4$ ,  $CO_2$ ,...), c'est à dire les longueurs d'onde les plus susceptibles d'être absorbées. On montre sur la figure 2 quelques exemples de spectres d'absorption de molécules simples. On comprend notamment pourquoi la finesse spectrale des lasers est essentielle lorsque les raies d'absorption de deux molécules se recouvrent, car ils sont capables de résoudre leur structure fine qui n'est jamais identique si la plage de longueurs d'onde sondée est suffisante. Par ailleurs, ce recouvrement possible des spectres met en lumière une autre

caractéristique très importante des lasers : leur accordabilité ou capacité à pouvoir changer de longueur d'onde d'émission tout en restant très fin spectralement. On pourrait imaginer d'utiliser un ensemble de lasers indépendants et combinés pour balayer toute la zone, mais cette solution est en général peu réaliste vis à vis des critères de compacité et de coût requis.

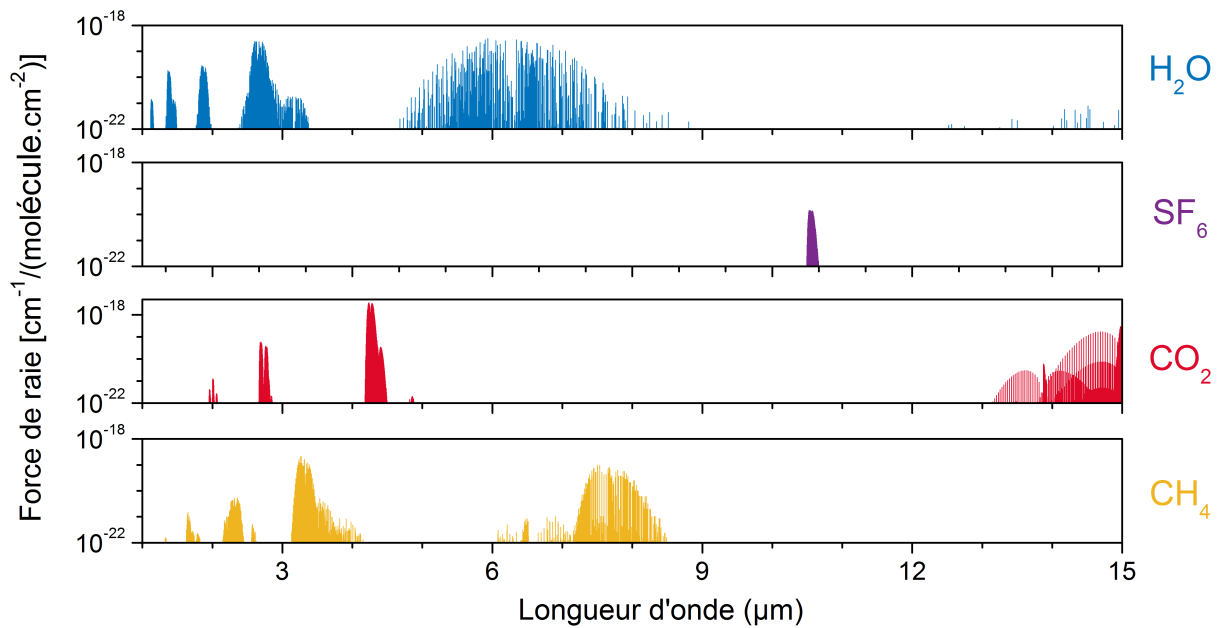


FIGURE 2 – Forces des raies d'absorption spécifiques de quelques molécules, contenues dans la base de donnée HITRAN 2012.

Enfin, le nombre de photons absorbés croît naturellement avec le nombre de photons incidents sur les molécules d'intérêt. Les sources lasers présentant une puissance importante sont privilégiées de manière générale, bien que cette caractéristique soit bien souvent à concilier avec les contraintes de compacité et de prix.

Aujourd'hui, deux sources infrarouges cohérentes principales atteignent un excellent compromis entre finesse spectrale, accordabilité, puissance et compacité. On a d'un côté les lasers à cascades quantiques (ou Quantum Cascade Lasers QCL en anglais), qui sont des lasers à semi conducteurs unipolaires reposant sur des transitions radiatives inter sous-bande. Démontrés pour la première fois en 1994 aux Bells Labs (FAIST et al. 1994), ils arrivent aujourd'hui à maturation et font toujours l'objet d'intenses recherches pour améliorer leurs performances. De l'autre côté, on trouve les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) qui reposent sur des cristaux non-linéaires permettant de convertir un rayonnement cohérent donné (dit "de pompe") en deux rayonnements secondaires. Bien que leur première démonstration soit plus ancienne et remonte à 1965 (GIORDMAINE et MILLER 1965), des avancées régulières dans le domaine des lasers de pompe ainsi que des cristaux non-linéaires en font toujours aujourd'hui l'objet de recherches avancées.

## Une méthode de détection sensible

On distingue en général les méthodes de spectrométrie laser *locale* et *à distance*, car elles ne répondent pas tout à fait au même besoin et font appel à des instruments différents. Dans ce travail de thèse, nous nous limiterons à la détection locale.

La photoacoustique constitue l'une des méthodes de spectroscopie laser les plus sensibles pour la détection locale, et son principe de fonctionnement est décrit sur la figure 3. L'effet photoacoustique désigne la génération d'ondes acoustiques par un objet illuminé par une radiation électromagnétique modulée dans le temps. Ce sont les différentes espèces chimiques contenues dans l'objet sondé qui sont à l'origine de la conversion de l'onde électromagnétique en ondes acoustiques. Pour effectuer une mesure, un appareil de détection utilisant ce principe est donc constitué de deux éléments : une source de radiations électromagnétiques modulable dans le temps, et un détecteur sensible aux ondes acoustiques générées par l'échantillon à analyser.

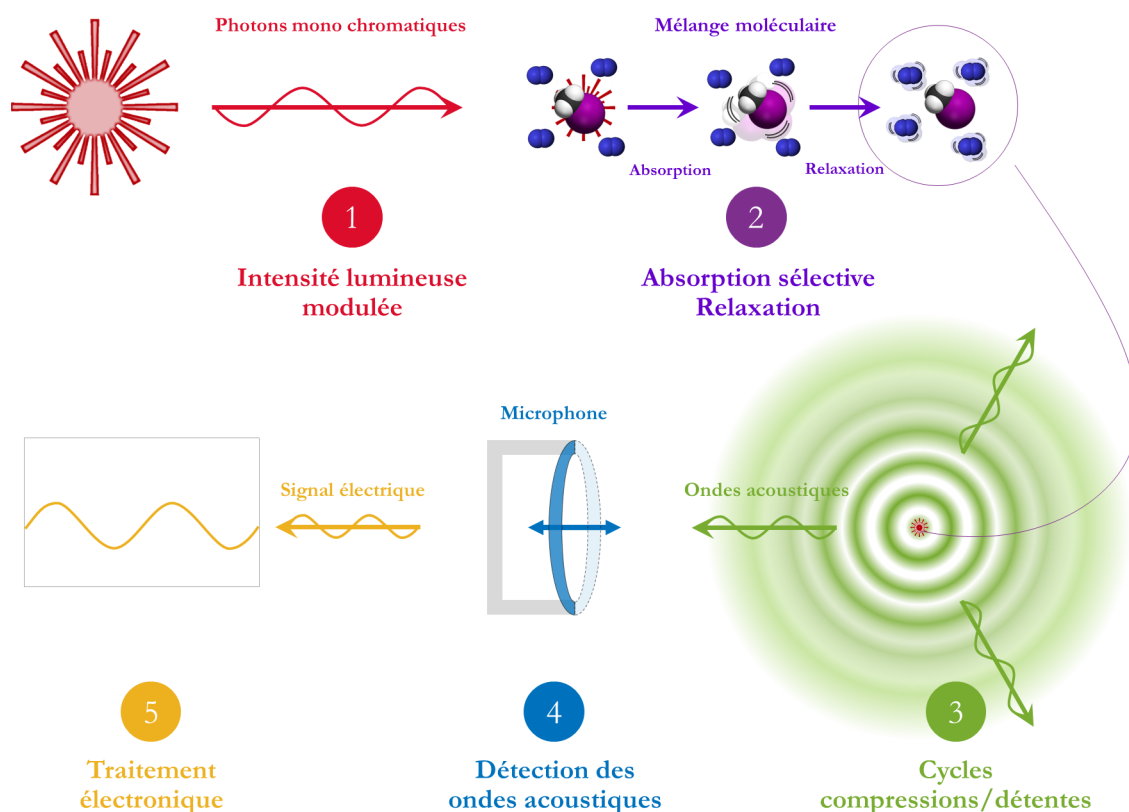


FIGURE 3 – Principe de la détection de gaz par photoacoustique.

L'effet photoacoustique a été découvert en 1880 par Alexander Graham Bell pour les solides (BELL 1880). Il montra que cette capacité de générer une onde sonore dépend du matériau ainsi que des portions du spectre solaire qui l'illumine. Il inventa alors le premier "spectrophone" dont le but est d'identifier un matériau en fonction de sa réponse photoacoustique (BELL 1881). Rapidement étendu à la détection de liquide et de gaz

par Bell, Tyndal et Röntgen (RÖNTGEN 1881 ; TYNDALL 1881), l'invention a ensuite été oubliée pendant près de 60 ans en raison de ses sensibilités trop réduites, conséquence de la faiblesse des sources optiques utilisées (sources incohérentes telles que le soleil) conjointement avec l'inefficacité des détecteurs acoustiques d'alors (les oreilles!). Il est à noter que Bell décrivait pourtant déjà très clairement la possibilité d'améliorer la force du son produit par l'effet photoacoustique en plaçant le composé sondé au sein d'une cavité acoustique résonante (BELL 1881). Lorsque l'on utilise cette résonance acoustique, on parle de photoacoustique résonante.

L'invention du microphone fut la première étape vers un gain significatif en sensibilité. Grâce à lui, Viengerov remit au goût du jour la spectrométrie photoacoustique en 1938 et parvint à mesurer une concentration de 0,2% de  $CO_2$  dans le diazote  $N_2$  à l'aide de rayonnement infrarouge (VIENGEROV 1938). Lors de son expérience, il était principalement limité par l'absorption parasite qui a lieu sur les parois de la cellule contenant le gaz et dans les hublots traversés par le rayonnement. Une première résolution de ce problème fut apportée par Luft en 1943 par l'adoption d'un schéma différentiel avec deux cellules photoacoustiques (une remplie du gaz à analyser et l'autre sans) (LUFT 1943). Par la suite, d'autres méthodes ont été proposées pour éviter ce problème récurrent, comme par exemple l'utilisation de configurations de cellules très spécifiques (MIKLÓS et al. 2001).

L'arrivée du laser constitue la deuxième avancée et certainement la plus significative, et a permis de relancer la technique à partir des années 1970. Utilisé une première fois pour l'effet photoacoustique par Kerr en 1968 (KERR et ATWOOD 1968), le potentiel de la méthode pour la détection de gaz à l'état de trace a été démontré dès 1971 grâce aux travaux de Kreuzer (KREUZER 1971 ; KREUZER et C. K. N. PATEL 1971). Les performances ont ensuite évolué graduellement à mesure que les lasers ou les microphones ont été améliorés. Ces incréments ont surtout porté sur la réduction des problèmes techniques liés à leurs mise en œuvre.



FIGURE 4 – Nouveaux détecteurs utilisés pour la photoacoustique en remplacement des microphones. A gauche, une poutre en porte-à-faux au cœur de la technologie CEPAS, et à droite un diapason horloger en quartz généralement utilisé pour la technologie QEPAS.

La dernière innovation importante peut être attribuée au remplacement du microphone par une nouvelle classe de détecteurs à partir des années 2000 (voir figure 4). De manière indépendante et quasiment simultanément, la spectrométrie photoacoustique que



nous avons décrite jusqu'à maintenant, souvent qualifiée de "classique" ou "conventionnelle", a été déclinée en deux nouvelles variantes : la variante QEPAS (Quartz Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy) (Anatoliy A. KOSTEREV, Y. A. BAKHIRKIN et al. 2002) et la variante CEPAS (Cantilever Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy) (KAUPPINEN et al. 2003).

La variante CEPAS a été proposée par une équipe finlandaise de l'université de Turku (Finlande) en 2003. Il s'agit d'un montage de photoacoustique résonant conventionnel dans lequel le microphone est remplacé par une fine lamelle en silicium vibrant en flexion. Contrairement à la variante QEPAS, cette lamelle en porte-à-faux n'est pas opérée à sa résonance mécanique mais bien en deça. Le mouvement de la lamelle est détecté par interférométrie optique, et la sensibilité optimale s'est révélée environ dix fois meilleure que la méthode conventionnelle (KOSKINEN et al. 2007). La technique a bénéficié de nombreuses améliorations depuis son apparition, si bien qu'elle a atteint aujourd'hui la maturation nécessaire à sa commercialisation (Entreprise Gasera).

La variante QEPAS a été proposée par Kosterev & al. (Anatoliy A. KOSTEREV, Y. A. BAKHIRKIN et al. 2002) en 2002, et consiste à remplacer le microphone détectant les ondes acoustiques par des diapasons en quartz vibrant à leur fréquence de résonance mécanique. Le qualificatif de "résonant" s'applique toujours au QEPAS lorsqu'une résonance acoustique est utilisée, et ne doit pas être confondu cependant avec le fait que le résonateur oscille lui aussi à sa résonance mécanique. Jusqu'à maintenant, la cavité permettant la résonance acoustique n'englobe pas le diapason, mais prend plutôt la forme de tubes placés à proximité (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010). Pour le QEPAS utilisant des diapasons horlogers commerciaux (voir figure 4), les performances typiques reportées jusqu'à maintenant dans la littérature sont du même ordre de grandeur que la photoacoustique conventionnelle. Les principaux intérêts de la technique résident en sa compacité accrue, sa relative immunité au bruit extérieur, ainsi que son coût défiant toute concurrence puisque les diapasons sont produits en grandes quantités par l'industrie horlogère (Anatoliy A. KOSTEREV, Y. A. BAKHIRKIN et al. 2002).

## Bilan et contexte

Quelle que soit la déclinaison retenue pour la photoacoustique, les sources cohérentes infrarouges principales que sont les QCL et les OPO doivent encore être améliorées, notamment en termes d'accordabilité, de compacité et de puissance. Concernant la détection, la technique QEPAS constitue un véritable changement de paradigme. D'une part, l'utilisation de diapasons en quartz peut être vue comme un exemple particulier d'une nouvelle application que serait l'utilisation de résonateurs mécaniques pour détecter une onde de pression. Dans la mesure où ces diapasons sont produits en masse pour l'industrie horlogère, il n'y a aucune raison qu'ils soient les résonateurs mécaniques les mieux adaptés pour l'application photoacoustique a priori. L'absence d'études approfondies sur

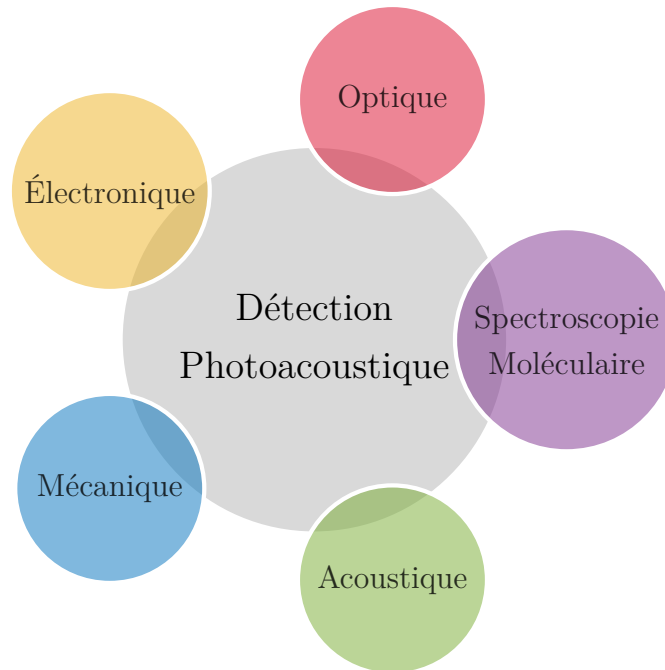


FIGURE 5 – Disciplines impliquées dans la technique QEPAS.

l'optimisation de tels systèmes ne permet pas de connaître les performances ultimes de la technique QEPAS. Une modélisation complète n'est pas aisée dans la mesure où de nombreuses disciplines de la physique s'y retrouvent, comme illustré sur la figure 5.

C'est dans ce contexte que cette étude a été menée. Elle vise à répondre aux différentes problématiques que l'on vient de soulever, et nécessite de considérer les sources cohérentes infrarouges et les résonateurs mécaniques comme les deux briques essentielles et interdépendantes des détecteurs de gaz photoacoustiques QEPAS.

## Plan de la démarche

La démarche adoptée s'articule autour de deux grandes parties. Dans la première partie, un modèle analytique complet est développé, permettant de modéliser quantitativement la performance d'un résonateur mécanique en flexion au sein d'une expérience QEPAS. Ce modèle est ensuite comparé à des expériences effectuées dans notre laboratoire à l'ONERA ainsi qu'à des simulations numériques par éléments finis. Il met notamment en évidence l'importance du facteur de qualité du résonateur, nécessitant une étude plus approfondie sur ce point car peu étudié dans la littérature. La dépendance du facteur de qualité par rapport à la forme du résonateur mécanique en flexion est étudiée en détail dans un deuxième temps. De nombreuses expériences sont menées sur divers résonateurs dans le but de bâtir un cadre analytique fiable pour prédire ce facteur de qualité. Un travail d'optimisation et de fabrication est ensuite conduit dans le but d'exploiter les modèles proposés. Fort de cette optimisation, des résonateurs originaux optimisés sont définis, réa-

lisés et caractérisés, ce qui permet d'apporter des réponses quand à la limite ultime de l'approche QEPAS. Enfin, nous mettons en œuvre les diapasons originaux présentés dans le cadre de mesures de gaz en laboratoire, et leurs performances en termes de sensibilité sont comparées à celles de l'état de l'art. Cette première partie met également en évidence la nécessité de disposer de sources laser continûment accordables, fines spectralement et capables de délivrer d'importantes puissances moyennes.

Dans la deuxième partie, nous nous penchons sur l'amélioration des sources cohérentes infrarouges OPOs et QCLs, en particulier sur les critères définis dans notre première partie comme favorisant les performances du QEPAS. D'une part, nous étudierons la possibilité de fabriquer une nouvelle architecture pour les QCLs permettant d'obtenir un spectre prédéfini à l'avance, constituant ainsi un pas supplémentaire en direction de l'ingénierie spectrale complète des lasers. D'autre part, l'influence de la forme temporelle de l'impulsion de pompe pour les OPOs est étudiée en détail dans le but d'améliorer leur efficacité. En particulier, le formalisme analytique des équations de taux est généralisé et sa résolution permet de cerner la forme temporelle optimale. Nous discutons ensuite de la pertinence d'utiliser des impulsions longues pour l'application photoacoustique, dans la mesure où elles permettent d'obtenir d'importantes puissances moyennes. Un nouvel outil de simulation numérique complet est également présenté, permettant de simuler l'influence des impulsions longues de pompe sur le spectre des OPOs. Ce nouvel outil permet également de valider notre étude analytique de la forme temporelle optimale.

Finalement, nous concluons en replaçant les performances QEPAS obtenues parmi celles des autres méthodes de spectrométrie infrarouge d'absorption usuelles, ainsi qu'en identifiant les futurs axes de développement possibles.



# Liste des symboles

## Constantes universelles

| Symbole      | Description                         | Unités           |
|--------------|-------------------------------------|------------------|
| $\epsilon_0$ | Permittivité diélectrique du vide   | $F \cdot m^{-1}$ |
| $\hbar$      | Constante de Planck réduite         | $J \cdot s$      |
| $\mu_0$      | Perméabilité magnétique du vide     | $H \cdot m^{-1}$ |
| $c$          | Célérité de la lumière dans le vide | $m \cdot s^{-1}$ |
| $k_B$        | Constante de Boltzmann              | $J \cdot K^{-1}$ |
| $Z_0$        | Impédance du vide                   | $\Omega$         |

## Notations usuelles

| Symbole  | Description                                     | Unités                          |
|----------|---|---------------------------------|
| $T$      | Température                                     | K                               |
| $C_P$    | Capacité thermique molaire à pression constante | $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ |
| $C_V$    | Capacité thermique molaire à volume constant    | $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ |
| $\gamma$ | Coefficient de Laplace                          | -                               |
| $\kappa$ | Conductivité thermique                          | $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$   |
| $\alpha$ | Conductivité de dilatation thermique            | $K^{-1}$                        |

## Optique

| Symbole     | Description                                     | Unités           |
|-------------|---|------------------|
| $\lambda_L$ | Longueur d'onde du champ électromagnétique      | m                |
| $w_L$       | Rayon du faisceau laser à $e^{-2}$ en puissance | m                |
| $z_R$       | Longueur de Rayleigh                            | m                |
| $h$         | Altitude suivant l'axe $x$ du faisceau laser    | m                |
| $I_L$       | Intensité du faisceau laser                     | $W \cdot m^{-2}$ |
| $P_L$       | Puissance du laser                              | W                |

## Fluide/Gaz

| Symbole  | Description         | Unités            |
|----------|---------------------|-------------------|
| $P$      | Pression            | Pa                |
| $\mu$    | Viscosité dynamique | $Pa \cdot s$      |
| $\rho_f$ | Masse volumique     | $kg \cdot m^{-3}$ |

|              |   |                  |
|--------------|---|------------------|
| $\tau_{V-T}$ | Temps de relaxation vibrationnel-translationnel | s                |
| $\alpha_G$   | Absorption linéique                             | $\text{cm}^{-1}$ |
| $n_G$        | Indice optique                                  | -                |

## Acoustique

| Symbole     | Description   | Unités                           |
|-------------|---|----------------------------------|
| $v$         | Célérité du son   | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$   |
| $\lambda_v$ | Longueur d'onde acoustique                                | m                                |
| $\omega_m$  | Pulsation propre du m-ième mode acoustique résonant       | $\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$ |
| $Q_m$       | Facteur de qualité de la m-ième résonance acoustique      | -                                |
| $L_{mR}$    | Longueur des tubes d'amplification de la pression         | m                                |
| $d_{mR}$    | Distance entre les tubes d'amplification et le résonateur | m                                |
| $R_I$       | Rayon interne des tubes d'amplification de la pression    | m                                |
| $R_O$       | Rayon externe des tubes d'amplification de la pression    | m                                |

## Mécanique

| Symbole    | Description   | Unités                           |
|------------|---|----------------------------------|
| $\rho_p$   | Masse volumique du résonateur                       | $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  |
| $E$        | Module de Young du résonateur                       | Pa                               |
| $e$        | Largeur vibrante de poutre                          | m                                |
| $l$        | Épaisseur vibrante de poutre                        | m                                |
| $L$        | Longueur de poutre                                  | m                                |
| $g$        | Distance interne entre les branches d'un diapason   | m                                |
| $I$        | Moment quadratique du résonateur suivant l'axe z    | $\text{m}^4$                     |
| $\phi_n$   | Déformée du n-ième mode propre de flexion           | -                                |
| $\omega_n$ | Pulsation propre du n-ième mode propre de flexion   | $\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$ |
| $f_n$      | Fréquence propre du n-ième mode propre de flexion   | Hz                               |
| $\alpha_n$ | Coefficient propre du n-ième mode propre de flexion | -                                |
| $Q$        | Facteur de qualité du résonateur                    | -                                |

## Électronique

| Symbole    | Description                               | Unités                         |
|------------|---|--------------------------------|
| $\Delta f$ | Bande passante de détection               | Hz                             |
| $C_f$      | Capacité électrique de contre-réaction    | F                              |
| $c_p$      | Coefficient de conversion piézoélectrique | $\text{C} \cdot \text{m}^{-1}$ |
| $R_f$      | Résistance électrique de contre-réaction  | $\Omega$                       |

# Liste des abréviations

|         |   |
|---------|---|
| PAS     | PhotoAcoustic Spectroscopy                            |
| CPAS    | Conventionnal PhotoAcoustic Spectroscopy              |
| QEPAS   | Quartz Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy            |
| CEPAS   | Cantilever Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy        |
| VMR     | Volume Mixing Ratio                                   |
| CW      | Continuous Wavelength                                 |
| AM      | Amplitude Modulation                                  |
| WM      | Wavelength Modulation                                 |
| ENBW    | Equivalent Noise BandWidth                            |
| SNR     | Signal to Noise Ratio                                 |
| NEA     | Noise Equivalent Absorption                           |
| NEC     | Noise Equivalent Concentration                        |
| NNEA    | Normalized Noise Equivalent Absorption                |
| DFB     | Distributed FeedBack                                  |
| QCL     | Quantum Cascade Laser                                 |
| SG      | Sampled Gratings                                      |
| GAB     | Gratings with an Aperiodic Basis                      |
| TMM     | Transfer Matric Method                                |
| FTIR    | Fourier Transform InfraRed spectrometer               |
| SHB     | Spatial Hole Burning                                  |
| MCT     | Mercury Cadmium Telluride                             |
| OPO     | Optical Parametric Oscillator                         |
| SROPO   | Singly Resonant Optical Parametric Oscillator         |
| DRO     | Doubly Resonant Optical parametric oscillator         |
| BDRO    | Balanced Doubly Resonant Optical parametric oscilator |
| NesCOPO | Nested Cavity Optical Parametric Oscillators          |
| DFG     | Difference Frequency Generation                       |
| MOFPA   | Master Oscillator Fiber Power Amplifier               |
| GOSS    | Gaussian Optics Simulation Software                   |
| FDTD    | Finite Difference Time Domain                         |
| PML     | Perfectly Matched Layer                               |





## Première partie

# Développement de l'instrumentation QEPAS



# Chapitre 1

## Modélisation analytique de la technique photoacoustique QEPAS

### Objectifs :

Le but de ce premier chapitre est de modéliser analytiquement l'ensemble des étapes de la technique QEPAS, afin d'en obtenir une expression du rapport signal à bruit. Il s'agit également d'estimer chaque grandeur physique intermédiaire, telle que l'amplitude des ondes de pression générées par l'effet photoacoustique ou encore le déplacement des branches du résonateur, qui constituent des paramètres importants pouvant notamment être vérifiés expérimentalement. Des expériences sont menées pour valider la modélisation analytique, et on s'appuiera sur des simulations numériques par éléments finis pour détailler les couplages complexes qui peuvent intervenir.

## 1.1 Principe et modélisation par blocs du QEPAS

### 1.1.1 Présentation de la démarche

#### 1.1.1.1 État de l'art

Lorsque la variante QEPAS de la détection photoacoustique est apparue (Anatoliy A. KOSTEREV, Y. A. BAKHIRKIN et al. 2002), l'idée était d'éviter les contraintes de conception de la photoacoustique conventionnelle. Il s'agissait d'accumuler l'énergie acoustique au cœur d'un élément résonant solide miniature à la place d'une cavité acoustique massive, dans une configuration type illustrée sur la figure 1.1. Avec l'utilisation de diapasons d'horlogerie commerciaux vibrants à une fréquence proche de  $f_0 = 32768$  Hz, Kosterev *et al.* ont montré que la sensibilité du nouvel instrument était tout à fait comparable à celle de la photoacoustique conventionnelle. Utilisant l'absorption équivalente au bruit normalisée (ou Normalized Noise Equivalent Absorption (NNEA) que nous détaillerons par la

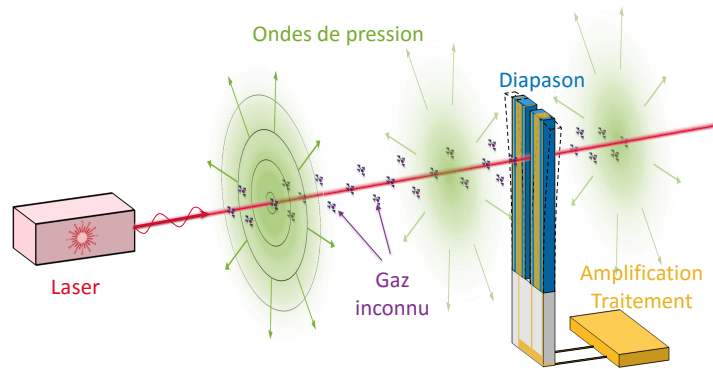


FIGURE 1.1 – Une mise en oeuvre expérimentale classique du QEPAS.

suite) pour la quantifier, ils ont mesuré une première valeur de  $8,8 \cdot 10^{-7} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  sur  $\text{CH}_4$ . Les nouveaux détecteurs QEPAS sont plus compacts, relativement insensibles au bruit extérieur, et extrêmement compétitifs puisqu'un diapason horloger commercial ne coûte pas plus d'un euro. Dans ce premier article fondateur, plusieurs pistes ont été proposées pour améliorer la sensibilité de la mesure, comme l'utilisation d'une modulation du laser à la fréquence moitié  $f_0/2$  pour réduire le bruit généré par des absorptions parasites, l'utilisation de pressions réduites autour du diapason, ou encore l'utilisation de tubes juxtaposés au diapason et traversés par le faisceau laser (voir figure 1.2). Ces derniers jouent le rôle de résonateur acoustique et amplifient ainsi l'amplitude des ondes de pression qui excitent le diapason : on peut alors parler de technique QEPAS résonante. Les auteurs ont rapporté un gain de l'ordre de 7,6 en leur présence, ce qui correspond à un NNEA de  $1,2 \cdot 10^{-7} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  sur  $\text{CH}_4$ . Ni l'influence de la géométrie des tubes, ni la pression totale du gaz, ni d'autres caractéristiques du système comme la géométrie du diapason utilisé ont été étudiés en détail, et il semblait donc clair que des gains additionnels en terme de sensibilité étaient à attendre.

Les premières études expérimentales qui ont suivi ont visé à confirmer la sensibilité du QEPAS par rapport à l'état de l'art de la photoacoustique conventionnelle, ainsi qu'à identifier l'influence de la pression du gaz environnant (A. a. KOSTEREV et al. 2005). Dépendant expérimentalement du gaz sondé malgré sa normalisation théorique, les NNEA du QEPAS optimisé s'étalent alors de  $5,3 \cdot 10^{-7} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  à  $7,2 \cdot 10^{-9} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  suivant les auteurs, comparables aux meilleurs résultats obtenus pour la PA conventionnelle de  $2,2 \cdot 10^{-9} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  pour  $\text{NH}_3$  (WEBBER et al. 2003a). Kosterev *et al.* montrent en particulier que la diminution de la pression entraîne plusieurs effets parfois contradictoires, parmi lesquels figurent une augmentation du facteur de qualité des diapasons, une augmentation de la section efficace d'absorption du gaz ou encore une diminution de la vitesse de transfert vibrationnelle - translationnelle. La technique a dans le même temps été utilisée pour étudier la relaxation V-T des gaz (a. KOSTEREV, Y. BAKHIRKIN et TITTEL 2004 ; a. KOSTEREV, Y. BAKHIRKIN, TITTEL et al. 2004 ; WYSOCKI et al. 2006), permise par l'étude de la phase du signal photoacoustique mesurée à l'aide du diapason.

## Les premières modélisations du phénomène

Les premiers efforts de modélisation sont apparus à partir de 2009. Du point de vue analytique, Petra *et al.* ont proposé un modèle pour étudier le QEPAS non résonant avec un diapason seul, aboutissant à un bon accord relatif avec l'expérience malgré la présence d'un facteur 2 inexplicé sur le signal détecté (PETRA et al. 2009). La modélisation n'est pas aisée dans la mesure où elle fait intervenir de nombreuses disciplines (voir figure 5), c'est pourquoi d'autres auteurs ont préféré utiliser des logiciels de simulation multi-physique par éléments finis. Firebaugh *et al.* ont montré un accord satisfaisant entre les simulations numériques utilisant COMSOL Multiphysics et ses modules d'acoustique, de mécanique et de piézo-électricité (FIREBAUGH et al. 2009). De leur côté, Cao *et al.* ont modélisé numériquement le couplage vibroacoustique du diapason avec le champ acoustique qui l'entoure (CAO et al. 2012), responsable d'un effet d'anti-résonance plusieurs fois observé auparavant au cours d'expériences (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010). L'impact de la température a également été prise en compte dans une étude plus récente (KÖHRING, BÖTTGER et al. 2013).

## La diversification des configurations

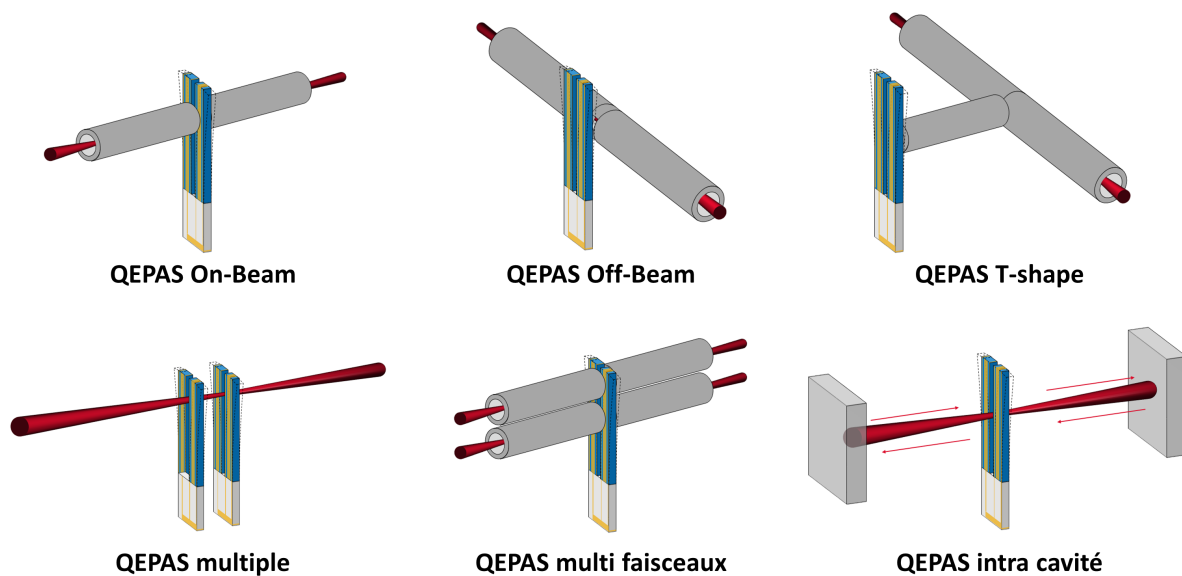


FIGURE 1.2 – Les différentes configurations et leur appellation.

De nouvelles configurations sont également apparues, comme par exemple la configuration "off-beam (OB-QEPAS)" (LIU et al. 2009) ou la configuration "T shape (T-mR QEPAS)" (YI, CHEN, SUN et al. 2012 ; YI, CHEN, VICET et al. 2014). Pour la première, il s'agit de pratiquer une ouverture sur le côté du tube comme illustrée sur la figure 1.2, et de positionner le diapason contre cette ouverture pour profiter de l'onde acoustique qui s'en échappe. La configuration T-shape utilise un tube acoustique latéral additionnel par rapport à une configuration Off-Beam, dans le but de déporter davantage l'ouverture du

résonateur acoustique sur l'extérieur. D'après ses auteurs, le système permet de bénéficier de facteurs d'amplification similaires aux tubes acoustiques en configuration On-Beam, tout en permettant un alignement plus aisé et en évitant le contact entre le laser et le diapason. Une étude analytique de la configuration T-shape y est proposée, mettant en évidence l'importance de son facteur de qualité acoustique dans les performances du détecteur. Une configuration duale mettant en œuvre deux diapasons alignés est également apparue, confirmant le résultat théorique attendu d'une multiplication du rapport signal à bruit par  $\sqrt{2}$  lorsque 2 diapasons sont utilisés (MA et al. 2015). Enfin, une autre configuration utilisant deux jeux de tubes acoustiques superposés a été étudiée par Dong *et al.* (DONG, WU et al. 2014). D'après les auteurs, cette configuration exacerbe le couplage vibroacoustique pour un temps de réponse amélioré et permet de disposer de deux canaux pour effectuer une détection multi-gaz simultanée.

Borri, Patimisco *et al.* ont également confirmé la possibilité d'améliorer la sensibilité de la détection en augmentant "artificiellement" la puissance du laser circulant entre les branches du diapason (S BORRI, P PATIMISCO, I GALLI et al. 2014; Pietro PATIMISCO, Simone BORRI, Iacopo GALLI et al. 2014). Avec cette configuration dite "Intracavity QEPAS (I-QEPAS)" n'utilisant pas de tubes acoustiques, ils ont mis en place une cavité résonante amplifiant la puissance par un facteur 240 au sein de la cavité, et améliorant d'autant le rapport signal à bruit de la technique pour aboutir à un NNEA de  $3,2 \cdot 10^{-10} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$ .

Parallèlement, une nouvelle méthode pour détecter le mouvement du diapason a été proposée (KÖHRING, POHLKÖTTER et al. 2010). Dans cette étude, l'utilisation de diapasons en silicium conduit les auteurs à mettre en place une lecture de son mouvement par interférométrie, puisque la piézoélectricité ne peut plus être utilisée. Même si ce dispositif n'est pas en quartz et ne peut donc être attaché au Quartz Enhanced PAS à proprement parlé, le résultat s'inscrit bien directement dans le cadre de cette nouvelle utilisation de résonateurs mécaniques présentant un fort facteur de qualité. Il permet d'utiliser des matériaux non piézoélectriques afin de construire un système tout optique. Le concept est porté par la possibilité à terme de fabriquer au cours d'un même processus lithographique le capteur complet comprenant le diapason, ses guides d'ondes pour la lecture par interférométrie ainsi que des canaux pour véhiculer le gaz autour du diapason. Ce dernier est ensuite placé dans un espace clos, et des simulations numériques doivent être utilisées pour simuler l'interaction vibroacoustique plus compliquée en présence de conditions aux limites particulières (WILLER et al. 2015).

### QEPAS On-Beam résonant et extensions aux grandes longueurs d'onde

Une investigation expérimentale plus précise de l'influence de la longueur des tubes acoustiques a été menée à partir de 2010, grâce notamment aux travaux de Serebryakov *et al.* (SEREBRYAKOV et al. 2010), puis l'étude a été étendue par Dong *et al.* à l'influence de leur diamètre interne ainsi que de la pression du gaz alentour (DONG, Anatoliy A

KOSTEREV et al. 2010). Ce dernier travail a permis de montrer que le passage d'un diapason commercial seul au même diapason avec ses tubes acoustiques optimisés permet de gagner un facteur 30 environ sur la sensibilité, correspondant dans leur cas à un NNEA de  $3,3 \cdot 10^{-9} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  pour  $C_2H_2$ .

Une mise en œuvre pour de plus grandes longueurs d'onde a ensuite été entreprise avec notamment la détection de  $SF_6$  autour de  $\lambda = 10 \mu\text{m}$ , avec un schéma On-Beam utilisant un diapason commercial et une paire de tubes acoustiques optimisés (SPAGNOLO, Pietro PATIMISCO, Simone BORRI et al. 2013). Pour cette mesure, l'utilisation de la modulation en amplitude est nécessaire du fait de l'absence d'une raie d'absorption du gaz bien définie, et une source de bruit très importante apparaît si le laser vient à toucher les tubes acoustiques ou le diapason même si ce contact ne concerne qu'une fraction de la puissance incidente. Ce contact entre le laser et le détecteur est d'autant plus difficile à éviter que la longueur d'onde utilisée est grande, et la focalisation importante requise pour passer entre les branches du diapason résulte en une divergence augmentée du faisceau, alors difficilement compatible avec une traversée longitudinale des tubes acoustiques sans contact. Spagnolo *et al.* ont proposé de mettre en forme le faisceau laser à l'aide d'une fibre optique, de manière à assurer un profil spatial parfaitement gaussien et permettant une focalisation nette. Les auteurs annoncent un NNEA record de  $2,7 \cdot 10^{-10} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  avec ce montage, et l'utilisation de diapasons horlogers commerciaux pour des longueurs d'onde encore plus importantes semble impossible.

Les travaux les plus récents, publiés majoritairement par le groupe de V. Spagnolo (CNR-IFN UOS Bari, Italie) et en collaboration avec F. K. Tittel (Université de RICE, Texas, USA), visent à améliorer le QEPAS en jouant sur la géométrie même du diapason. Un nouveau diapason dont l'interbranche est agrandi à  $800 \mu\text{m}$  a été proposé pour permettre à la fois un alignement simplifié et une mise en œuvre dans la gamme spectrale TéraHertz (S BORRI, P PATIMISCO, A SAMPAOLO et al. 2013; Pietro PATIMISCO, Simone BORRI, Angelo SAMPAOLO et al. 2014). Sa fréquence de résonance de  $f_0 = 4246 \text{ Hz}$  est suffisamment faible pour permettre une relaxation du gaz efficace. Grâce à ces nouveaux diapasons, ils annoncent alors un NNEA de  $2,7 \cdot 10^{-10} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  sans même l'utilisation de tubes acoustiques. Les nouveaux gains sont alors expliqués par la plus grande efficacité de la zone spectrale, en raison des temps de relaxation V-T plusieurs ordres de grandeur plus rapides. Des variations autour de cette nouvelle forme ont également été étudiées, confirmant selon ses auteurs les performances annoncées dans certains cas (Angelo SAMPAOLO, Pietro PATIMISCO, PENNETTA et al. 2015; SPAGNOLO, Pietro PATIMISCO, PENNETTA et al. 2015), et en les améliorant dans leur travail le plus récent (Angelo SAMPAOLO, Pietro PATIMISCO, GIGLIO et al. 2016). Dans ce dernier article, les auteurs annoncent un NNEA de  $3,75 \cdot 10^{-11} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  sans tube dans le TéraHertz, ce qui constitue un gain de l'ordre de 3000 par rapport à un diapason horloger sans tube. Les tubes acoustiques résonants pour ces nouveaux diapasons, moins contraints dans leur conception en raison des tailles plus importantes, ont récemment permis d'obtenir des

facteurs d'amplification de 120 par rapport au cas sans tube (HENG et al. 2016). Ces gains obtenus grâce à l'utilisation de tubes sont alors attribués à leur forme originale, sensée apporter un couplage acoustique plus efficace. Nous reviendrons en conclusion de cette thèse sur les performances affichées par ce groupe de recherche avec ces nouveaux diapasons.

### 1.1.1.2 Bilan et démarche

L'ensemble des études précédentes ont permis de dégager le grand potentiel de la variante QEPAS. Même si la compacité accrue du système était un argument du QEPAS à ses débuts, il devient aujourd'hui secondaire devant les gains en sensibilité possibles en complexifiant le système. Toutes les améliorations connues dans le cadre de la photoacoustique conventionnelle ont désormais été transposées sur cette variante, à savoir l'utilisation multi-passage du faisceau laser, la résonance acoustique, les détecteurs multiples, les schémas de modulation de l'absorption à la fois en intensité et en longueur d'onde, etc.

La géométrie même du résonateur reste en revanche peu étudiée. Même si des diapasons originaux ont fait leur apparition, leur conception a été davantage guidée par des considérations pratiques que dans le but d'accroître la sensibilité de la technique. Cette absence d'optimisation de la forme des diapasons est avant tout liée au déficit de modélisation de la technique, car les études actuelles forment un champ de recherche avant tout expérimental. Les travaux de Petra *et al.* ont permis de mieux comprendre le comportement du système, mais il n'est pas applicable aux dispositifs les plus sensibles mettant en œuvre des tubes acoustiques. La sous-estimation des performances réelles d'un facteur 2 environ pose aussi la question de la fiabilité du formalisme, et l'absence de modélisation du facteur de qualité rend le modèle inutilisable pour des optimisations. De leur côté, les méthodes de simulation par éléments finis sont des outils précieux pour prédire des interactions compliquées, mais se révèlent rapidement limitées lorsqu'il s'agit d'effectuer des optimisations sur de larges plages de paramètres. Une meilleure compréhension de la physique mise en œuvre semble donc essentielle avant de se lancer dans une opération de recherche d'optimisation de forme.

Notre étude va notamment se concentrer sur les résonateurs mécaniques en flexion. Ils forment l'une des seules catégories de résonateurs mécaniques présentant une fréquence de résonance suffisamment basse pour assurer un temps de relaxation suffisant au gaz sondé. Il est communément admis que la fréquence de fonctionnement optimale de la photoacoustique se situe aux alentours de 10 kHz, même si la plage 1 – 50 kHz reste tout à fait raisonnable. Une fréquence trop haute ne permettra pas de sonder tous les gaz de manière efficace, alors qu'une fréquence trop basse ralentira la mesure et sera plus sensible au bruit ambiant et aux vibrations (comportement en  $1/f$ ).

Dans un premier temps, nous allons présenter le principe de la modélisation par étage que nous avons construite dans le cas d'un résonateur composé d'une simple poutre en



flexion. Cette modélisation permet de traiter les blocs par discipline physique de manière relativement indépendante. On se contentera de modèles simples pour comprendre la physique élémentaire pour les blocs n'ayant pas fait l'objet de contributions au cours de la thèse. Ensuite, un modèle analytique généralisé par rapport à l'approche de Petra *et al.* sera détaillé, avant d'être étendu au cas des diapasons. Une extension originale à l'utilisation de résonance acoustique sera proposée, pour décrire par exemple l'emploi de tubes acoustiques. Nous détaillerons enfin la mise en place d'un modèle de simulation par éléments finis pour étudier la validité de ces modèles, en combinaison avec des résultats expérimentaux.

### 1.1.1.3 Principe de la modélisation par blocs

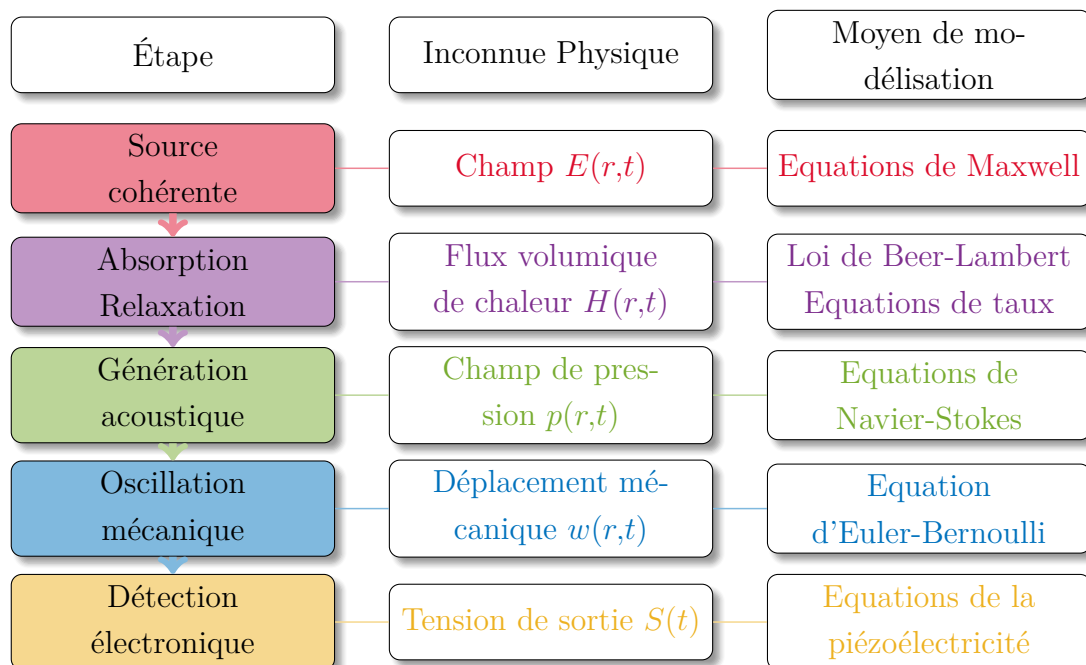


FIGURE 1.3 – Processus de modélisation de la détection photoacoustique. La diversité des phénomènes physiques mis en jeu illustre la difficulté multiphysique du processus de modélisation.

On a représenté sur la figure 1.3 le processus séquentiel de modélisation de la photoacoustique. L'idée de la modélisation est de suivre les processus physiques successifs par des fonctions de transfert. Chaque bloc correspond à une étape particulière de la photoacoustique décrite sur le schéma 3 donné en introduction.

On passera rapidement sur les blocs n'ayant pas fait l'objet de recherches originales, tout en veillant à reprendre un modèle simple disponible pour comprendre la physique sous-jacente. Le premier bloc optique vise à établir le champ électromagnétique  $E(r,t)$  utilisé. La modulation nécessaire pour l'effet photoacoustique ainsi que la longueur d'onde seront contenues dans cette valeur. Le second bloc vise à identifier la densité volumique de chaleur injectée dans le gaz par unité de temps  $H(r,t)$ . Les troisièmes et quatrièmes blocs,

dédiés à la génération acoustique et au mouvement mécanique, sont particuliers dans la mesure où ils ne sont pas toujours indépendants. Un premier modèle supposera que c'est le cas, tandis qu'un second plus original visera à résoudre les deux blocs simultanément. Pour le bloc acoustique, l'objectif est d'obtenir le champ de pression  $p(r,t)$  présent à la surface du résonateur et généré par l'injection de chaleur. L'objectif du bloc mécanique est d'exprimer le déplacement  $w(r,t)$  du résonateur en réponse à l'application de la pression explicitée au bloc acoustique. Enfin, les équations de la piézoélectricité ainsi qu'une modélisation électronique du circuit de détection seront mises en place dans le bloc électronique afin d'exprimer le courant électrique  $i(t)$  généré suite au déplacement du résonateur.

On utilisera la convention de Fourier  $\hat{f}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{-j\omega t} dt$ , si bien que la composante monochromatique d'une onde se propageant vers l'infini s'écrira dans le domaine temporel avec la convention  $\exp j(\omega t - k|r|)$ .

Dans le cadre de la photoacoustique, les grandeurs réelles sont périodiques de période  $T = 2\pi/\omega$ , et on pourra alors substituer aux transformées de Fourier la composante de sa série de Fourier à la fréquence  $\omega$ , si bien que les coefficients de Fourier complexes seront définis par l'équation :

$$C(\omega) = \frac{\omega}{2\pi} \int_{-\pi/\omega}^{\pi/\omega} f(t) \exp -j\omega t dt \quad (1.1)$$

La notation complexe  $\hat{f} \exp j\omega t$  que nous allons utiliser sera donc reliée à ces coefficients de Fourier par un facteur 2, si bien que l'on aura :

$$f(t) = 2\text{Re} [C(\omega) \exp j\omega t] = \text{Re} [\hat{f}(\omega) \exp j\omega t] \quad (1.2)$$

### 1.1.2 Le bloc de source optique cohérente

Source  
cohérente

Le premier bloc représente la source lumineuse utilisée pour exciter le gaz. On supposera qu'il s'agit de lumière cohérente, se propageant le long de l'axe  $z$  à une altitude  $x = h$  et centrée par rapport à l'axe  $y$ . On notera par la suite  $I_L(\mathbf{r},t) = \frac{c\epsilon_0}{2} n_G |E(\mathbf{r},t)|^2$  l'intensité associée au champ électrique  $E(r,t)$  supposé de longueur d'onde notée  $\lambda_L$ ,  $\mathbf{r}$  désignant le point  $\mathbf{r} = (x, y, z)$ ,  $n_G$  l'indice optique du gaz traversé,  $c$  la célérité de la lumière dans le vide et  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide. Nous étudierons en détail dans le chapitre 5 de cette thèse l'obtention du champ électrique dans le cas des oscillateurs paramétriques optiques.

Un schéma du modèle retenu pour le champ électrique est montré sur la figure 1.4. Nous décrirons la distribution spatiale dans le plan transverse à la propagation par un profil gaussien normalisé présentant une symétrie de révolution autour de l'axe  $z$ , et dont l'expression est obtenue à l'aide de l'annexe B :

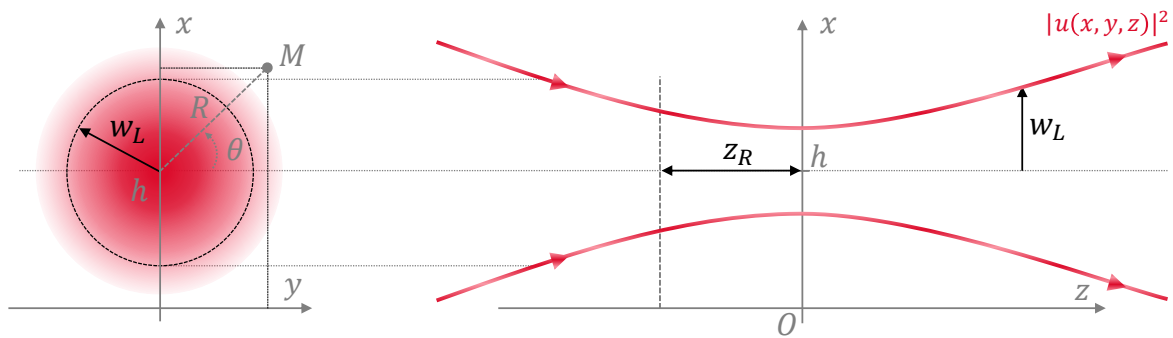


FIGURE 1.4 – Modèle retenu pour le champ électrique se propageant dans un gaz.

$$|u(\mathbf{r})| = \sqrt{\frac{2}{\pi w_L(z)^2}} \exp\left(-\frac{(x-h)^2 + y^2}{w_L(z)^2}\right) = \sqrt{\frac{2}{\pi w_L(z)^2}} \exp\left(-\frac{R^2}{w_L(z)^2}\right) \quad (1.3)$$

On utilisera parfois des coordonnées cylindriques tirant parti de la symétrie de révolution. On notera alors  $R = \sqrt{(x-h)^2 + y^2}$  la distance à l'axe du faisceau. Dans notre description,  $w_L(z)$  représente donc le rayon du faisceau pris à  $e^{-2}$  en puissance et dépend de l'abscisse  $z$ . On suppose que le faisceau est focalisé à l'origine du repère, sa taille évolue alors comme :

$$w_L(z) = w_L(0) \sqrt{1 - z^2/z_R^2} \quad (1.4)$$

Dans cette équation,  $z_R = \pi w_L(0)^2/\lambda_L$  est la longueur de Rayleigh et caractérise la divergence du faisceau. Le profil d'intensité  $I_L$  est alors relié à la puissance du laser  $P_L$  par la relation suivante :

$$I_L(R, z, t) = P_L(t) |u(R, z)|^2 \quad (1.5)$$

Ayant explicité la grandeur maîtresse  $E(r, t)$  de ce premier bloc source, on peut donc passer au bloc suivant d'absorption-relaxation comme indiqué sur la figure 1.3.

### 1.1.3 Le bloc cinétique et absorption-relaxation des gaz

Absorption  
Relaxation

Nous allons donner un modèle simple pour comprendre le phénomène d'absorption relaxation. L'objectif de ce bloc est d'identifier la fonction  $H(\mathbf{r}, t)$ , qui représente la densité de chaleur déposée par unité de temps dans le gaz. Elle s'exprime en  $\text{N.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  ou en  $\text{J.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$ .

On suppose que le milieu à sonder est gazeux et contient une concentration notée  $N$  de molécules à identifier parmi  $N_{tot}$  molécules au total. On exprimera toutes les concentrations en molécules.cm<sup>-3</sup>. Le gaz est supposé à la température  $T$  et  $P$  sera sa pression totale. On notera  $\rho_f$  sa densité,  $v$  la célérité du son (dépendant de  $T$ ) et  $\gamma = C_P/C_V$  son coefficient adiabatique (rapport entre ses capacités thermiques à pression constante  $C_P$  et volume constant  $C_V$ ). Pour l'air, on mesure dans des conditions normales de température et de pression  $\gamma = 1,40$ .

### 1.1.3.1 L'absorption

#### La loi de Beer-Lambert

L'étude de l'absorption de la source optique cohérente par le gaz appartient au domaine de la spectroscopie. Au niveau moléculaire, il s'agit de calculer des probabilités d'absorption à l'aide des sections efficaces d'absorption notées  $\sigma$  s'exprimant en cm<sup>2</sup>.molécule<sup>-1</sup>. La loi de Beer-Lambert n'est que la conséquence déterministe de cette absorption probabiliste lorsque le flux de photons est important, c'est-à-dire l'expression de la loi des grands nombres.

Il existe donc un bruit quantique (ou shot noise) intrinsèque qui constitue la limite ultime de résolution des techniques spectroscopiques d'absorption laser. Réduire l'incertitude par un effet de moyenne temporelle permettra bien d'abaisser la sensibilité, mais la quantité minimale mesurable en un temps donné sera inévitablement limitée par ces fluctuations. Ce bruit dépend de la technique utilisée, et constituera donc la limite basse qu'elle pourra atteindre.

La loi de Beer-Lambert dans la limite de la loi des grands nombres peut s'écrire à la suite de la propagation du faisceau cohérent d'une abscisse  $z_1$  à une abscisse  $z_2$  au sein de notre gaz :

$$I_L(R, z_2, t) = I_L(R, z_1, t) e^{-\alpha_G(\lambda_L)[z_2 - z_1]} \quad (1.6)$$

Le coefficient le plus couramment utilisé est l'absorption linéique  $\alpha_G = \sigma N$  (en cm<sup>-1</sup>). Ses valeurs peuvent être retrouvées grâce à des bases de données spectroscopique telles que HITRAN en fonction de la longueur d'onde, de la pression, de la température, .... On parle aussi parfois d'épaisseur optique pour désigner le coefficient  $\alpha_G(\lambda_L)[z_2 - z_1]$ . L'allure typique de l'absorption linéique d'une molécule est illustrée sur la figure 1.5.

On peut écrire les relations suivantes pour un mélange de molécules indicé par  $i$  :

—  $\sigma N = \sum_i \left[ N_i \sum_j \sigma_{ij}(k_L, P, T) \right]$  est l'absorption linéique totale généralisée au cas où plusieurs espèces chimiques absorbent le rayonnement, et fait intervenir pour la molécule n°i une somme sur ses  $j$  raies d'absorption spécifique.  $k_L$  est le vecteur d'onde du rayonnement électromagnétique relié à la longueur d'onde par la relation  $k_L = 1/\lambda_L$ ,  $P$  la pression totale du milieu et  $T$  sa température.  $N$  s'exprime en

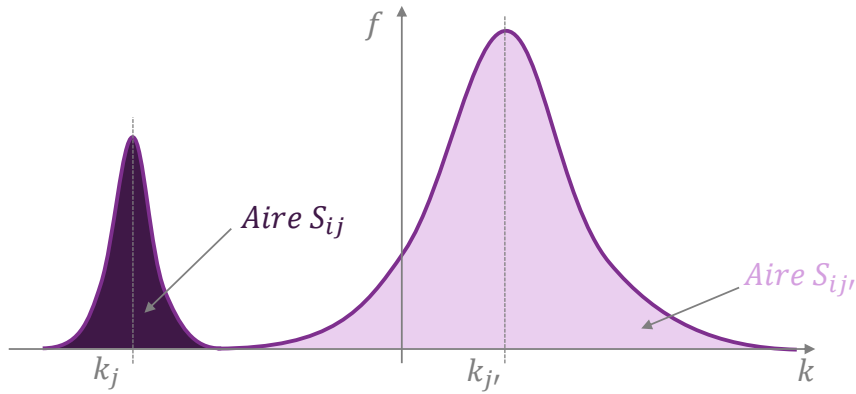


FIGURE 1.5 – Allure typique des raies d'absorption d'une molécule  $i$  dans un gaz.

molécules. $\text{cm}^{-3}$  et les  $\sigma_{ij}$  s'expriment en  $\text{cm}^2 \cdot \text{molécule}^{-1}$

- $\sigma_{ij}(k_L, P, T) = S_i(k_j, T) f(k_L - k_j, P, T)$  est la section efficace d'absorption par molécule. Les coefficients  $S_i$  s'expriment en  $\text{cm}^{-1} \cdot (\text{molécule} \cdot \text{cm}^{-2})^{-1}$ .
- La fonction  $f$  est une fonction normalisée à 1 par rapport à sa première variable, et son expression dépend de la composition et de la pression du mélange. Elle s'exprime en  $\text{cm}$ .
- La valeur de la densité des différents gaz est souvent calculée à partir des pressions partielles et de la température, en vertu de la loi des gaz parfaits.

On définit le "volume mixing ratio" de l'espèce  $n^{\circ}$  par  $VMR = N_i/N_{tot}$ . C'est donc la fraction molaire d'une espèce dans le gaz, et on parle de ppm (parties par million) pour une valeur  $VMR = 10^{-6}$ , de ppb (partie par milliard) pour une valeur  $VMR = 10^{-9}$  et de ppt (partie par billion) pour une valeur  $VMR = 10^{-12}$ .

### Elargissement $f$

Trois types majeurs d'élargissement de raie existent, pris en compte dans le facteur de forme  $f$  présenté précédemment.

L'élargissement lorentzien  $f_L$  est caractéristique des effets collisionnels et donc de la pression, et s'exprime comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} f_L(k - k_j, P, T) = \frac{\gamma_{L,i}}{\pi \left[ (k - k_j^*)^2 + \gamma_{L,i}^2 \right]}, \quad (1.7a) \\ \gamma_{L,i} = \left( \frac{T_0}{T} \right)^n P [\gamma_{self,i} VMR + \gamma_{air,i} (1 - VMR)]. \quad (1.7b) \\ k_j^* = k_j + \delta(P_0) P \quad (1.7c) \end{array} \right.$$

$\gamma_{self,i}$  représente l'élargissement collisionnel de l'espèce  $n^{\circ}$  avec elle-même, et  $\gamma_{air,i}$  représente l'élargissement collisionnel de l'espèce  $n^{\circ}$  avec l'air, ces deux constantes étant prises à pression et température de références  $P_0$  et  $T_0$ .  $k_j^*$  représente la position réelle de la raie, qui est légèrement décalée par la pression totale du gaz  $P$ . Le coefficient  $n$ , qui est

en général très proche de 0.5, caractérise la dépendance de l'élargissement par rapport à la température.

L'élargissement Doppler ou gaussien  $f_G$  est caractéristique de l'excitation thermique des molécules du milieu ; il est responsable d'un élargissement des raies d'absorption par effet Doppler.

$$\left\{ \begin{array}{l} f_G(k - k_j, P, T) = \frac{1}{\gamma_D \sqrt{\pi}} e^{-\frac{(k - k_j)^2}{\gamma_D^2}}, \\ \gamma_D = \frac{k_j}{c} \sqrt{\frac{2k_B T}{m_i}}. \end{array} \right. \quad (1.8a)$$

$$(1.8b)$$

$m_i$  représente la masse de la molécule n°i. La largeur complète à mi-hauteur de cet élargissement est donc  $HWHM = 2\gamma_D \sqrt{\ln 2}$ .

Puisqu'un échantillon est bien souvent sujet aux deux élargissements exposés ci-dessus, leur combinaison s'écrit comme un profil de Voigt, défini par une convolution sur la variable  $k$  :

$$f = f_G * f_L \quad (1.9)$$

## Remarques

- La base HITRAN donne la valeur des différents coefficients précédemment introduits à une pression de référence  $P_0 = 1$  atm et une température de référence  $T_0 = 296$  K. Ils sont disponibles pour quelques molécules d'intérêt comme  $H_2O$  (numéro 1),  $CO_2$  (numéro 2), etc. Pour retrouver la valeur des coefficients à une température ou une pression différente, il faut les recalculer avec les formules adaptées montrées ci-dessus ou encore disponibles dans la documentation de HITRAN (ROTHMAN et al. 2009). On choisira HITRAN dans notre modèle, mais d'autres bases spectroscopiques existent (JPL, CDMS, ...).
- Dans l'air dans des conditions normales de température et de pression, on a  $N_{air} = P_0 / (k_B T) = 2,45 \cdot 10^{19}$  molécules. $cm^{-3}$ . Détecter un ppm dans l'air ambiant revient donc à détecter une concentration moléculaire de l'ordre de  $N \sim 10^{13}$  molécules. $cm^{-3}$
- Les meilleurs techniques de détection par spectrométrie laser permettent de descendre à la détection de coefficients  $\alpha_G \sim 10^{-14} cm^{-1}$  en 1 seconde d'intégration (YE et al. 1998).
- Les coefficients  $S(k_0, T)$  sont justement au plus fort dans la zone spectrale du proche et du moyen infrarouge pour de très nombreuses molécules simples, et peuvent atteindre des valeurs jusqu'à  $10^{-19} cm^{-1} / (molécules.cm^{-2})$ .
- Dans des conditions normales de température et de pression, on peut estimer que l'élargissement lorentzien comme largement prépondérant devant l'élargissement Doppler.

- Pour certaines espèces gazeuses comme  $SF_6$ , les raies se chevauchent très largement dans des conditions normales de température et de pression, et la prise en compte d'une seule raie ne rend pas du tout compte de la véritable absorption linéique  $\alpha$ . Il faut dans ces cas-là prendre en compte toutes les raies qui participent à l'absorption.

### 1.1.3.2 Relaxation vibrationnelle-translationnelle

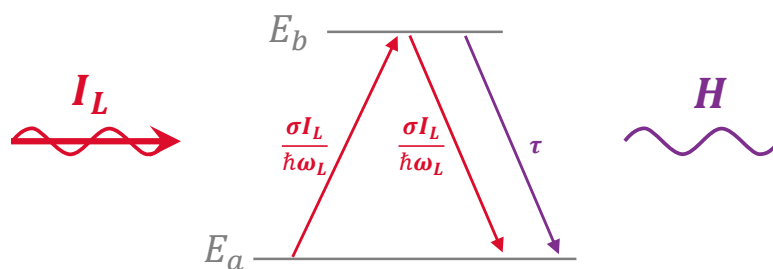


FIGURE 1.6 – Modèle retenu pour les niveaux d'énergie du gaz à sonder.

### Origine de la transition V-T

L'absorption de la lumière par une molécule se fait à des pulsations optiques quantifiées  $\omega_L = 2\pi c/\lambda_L$ , et peut alors induire une transition d'un état d'excitation (rotationnel ou vibrationnel) vers un autre.

Après une collision contre une paroi ou une autre molécule, il est possible qu'une molécule excitée sur un de ses états de rotation et de vibration transmette une partie ou l'intégralité de son énergie à un mouvement de translation d'ensemble. C'est la relaxation V-T (Vibrationnelle - Translationnelle), un processus non radiatif augmentant ainsi l'agitation moléculaire au sein d'un milieu et donc sa température. Parmi tous les processus de désexcitations possibles, tous n'interviennent pas avec la même importance. Dans notre cas où le rayonnement se situe dans le proche infrarouge, l'énergie des photons  $\hbar\omega_L$  est trop faible pour induire des réactions chimiques. De plus, les pressions de l'ordre du bar mises en jeu sont basses et donc le temps caractéristique de l'émission spontanée est bien plus long que le temps de relaxation V-T. En pratique, la quasi-totalité de l'énergie absorbée par le milieu lui sera donc restituée par la relaxation V-T.

Dans les solides ou les liquides, ces processus sont ultra rapides, et s'effectuent toujours en des temps caractéristiques inférieurs à la nanoseconde grâce à la proximité des autres molécules. Pour les gaz, tout dépend de l'espèce chimique en présence, de la pression, de la température mais aussi de la présence d'éventuels catalyseurs.

### Transfert de chaleur équivalent

On va maintenant présenter un modèle très simple pour rendre compte du processus de relaxation et ainsi identifier les grandeurs principales. On reprendra les lignes du modèle présenté par Besson (BESSON 2006) pour un type de molécule unique, qui suppose un modèle à deux niveaux d'énergies  $E_a$  et  $E_b$  de populations respectives  $N_a$  et  $N_b$ . Dans le cadre de l'application de la détection de gaz,  $N = N_a + N_b$  représente la concentration du gaz inconnue à déterminer et nous supposons que cette quantité est uniforme dans l'espace et constante dans le temps. L'équation de bilan du niveau excité  $E_b$  peut alors être écrite :

$$\frac{dN_b}{dt} = N_a \sigma \frac{I_L}{\hbar \omega_L} - N_b \sigma \frac{I_L}{\hbar \omega_L} - \frac{1}{\tau} N_b \quad (1.10)$$

Dans cette équation, le premier terme représente l'absorption du flux de photons  $\phi = I_L/(\hbar \omega_L)$  par le niveau d'énergie  $E_a$  et implique la section efficace d'absorption  $\sigma$  que nous avons introduit dans le paragraphe précédent. Le second terme représente le terme d'émission stimulée de la part du niveau excité  $E_b$  et le dernier terme représente la relaxation du niveau excité. Ce temps de relaxation global  $\tau^{-1} = \tau_r^{-1} + \tau_{nr}^{-1}$  contient à la fois des contributions radiatives de temps caractéristique  $\tau_r$  et non radiatives de temps caractéristique  $\tau_{nr}$ . Comme nous l'avons déjà indiqué, les processus de relaxation radiatifs sont lents en pratique :  $\tau_r \sim 10^{-1} - 10^{-2}$  s alors que  $\tau_{nr} \sim 10^{-6} - 10^{-9}$  s. On peut donc supposer  $\tau^{-1} \approx \tau_{nr}^{-1} \approx \tau_{V-T}^{-1}$ .

Si on suppose que l'intégralité de la relaxation V-T est restituée sous forme de chaleur au sein du milieu, alors on peut écrire  $H = \hbar \omega_L N_b / \tau_{V-T}$ . Puisque en pratique l'absorption du milieu est faible ( $N_b \ll N_a$ ), on peut alors résoudre l'équation 1.10 simplifiée dans l'espace de Fourier pour obtenir une solution :

$$\hat{H}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{e^{-j \tan^{-1}(\omega \tau_{V-T})}}{\sqrt{1 + (\omega \tau_{V-T})^2}} N \widehat{\sigma I_L} \quad (1.11)$$

Dans le cadre du QEPAS, nous verrons par la suite que seules les fréquences proches de la résonance du diapason sont pertinentes, et il suffit donc de ne retenir qu'une composante spectrale. On peut donc en déduire la densité de chaleur volumique en notation complexe déposée par unité de temps en utilisant la relation  $\sigma N = \alpha_G$ .

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{H}(\mathbf{r}, \omega) = \hat{H}(\omega) |u(\mathbf{r})|^2, \end{array} \right. \quad (1.12a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{H}(\omega) = \frac{2e^{-j \tan^{-1}(\omega \tau_{V-T})}}{\sqrt{1 + (\omega \tau_{V-T})^2}} \hat{c}(\omega), \end{array} \right. \quad (1.12b)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{c}(\omega) = \frac{\omega}{2\pi} \left[ \int_{-\pi/\omega}^{\pi/\omega} \alpha_G(t) P_L(t) \exp(-j\omega t) dt \right]. \end{array} \right. \quad (1.12c)$$



Dans le cadre de schéma où seule la puissance réelle est modulée comme  $P_L(t) = P_L [1 + \delta \cos(\omega t)]$  et où la longueur d'onde est fixée, l'équation 1.12 dans le domaine temporel se réduit à :

$$H(\mathbf{r}, t) = \frac{\alpha_G P_L |u(\mathbf{r})|^2 \delta}{\sqrt{1 + (\omega \tau_{V-T})^2}} \cos \left[ \left( \omega t - \tan^{-1}(\omega \tau_{V-T}) \right) \right] \quad (1.13)$$

Dans le cadre de schéma où l'on module la longueur d'onde et que la puissance reste constante et égale à  $P_L$ , on utilise alors dans les équation 1.12 l'absorption de la forme suivante :

$$\alpha_G(\lambda_L) = \alpha_G(\lambda_c [1 + \delta \cos(\omega t/2)]) \quad (1.14)$$

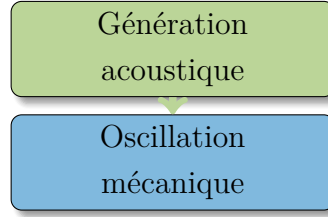
D'après l'équation 1.12, une source modulée entrainera un dépôt de chaleur déphasé dans le milieu. Cette particularité a déjà été exploitée pour la mesure du temps de relaxation  $\tau_{V-T}$  (a. KOSTEREV, Y. BAKHIRKIN, TITTEL et al. 2004). On trouve parfois l'approximation  $H(\mathbf{r}, t) = \alpha_G I_L(\mathbf{r}, t)$  dans le cas où le temps de relaxation est très rapide devant le temps caractéristique de la modulation (c'est à dire  $\omega \tau_{V-T} \ll 1$ ). On retrouve le même résultat avec l'équation 1.13 à un offset près sur l'intensité. Le résultat pour la photoacoustique sera donc inchangé car cet offset n'apporte aucune contribution à la fréquence d'intérêt. On retrouvera cette propriété au bloc acoustique à suivre, qui fait intervenir la dérivée de la fonction  $H$  dans l'amplitude de l'onde acoustique.

## 1.2 Bloc vibro-acoustique

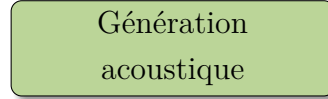
Intéressons nous maintenant au champ de pression existant dans une expérience de photoacoustique. Cette pression est générée par le flux volumique de chaleur  $H(\mathbf{r}, t)$  que nous avons explicité au cours de la partie précédente, mais également par tout élément mécanique mobile en présence. En l'occurrence, le mouvement du résonateur au cœur du QEPAS va constituer une source acoustique s'additionnant à celle issue de l'absorption du laser, complexifiant ainsi le problème. Plus encore, le fait que le diapason soit précisément excité par les ondes acoustiques transforme le problème en un système couplé : les blocs acoustiques et mécaniques sont alors à résoudre simultanément.

### 1.2.1 Le cas du QEPAS non résonant

Dans le but de simplifier la modélisation du système dans un premier temps, nous allons supposer dans cette première version du bloc vibroacoustique que l'onde acoustique générée par le résonateur est négligeable devant celle générée par l'effet photoacoustique, et que le champ de pression n'est pas affecté par la présence du résonateur. Cette hypothèse cruciale a également été employée par Petra *et al.* (PETRA et al. 2009) lors de leur modélisation du QEPAS.



### 1.2.1.1 Le bloc acoustique



Retenons donc l'hypothèse d'un résonateur n'imposant aucune condition aux limites particulière sur la modélisation acoustique du problème ni aucun terme de source. On suppose donc le gaz d'extension infinie, et ses paramètres ont été introduits à la partie 1.1.3.

Le nombre de Knudsen  $\text{Kn} = k_B T / (\sqrt{2} \pi s^2 P L_c)$  est défini par le ratio entre le libre parcours moyen des molécules au sein du fluide et la dimension géométrique caractéristique du problème. Il est généralement introduit afin de discriminer le type de formulation à adopter pour la dynamique des fluides. Dans son expression,  $T$  est la température absolue,  $k_B$  la constante de Boltzmann,  $P$  la pression totale,  $L_c$  la longueur caractéristique du problème et  $s$  le diamètre typique des molécules constituant le gaz. Quatre domaines principaux existent (G. LI et HUGHES 2000) : le régime continu ( $\text{Kn} < 0,01$ ), le régime glissant ( $0,1 < \text{Kn} < 0,01$ ), le régime de transition ( $0,1 < \text{Kn} < 10$ ) et le régime moléculaire libre. On supposera que le gaz est en régime continu, si bien que son évolution peut être modélisée à l'aide des équations de Navier Stokes.

Dans notre modèle, l'utilisation des équations de Navier Stokes implique que notre résultat final ne sera valide qu'à condition que  $\text{Kn} < 0,01$ . Pour des nombres de Knudsen plus élevés, et tout particulièrement dans les cas où  $\text{Kn} > 10$ , une description physique différente devrait être envisagée, et elle devrait prendre en compte la nature moléculaire du gaz composant le fluide autour de la poutre (GAVAN et al. 2009).

L'équation d'onde qui régit le champ de pression dans tout l'espace est obtenue à l'aide des équations linéarisées de Navier Stokes, et s'écrit comme suit dans l'espace de Fourier (MORSE et FESHACH 1953a) :

$$\begin{cases} \nabla^2 \hat{P}(\mathbf{r}, \omega) + k_v^2 \hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = -j\omega \rho_f \hat{q}(\mathbf{r}, \omega) & (1.15a) \\ \lim_{|\mathbf{r}| \rightarrow +\infty} |\mathbf{r}| \left( \frac{\partial}{\partial |\mathbf{r}|} + jk_v \right) \hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = 0 & (1.15b) \end{cases}$$

Dans l'équation précédente,  $k_v = \omega/v$  désigne le vecteur d'onde acoustique et  $\hat{q}$  est le débit volumique et s'exprime en  $\text{s}^{-1}$ . Il correspond au volume qui est injecté par unité de volume, et rassemble l'ensemble des contributions de chaque point de l'espace  $\hat{q}(\mathbf{r}, \omega) =$

$\sum_i \hat{q}_i(\omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ . Les facteurs  $\hat{q}_i$  correspondent à des débits (en  $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) injectés à la position  $\mathbf{r}_i$ , grâce à l'utilisation de la fonction indicatrice de la position  $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$  (unité  $\text{m}^{-3}$ ). L'équation 1.15b est appelée condition de radiation de Sommerfeld, et assure que l'onde de pression s'évanouit à l'infini.

En présence de l'injection d'un flux de chaleur volumique, le flux volumique de chaleur est relié au débit volumique par la relation suivante :

$$\hat{q}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\gamma - 1}{\rho_f v^2} \hat{H}(\mathbf{r}, \omega) \quad (1.16)$$

Une solution analytique simple est accessible si on suppose que le rayon du laser varie peu avec la propagation et reste donc constant et égal à  $w_L$  au premier ordre. Cette condition sera vraie tant que la longueur de Rayleigh  $z_R$  est grande devant l'épaisseur  $l$  du diapason. A cette condition, on peut supposer que le problème est invariant par translation le long de l'axe  $z$ . Le problème acoustique 1.15 peut alors s'écrire en 2 dimensions comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left[ \frac{d^2}{dR^2} + \frac{1}{R} \frac{d}{dR} + k_v^2 \right] \hat{P}(R, \omega) = -j\omega \frac{\gamma - 1}{v^2} \hat{H}(\omega) |u(R)|^2 \\ \lim_{R \rightarrow +\infty} \sqrt{R} \left( \frac{\partial}{\partial R} + jk_v \right) \hat{P}(R, \omega) = 0 \end{array} \right. \quad (1.17a)$$

$$(1.17b)$$

On introduit maintenant les fonctions de Bessel à l'ordre 0 de première espèce  $J_0$  et de seconde espèce  $Y_0$ , ainsi que la fonction de Hankel de deuxième espèce  $H_0^{(2)} = J_0 - jY_0$ . La fonction de Green associée à l'équation 1.17a est connue et s'écrit, en ne conservant que les ondes se propageant vers l'infini dans le cadre de notre convention (voir 1.1.1.3),  $\hat{G}(r, r_0, \omega) = -jH_0^{(2)}(k_v |r - r_0|)/4$ . On peut alors en déduire la solution générale par convolution :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\omega(\gamma - 1)}{4v^2} \hat{H}(\omega) \left[ \frac{4}{w_L^2} \int_0^{+\infty} r' H_0^{(2)}(k_v r') \exp\left(-2 \frac{(R - r')^2}{w_L^2}\right) dr' \right] \quad (1.18)$$

Le résultat fait donc intervenir un recouvrement spatial entre le terme de source et les fonctions de Bessel solutions de l'équation des ondes.

On peut obtenir une expression approximée valable à condition que l'on soit à distance suffisante du faisceau laser :  $w_L \ll R$ . Étant donné que l'expression de la pression est destinée à être évaluée sur la surface du résonateur, cette dernière approximation sera utilisable puisque la distance entre l'axe laser et les branches est expérimentalement de l'ordre de  $150 \mu\text{m}$  au minimum, soit typiquement deux fois le rayon du faisceau  $w_L$  (voir figure 1.7). L'intégrale de recouvrement devient donc extrêmement piquée autour de  $r' = R$ , sur une région autour de laquelle on peut écrire  $H_0^{(2)}(k_v r') \approx H_0^{(2)}(k_v R)$ . On en déduit alors la pression approximée dans tout l'espace, invariante selon l'axe  $z$  :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\omega(\gamma - 1)}{4v^2} \hat{H}(\omega) H_0^{(2)}(k_v R) \quad (1.19)$$

L'expression précédente est équivalente à considérer une source linéique qui possède la force intégrée sur le profil gaussien transverse du faisceau laser.

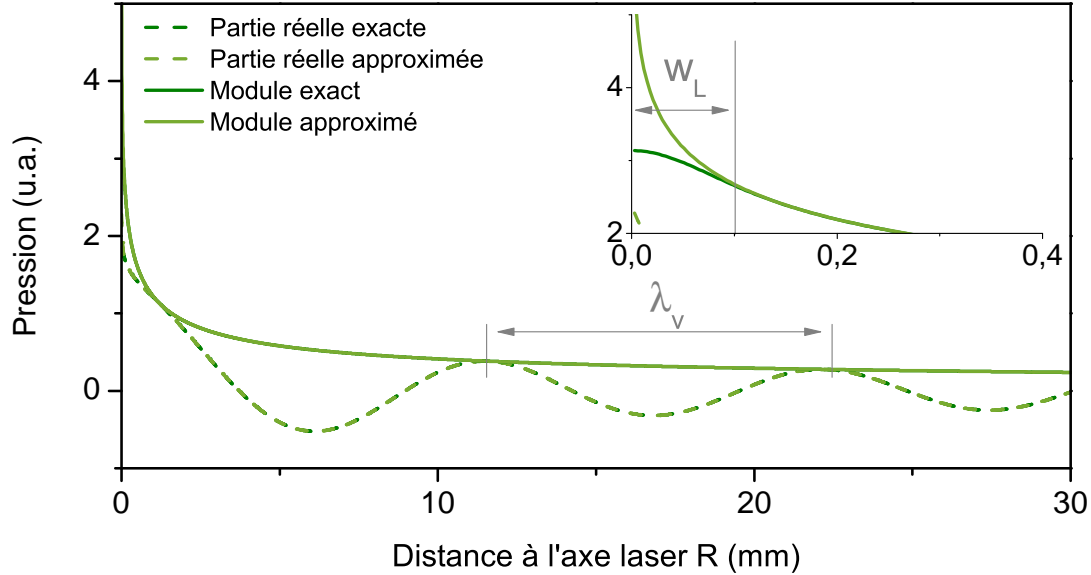


FIGURE 1.7 – Comparaison des valeurs de la pression  $\hat{P}(R, \omega)$  entre l'équation 1.19 qui suppose  $w_L \ll R$  (représenté en vert clair) et l'équation 1.18 valable dans tout l'espace (représenté en vert foncé). Sur cet exemple, on a choisi  $w_L = 100 \mu\text{m}$  et un diapason horloger commercial vibrant dans l'air ambiant ( $\lambda_v \sim 10,6 \text{ mm}$ ).

Le résultat que nous avons obtenu est équivalent à celui de PETRA et al. 2009, qui avait résolu l'équation à l'aide de la méthode de la variation de la constante. On réécrit ci dessous son résultat avec nos notations, qui présente l'intérêt de ne pas faire apparaître la convolution :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\pi \omega \gamma - 1}{2v^2} \hat{H}(\omega) \left[ \hat{P}_1(R, \omega) - j \hat{P}_2(R, \omega) \right] \quad (1.20a)$$

$$\hat{P}_1(R, \omega) = \left[ \int_0^{+\infty} r' J_0(k_v r') |u(r')|^2 dr' \right] J_0(k_v R) \quad (1.20b)$$

$$\hat{P}_2(R, \omega) = \left[ \int_R^{+\infty} r' Y_0(k_v r') |u(r')|^2 dr' \right] J_0(k_v R) + \left[ \int_0^R r' J_0(k_v r') |u(r')|^2 dr' \right] Y_0(k_v R) \quad (1.20c)$$

On retrouve bien le résultat asymptotique 1.19 à partir du système d'équations 1.20. En effet, la condition  $w_L \ll R$  est équivalente à ne considérer que les valeurs de  $r'$  proches de zéro dans les intégrales, et en remplaçant par zéro partout ailleurs. Les intégrales allant de  $R$  à l'infini sont donc nulles et en utilisant l'approximation  $J_0(k_v r') \approx 1$  en zéro, on peut donc écrire :

$$\int_0^R r' J_0(k_v r') |u(r')|^2 dr' \approx \int_0^{+\infty} r' \left[ \frac{2}{\pi w_L^2} \exp\left(-2\frac{r'^2}{w_L^2}\right) \right] dr' = \frac{1}{2\pi} \quad (1.21)$$

On montre sur la figure 1.7 l'écart entre l'expression approximée (équation 1.19) et l'expression exacte (équation 1.18). On remarque que l'expression approximée est valable dès qu'elle est évaluée à une distance supérieure au rayon du laser  $w_L$ . On remarque également que l'amplitude de l'onde de pression décroît très rapidement avec la distance. Si on se place 10 fois plus loin que le rayon du faisceau laser (à une distance de 1 mm dans l'exemple de la figure 1.7), l'amplitude est divisée par 3 environ.

### 1.2.1.2 Mouvement d'un résonateur dans le vide

Oscillation  
mécanique

Le but de ce paragraphe est d'établir l'équation qui gouverne la flexion d'une poutre, dans le cadre étendu de la piézoélectricité, en réponse à l'action des forces de pression que nous venons d'explicitier.

#### 1.2.1.2.1 Équations constitutives de la piézoélectricité

##### Définitions et notations

Les équations constitutives de la piézo-électricité font intervenir trois tenseurs propres à chaque matériau. Il s'agit du tenseur de raideur  $\underline{\underline{c}}^E$  (rang 4), du tenseur de couplage piézoélectrique  $\underline{\underline{e}}$ , (rang 3) et de la matrice de permittivité relative  $\underline{\underline{\epsilon}}_S$  (rang 2) à contrainte constante. Ces tenseurs permettent de relier les contraintes et le champ électrique présent aux déformations. On choisit d'écrire les équations avec la convention "contraintes-charges" :

$$\begin{cases} \underline{T} = \underline{\underline{c}}^E \underline{S} - \underline{\underline{e}}^T \underline{E} & (1.22a) \\ \underline{D} = \underline{\underline{e}} \underline{S} + \epsilon_0 \underline{\underline{\epsilon}}_S \underline{E} & (1.22b) \end{cases}$$

Dans les deux équations précédentes,

- $\underline{S}$  désigne le tenseur des déformations relatives (sans unités).
- $\underline{T}$  est le tenseur des contraintes (unités  $\text{N.m}^{-2}$ ).
- $\underline{D}$  désigne le déplacement électrique (unité  $\text{C.m}^{-2}$ ), et  $\underline{E}$  désigne le champ électrique (unité  $\text{V.m}^{-1}$ ).
- $\epsilon_0 \underline{\underline{\epsilon}}_S$  est la permittivité du matériau à contrainte constante.

Le quartz appartient au groupe "Trigonal 32", et ses tenseurs caractéristiques présentent de nombreuses propriétés de symétries réduisant drastiquement le nombre de coefficients à utiliser. En utilisant la notation de Voigt, on peut les écrire comme suit :

$$\underline{\underline{c}}^E = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & -C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & -C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & (C_{11} - C_{12})/2 \end{pmatrix} \quad (1.23a)$$

$$\underline{\underline{e}} = \begin{pmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.23b)$$

$$\underline{\underline{\epsilon}}_S = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^S & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11}^S & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33}^S \end{pmatrix} \quad (1.23c)$$

Les différentes valeurs numériques des coefficients introduits dans les matrices 1.23 peuvent être trouvées dans la publication de James (JAMES 1988). Ces choix de coefficients sont relatifs à une orientation particulière du repère utilisé, et on supposera que ce dernier correspond à  $y$  pour le premier axe,  $x$  pour le second, et  $z$  pour le troisième. Les déformations relatives s'écriront donc  $\underline{S} = (S_{yy}, S_{xx}, S_{zz}, S_{xz}, S_{yz}, S_{yx})$ .

Une polarisation électronique apparaît au sein du quartz lorsqu'il est contraint, car des charges localisées apparaissent. Ces dernières ne se déplacent que sur de très courtes distances et n'entraînent pas de courant électrique, la densité de charge reste donc nulle au sein du quartz. Par contre, le champ de polarisation généré a des répercussions au niveau des électrodes déposées et qui sont, elles, conductrices. Les charges qui y apparaissent se déplacent alors sur de longues distances, engendrant ainsi un courant électrique.

### Le modèle de la poutre piézoélectrique

On considère une poutre à section rectangulaire de densité homogène  $\rho_p$  représentée sur la figure 1.8.

- La section de la poutre est rectangulaire et uniforme sur toute sa longueur  $L$  dans la direction  $x$ .
- La longueur de la poutre  $L$  est largement plus grande que ses dimensions transverse  $e$  (sa largeur dans la direction  $y$ ) et  $l$  (son épaisseur dans la direction  $z$ ).
- On considère uniquement les modes de flexion dont la déformée est parallèle au plan  $z = 0$ , et les amplitudes du mouvement sont supposées largement inférieures à  $e$  et  $l$ . Les sections restent donc planes et normales à l'axe de la poutre à tout instant.

On supposera que cette poutre est en vibration suivant l'axe  $y$  et qu'elle possède un jeu d'électrodes déposées dans la configuration dite "idéale" également présentée sur la figure 1.8.

Afin d'obtenir une résolution analytique, on effectue les hypothèses suivantes :

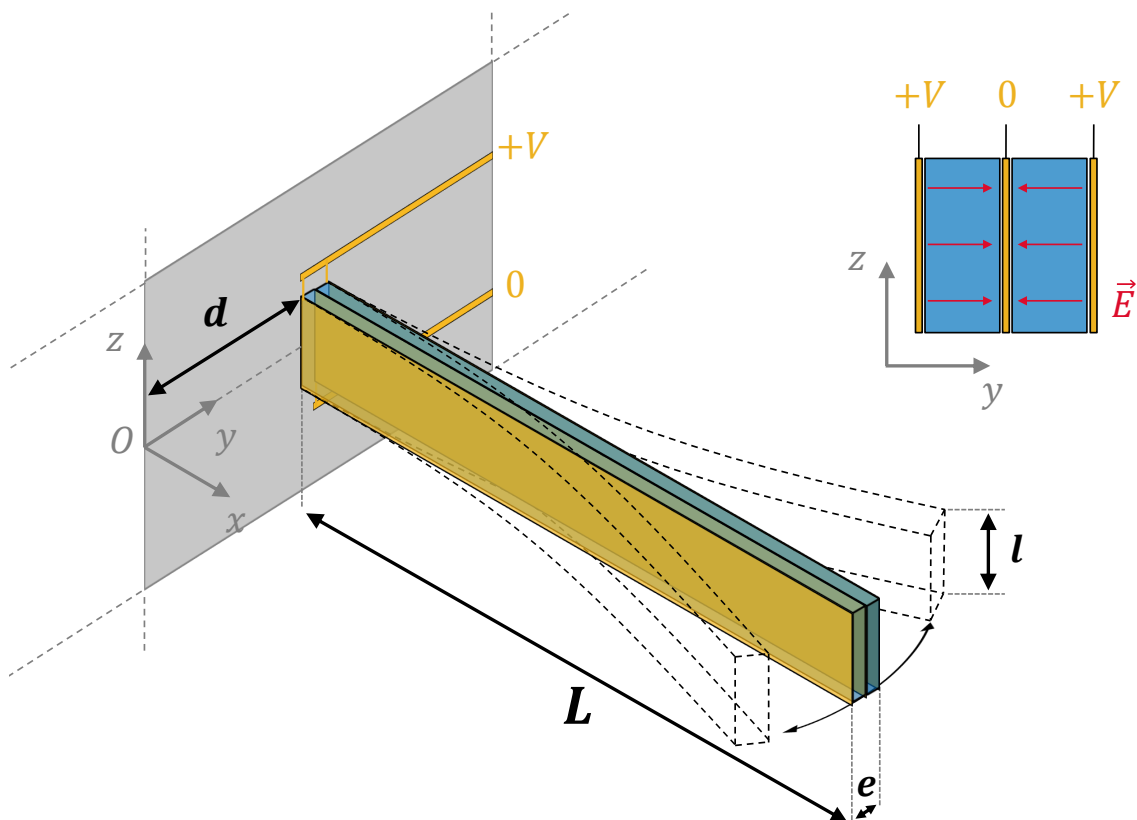


FIGURE 1.8 – Une poutre équipée d'électrodes en configuration dite "idéale". L'électrode centrale est au potentiel nul, et les deux autres électrodes sur les flancs sont au potentiel  $+V$ .

- De par la symétrie de la situation, le déplacement électrique et le champ électrique sont dirigés uniquement selon l'axe  $y$  :  $E_{i \neq y} = 0$  et  $D_{i \neq y} = 0$ .
- En général, les contraintes normales sont prépondérantes devant les contraintes de cisaillement et on supposera que le tenseur des contraintes  $\underline{T}$  est diagonal. Les résultantes des efforts sont nulles exceptées celles portées par l'axe principal (pas de cisaillement) :  $T_{i \neq x} = 0$ .
- On néglige les déplacement hors plans :  $S_z = 0$ .

Si on réécrit les équations constitutives 1.22, on obtient alors le système suivant :

$$\begin{cases} T_{yy} = 0 = C_{11}S_{yy} + C_{12}S_{xx} - e_{11}E_y & (1.24a) \end{cases}$$

$$\begin{cases} T_{xx} = C_{11}S_{xx} + C_{12}S_{yy} & (1.24b) \end{cases}$$

$$\begin{cases} D_y = e_{11}(S_{yy} - S_{xx}) + \epsilon_0 \epsilon_{11}^S E_y & (1.24c) \end{cases}$$

Soit, en simplifiant :

$$\begin{cases} T_{xx} = \left( \frac{C_{11}^2 - C_{12}^2}{C_{11}} \right) S_{xx} + e_{11} \frac{C_{12}}{C_{11}} E_y & (1.25a) \\ D_y = -e_{11} \left( 1 + \frac{C_{12}}{C_{11}} \right) S_{xx} + \left( \epsilon_0 \epsilon_{11}^S + \frac{e_{11}^2}{C_{11}} \right) E_y & (1.25b) \end{cases}$$

### 1.2.1.2.2 Résolution et obtention du déplacement

#### Le modèle d'Euler-Bernoulli

On notera  $w(x,t)$  le déplacement qui a lieu dans la direction  $y$ , et  $v(x,t)$  sera le déplacement dans la direction  $x$ . On se place maintenant dans le cadre de la théorie des poutres d'Euler-Bernoulli, qui considère que les différentes sections de la poutre restent perpendiculaires à la fibre neutre pendant le déplacement. Cette hypothèse permet d'écrire :

$$v(x,t) = - \left( y - \frac{2d+e}{2} \right) \frac{\partial}{\partial x} w(x,t) \quad (1.26)$$

Puisque  $S_y$  (resp.  $S_x$ ) est par définition le déplacement relatif suivant l'axe  $y$ , on a par définition  $S_y = \frac{\partial}{\partial y} w(x,t)$  (resp.  $S_x = \frac{\partial}{\partial x} v(x,t)$ ). Avec l'équation 1.26, on obtient :

$$S_{xx} = - \left( y - \frac{2d+e}{2} \right) \frac{\partial^2}{\partial x^2} w(x,t) \quad (1.27)$$

Soit  $f_{tot}(x,t)$  la résultante des forces par unité de longueur selon  $x$ . En appliquant la relation fondamentale de la dynamique à l'abscisse  $x$ , on obtient :

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} M_{xz} + \rho_p e l \frac{\partial^2}{\partial t^2} w(x,t) = f_{tot}(x,t) \quad (1.28)$$

Le moment  $M_{xz} = \iint \left( y - \frac{2d+e}{2} \right) T_{xx} dy dz$  le long de l'axe  $z$  résulte de l'intégration sur l'épaisseur de la poutre (selon l'axe  $y$ ) des contraintes suivant l'axe  $x$ .

Supposons maintenant que les deux électrodes de flanc sont au même potentiel  $V$  et que l'électrode centrale est au potentiel nul. Le quartz est un matériau diélectrique, et la densité de charges qu'il contient est donc nulle. La première équation de Maxwell donne donc :

$$\text{div } D = \frac{\partial}{\partial y} D_y = 0 \quad (1.29)$$

Puisque le champ électrique est relié au potentiel par la relation  $E = -\text{grad}(V)$ , l'équation précédente nous permet d'obtenir sa valeur en posant  $\beta = \frac{e_{11}(C_{11} + C_{12})}{(e_{11}^2 + \epsilon_0 \epsilon_{11}^S C_{11})}$  :

$$\begin{cases} E_y(y) = -\frac{2V}{e} + \beta \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{e}{2} + 2d \right) - y \right] \frac{\partial^2}{\partial x^2} w(x,t) & \text{si } y \in \left[ d, d + \frac{e}{2} \right] & (1.30a) \\ E_y(y) = +\frac{2V}{e} + \beta \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{3e}{2} + 2d \right) - y \right] \frac{\partial^2}{\partial x^2} w(x,t) & \text{si } y \in \left[ d + \frac{e}{2}, d + e \right] & (1.30b) \end{cases}$$



Le moment  $M_{xz}$  s'exprime donc à l'aide de  $I = e^3 l / 12$  (appelé le moment quadratique selon l'axe  $z$ ) :

$$M_{xz} = \left[ \frac{C_{11}^2 - C_{12}^2}{C_{11}} + \frac{7\beta e_{11} C_{12}}{8C_{11}} \right] I \frac{\partial^2}{\partial x^2} w(y,t) + \frac{e l V e_{11} C_{12}}{2C_{11}} \quad (1.31)$$

On identifie alors le module de Young  $E = \left[ \frac{C_{11}^2 - C_{12}^2}{C_{11}} + \frac{7\beta e_{11} C_{12}}{8C_{11}} \right]$ , donnant avec l'équation 1.28 :

$$EI \frac{\partial^4}{\partial x^4} w(x,t) + \rho_p e l \frac{\partial^2}{\partial t^2} w(y,t) = f_{tot}(x,t) \quad (1.32)$$

On pourra adapter le résultat précédent aux matériaux non piézoélectriques en appliquant  $e_{11} = 0$ . Pour le quartz, une application numérique rapide donne  $(C_{11}^2 - C_{12}^2) / C_{11} = 86,3$  GPa , alors que  $7\beta e_{11} C_{12} / (8C_{11}) = 54,7$  MPa. La piézoélectricité raidit donc très légèrement la vibration.

On peut également définir à ce stade l'énergie potentielle de flexion qui nous sera utile plus tard.

$$U = \frac{1}{2} EI \int_0^L \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} w(x,t) \right)^2 dx \quad (1.33)$$

### Déplacement de la poutre

En posant  $B_r(\omega) = \left( \frac{\rho_p e l \omega^2}{EI} \right)^{1/4}$ , l'équation 1.32 s'écrit pour la composante de Fourier à la pulsation  $\omega$  :

$$\frac{\partial^4}{\partial x^4} \hat{W}(x,\omega) - B_r^4(\omega) \hat{W}(x,\omega) = \hat{f}_{tot}(x,\omega) \quad (1.34)$$

L'équation homogène associée à l'équation 1.34 est résolue dans l'annexe A, et la solution dépend des conditions aux limites de la poutre. Dans tous les cas, on peut en extraire une base de modes propres  $(\phi_i)_{i \in \mathbb{N}}$  orthogonale et associée à une famille de réels  $(\alpha_i)_{i \in \mathbb{N}}$ . Chaque mode propre de déformation correspond à une fréquence de résonance fixée par la relation  $B_r(\omega_i) L = \alpha_i$ . La solution de l'équation 1.34 peut ensuite s'étendre sur cette base de fonctions comme  $\hat{W}(x,\omega) = \sum_i \hat{w}_i(\omega) \phi_i(x)$ . En remplaçant cette forme dans l'équation 1.34 et en l'intégrant contre une fonction particulière  $\phi_n$  le long de la poutre, on aboutit à :

$$\hat{w}(\omega) = \frac{\int_0^L \hat{f}_{tot}(x,\omega) \phi_n(x) dx}{\left[ EI (\alpha_n / L)^4 - EI B_r^4(\omega) \right] \int_0^L \phi_n^2(x) dx} \quad (1.35)$$

Dans l'équation 1.35, on voit que la solution diverge à la résonance. En pratique, il y a toujours des pertes dans le système. Pour les prendre en compte, on introduit à ce stade un facteur de qualité noté  $Q$ . On rappelle que lors d'une expérience de photoacoustique, on excite le résonateur proche de l'une de ses pulsations propres  $\omega_n$ . On supposera par la

suite que seul le mode d'indice  $n$  est excité, si bien que l'on peut réécrire la solution de l'équation 1.34 :

$$\hat{W}(x,\omega) = \frac{\int_0^L \hat{f}_{tot}(x',\omega)\phi_n(x')dx'}{[\rho_p e l \omega_n^2 + j\rho_p e l \frac{\omega\omega_n}{Q} - \rho_p e l \omega^2] \int_0^L \phi_n^2(x')dx'} \phi_n(x) \quad (1.36)$$

On introduit les paramètres mécaniques équivalents de ce résonateur :

$$\begin{cases} M_n = \rho_p e l \int_0^L \phi_n^2(x')dx' & (1.37a) \\ K_n = \omega_n^2 M_n & (1.37b) \\ \eta_n = \frac{\omega_n M_n}{Q} & (1.37c) \\ F_n = \int_0^L \hat{f}_{tot}(x,\omega)\phi_n(x')dx' & (1.37d) \end{cases}$$

Le paramètre  $M_n$  est la masse généralisée,  $K_n$  la raideur généralisée,  $\eta_n$  le facteur d'amortissement et  $F_n$  la force d'excitation généralisée.

D'après l'hypothèse centrale que nous avons faite en début de partie 1.2.1.1, le champ acoustique généré par l'effet photoacoustique n'est pas modifié par la présence du résonateur. On peut donc utiliser l'expression de la pression obtenue à l'équation 1.18 pour évaluer la force  $F_n$  définie par l'équation 1.37d et agissant suivant l'axe  $x$  :

$$F_n = \int_0^L \left[ \int_{-l/2}^{l/2} [\hat{P}(x',d,z,\omega_n) - \hat{P}(x',d+e,z,\omega_n)] \phi_n(x')dz \right] dx' \quad (1.38)$$

On obtient alors le mouvement du résonateur sous la forme d'un filtre classique passe bas et résonant du second ordre :

$$\hat{W}(x,\omega) = \hat{w}(\omega)\phi_n(x) = \frac{F_n}{[K_n + j\eta_n\omega - M_n\omega^2]} \phi_n(x) \quad (1.39)$$

Le diagramme de Bode du filtre est montré sur la figure 1.9, en prenant pour résonateur un diapason horloger commercial typique.

### Bruit brownien du résonateur

Le bruit limitant la technique photoacoustique provient du bruit brownien présent dans le résonateur. Des mouvements aléatoires dûs à la température au sein du cristal sont responsables d'un mouvement d'ensemble, et on va chercher à l'exprimer par identification avec une force d'excitation équivalente  $F_b$ . D'après le théorème de fluctuation-dissipation, appliqué en utilisant l'équation de transfert mécanique 1.39, on peut écrire la densité spectrale de puissance des fluctuations thermiques de l'amplitude  $\hat{w}(\omega)$  comme suit :

$$S_{\hat{w}}(f) = \frac{\langle |\hat{w}(\omega)|^2 \rangle}{\Delta f} = 4k_B T \frac{\eta_n}{(K_n - M_n\omega^2)^2 + (\eta_n\omega)^2} \quad (1.40)$$

En identifiant ce déplacement à la force de bruit recherchée, on choisit donc :

$$F_b(\omega) = \sqrt{4k_B T \eta_n \Delta f} \quad (1.41)$$

Cette force s'exprime en Newton rms, et  $\Delta f$  désigne en pratique la bande passante de la détection. On retrouve bien avec ce choix un déplacement moyen quadratique qui satisfait l'équation 1.35. La force équivalente au bruit brownien agissant le long de la poutre peut également être supposée indépendante de la position, et il vient donc :

$$\hat{f}_b(x, \omega) = \frac{\sqrt{4k_B T \eta_n \Delta f}}{\int_0^L \phi_n(x) dx} \quad (1.42)$$

Il est utile de remarquer que le déplacement du résonateur lié au bruit suit le même diagramme de Bode que celui présenté sur la figure 1.9.

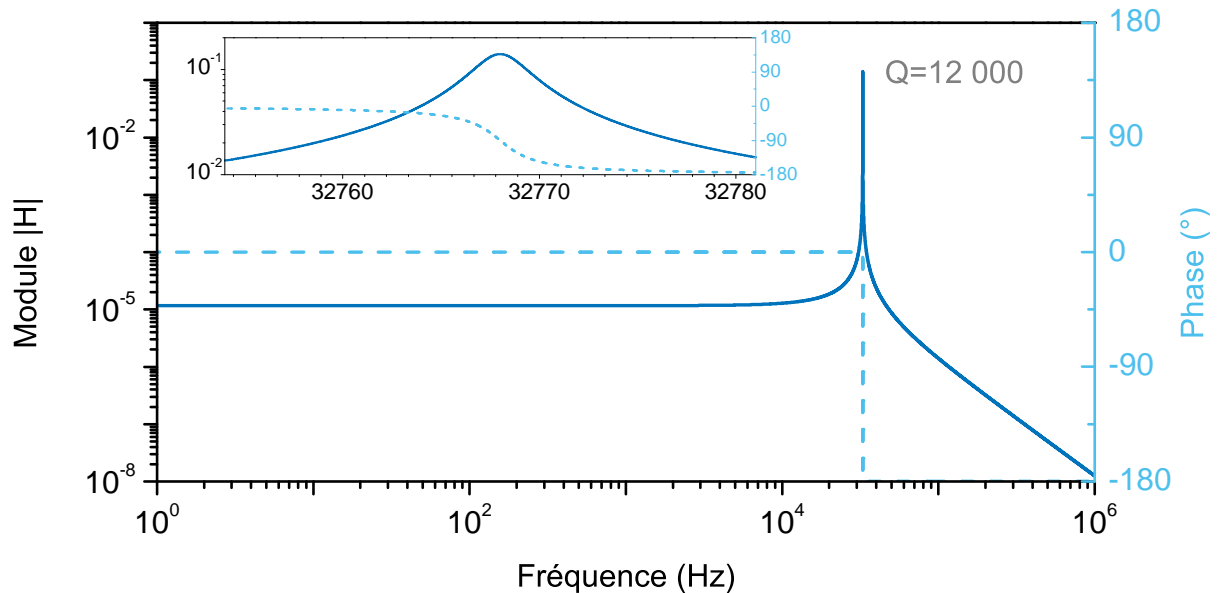


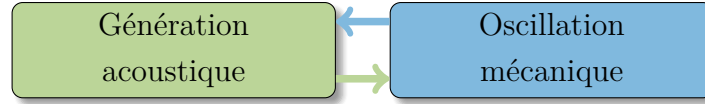
FIGURE 1.9 – Diagramme de Bode de la fonction de transfert mécanique  $H = \hat{w}(\omega)/F_n$  associée à la poutre. Un résonateur commercial typique a été choisi, avec une fréquence de résonance de  $f = 32768$  Hz et un facteur de qualité  $Q = 12000$ .

## 1.2.2 Bloc vibro-acoustique : QEPAS résonant

De nombreuses expériences, menées par exemple par Serebryakov *et al.* avec des diapasons (SEREBRYAKOV *et al.* 2010), rapportent que le modèle précédent ne permet pas d'expliquer le comportement du QEPAS quand on utilise des tubes acoustiques comme montré sur la figure 1.2. Plus particulièrement, il échoue à reproduire un phénomène d'anti-résonance observé lorsque les résonances acoustiques et mécaniques sont proches l'une de l'autre. Le résonateur mécanique n'a donc plus un comportement équivalent à un

filtre du deuxième ordre à sa résonance. Nous allons démontrer que l'impossibilité du premier modèle à reproduire une telle observation est une conséquence directe de l'hypothèse fondamentale selon laquelle le résonateur n'influe pas sur le champ acoustique.

Nous allons développer un bloc vibroacoustique analytique original pour tenter de prendre en compte cette interaction. Le champ acoustique résonant est en pratique créé par la présence des tubes acoustiques, mais on ne se restreint pas ici à cette distribution résonante particulière par souci de généralisation.



### 1.2.2.1 Équation fondamentale du QEPAS

#### Le problème vibroacoustique de la poutre en flexion

On prend désormais en compte les ondes acoustiques générées par la poutre en mouvement. Comme nous le verrons plus en détail au paragraphe 2.1.3, une méthode pour prendre en compte ce champ acoustique additionnel consiste à utiliser une équivalence entre le mouvement mécanique et une collection de points sources acoustiques. On suppose alors toujours que le fluide remplit tout l'espace, et le résonateur est remplacé par un ensemble de points sources acoustiques équivalents.

Le problème acoustique s'exprime alors sous la même forme que celle de l'équation 1.15, à l'exception du débit volumique  $\hat{q}$  qui prend désormais en compte la contribution des sources acoustiques ponctuelles équivalentes  $r_i$ , qui s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{q}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{\mathbf{r}_i} \hat{q}_i(\omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \end{array} \right. \quad (1.43a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{q}_i(\omega) = \iint \vec{U}_i \cdot \vec{n}_i dS \end{array} \right. \quad (1.43b)$$

Dans le système précédent, le terme source à la position  $\mathbf{r}_i$  est défini comme la vitesse normale du résonateur  $\vec{U}_i \cdot \vec{n}_i$  intégrée sur une surface infinitésimale  $dS$  autour du point  $\mathbf{r}_i$ .

On suppose que la modélisation du résonateur du paragraphe précédent est toujours valide, si bien que l'équation du mouvement 1.39 reste valable. On rappelle que le mouvement a lieu uniquement le long de la direction  $y$ , et on suppose que le diapason est proche de sa résonance indiquée par  $n$ . On définit une fonction de déformation de la poutre étendue à tout l'espace  $\Phi_n(x, y, z)$ , qui vaut  $\phi_n(x)$  sur les flancs du résonateur normaux à la déformation (en  $y_0 = d$  et  $y_0 = d + e$ ) et zéro ailleurs :

$$\Phi_n(x, y, z) = \phi_n(x) \mathbb{1} \left( |z| \leq \frac{l}{2} \right) \mathbb{1} (0 \leq x \leq L) \delta(y - y_0) \quad (1.44)$$

Dans l'expression précédente,  $\mathbb{1}$  représente la fonction indicatrice d'intervalles (qui vaut 1 sur l'intervalle et 0 ailleurs), et  $\delta$  représente la fonction delta de Dirac. On peut alors écrire les équations couplées de la vibroacoustique :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \hat{P}(x,y,z,\omega) + k_v^2 \hat{P}(x,y,z,\omega) = -j\omega\rho_f \hat{q}(x,y,z,\omega) \quad (1.45a) \\ \hat{q}(x,y,z,\omega) = \frac{\gamma-1}{\rho_f v^2} \hat{H}(x,y,z,\omega) + j\omega \hat{w}(\omega) [\Phi_n(x,d+e,z) - \Phi_n(x,d,z)] \quad (1.45b) \\ \hat{w}(\omega) = \frac{\int_0^L \left[ \int_{-l/2}^{l/2} [\hat{P}(x,d,z,\omega_n) - \hat{P}(x,d+e,z,\omega_n)] \phi_n(x) dz \right] dx}{[K_n + j\eta_n \omega - M_n \omega^2]} \quad (1.45c) \end{array} \right.$$

### Modélisation du champ acoustique résonant

A priori, aucune solution évidente n'existe pour l'équation acoustique intégrodifférentielle que l'on vient d'obtenir. Puisque l'on a supposé que le champ acoustique est résonant, on peut supposer qu'il s'écrit sous la forme modale suivante :

$$\hat{P}(\mathbf{r},\omega) = A_m(\omega) \hat{P}_m(\mathbf{r}) \quad (1.46)$$

D'une manière similaire au travail de Miklós *et al.* pour des cavités acoustiques résonantes classiques, on introduit  $\omega_m$  la pulsation de résonance acoustique ainsi que  $Q_m$  le facteur de qualité associé pour prendre en compte l'amortissement acoustique (MIKLÓS *et al.* 2001).

#### 1.2.2.2 Solutions résonantes

##### Expression du mouvement

En remplaçant l'expression de la pression de l'équation 1.46 dans l'équation de Helmholtz 1.45a, on obtient alors :

$$A_m(\omega) \left[ \omega_m^2 - \omega^2 + j\omega\omega_m Q_m^{-1} \right] \hat{P}_m(x,y,z) = j\omega(\gamma-1) \hat{H}(\omega) |u(x,y,z)|^2 + \omega^2 \rho_f v^2 \hat{w}(\omega) [\Phi_n(x,d,z) - \Phi_n(x,d+e,z)] \quad (1.47)$$

On définit alors ce que Miklós appelle "l'intégrale de recouvrement normalisée" par la formule suivante :

$$O_m = \frac{\frac{1}{L_t} \int |u(r)|^2 \hat{P}_m^*(r) dV}{\frac{1}{V_{cell}} \int |\hat{P}_m(r)|^2 dV} \quad (1.48)$$

Ce facteur mesure le taux de recouvrement entre la source laser et le mode acoustique, normalisé par rapport à  $L_t$  la longueur d'interaction entre le laser et le mode acoustique et  $V_{cell}$  le volume total de la cavité acoustique.

En notant  $F_{mn}$  la force modale agissant sur le résonateur, qui s'exprime comme  $F_{nm} = \int_0^L \int_{-l/2}^{l/2} [\phi_n(x) (\hat{P}_m(x,d,z) - \hat{P}_m(x,d+e,z))] dx dz$ , on introduit un nouveau coefficient que l'on appellera "l'intégrale de couplage modal normalisée"  $C_{nm}$  :

$$C_{nm} = \frac{\left[ \frac{1}{lL} |F_{nm}| \right]^2}{\frac{1}{V_{cell}} \int |\hat{P}_m(r)|^2 dV} \quad (1.49)$$

Ces deux coefficients nous permettent d'écrire l'évolution de l'amplitude du mode de pression, en intégrant l'équation 1.47 sur le volume de la cavité résonante :

$$A_m(\omega) = \frac{j\omega(\gamma - 1) [K_n - M_n\omega^2 + j\omega\eta_n] L_t O_m \hat{H}(\omega)}{[\omega_m^2 - \omega^2 + j\omega\omega_m Q_m^{-1}] [K_n - M_n\omega^2 + j\omega\eta_n] V_{cell} - \omega^2 \rho_f v^2 l^2 L^2 C_{nm}} \quad (1.50)$$

La solution pour la pression s'écrit donc :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{j\omega(\gamma - 1) [K_n - M_n\omega^2 + j\omega\eta_n] L_t O_m \hat{H}(\omega) \hat{P}_m(\mathbf{r})}{[\omega_m^2 - \omega^2 + j\omega\omega_m Q_m^{-1}] [K_n - M_n\omega^2 + j\omega\eta_n] V_{cell} - \omega^2 \rho_f v^2 l^2 L^2 C_{nm}} \quad (1.51)$$

En remplaçant cette expression de la pression dans l'expression du déplacement, on obtient le déplacement du résonateur

$$\hat{W}(x, \omega) = \hat{w}(\omega) \phi_n(x) = \frac{A_m(\omega) F_{nm}}{[K_n - M_n\omega^2 + j\omega\eta_n]} \phi_n(x) \quad (1.52)$$

## Analyse du filtre

On retrouve bien le résultat obtenu pour la photoacoustique conventionnelle résonante en supposant que le couplage modal  $C_{nm}$  est nul (MIKLÓS et al. 2001).

Cette approche est également cohérente avec l'expression de la pression que l'on a obtenue dans le cadre du QEPAS non résonant. En effet, en utilisant l'expression simplifiée de l'équation 1.19, on peut la réécrire en faisant apparaître explicitement la fonction de Green :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = j \frac{\omega(\gamma - 1)}{v^2} \hat{H}(\omega) \hat{G}(R, 0, \omega) \quad (1.53)$$

Dans le cadre d'un milieu résonant, il est possible d'exprimer une décomposition de la fonction de Green sur les modes propres de la cavité (MORSE et FESHBACH 1953b, p. 891) :

$$\hat{G}(R, R_0, \omega) = v^2 \sum_m \frac{\hat{P}_m(R_0) \hat{P}_m(R)}{(\omega_m^2 - \omega^2) \int |\hat{P}_m|^2 dV} \quad (1.54)$$

En l'absence de couplage modal  $C_{nm}$  et de pertes acoustiques, on obtient à partir de l'équation 1.51 la même solution que celle de l'équation 1.53.

## 1.3 Bloc électronique et extension au cas du diapason

Détection  
électronique

Même si nous montrerons au paragraphe 1.3.2.2 que le rapport signal à bruit du QEPAS ne dépend pas ou peu du bloc électronique, cet étage est important à modéliser puisque l'essentiel des données expérimentales dont nous disposons sont électriques.

### 1.3.1 Équivalent électrique des résonateurs

Reprenons notre poutre piézoélectrique de la figure 1.8. La quantité de charges totale  $Q_{c1}$  générée au niveau de l'électrode située en  $y = d$  est alors obtenue par intégration du vecteur déplacement électrique  $\underline{D}$  (équation 1.24c) sur toute la surface de l'électrode (Théorème de Gauss).

$$Q_{c1} = \int_0^L \left[ \int_{-l/2}^{l/2} -D_y(y = d) dz \right] dx \quad (1.55)$$

En utilisant les expressions 1.24c, 1.27, 1.30a et en supposant que la poutre vibre sur un mode de vibration indiqué par l'entier  $n$ , on obtient alors :

$$Q_{c1} = \frac{e_{11}}{4} \left( 1 + \frac{C_{12}}{C_{11}} \right) \left[ \int_0^L \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi_n(x) \right) dx \right] el \hat{w}(\omega) + 2 \left( \epsilon_0 \epsilon_{11}^S + \frac{e_{11}^2}{C_{11}} \right) \frac{lL}{e} V \quad (1.56)$$

On obtient un résultat identique en considérant l'électrode située en  $y = e + d$ .

### Coefficient de conversion piézoélectrique

Intéressons nous au premier terme de l'équation 1.56, comme si la différence de potentiel entre les électrodes était nulle ( $V = 0$ ) (voir figure 1.8). On introduit alors le coefficient  $c_p$  s'exprimant en  $C.m^{-1}$ , qui représente le nombre de charges générées par unité de déplacement de la poutre. Ayant deux pistes d'électrodes reliées sur notre poutre, le nombre de charges total recueilli est donc  $\hat{q}_c = 2Q_{c1}(V = 0)$ . Ce coefficient de conversion piézoélectrique s'exprime donc comme suit dans le cas d'une poutre simple :

$$c_p = \frac{e_{11}}{2} \left( 1 + \frac{C_{12}}{C_{11}} \right) \left[ \int_0^L \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi_n(x) dx \right] el \quad (1.57)$$

Il est à noter que, contrairement à la charge  $Q_{c1}$  récupérée sur chaque électrode, cette définition de  $c_p$  dépend de la normalisation choisie pour les fonctions propres  $\phi_n$ .

Une application rapide au cas de la poutre simple encastrée-libre en utilisant la normalisation présentée dans l'annexe A donne alors :

$$c_p = \frac{e_{11}}{2} \left( 1 + \frac{C_{12}}{C_{11}} \right) \left[ \frac{2\alpha_n}{L} \left( \frac{\sinh \alpha_n \cos \alpha_n + \cosh \alpha_n \sin \alpha_n}{\cosh \alpha_n + \cos \alpha_n} \right) \right] el \quad (1.58)$$

Pour le mode fondamental de flexion  $n = 0$  d'une poutre encastrée-libre, on obtient donc  $c_p = 0,254el/L$ . Si on avait utilisé une normalisation des déformées par le maximum atteint le long de la poutre, alors le même calcul aurait donné  $c_p = 0,127el/L$ .

### Capacité inter-électrodes

En reprenant l'équation 1.56 écrite pour deux électrodes présentes sur la poutre, on voit qu'elle se réécrit sous la forme :

$$\hat{q}_c(\omega) = c_p \hat{w}(\omega) + C_i V \quad (1.59)$$

Dans l'équation précédente, on a introduit  $C_i$  qui relie la charge présente sur les armatures à la tension appliquée :

$$C_i = 4 \left( \epsilon_0 \epsilon_{11}^S + \frac{e_{11}^2}{C_{11}} \right) \frac{lL}{e} \quad (1.60)$$

La capacité  $C_i$  est appelée "capacité inter-électrodes".

### Circuit électrique équivalent

Considérons uniquement la partie résonante de la poutre, en négligeant la capacité inter-électrodes. Avec l'aide de l'équation 1.57, on peut réécrire l'équation 1.39 comme suit :

$$\hat{q}_c(\omega) = \frac{F_n c_p}{[K_n + j\eta_n \omega - M_n \omega^2]} \quad (1.61)$$

On introduit alors les grandeurs électriques suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} R_n = \eta_n / c_p^2 \end{array} \right. \quad (1.62a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} L_n = M_n / c_p^2 \end{array} \right. \quad (1.62b)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} C_n = c_p^2 / K_n \end{array} \right. \quad (1.62c)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} V_n = F_n / c_p \end{array} \right. \quad (1.62d)$$

La résistance motionnelle  $R_n$ , l'inductance équivalente  $L_n$ , la capacité équivalente  $C_n$  et la tension d'excitation équivalente  $V_n$  permettent donc d'écrire la réponse du résonateur en terme de charges générées :

$$\hat{q}_c(\omega) = \frac{V_n}{[C_n^{-1} + jR_n \omega - L_n \omega^2]} \quad (1.63)$$



Par définition, le courant peut s'écrire  $\hat{i} = j\omega\hat{q}_c$ , et on obtient l'équation qui régit le courant généré par le résonateur en notation complexe :

$$\hat{i}(\omega) = \frac{V_n}{[(j\omega C_n)^{-1} + R_n + j\omega L_n]} \quad (1.64)$$

On peut définir à partir de l'équation précédente l'impédance équivalente aux trois éléments en série  $Z_n = [(j\omega C_n)^{-1} + R_n + j\omega L_n]$ . L'amplitude du courant généré par la poutre en flexion est extrêmement faible, et nécessite une amplification avant de pouvoir être observée. On a représenté sur la figure 1.10 l'équivalent électrique de notre poutre en flexion que nous venons de démontrer, ainsi que le circuit de détection mis en place pour amplifier le signal. Enfin, une démodulation synchrone est utilisée avec une détection synchrone (ou Lock-in Amplifier) .

### 1.3.2 Amplification et sensibilité de détection

En pratique, on choisit d'imposer un potentiel nul  $V = 0$  entre les deux jeux d'électrodes, en reliant chacun d'entre eux sur l'entrée inverseuse d'un amplificateur opérationnel. En reprenant les équations 1.59, 1.63 et 1.64, on peut alors tracer le circuit équivalent comme montré sur la figure 1.10.

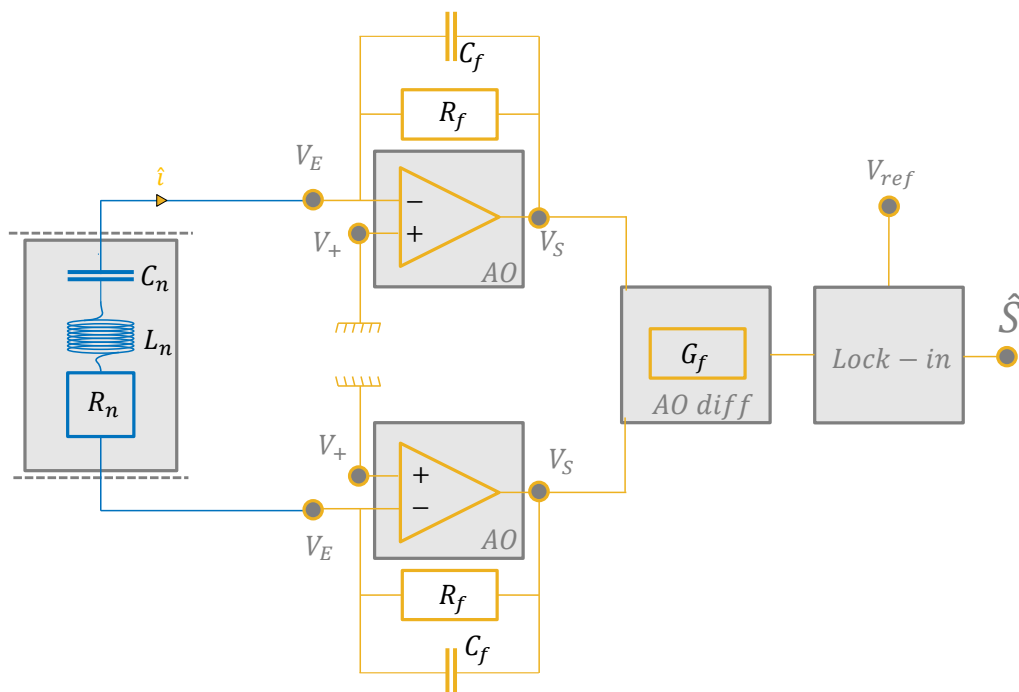


FIGURE 1.10 – Circuit électrique équivalent à la poutre en flexion et son circuit de détection.

Il est à noter que le courant  $\hat{i}(\omega)$  est imposé par la présence de la force photoacoustique, mais que la différence de potentiel entre les bornes du résonateur est bien nulle.

### 1.3.2.1 Signal et bruit après amplification

Un amplificateur opérationnel (AO) en configuration transimpédance est ensuite utilisé sur chaque branche afin d'amplifier le courant  $\hat{i}$ , explicité à l'équation 1.64. Les gains typiques (qui s'expriment en  $V.A^{-1}$ ) sont de l'ordre du million, dépendant de la résistance  $R_f$  et de la capacité  $C_f$  utilisée. On notera  $Z_f$  l'impédance du circuit de contre-réaction, qui a donc pour expression  $Z_f = R_f / (1 + jR_f C_f \omega)$ . L'entrée non-inverseuse est mise à la masse si bien que l'on supposera que l'AO fonctionne en régime linéaire, assurant  $V_E = V_+ = 0$ .

Un AO différentiel est ajouté pour combiner les tensions issues des deux amplificateurs opérationnels transimpédance. Un gain additionnel  $G_f$  est également ajouté à ce niveau pour amplifier encore davantage le signal au besoin. En appliquant le théorème de Millman, on peut donc écrire le signal après amplification :

$$\hat{S}(\omega) = -\frac{R_f}{(1 + jR_f C_f \omega)} G_f [2\hat{i}(\omega)] \quad (1.65)$$

### Bruit équivalent au résonateur

Si on applique les relations d'équivalence avec le modèle électrique pour les coefficients  $\eta_n$  et  $F_b$  (équations 1.62a et 1.62d respectivement), alors on obtient à partir de l'équation 1.41 la tension équivalente au bruit :

$$V_b(\omega) = \sqrt{4k_B T R_n \Delta f} \quad (1.66)$$

Cette tension s'exprime en Volts rms, et ce résultat est bien cohérent avec l'expression usuelle du bruit thermique pour une résistance.

### Bruit électronique total

Le bruit total est obtenu en additionnant les trois sources primaires de bruit en moyenne quadratique : celle du résonateur, celle des AOs et celle des contre-réactions. Le bruit d'un AO  $V_{AO}$  sera considéré comme donné par le fabricant. Pour les contre-réactions, on utilisera l'expression classique  $V_{fb} = \sqrt{4k_B T R_f \Delta f}$ .

On écrit d'abord le bruit en sortie de l'un des AO transimpédance en éteignant tour à tour deux des trois sources de bruit en présence.

- En ne conservant que le bruit du résonateur, on obtient une sortie  $V_{s1} = -Z_f V_b / Z_n$
- En ne conservant que le bruit de l'AO, on peut écrire  $V_+ = V_E = V_{AO}$ , ce qui entraîne donc une tension en sortie de  $V_{s2} = V_{AO} (1 + Z_f / Z_n)$
- En ne conservant que le bruit de la contre-réaction, équivalent à placer une source de tension  $V_{fb}$  en série avec la résistance  $R_f$ , on obtient  $V_{s3} = Z_f V_{fb} / R_f$ .

Finalement, le théorème de superposition pour les densités spectrales de bruit permet d'écrire la densité spectrale de bruit totale en sortie de l'un des AO transimpédance :

$$S_s = \sqrt{V_{AO}^2 \left|1 + \frac{Z_f}{Z_n}\right|^2 + V_{fb}^2 \left|\frac{Z_f}{R_f}\right|^2 + V_b^2 \left|\frac{Z_f}{Z_n}\right|^2} \quad (1.67)$$

En sortie de l'amplificateur opérationnel différentiel, on obtient alors par sommation en moyenne quadratique (et en supposant que les deux AO transimpédance et les circuits de contre-réaction sont du même fabricant) :

$$S_b = \sqrt{2V_{AO}^2 \left|1 + \frac{Z_f}{Z_n}\right|^2 + 2V_{fb}^2 \left|\frac{Z_f}{R_f}\right|^2 + 4V_b^2 \left|\frac{Z_f}{Z_n}\right|^2} \quad (1.68)$$

Dans l'expression précédente, on remarque qu'un facteur 4 est placé devant le terme de bruit brownien, au lieu de 2 comme pour les autres sources de bruit. Ceci est dû au fait que le courant de bruit brownien du résonateur dans chaque branche est identique, et les deux signaux de bruit amplifiés sont donc cohérents. Après recombinaison par l'AO différentiel, ils s'additionnent donc directement et non en moyenne quadratique. Ce n'est pas le cas des bruits thermiques des deux AOs et des deux résistances de contre-réaction, qui correspondent à des composants distincts dans le montage.

Le fait d'utiliser un AO transimpédance sur chacune des deux branches au lieu d'une seule ne modifie donc pas le rapport signal à bruit à condition que le bruit brownien du résonateur soit dominant. Cela permet néanmoins de renforcer l'écart du bruit brownien du résonateur par rapport aux autres bruits électroniques, ce qui favorise donc la prépondérance du bruit brownien du résonateur.

### 1.3.2.2 Sensibilité de détection

#### Rapport signal à bruit

Le rapport signal à bruit théorique s'écrit donc d'après notre modélisation précédente comme :

$$\text{SNR} = \frac{|\hat{S}(\omega)|}{S_b} \quad (1.69)$$

Le ratio précédent fait intervenir le rapport entre une amplitude d'un signal à une fréquence donnée et la valeur d'un bruit qui s'exprime en moyenne quadratique (rms). On parle alors de rapport signal à bruit à  $1\sigma$ , car l'écart type de la distribution du bruit est égal à l'amplitude du signal. Un signal est donc considéré détectable dès lors qu'il présente une amplitude supérieure à l'écart type du bruit avec cette définition.

Le rapport signal à bruit ne dépend pas du bloc électronique si le bruit brownien est la source de bruit prépondérante du système, et peut se réécrire comme suit :

$$\text{SNR} = \frac{|F_n|}{F_b} \quad (1.70)$$

La technique QEPAS est utilisée en combinaison avec une détection synchrone. Cette dernière permet d'extraire l'amplitude de la réponse à une fréquence particulière du signal qu'elle reçoit en entrée (en l'occurrence la fréquence de résonance du diapason). Ainsi, le bruit qui par nature est aléatoire sera intégré sur un temps donné et l'amplitude du bruit sera alors réduite sur le long terme, améliorant alors le rapport signal à bruit. La bande passante équivalente au bruit  $\Delta f$  (aussi appelée ENBW) que nous avons introduite jusqu'à maintenant a une expression qui dépend des constantes de temps utilisées pour régler la détection synchrone. Si  $H_{LIA}$  désigne la fonction de transfert de la détection synchrone, alors la bande passante équivalente au bruit est donnée par l'équation suivante :

$$2\pi\Delta f = \frac{1}{|H_{LIA}(\omega_n)|^2} \int_0^{+\infty} |H_{LIA}(\omega)|^2 d\omega \quad (1.71)$$

### Normalized Noise Equivalent Absorption (NNEA)

L'expression donnée pour le rapport signal à bruit dépend de la puissance du laser utilisé, de la section efficace d'absorption du gaz et de la bande passante de la détection. Pour caractériser la sensibilité d'un détecteur, une nouvelle grandeur indépendante de ces trois facteurs a été introduite : le NNEA ou Normalized Noise Equivalent Absorption. Par définition, il s'agit de l'absorption minimale détectable en utilisant 1 W de puissance et une bande passante de détection de 1 Hz. Autrement dit, on peut écrire :

$$\text{NNEA} = \frac{\alpha_G P_L}{\text{SNR} \sqrt{\Delta f}} = \frac{\alpha_G P_L}{|V_n|} \frac{V_b}{\sqrt{\Delta f}} \quad (1.72)$$

Le NNEA s'exprime en  $\text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  et constitue donc une valeur à  $1\sigma$  d'après notre définition du rapport signal à bruit. Une autre expression peut s'écrire dans le cas où le bruit brownien est la source de bruit prépondérante :

$$\text{NNEA} = \frac{\alpha_G P_L}{|F_n|} \frac{F_b}{\sqrt{\Delta f}} \quad (1.73)$$

Le NNEA présente une limitation : il dépend du temps de relaxation du gaz et de la méthode de modulation utilisée (voir équation 1.12). Cette limitation apparaît notamment sur les expériences récentes dans le domaine du Terahertz, où des gains de NNEA importants sont attribués au temps de relaxation rapide des gaz (SPAGNOLO, Pietro PATIMISCO, PENNETTA et al. 2015). Nous reviendrons plus tard sur une proposition pour lever cette limitation. Ainsi, le NNEA ne dépendrait plus du gaz sondé. En revanche, il dépendrait toujours du gaz majoritaire contenant l'espèce à détecter, qui influe sur l'amplitude de l'onde de pression et de la force photoacoustique par l'intermédiaire de la célérité du son ou encore de la densité.

On constate que le SNR ou le NNEA ne dépendent pas de la méthode de détection du mouvement utilisée. Pour la piézoélectricité en particulier, l'efficacité de la collection des charges générées par la piézoélectricité n'aura pas d'impact. En pratique, il faut simplement veiller à ce que l'électronique de détection ne dégrade le SNR avec un bruit supérieur à celui du bruit brownien du résonateur.

### Détection minimale

D'après les équations précédentes, un temps d'intégration infini conduit à un NNEA nul puisque  $F_b$  est proportionnel à  $\Delta f$ . En pratique, les évolutions des paramètres physiques sur le long terme sont source de variabilité, si bien que le NNEA augmente avec le temps d'intégration. L'étude de la variance d'Allan est en général utilisée pour étudier ces variabilités de long terme.

### 1.3.3 Extension au cas particulier du diapason

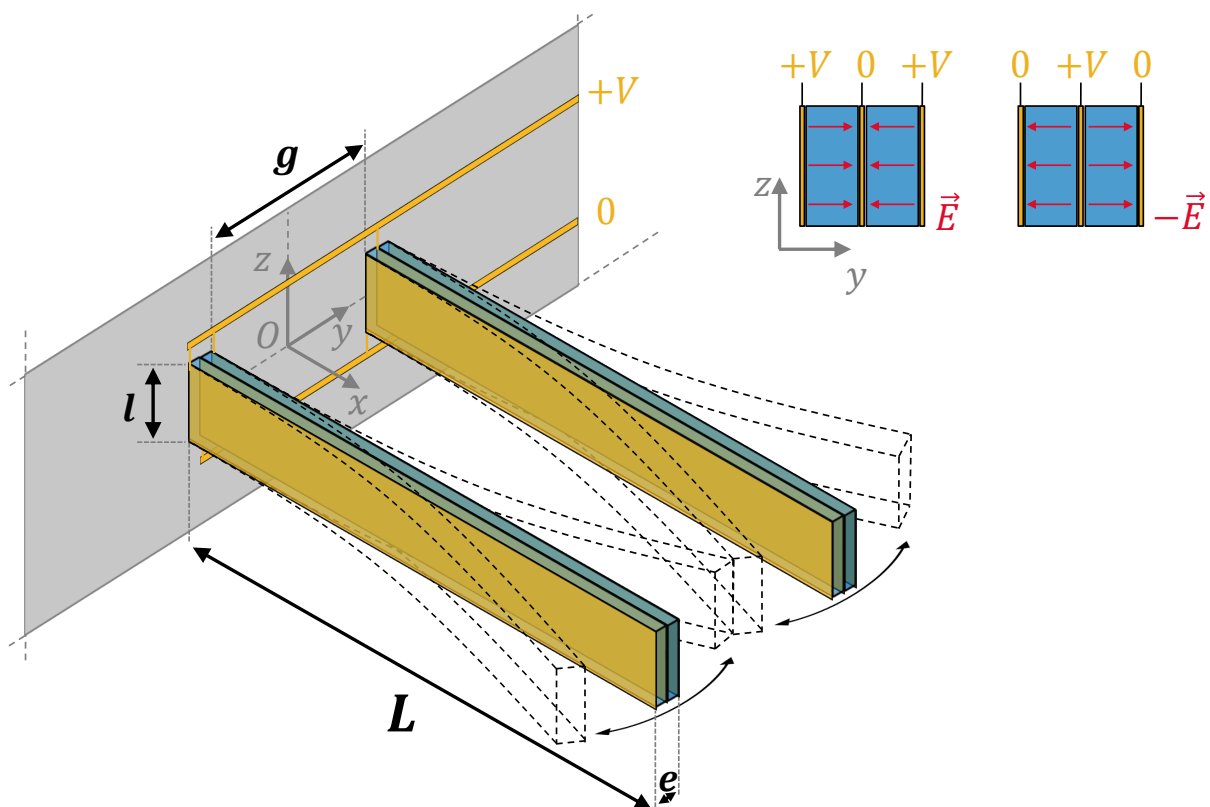


FIGURE 1.11 – Schéma d'un diapason encastré-libre.

Le cas du diapason s'obtient très facilement à partir des résultats précédents. On considère une deuxième poutre en flexion, symétrique à celle présentée précédemment par rapport au plan  $y = 0$ . La distance intérieure entre les deux branches  $g$  vérifie donc  $g = 2d$ .

## Champ de pression et déplacement

On ne considèrera que les modes propres symétriques, seuls capables d'être fortement résonants. Dans ce cas, chacune des deux branches est toujours correctement modélisée par l'équation du mouvement de la poutre simple. La seule chose susceptible de changer est la force d'excitation, autrement dit le champ de pression qui s'exerce sur les poutres.

Dans le cadre de notre premier modèle développé dans le cadre du QEPAS non résonant, on a négligé l'influence du résonateur pour obtenir la pression dans tout l'espace. Elle reste donc valide dans le cas du diapason, et si le faisceau laser respecte la symétrie, les deux branches ont un comportement identique. Si le faisceau laser ne respecte pas la symétrie, les équations nous montrent que les deux branches ne vibrent plus de manière symétrique puisqu'elles n'ont plus la même amplitude. En pratique, un couplage entre les deux branches passant par le socle de fixation commun rétablit la symétrie, au prix d'une force d'excitation effective par branche inférieure.

Pour le modèle du QEPAS résonant, on a en revanche supposé que le champ acoustique du résonateur était à additionner à celui créé par l'effet photoacoustique. Le cas du diapason est différent du cas de la simple poutre, dans la mesure où quatre sources acoustiques équivalentes sont à considérer (et non deux comme nous l'avons fait pour la poutre simple). Physiquement, le mouvement d'une des deux branches est influencée par son propre champ acoustique rayonné ainsi que celui rayonné par la seconde branche. Dans le cas général, il faudra donc ajouter une seconde constante de couplage modale  $C'_{nm}$  à celle déjà présente  $C_{nm}$ .

Dans la majorité des cas pratiques, le problème acoustique respecte la symétrie du diapason (par exemple, les tubes acoustiques sont centrés sur l'ouverture en configuration On Beam) et implique donc  $C'_{nm} = C_{nm}$ . Il suffit donc simplement de multiplier le couplage  $C_{nm}$  par 2 pour obtenir le mouvement de l'une des deux branches du diapason.

## L'équivalence électrique

Dans le cas du diapason, deux poutres sont en opposition de phase, c'est pourquoi les électrodes déposées à leurs surfaces doivent être combinées judicieusement. Les deux électrodes sur les flancs d'une poutre sont reliées à l'électrode centrale de l'autre poutre, comme représenté sur la figure 1.11. Électriquement, les deux poutres sont donc placées en parallèle, et on en déduit que leur impédance équivalente est  $Z_n/2$ . Les paramètres électriques équivalents du diapason peuvent donc être reliés à ceux d'une poutre simple, avec  $R'_n = R_n/2$ ,  $C'_n = 2C_n$  et  $L'_n = L_n/2$ . D'après l'équation 1.64, on récupère un courant double  $\hat{i}(\omega)$  après le diapason par rapport au cas de la simple poutre, ce qui entraîne un signal double  $2\hat{S}$  en sortie finale du circuit électronique.

### Rapport signal à bruit et NNEA

Le bruit brownien venant de chacune des deux poutres, de par sa nature aléatoire, ne s'additionne qu'en moyenne quadratique. On retrouve cette propriété immédiatement à partir de l'équation 1.66, dans laquelle on remplace la résistance motionnelle de la poutre simple par celle du diapason. La tension équivalente au bruit est donc  $\sqrt{2}$  fois moins importante pour le diapason que pour l'une de ses poutres simples. En sortie, on récupère donc un signal de bruit qui est  $\sqrt{2}$  fois plus important que pour l'une de ses poutres simples (équation 1.68). Le rapport signal à bruit d'un diapason s'écrit donc :

$$\text{SNR} = \frac{\sqrt{2}|V_n|}{V_b} \quad (1.74)$$

Ce gain de  $\sqrt{2}$  par rapport au cas de la poutre simple est cohérent par rapport au travail récent de Ma *et al.* (MA et al. 2015), qui ont mesuré un gain de 1,7 lors de l'utilisation de 2 diapasons commerciaux. Ce résultat se généralise à l'utilisation de  $N$  résonateurs, et le rapport signal à bruit croît en  $\sqrt{N}$ . Le NNEA s'obtient ensuite avec la formule :

$$\text{NNEA} = \frac{\alpha_G P_L}{\text{SNR} \sqrt{\Delta f}} = \frac{\sqrt{2} \alpha_G P_L}{|V_n|} \frac{V_b}{\sqrt{\Delta f}} \quad (1.75)$$

## 1.4 Validation numérique et expérimentale du modèle analytique

### 1.4.1 Présentation des résonateurs

De nombreux résonateurs différents sont intervenus au cours de la thèse, certains pour évaluer l'influence de la forme sur l'amortissement (que nous détaillerons au chapitre 2), et d'autres dans le cadre d'expériences photoacoustiques. Nous les présentons tous dans les deux tableaux ci-dessous, le premier (tableau 1.1) contient tous ceux constitués d'une poutre unique, et le second (tableau 1.2) contient les diapasons au sens large, c'est à dire les résonateurs composés de deux poutres vibrant symétriquement dans un même plan.

Pour chaque résonateur, on présente les caractéristiques géométriques de leurs poutres, conformément aux schémas que l'on a présentés au paragraphe précédent (voir figures 1.8 pour les simples poutres et 1.11 pour les diapasons). La fréquence expérimentale  $f_{vac}$  a été mesurée lorsque le résonateur est placé dans le vide et opéré sur son mode fondamental de flexion ( $n = 0$ ), et  $Q_{vac}$  est le facteur de qualité associé. La condition aux limites "cc" signifie "encastré-encastré", "cf" signifie "encastré-libre" et pp signifie "articulé-articulé" (voir annexe A pour plus de détails).

#### La famille des simples poutres

TABLE 1.1 – Grandeurs caractéristiques des résonateurs simples poutres à disposition. Toutes les dimensions géométriques sont exprimées en millimètres. Le facteur de qualité  $Q_{vac}$  a été mesuré sous vide, et les fréquences de résonance sont exprimées en Hz.

| Nom    | Dénomination             | $l$   | $e$   | $L$  | $f_{vac}$ | $Q_{vac}$ | Type |
|--------|--------------------------|-------|-------|------|-----------|-----------|------|
| RC     | Reflex Couple            | 0,6   | 0,2   | 4,0  | 69950     | 70000     | cc   |
| VIA    | VIA                      | 0,03  | 0,06  | 2,26 | 61780     | 12000     | cc   |
| VIA1.8 | VIA échelle 1,8          | 0,054 | 0,108 | 4,07 | 36090     | 25000     | cc   |
| V4D    | VIG échelle 4, détecteur | 1,8   | 2,0   | 16,0 | 5673      | 240200    | cf   |

V4D est techniquement un diapason, mais il peut être opéré sur son mode fondamental de flexion hors plan grâce à son jeu d'électrodes additionnelles. L'épaisseur de la couche limite de Stokes, définie comme  $\delta_S = 2\pi\sqrt{\frac{2\mu}{\omega\rho_f}}$  et qui mesure la profondeur de pénétration dans le fluide des effets de la viscosité, est largement inférieure à la distance inter-branche  $g = 2$  mm dans l'air à pression atmosphériques ( $\delta_S \approx 0,2$  mm). Chaque branche du diapason se comporte donc bien comme une simple poutre au delà de pressions de 4 kPa.



## La famille des diapasons

Étant donné que les diapasons horlogers commerciaux ont été utilisés pour le QEPAS dans la littérature, quatre d'entre eux ont été caractérisés. D'autres diapasons issus d'études ONERA sont également caractérisés pour diversifier les formes au maximum. Certains résonateurs que nous avons fabriqués, tels que U0 ou encore C1, présentent des facteurs de qualité sous vide variables d'une réalisation à l'autre. Ceci est dû à l'usinage chimique du quartz qui n'est pas toujours parfaitement reproductible en salle blanche. Puisque plusieurs résonateurs ont été mis en œuvre, le facteur de qualité sous vide présenté ici ne constitue qu'une indication et non une mesure valable pour tous.

TABLE 1.2 – Caractéristiques des différents diapasons que nous avons utilisés. Toutes les dimensions géométriques sont exprimées en millimètres. Le facteur de qualité  $Q_{vac}$  a été mesuré sous vide, et les fréquences de résonance sont exprimées en Hz.

| Nom | Dénomination             | $l$  | $e$  | $L$  | $g$  | $Q_{vac}$ | $f_{vac}$ | Type |
|-----|--------------------------|------|------|------|------|-----------|-----------|------|
| TF1 | EuroQuartz MH32768       | 0,34 | 0,6  | 3,75 | 0,31 | 77000     | 32762     | cf   |
| TF2 | Raltron R26              | 0,33 | 0,4  | 3,12 | 0,20 | 120000    | 32772     | cf   |
| TF3 | Fox NC38LF-327           | 0,33 | 0,6  | 3,72 | 0,30 | 35250     | 32763     | cf   |
| TF4 | AEL CrystalsX32K768      | 0,34 | 0,4  | 3,10 | 0,20 | 93500     | 32763     | cf   |
| V1  | VIG échelle 1 pilote     | 0,5  | 0,45 | 4,15 | 0,5  | 300000    | 34000     | cf   |
| V2  | VIG année 1999 échelle 2 | 1,0  | 0,82 | 6,56 | 0,97 | 115176    | 16104     | cf   |
| V4P | VIG échelle 4 pilote     | 2,0  | 1,8  | 16,0 | 2,0  | 176000    | 5617      | cf   |
| U0  | Miniphase                | 0,2  | 5,0  | 20,0 | 0,5  | 217060    | 26212     | pp   |
| U1x | Ultymate axe x           | 2,0  | 7,0  | 32,0 | 2,0  | 140000    | 4910      | cf   |
| U1y | Ultymate axe y           | 2,0  | 7,0  | 32,0 | 2,0  | 150000    | 5500      | cf   |
| C1  | Coupe-Boulon             | 1,0  | 4,0  | 6,8  | 1,0  | 782000    | 42748     | cf   |
| C2  | Coupe-Boulon échelle 2   | 2,0  | 8,0  | 13,6 | 2,0  | 150000    | 21231     | cf   |

## Paramètres équivalents

On se propose de calculer les paramètres électriques équivalents de quelques uns des résonateurs que nous venons de présenter. Le facteur de qualité sous vide, nécessaire pour calculer les paramètres d'amortissement équivalent, est extrait des mesures présentées dans le tableau 1.2.

On constate que le modèle d'Euler-Bernoulli, qui permet de calculer la fréquence de résonance, n'est pas toujours exact. L'accord n'est pas bon pour le résonateur C1 en

TABLE 1.3 – Paramètres électriques équivalents des résonateurs. Les valeurs expérimentales mesurées à l’aide d’un analyseur d’impédance sont surlignées en couleur, tandis que les valeurs analytiques obtenues avec une configuration d’électrodes idéales sont laissées sur fond blanc.

| Nom | $f_{vac}$ (Hz) | $R_0$ ( $\Omega$ ) | $L_0$ (H)   | $C_0$ (F)       | $C_i$ (F)       |
|-----|----------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| V2  | 17588          | 1,36 $10^4$        | 1,42 $10^4$ | 5,76 $10^{-15}$ | 1,26 $10^{-12}$ |
|     | 16104          | 2,71 $10^6$        | 5,77 $10^6$ | 3,17 $10^{-17}$ | 3,36 $10^{-13}$ |
| U0  | 32387          | 2,96 $10^4$        | 3,15 $10^4$ | 7,66 $10^{-16}$ | 1,26 $10^{-13}$ |
|     | 26212          | 7,25 $10^3$        | 9,55 $10^3$ | 3,86 $10^{-15}$ | 6,61 $10^{-12}$ |
| V4P | 6490           | 1,09 $10^4$        | 4,70 $10^4$ | 1,28 $10^{-14}$ | 2,81 $10^{-12}$ |
|     | 5617           | 5,50 $10^5$        | 2,74 $10^6$ | 2,93 $10^{-16}$ | 5,85 $10^{-12}$ |
| C1  | 79848          | 2,08 $10^3$        | 3,24 $10^3$ | 1,22 $10^{-15}$ | 2,69 $10^{-13}$ |
|     | 42748          | 1,28 $10^3$        | 3,72 $10^3$ | 3,72 $10^{-15}$ | 1,53 $10^{-10}$ |
| TF1 | 39488          | 3,42 $10^4$        | 1,06 $10^4$ | 1,53 $10^{-15}$ | 3,35 $10^{-13}$ |
|     | 32762          | 1,79 $10^4$        | 6,24 $10^3$ | 3,78 $10^{-15}$ | 2,32 $10^{-12}$ |

particulier, ce qui est prévisible puisque ce diapason s’écarte fortement de l’hypothèse  $e, l \ll L$  nécessaire au modèle. Le résonateur U0 s’écarte de 50% par rapport à sa valeur théorique, ce qui est dû ici aussi à une mise en défaut de l’hypothèse sur l’allongement ainsi que des conditions de fixations qui ne sont pas exactement de type articulé-articulé.

Concernant les électrodes, seul le diapason commercial possède un jeu d’électrodes proche de notre hypothèse de la configuration idéale. Pour les autres, elle n’a en général rien à voir. Cela explique en partie pourquoi les valeurs données par l’analyseur d’impédance n’ont rien à voir avec les prédictions de notre modèle. La seconde raison vient du fait que la résistance motionnelle est définie à une constante près (celle de normalisation des déformées), et les paramètres équivalents ne sont donc pas univoques. Il est donc normal que les valeurs mesurées et calculées n’aient rien en commun.

Pour les résonateurs ne respectant pas les hypothèse d’Euler-Bernoulli ou dont les électrodes sont trop différentes du cas idéal, seul un recours aux éléments finis permet de calculer précisément les paramètres. Toutefois, on rappelle que le rapport signal à bruit du capteur ne dépend pas de ces paramètres électriques.

### 1.4.2 Étude de l’influence de la position du faisceau

Nous allons maintenant étudier l’influence de l’altitude du faisceau laser  $h$  le long de l’axe  $x$  entre les branches des diapasons. Le protocole expérimental est détaillé dans le paragraphe 1.4.4 ci-après.

## Le diapason TF1

Considérons le diapason TF1 dont les caractéristiques sont données dans le tableau 1.2. On obtient les résultats montrés sur la figure 1.12, sachant que simulation et expérience ont été toutes deux normalisées indépendamment.

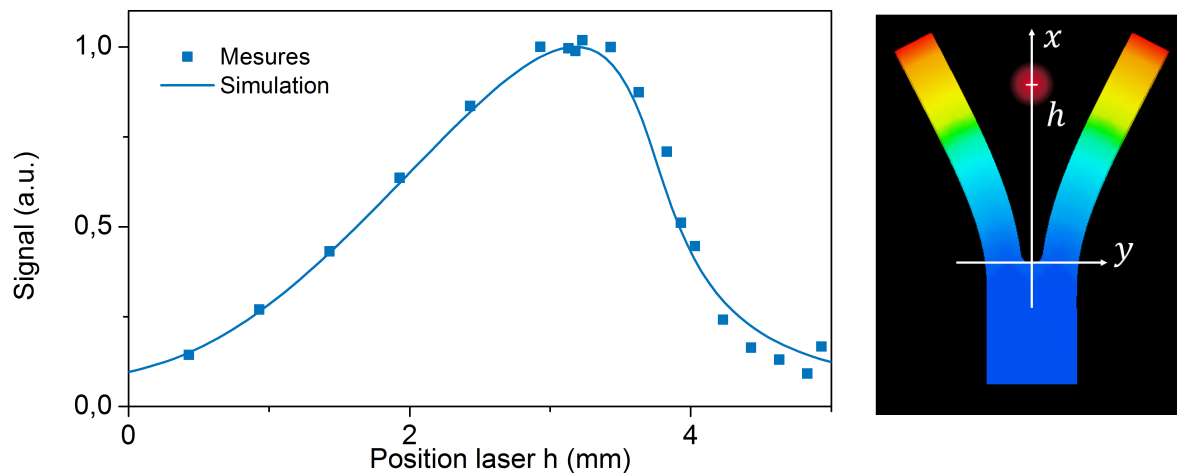


FIGURE 1.12 – Influence de l'altitude du faisceau laser  $h$  sur le signal piézoélectrique généré par le diapason TF1.

On retrouve bien un résultat similaire à celui de Petra *et al.* (PETRA *et al.* 2009), et qui décrit très bien les observations réalisées.

Étant donné que les branches du diapason TF1 ne mesurent que  $L = 3,75$  mm, on voit sur la figure 1.12 qu'il existe une position d'excitation optimale située à 85% de la hauteur totale. Au delà, une partie trop importante de l'onde de pression est inutile car radiée au dessus des branches. En deçà, l'excitation est moins efficace car le bras de levier est réduit, conformément à l'expression de la force qui est pondérée par la déformée (équation 1.38).

## Le diapason U0

On considère maintenant un autre type de fixation pour le diapason : le cas articulé-articulé avec le diapason U0. Les résultats expérimentaux de la figure 1.13 n'ont pas été obtenus par une excitation photoacoustique, mais en approchant la sortie d'une fibre optique au centre de l'entre-branches. L'absorption résiduelle qui a lieu au niveau de l'embout de sortie est suffisant pour générer un champ acoustique très similaire à celui d'une excitation photoacoustique.

Ce cas articulé-articulé est plus simple que le diapason encastré-libre, dans la mesure où la symétrie des conditions de fixations se retrouve sur l'excitation photoacoustique. Par conséquent, il est naturel que l'excitation optimale se situe ici au centre des branches.

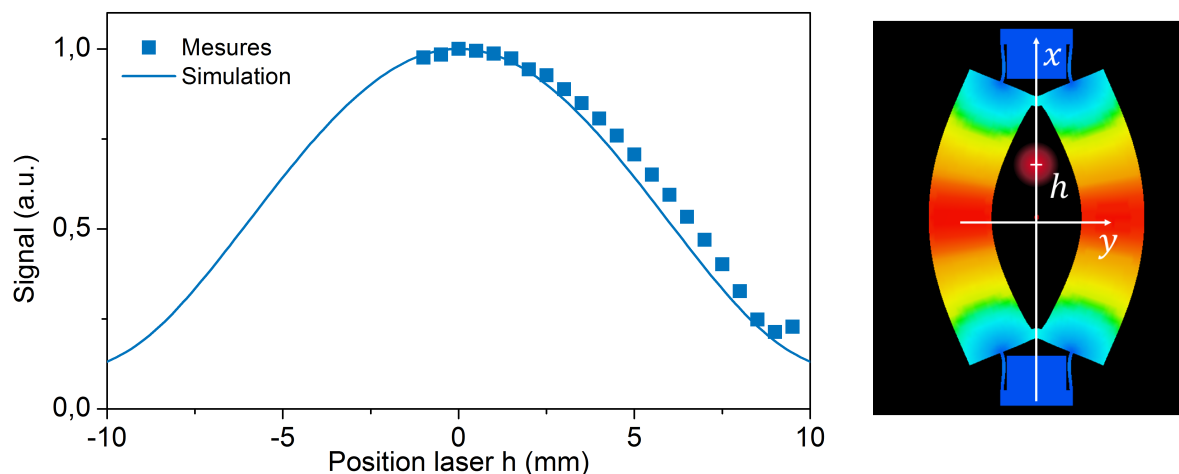


FIGURE 1.13 – Influence de l'altitude du faisceau laser  $h$  sur le signal piézoélectrique généré par le diapason U0.

### L'effet électrode

Lorsque le QEPAS est utilisé en modulant la puissance  $P_L(t)$  à la fréquence  $f_0$ , à une longueur d'onde fixe, un fond cohérent important peut apparaître dès lors qu'une partie, même infime, du faisceau laser touche les branches du diapason.

Un comportement étrange a été observé sur le diapason TF4 lorsqu'un faisceau laser de longueur d'onde  $\lambda_L = 1,54 \mu\text{m}$  est focalisé sur les branches. La focalisation a lieu au niveau d'une des faces internes de l'entre-branche du diapason, et on balaye sa position sur la hauteur du diapason. Les résultats comparés avec le diapason TF1 sont montrés sur la figure 1.14.

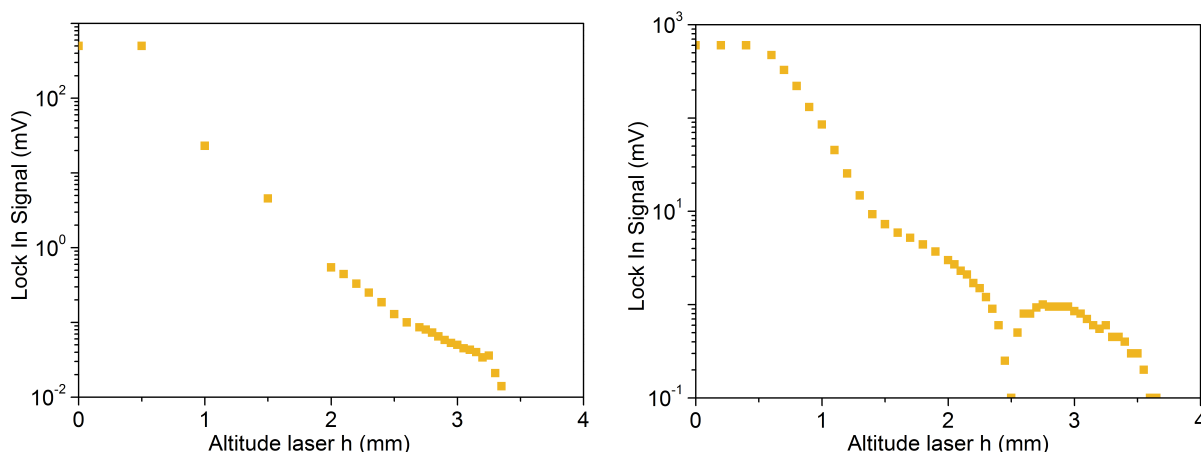


FIGURE 1.14 – Influence de l'altitude du faisceau laser  $h$  sur le fond créé par l'absorption du laser par les branches du diapason a) TF1 et b) TF4.

Sur la figure 1.14, on constate la même tendance pour les deux diapasons, qui montre que plus l'impact du laser est proche de la zone commune de fixation ( $h = 0$ ), plus l'excitation est efficace. Contrairement à l'effet photoacoustique, l'excitation est donc

optimale là où la contrainte générée par le mouvement des branches du diapason est maximale. Le résonateur TF4 présente cependant une annulation remarquable de son excitation autour de  $h = 2,5$  mm, effet qui n'est pas visible pour le diapason TF1. Ce phénomène est extrêmement piqué, et aboutit même à une zone très fine sur laquelle le diapason n'est plus excité. Notre système de positionnement permet d'obtenir un point tous les  $50 \mu\text{m}$ , et pourtant une description fine de l'effondrement n'est pas possible.

En regardant en détail le diapason TF4, on s'aperçoit qu'une interface électrode/quartz est située à cet endroit, et que le laser illumine donc une zone sans électrode et une zone avec une électrode simultanément. On peut alors interpréter ce phénomène sur la base de cette observation. A l'interface électrode/quartz, une partie du faisceau traverse le quartz et une partie illumine l'électrode qui absorbe le faisceau. En effet, l'électrode métallique absorbe très rapidement la radiation qui ne peut pas la traverser. L'absorption du laser par le quartz constitue, elle, une excitation volumique du diapason, alors que l'absorption par l'électrode constitue une absorption surfacique. Nous suspectons ces forces d'être en opposition de phase, si bien que les deux types d'absorption peuvent produire des effets qui interfèrent. Aucune mention de cet effet n'a été trouvée dans la littérature, même s'il peut se deviner sur certaines mesures expérimentales rapportées par exemple dans les expériences de Spajer *et al.* (SPAJER *et al.* 2013). La rapidité de l'effondrement est en outre compatible avec la taille du faisceau lors de l'interaction avec le diapason.

Cet effet, s'il se confirmait par la suite sur d'autres résonateurs du type TF4, pourrait offrir des avantages uniques pour la technique QEPAS. En effet, l'absorption du laser par le diapason est une source importante de bruit de la mesure, surtout lorsqu'un schéma en modulation de puissance à la fréquence de résonance du diapason est utilisé. Il est parfois très difficile d'éviter le contact avec le diapason, surtout avec l'emploi de grandes longueurs d'onde. On peut donc imaginer positionner judicieusement les électrodes à la surface du quartz pour exploiter cet effet, et le fait de toucher les branches ne serait plus source de bruit.

### 1.4.3 Étude du bruit

On a effectué des mesures de bruit thermique sur les cartes électroniques comportant les composants du bloc électronique décrit précédemment. Ces mesures sont faites dans l'air ambiant, pour être certain que notre circuit est bien limité par le bruit brownien du résonateur et non par les éléments du circuit de détection.

Un diapason TF1 est utilisé, légèrement différent de celui présenté dans le tableau 1.2 en ce que son facteur de qualité dans le vide est mesuré à  $Q_{vac} = 71000$  au lieu de  $Q_{vac} = 77000$ . Une fois mis en vibration dans l'air dans des conditions normales de pression et de température, on mesure une fréquence de résonance de  $f_0 = 32756$  Hz et  $Q = 12300$ . Le gain de l'AO différentiel est réglé à  $G_f = 300$ .

La résistance motionnelle est mesurée à  $R_m = 1,08 \cdot 10^5 \Omega$  dans l'air par notre analyseur d'impédance, alors que le modèle théorique prédit  $R_m = 1,37 \cdot 10^5 \Omega$ . Ces valeurs sont

proches à priori, mais on rappelle que le coefficient de rendement piézoélectrique  $c_p$  est défini à une constante de normalisation près, et par conséquent on ne peut pas les comparer directement. La valeur de la densité spectrale de bruit finale dépend bien de l'efficacité piézoélectrique mais pas de la normalisation choisie. On montre sur la figure 1.15 une comparaison entre notre modèle et une mesure à l'analyseur de spectre.

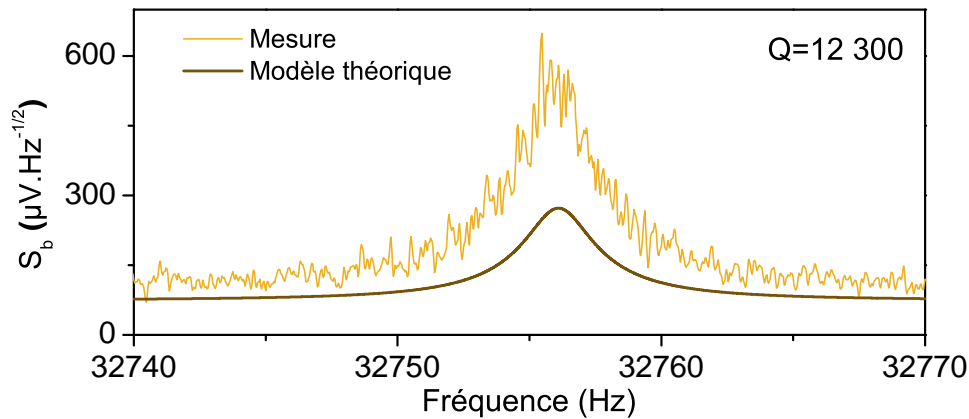


FIGURE 1.15 – Comparaison entre notre modèle analytique et l'expérience pour la densité spectrale de bruit observée avant la détection synchrone pour le diapason TF1.

On observe bien la résonance du diapason sur le spectre de bruit, ce qui montre bien qu'il représente la source principale de bruit lorsqu'il est opéré à sa résonance.

L'écart en amplitude observé entre notre modèle et l'expérience a deux origines. D'une part, on peut voir hors de la résonance du diapason que le niveau de bruit n'est pas parfaitement en accord avec la simulation. Ainsi, le gain électronique total est sous-estimé, et explique donc en partie pourquoi la densité spectrale de bruit à la résonance est légèrement sous-estimée. D'autre part, la configuration des électrodes dans le cas de TF1 est proche du cas idéal dont nous avons tiré nos expressions analytiques, mais pas identique. Une erreur peu donc également intervenir à ce niveau.

Dans tous les cas, ces deux sources de désaccord n'impactent presque pas la valeur du rapport signal à bruit ni du NNEA attendu pour une expérience de photoacoustique, puisque ces grandeurs ne dépendent ni de l'efficacité piézoélectrique ni du gain électronique lorsque le bruit brownien du résonateur est prépondérant.

#### 1.4.4 Expérience photoacoustique typique et ordres de grandeur

On va maintenant effectuer une expérience type de photoacoustique pour évaluer notre modèle. Seuls les paramètres clés de l'expérience sont donnés ci-dessous, et le dispositif expérimental exact sera détaillé au chapitre 3.

##### La source cohérente

Pour mettre en œuvre le modèle, on supposera que l'épaisseur des diapasons est très faible devant la longueur de Rayleigh du laser. Par conséquent, on peut supposer que le

rayon du faisceau laser  $w_L$  est constant sur toute l'épaisseur du diapason, et qu'il ne dépend pas de  $z$ . On peut ainsi utiliser l'expression simplifiée de la pression photoacoustique dans tout l'espace que nous avons calculée (équation 1.19).

On supposera que l'on dispose d'un laser de puissance moyenne typique  $P_L = 17$  mW, de longueur d'onde centrale  $\lambda_L = 1,54$   $\mu\text{m}$  (nombre d'onde correspondant  $k_L = 6490$   $\text{cm}^{-1}$ ) et dont la taille typique lorsqu'il passe entre les branches de nos diapasons est de  $w_L = 50$   $\mu\text{m}$ . On suppose que la puissance est modulée à la fréquence  $f_0$  de manière purement sinusoïdale.

## Le mélange gazeux

On considère un gaz composé exclusivement de  $\text{CO}_2$  à pression atmosphérique, avec éventuellement de la vapeur d'eau. La densité de ce gaz est alors de  $\rho_f \approx 1,87$   $\text{kg.m}^{-3}$ , sa viscosité est de  $\mu \approx 1,37$   $10^{-5}$  Pa.s et la célérité du son est de  $v \approx 260$   $\text{m.s}^{-1}$ .

D'après la base de donnée HITRAN2012, le  $\text{CO}_2$  présente un pic d'absorption situé à  $k = 6490,05$   $\text{cm}^{-1}$ , et l'absorption calculée est de  $\alpha_G = 1,36$   $10^{-4}$   $\text{cm}^{-1}$ . L'humidité relative présente dans l'enceinte de gaz n'est pas connue avec précision, mais on mesure typiquement entre 15% et 20% d'humidité relative. Cette donnée est importante puisqu'elle peut modifier significativement le temps de relaxation  $\tau_{V-T}$  du gaz. Il a été montré que le temps de relaxation du  $\text{CO}_2$  à pression atmosphérique pour  $\lambda_L = 2$   $\mu\text{m}$  est de l'ordre de  $\tau_{V-T} \approx 0,1$   $\mu\text{s}$  dès que l'humidité relative dépasse quelques % (WYSOCKI et al. 2006). On peut donc raisonnablement estimer dans notre cas que l'on a également ces valeurs. Ainsi, le temps de relaxation ne réduira pas l'effet photoacoustique (voir équation 1.12), car  $\tau_{V-T}$  est négligeable devant la période de la modulation.

## L'électronique de détection

L'amplificateur opérationnel utilisé pour amplifier les signaux piézoélectriques issus du diapason sera un AD8066. Ce dernier est caractérisé par un bruit de  $V_{AO} = 7$   $\text{nV.Hz}^{-1/2}$  d'après les données constructeur. Les résistances et capacités de retour  $R_f$  et  $C_f$  valent respectivement  $R_f = 2,2$   $\text{M}\Omega$  et  $C_f = 1$   $\text{pF}$ .

L'amplificateur opérationnel différentiel, qui somme les tensions amplifiées issues des deux branches sera un AD620. Le gain final  $G_f$  sera pris égal à 300 dans cette mise en œuvre.

Nous utiliserons une détection synchrone Stanford Research Systems SR530, qui possède deux temps d'intégration distincts :  $\tau_{PRE}$  et  $\tau_{POST}$ . Il s'agit des constantes de temps des deux filtres d'ordre 1 utilisés pour filtrer le signal. La fonction de transfert de cette détection synchrone s'écrit donc :

$$H_{LIA} = \frac{1}{1 + j\omega\tau_{PRE}} \times \frac{1}{1 + j\omega\tau_{POST}} \quad (1.76)$$

On en déduit la bande passante au cours de nos expériences à l'aide de l'équation 1.71 :

$$\Delta f = \frac{1}{4(\tau_{PRE} + \tau_{POST})} \quad (1.77)$$

Les constantes de temps de la détections synchrone sont choisies comme  $\tau_{PRE} = 3$  s et  $\tau_{POST} = 1$  s, ce qui correspond à une bande passante de  $\Delta f = 0,0625$  Hz.

### Ordres de grandeur typiques

En utilisant les paramètres précédents pour une expérience photoacoustique avec TF1 (la situation est montrée sur la figure 1.16), on propose de donner les ordres de grandeur des différentes quantités intervenant au cours du processus photoacoustique et de les comparer à la mesure expérimentale.

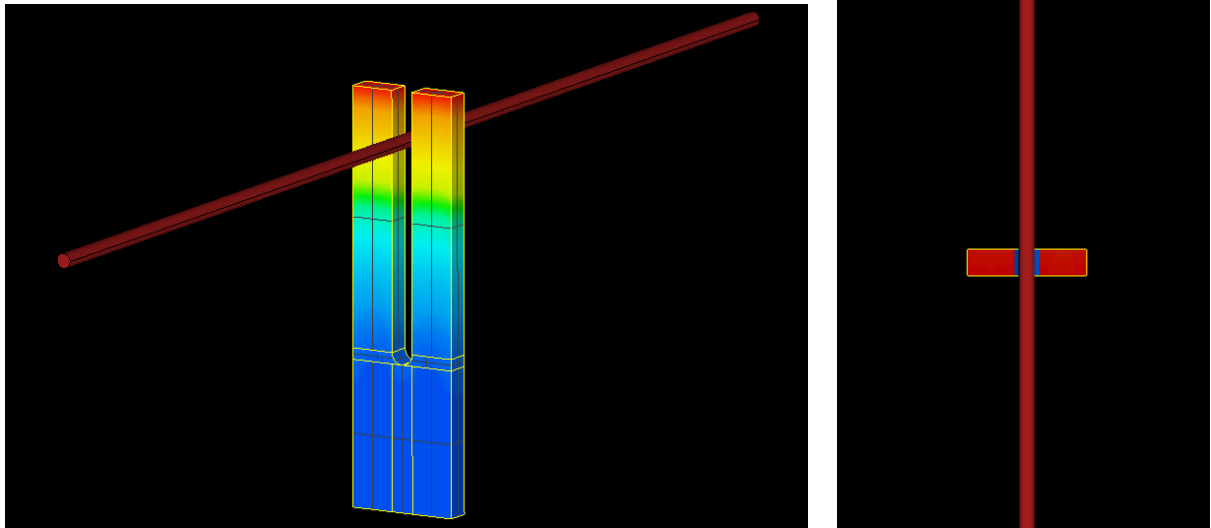


FIGURE 1.16 – Le diapason commercial TF1 modélisé à l'aide d'OOFELIE. A gauche, on présente la configuration QEPAS choisie, et à droite on montre une vue de dessus du dispositif. Le rayon du cylindre laser rouge représenté est deux fois plus important que le waist du laser ( $R = 2w_L$ ).

Le modèle semi-analytique proposé dans le tableau de comparaison 1.4 utilise l'expression analytique du bruit que nous avons dérivée précédemment, mais simule numériquement le déplacement réel des branches du diapason à l'aide du logiciel de simulation par éléments finis OOFELIE. Les couleurs du diapason matérialisent l'amplitude du déplacement, avec en bleu l'absence de mouvement et en rouge le mouvement maximal. L'utilisation d'OOFELIE vise à calculer par une méthode numérique l'interaction vibroacoustique, de manière à obtenir le déplacement maximal des branches  $\hat{W}_{OO}$  numériquement. Ensuite, le déplacement obtenu permet de corriger la force photoacoustique qui agit sur la poutre dans le cadre de notre modèle analytique suivant la formule :



$$F_{n,OO} = F_n \times \frac{Q_{Analytique}}{Q_{OO}} \times \frac{\hat{W}_{OO}}{\hat{W}_{Analytique}} \quad (1.78)$$

La manière de calculer analytiquement la fréquence de résonance au sein du fluide ainsi que la prédiction du facteur de qualité sera détaillée dans le chapitre suivant. En particulier, on a utilisé la fréquence de résonance observée en pratique plutôt que celle prévue par le formalisme d'Euler-Bernoulli, dans la mesure où ce dernier peut induire des écarts importants. On fera également attention au fait que les détections synchrones affichent généralement l'amplitude des signaux en Volts rms, ainsi il faut multiplier par  $\sqrt{2}$  pour récupérer la valeur de l'amplitude du signal pour la valeur expérimentale.

TABLE 1.4 – Ordres de grandeur des quantités physiques intervenant au cours du processus photoacoustique avec le diapason TF1, dans du  $CO_2$  pur avec un laser émettant à  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$ .

| Grandeur  | Analytique            | Semi Analytique       | Expérience           |
|---|-----------------------|-----------------------|----------------------|
| Caractéristiques du laser                                       |                       |                       |                      |
| Puissance $P_L$ (mW)  | 17                    | 17                    | 17                   |
| Caractéristiques de résonance dans le fluide                    |                       |                       |                      |
| Fréquence $f_0$ (Hz)  | 32762                 | 32757                 | 32756                |
| Facteur de qualité $Q$  | 14567                 | 9870                  | 10900                |
| Coefficient $c_p$ ( $C.m^{-1}$ )                                | $1,38 \cdot 10^{-5}$  | -                     | -                    |
| Caractéristiques du bruit                                       |                       |                       |                      |
| Densité $F_b/\sqrt{\Delta f}$ (Nrms.Hz $^{-1/2}$ )              | $6,81 \cdot 10^{-13}$ | $8,27 \cdot 10^{-13}$ | -                    |
| Densité $V_b/\sqrt{\Delta f}$ (Vrms.Hz $^{-1/2}$ )              | $4,92 \cdot 10^{-8}$  | $5,97 \cdot 10^{-8}$  | $4,25 \cdot 10^{-4}$ |
| Bruit Lock-In $S_b$ (Vrms)                                      | $7,39 \cdot 10^{-5}$  | $8,97 \cdot 10^{-5}$  | $1,06 \cdot 10^{-4}$ |
| Caractéristiques du signal photoacoustique                      |                       |                       |                      |
| Position optimale $h/L$ (%)                                     | 85                    | 85                    | 85                   |
| Pression maximale $\hat{P}(h,g/2)$ (Pa)                         | $7,03 \cdot 10^{-5}$  | $3,00 \cdot 10^{-4}$  | -                    |
| Déplacement maximal $\max_x(\hat{W})$ (m)                       | $1,16 \cdot 10^{-11}$ | $1,35 \cdot 10^{-11}$ | -                    |
| Force photoacoustique $F_n$ (N)                                 | $3,43 \cdot 10^{-11}$ | $5,89 \cdot 10^{-11}$ | -                    |
| Voltage photoacoustique $V_n$ (V)                               | $2,48 \cdot 10^{-6}$  | $4,26 \cdot 10^{-6}$  | -                    |
| Voltage Lock-In $ \hat{S} $ (V)                                 | $1,99 \cdot 10^{-2}$  | $3,41 \cdot 10^{-2}$  | $2,76 \cdot 10^{-2}$ |
| Phase Lock-In $\arg(\hat{S})$ ( $^\circ$ )                      | -81                   | -83                   | -81                  |
| Caractéristiques du capteur                                     |                       |                       |                      |
| Rapport signal à bruit  | 270                   | 380                   | 260                  |
| NNEA ( $\text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ) | $3,43 \cdot 10^{-8}$  | $2,43 \cdot 10^{-8}$  | $3,56 \cdot 10^{-8}$ |

On voit clairement d'après le tableau précédent que la valeur du NNEA d'un diapason employé pour le QEPAS est le résultat d'une chaîne complexe de facteurs, et il est difficile d'isoler leur importance relative.

En corrigeant la valeur analytique prévue du tableau 1.4 pour prendre en compte le facteur de qualité effectivement mesuré, on obtient la valeur de  $\text{NNEA} = 3,97 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  pour le modèle analytique. La théorie analytique est donc en très bon accord avec l'expérience. Un écart de l'ordre de 2 entre la modélisation analytique et l'expérience avait été annoncé par Petra *et al.* (PETRA *et al.* 2009), sans que la cause d'un tel écart ait pu être expliquée. Nous ne retrouvons pas cet écart. A l'aide du calcul par éléments finis, la valeur corrigée du modèle semi-analytique donne une valeur de  $\text{NNEA} = 2,31 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ , et fait donc apparaître un facteur d'environ 1,6 avec l'expérience.

Pour mieux comprendre l'origine de la valeur numériquement calculée, on trace sur la figure 1.17 l'amplitude de l'onde de pression le long de l'axe laser  $z$ .

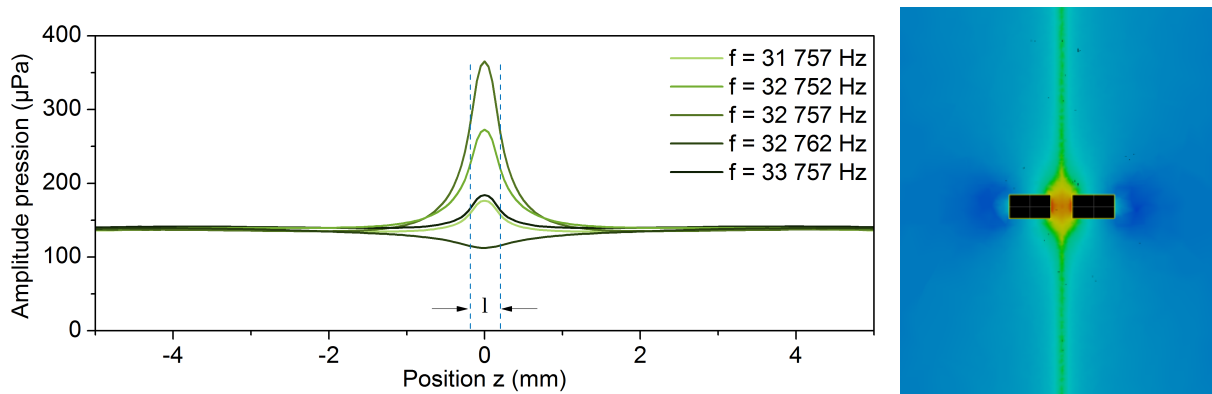


FIGURE 1.17 – Simulation OOFELIE de l'amplitude de l'onde de pression. A gauche, en fonction de la position  $z$  (le long de l'axe laser) à une distance  $R = w_L = 50 \mu\text{m}$  du centre du faisceau, pour différentes valeurs de la fréquence de l'excitation photoacoustique. La fréquence de résonance du diapason est de  $f_0 = 32757 \text{ Hz}$ . A droite, coupe horizontale dans le plan  $x = h$  de l'amplitude de l'onde de pression, avec une nette zone de surpression au milieu des deux branches (qui apparaissent comme des rectangles noirs).

On s'aperçoit que l'onde de pression n'est pas conforme à l'hypothèse centrale de notre modèle analytique, qui veut que le champ de pression ne soit pas modifié par la présence du diapason. En particulier, il règne entre les branches une pression qui peut être par endroits jusqu'à 4 fois supérieure à celle prédite par le modèle analytique.

Cette amplification est en partie liée à la réflexion des ondes qui intervient contre les flancs intérieurs du diapason. Loin de la résonance du diapason (à  $f = 33757 \text{ Hz}$  par exemple), on voit sur la figure 1.17 que la courbe présente une surpression maximale entre les deux branches de l'ordre de 40% par rapport à la valeur obtenue loin du diapason. Cette augmentation peut s'expliquer par une forme de résonance acoustique qui intervient dans la cavité ouverte que forme l'intérieur des branches du diapason.

En plus de cet effet de résonance acoustique, on constate une forte dépendance du facteur d'amplification par rapport à la fréquence autour de la résonance du diapason. Autour de la fréquence de résonance  $f_0 = 32757$  Hz, le mouvement du diapason constitue une source acoustique qui vient s'ajouter à la source photoacoustique. Cette source additionnelle ajoute une contribution en phase pour les fréquences inférieures à la fréquence de résonance du diapason, et en opposition de phase au delà, conformément au diagramme de Bode que l'on a montré sur la figure 1.9. Cette remarque explique la surpression à  $f_0 = 32752$  Hz et la dépression à  $f_0 = 32762$  Hz observée sur la figure 1.17. On étudiera plus en détail l'émission acoustique des diapasons dans le chapitre 2.

On explique donc l'écart entre la théorie semi-analytique et l'observation par la présence de ces modulations acoustiques qui interviennent en raison du couplage vibroacoustique. Sur cet exemple, la valeur expérimentale se situe entre les valeurs de nos deux modèles.

### 1.4.5 Influence théorique de tubes acoustiques résonants

On a introduit une nouvelle équation fondamentale de la photoacoustique qui prend en compte pour la première fois le couplage vibroacoustique entre le diapason et le champ acoustique environnant, dans le cadre d'une modélisation analytique. Nous allons maintenant montrer que ce formalisme permet d'expliquer de nombreuses observations réalisées lorsque des tubes acoustiques d'amplification sont utilisés, et qu'il est conforme aux simulations numériques.

#### 1.4.5.1 Simulation numérique du signal photoacoustique

On présente d'abord la nouvelle expérience numérique que l'on va mener pour comprendre la réponse couplée. Pour cette partie, on considère la détection photoacoustique d'un gaz à l'état de traces dans l'air ambiant et non plus une atmosphère faite de  $CO_2$  pur.

#### Paramètres de simulation numérique

On considère une modélisation par éléments finis du diapason TF1 en utilisant OOFELIE (voir annexe C pour plus de détails). Lorsque le diapason est placé dans le vide, on obtient une fréquence de résonance fondamentale  $f_0 = 32766$  Hz, très proche de la fréquence de résonance des diapasons commerciaux typiques qui est de 32768 Hz.

On lui adjoint une paire de tubes de longueur  $L_{mR} = 6,7$  mm chacun. Leurs centres sont positionnés à l'altitude  $x = h = 3,2$  mm et à l'abscisse  $d_{mR} = \pm 20$   $\mu\text{m}$  sur l'axe du laser  $z$ , comme montré sur la figure 1.18. Ils présentent un rayon interne  $R_I = 0,46$  mm et un rayon externe  $R_O = 0,64$  mm, ce qui correspond à des tubes que nous utiliserons dans le chapitre 3 pour des expériences plus détaillées.

Le gaz considéré est un mélange calibré d'une densité de  $\rho_f = 1,2 \text{ kg.m}^{-3}$ , dans lequel la célérité du son est approximativement de  $v = 346 \text{ m.s}^{-1}$ . On supposera un rayon de faisceau laser de  $w_L = 50 \text{ }\mu\text{m}$ , et on supposera que la diffraction est négligeable pour simplifier la simulation. Une source acoustique dont le débit est donné par l'équation 1.16 est utilisée. Pour cette expérience, on utilise un mélange certifié de  $\text{CO}_2$  à hauteur de 2.7% dans du  $\text{N}_2$ , et on sonde sur son pic d'absorption à  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$ . De l'eau est également présente à hauteur de 15% d'humidité relative. HITRAN2012 prédit une absorption linéique de  $\alpha_G = 5 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$  pour cette raie, coefficient que l'on utilise dans le débit acoustique renseigné à OOFELIE. On supposera son temps de relaxation  $\tau_{V-T}$  négligeable. Le laser utilisé aura une puissance moyenne de  $P = 17 \text{ mW}$  modulée de manière sinusoïdale à la fréquence  $f_0$  de résonance du diapason. On rappelle que la viscosité n'est pas prise en compte par OOFELIE, alors qu'elle est pourtant responsable d'un amortissement prépondérant qui explique les facteurs de qualité typiques de  $Q = 10^4$ . On utilisera cette dernière valeur comme amortissement structural du quartz afin de tenir compte artificiellement de la viscosité.

On montre sur la figure 1.18 deux images de la situation modélisée sous OOFELIE. Sur l'image de gauche, on a représenté en rouge le faisceau laser, en gris les tubes additionnels et en couleur le diapason. L'air environnant est transparent. Sur l'image de droite, on présente une vue de dessus du dispositif.

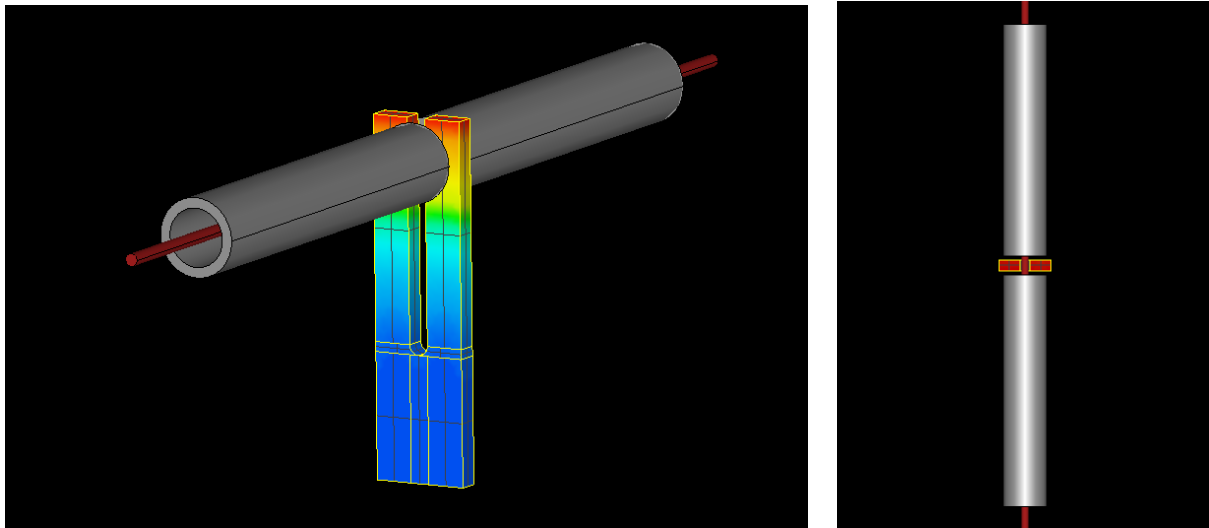


FIGURE 1.18 – Le diapason commercial TF1 modélisé à l'aide d'OOFELIE. À gauche, on présente la configuration On-Beam de QEPAS choisie, et à droite on montre une vue de dessus du dispositif, avec des tubes de longueur  $L_{mR} = 6,7 \text{ mm}$  chacun.

### Mise en place du modèle analytique

Afin de mettre en œuvre notre modélisation analytique dérivée au paragraphe 1.2.2, il nous faut plus d'informations sur le champ acoustique. Une simulation numérique rapide

permet de confirmer visuellement la nature résonante de la pression autour du diapason, comme le montre la figure 1.19.

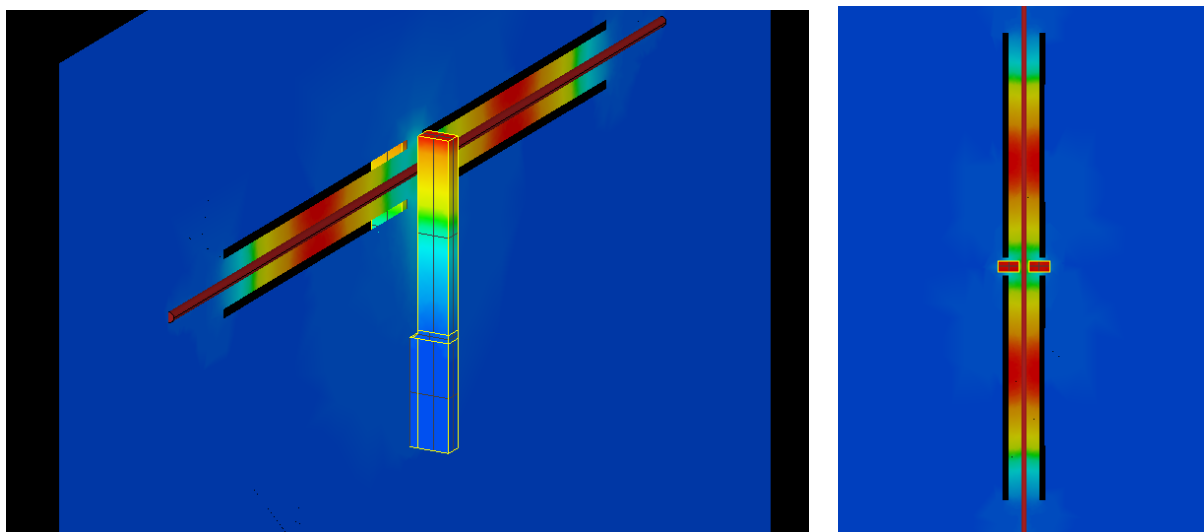


FIGURE 1.19 – Amplitude de la pression simulée à l'aide d'OOFELIE pour le diapason TF1 présenté sur la figure 1.18. Deux plans de visualisation de la pression sont proposés : à gauche le plan  $y = 0$  et à droite le plan  $x = h$ .

Sur la figure 1.19, on voit se dessiner l'allure du mode acoustique de pression qui existe au sein des tubes acoustiques, lorsque l'excitation photoacoustique est effectuée à la fréquence de résonance du diapason. L'échelle de couleur s'étale de zéro pour le bleu à un maximum normalisé à 1 pour le rouge. On remarque que, en dehors des tubes, l'amplitude de la pression est négligeable, et il semble que la pression est non nulle uniquement sur la zone intérieure.

Afin de comparer ces simulations numériques avec notre modèle analytique, nous avons besoin d'une expression de la distribution acoustique  $\hat{P}_m$  pour ensuite calculer les deux coefficients de recouvrement  $O_m$  et  $C_{nm}$ . Cette distribution est complexe et il semble difficile d'obtenir une expression analytique décrivant complètement la situation. Elle n'est cependant pas essentielle pour comprendre un certain nombre de phénomènes, et on se propose de mettre en place un modèle très simplifié pour conserver le raisonnement analytique, quitte à perdre la prédictibilité quantitative. Pour des cas pratiques où l'aspect quantitatif est requis, il faudra donc effectuer une simulation numérique pour obtenir la forme exacte de la distribution de pression.

On définira sous le terme de cavité résonante l'ensemble constitué par l'intérieur des deux tubes ainsi que l'espace situé entre les deux branches du diapason. Sa longueur totale est donc de  $L_t = 2(L_{mR} + \Delta L_{mR} + d_{mR} + l/2)$ , et son volume est de  $V_{cell} = 2\pi R_I^2(L_t - l) + gLl$ . La quantité  $\Delta L_{mR}$  désigne la "correction d'extrémité", et qui est généralement approximée par l'expression  $\Delta L_{mR} \approx 0,6R_I$  (MIKLÓS et al. 2001). La distance  $d_{mR}$  désignera la distance entre le diapason et le tube selon l'axe  $z$ . On supposera cette cavité fermée de manière à pouvoir considérer que la pression est nulle à l'extérieur

de la cavité, par conséquent la pression sera considérée nulle sur le flanc extérieur du diapason.

Comme le diamètre interne des tubes et l'interbranche  $g$  du diapason sont très petits devant la longueur d'onde acoustique ( $\lambda_v = 10,6$  mm), on supposera que le mode propre de pression n'a aucune dépendance selon  $y$  ou  $x$  au sein du milieu résonant. De plus, l'épaisseur  $l$  du diapason est faible devant la longueur d'onde acoustique, et on supposera donc la pression constante entre les deux branches. L'équation des ondes ne conserve donc qu'une dépendance suivant  $z$ , et on peut ainsi en déduire la solution en utilisant la continuité de la pression aux interfaces tubes/interbranche :

$$\hat{P}_m(z) = \sin \left[ \frac{\omega_m}{v} (L_t/2 - |z|) \right] \quad (1.79)$$

Dans l'expression précédente, la pulsation acoustique propre d'intérêt est prise pour  $m = 2$ , et elle s'écrit donc :

$$\omega_2 = 2\pi \frac{v}{L_t} \quad (1.80)$$

Aussi, on a introduit dans notre formalisme analytique un facteur de qualité  $Q_a$  qui correspond au facteur de qualité acoustique de la cavité résonante autour du diapason. En pratique, il est connu que le facteur de qualité  $Q_a$  d'une cavité acoustique dépend entre autres des pertes par radiations acoustiques qui ont lieu au niveau de ses ouvertures, ainsi que de la viscosité et des propriétés thermiques du fluide (LANDAU et LIFSHITZ 1959).

Les pertes par radiations acoustiques sont les seules prises en compte dans OOFELIE grâce à l'utilisation de la PML, et on peut donc obtenir sa valeur en immobilisant le diapason lors d'une première simulation numérique. Dans la situation présente, on obtient  $Q_a = 70$  de cette manière. On utilisera ce facteur de qualité dans notre modèle analytique.

Enfin, dans la mesure où l'on utilise une expression approximée de la distribution de pression, on ajustera le coefficient  $C_{nm}$  qui est un paramètre critique. Ce dernier contrôle le degré de couplage entre le mode mécanique résonant et l'onde acoustique résonante. On utilisera une valeur de  $C_{nm} = 2 \cdot 10^{-4}$  pour toutes les modélisations analytiques à venir.

### Comparaison entre la simulation numérique et le modèle analytique

Le déplacement du bout des branches du résonateur  $\phi_n(L)$ , qui est proportionnel au signal photoacoustique, peut être obtenu en utilisant la formule 1.52 et comparé avec la simulation OOFELIE. On obtient le résultat montré sur la figure 1.20 suivante.

Sur la figure 1.20, la simulation OOFELIE fait nettement apparaître trois résonances distinctes. La première autour de 22 kHz est la résonance acoustique d'intérêt liée aux tubes, celle autour de 32 kHz est due à la résonance du diapason et celle aux alentours de 45 kHz est la seconde harmonique de la première résonance acoustique. Notre modèle analytique reproduit de manière assez fidèle la dépendance en fréquence obtenue numériquement. La position de la première fréquence de résonance acoustique autour de

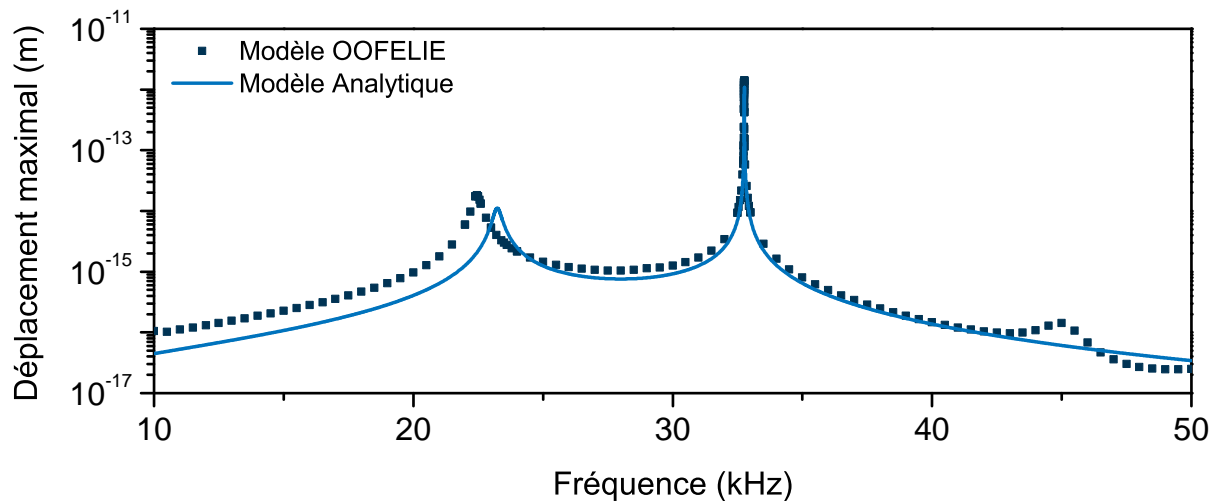


FIGURE 1.20 – Déplacement du bout des branches du diapason TF1 obtenu d’une part à l’aide de OOFELIE et d’autre part à l’aide de notre modèle analytique.

22 kHz n’est pas prédite avec précision, et cela est dû à l’ouverture centrale nécessaire pour l’insertion du diapason. En effet, on a déjà expliqué qu’une "correction d’extrémité" est nécessaire à chaque interface entre un milieu résonant et le milieu extérieur, comme nous l’avons fait à chaque extrémité par l’ajout de  $\Delta L_{mR}$ . L’ouverture centrale rallonge artificiellement la longueur acoustique du tube de la même manière, ce qui a pour effet de diminuer la fréquence de résonance conformément à l’équation 1.80. Puisque notre modèle analytique ne prend en compte le couplage qu’avec un seul mode acoustique, il est normal que la seconde résonance acoustique autour de 45 kHz ne soit pas prévue. Enfin, on voit bien ici la perte de précision quantitative qui découle de notre simplification du modèle, responsable d’un facteur 2 environ.

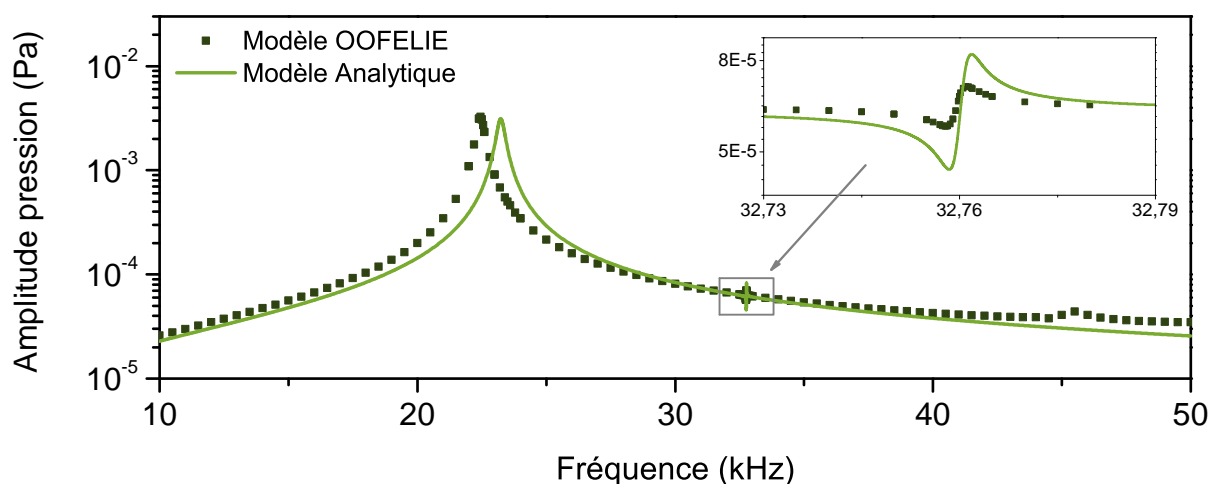


FIGURE 1.21 – Amplitude du mode de pression obtenu d’une part à l’aide de OOFELIE et d’autres part à l’aide de notre modèle analytique.

L’onde de pression obtenue à l’aide de OOFELIE peut également être comparée avec l’expression 1.51 que nous avons obtenue grâce au modèle analytique. Les résultats sont

montrés sur la figure 1.21.

Le décalage en fréquence du lieu de la résonance acoustique se retrouve naturellement sur l'amplitude de la pression (figure 1.21). On voit que le diapason a tout de même une influence sur l'amplitude du mode de pression, même si la perturbation est relativement faible. C'est une caractéristique que l'on retrouve bien sur OOFELIE même si l'amplitude de la perturbation prédite y est plus réduite.

#### 1.4.5.2 Influence de la longueur et du diamètre interne

Maintenant que l'on a validé l'allure du modèle pour une longueur et un diamètre interne de tube donné, il est intéressant d'étudier la dépendance du signal photoacoustique par rapport à ces deux paramètres.

##### Influence de la longueur des tubes $L_{mR}$

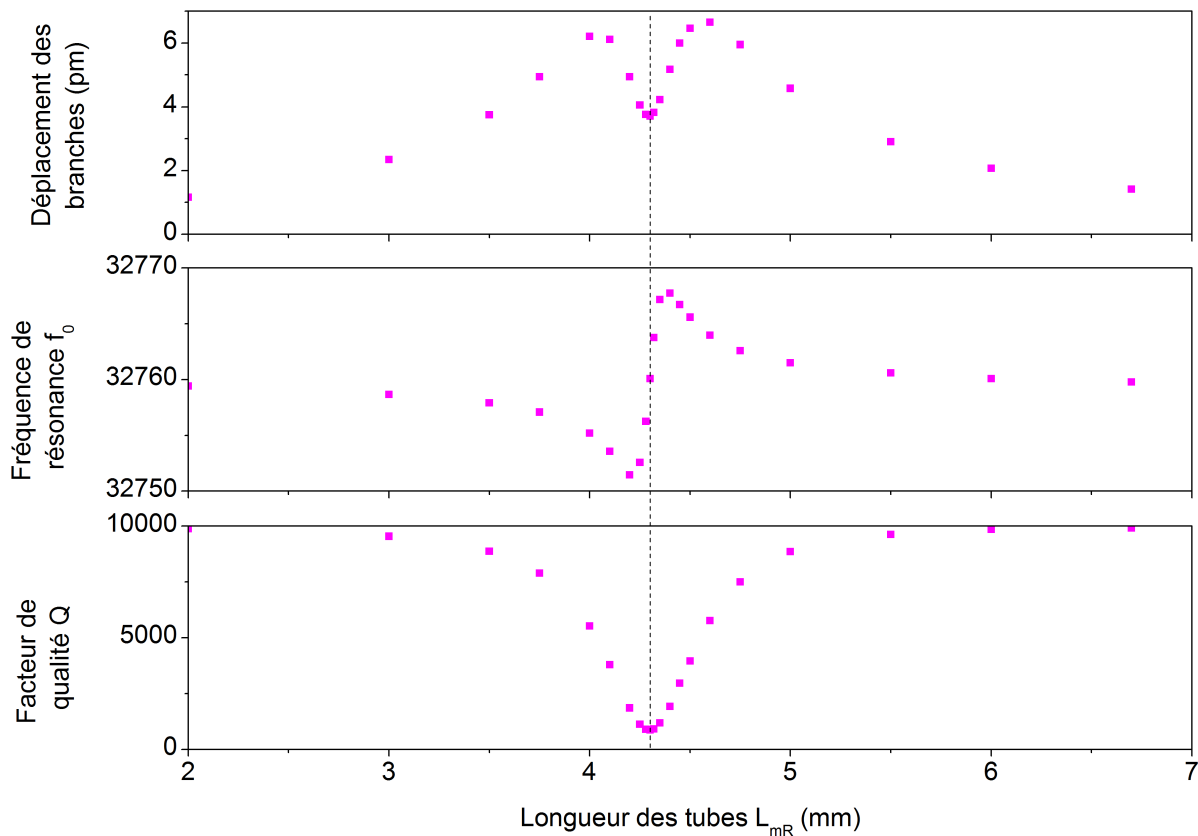


FIGURE 1.22 – Influence de la longueur  $L_{mR}$  des tubes acoustiques lors d'une expérience de QEPAS On-Beam, simulée à l'aide de OOFELIE. Le diamètre interne des tubes est de  $R_I = 0,46$  mm.

On fait maintenant varier la longueur des tubes  $L_{mR}$ , et le facteur de qualité  $Q_a$  calculé par OOFELIE va varier en conséquence. Nous utiliserons une valeur typique de  $Q_a = 30$  dans notre modèle analytique quelle que soit la longueur des tubes. Les résultats obtenus



à l'aide de OOFELIE sont montrés sur la figure 1.22, alors que ceux issus du modèle analytique sont montrés sur la figure 1.23.

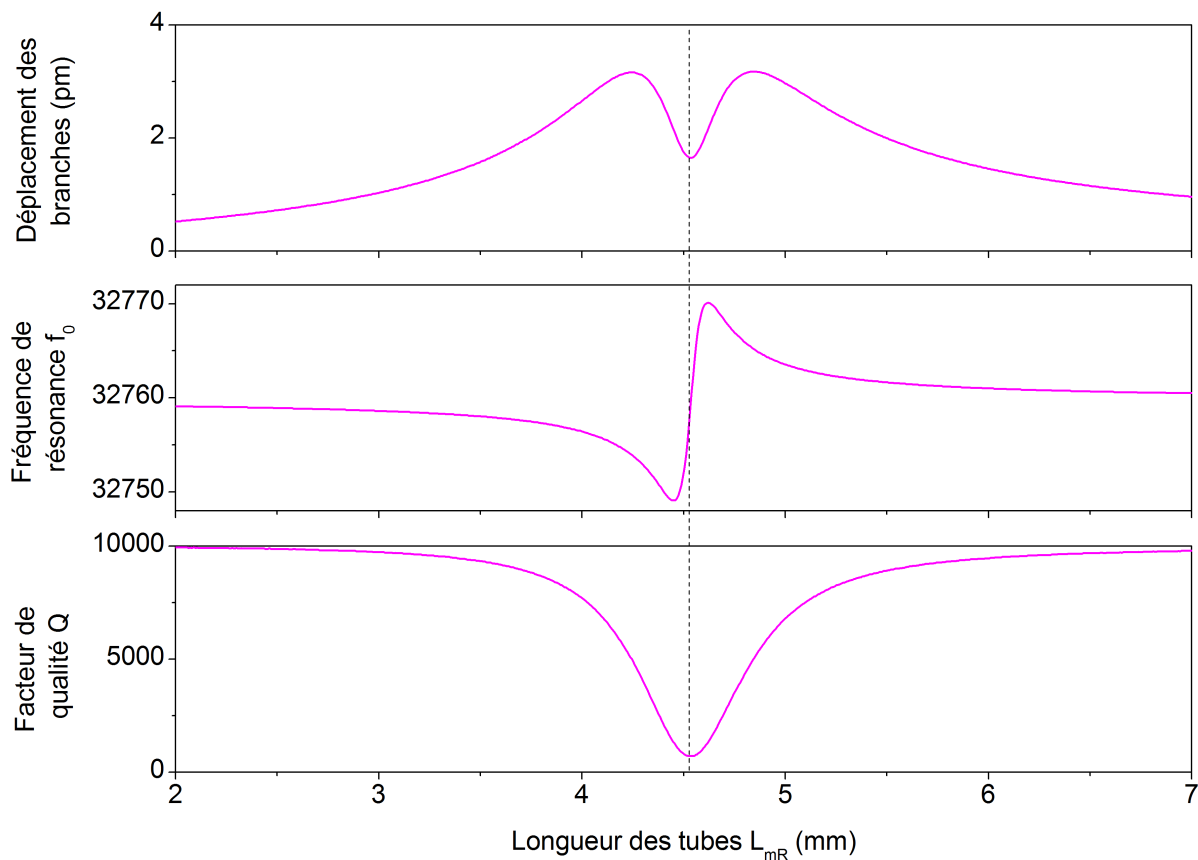


FIGURE 1.23 – Influence de la longueur  $L_{mR}$  des tubes acoustiques lors d'une expérience de QEPAS On-Beam, calculée à l'aide de notre modèle analytique.

L'accord entre la simulation OOFELIE et la modélisation analytique est remarquable. Tous les aspects de la résonance modifiée sont correctement obtenus à l'aide du modèle analytique, à savoir une fréquence de résonance qui évolue, un effondrement du facteur de qualité et un signal photoacoustique sous-optimal lorsque les résonances acoustiques et mécaniques se superposent. La valeur de  $L_{mR}$  qui maximise l'effondrement du facteur de qualité  $Q$  du résonateur n'est pas totalement en accord, ce qui s'explique à nouveau par notre expression approchée de la fréquence de résonance acoustique. L'amplitude du déplacement des branches est similaire à un facteur 2 près, comme c'était le cas sur la figure 1.20. Le désaccord peut néanmoins s'expliquer par la résonance acoustique additionnelle ayant lieu entre les branches, que nous avons déjà mis en évidence précédemment et qui explique justement un facteur de l'ordre de 2. Aussi, la simplicité du modèle utilisé pour la distribution de pression, volontairement simpliste pour mieux comprendre l'influence relative des tubes, joue probablement un rôle dans cet écart même s'il est difficile d'isoler sa contribution.

Le phénomène de l'effondrement du facteur de qualité que nous venons de modéliser est très souvent rapporté dans la littérature, comme par exemple par Serebryakov *et al.*

(SEREBRYAKOV et al. 2010). Nous retrouverons ces effets dans le chapitre 3. Il s'agit de la marque du couplage vibro-acoustique, et on note que le signal optimal ne correspond pas au minimum du facteur de qualité. L'optimum du signal est atteint quelque part à mi-chemin de l'effondrement, lorsque le facteur de qualité a été divisé par deux par rapport au cas de l'absence de tubes. Au minimum du facteur de qualité, on peut interpréter la chute du signal par un effet d'interférence destructive, entre l'émission acoustique du résonateur d'une part et l'onde acoustique résonante au sein du tube d'autre part.

Un signal moins bon n'est pas nécessairement le signe d'un capteur moins performant : il faut également considérer le bruit. Lorsque le facteur de qualité est minimal, le bruit du capteur est également abaissé car on a vu qu'il évolue comme  $\sqrt{Q}$ . Si on trace le rapport signal à bruit (SNR), on obtient les résultats représentés sur la figure 1.24. Les SNR représentés sont normalisés par rapport au SNR simulé en l'absence de tubes.

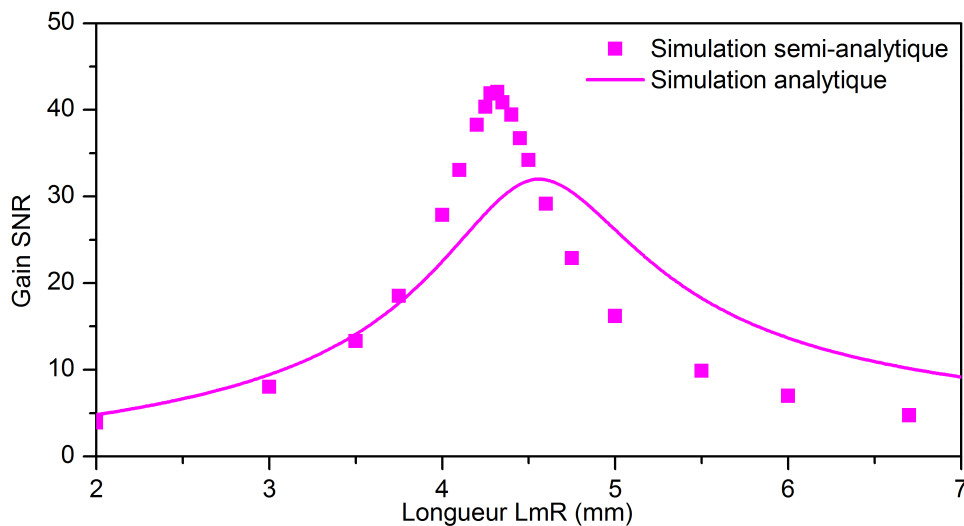


FIGURE 1.24 – Influence de la longueur  $L_{mR}$  des tubes acoustiques sur le gain apporté par une configuration On-Beam. Le gain est calculé comme le ratio du SNR avec et sans les tubes. La ligne continue est calculée à l'aide de notre modèle complètement analytique. Les points correspondent à notre modèle semi-analytique (signal calculé par OOFELIE et bruit du modèle analytique).

On constate que l'antirésonance n'est pas visible sur la courbe du SNR. Théoriquement, il est donc plus intéressant de se placer au minimum du facteur de qualité, car le temps de réponse est minimal (proportionnel à  $Q$ ) et le SNR optimal. Le gain du SNR est estimé au maximum à 40 d'après la simulation par éléments finis, et à 30 pour notre simulation analytique. Ces gains théoriques obtenus avec  $R_I = 0,46$  mm sont compatibles avec le gain optimal de 30 rapporté expérimentalement pour un rayon interne de  $R_I = 0,3$  mm (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010)).

### Influence du rayon interne $R_I$

La modification du rayon interne va modifier le facteur de qualité  $Q_a$  puisque les ouvertures et donc les pertes de la cavité acoustique sur l'extérieur seront altérées en conséquence. On s'aide à nouveau d'OOFELIE pour déterminer la valeur typique associée à  $R_I = 0,159$  mm et à  $R_I = 0,248$  mm, et on obtient  $Q_a = 169$  et  $Q_a = 75$  respectivement. Les nouveaux résultats analytiques sont reportés sur la figure 1.25, sachant que l'on suppose que le couplage modal  $C_{nm}$  reste inchangé.

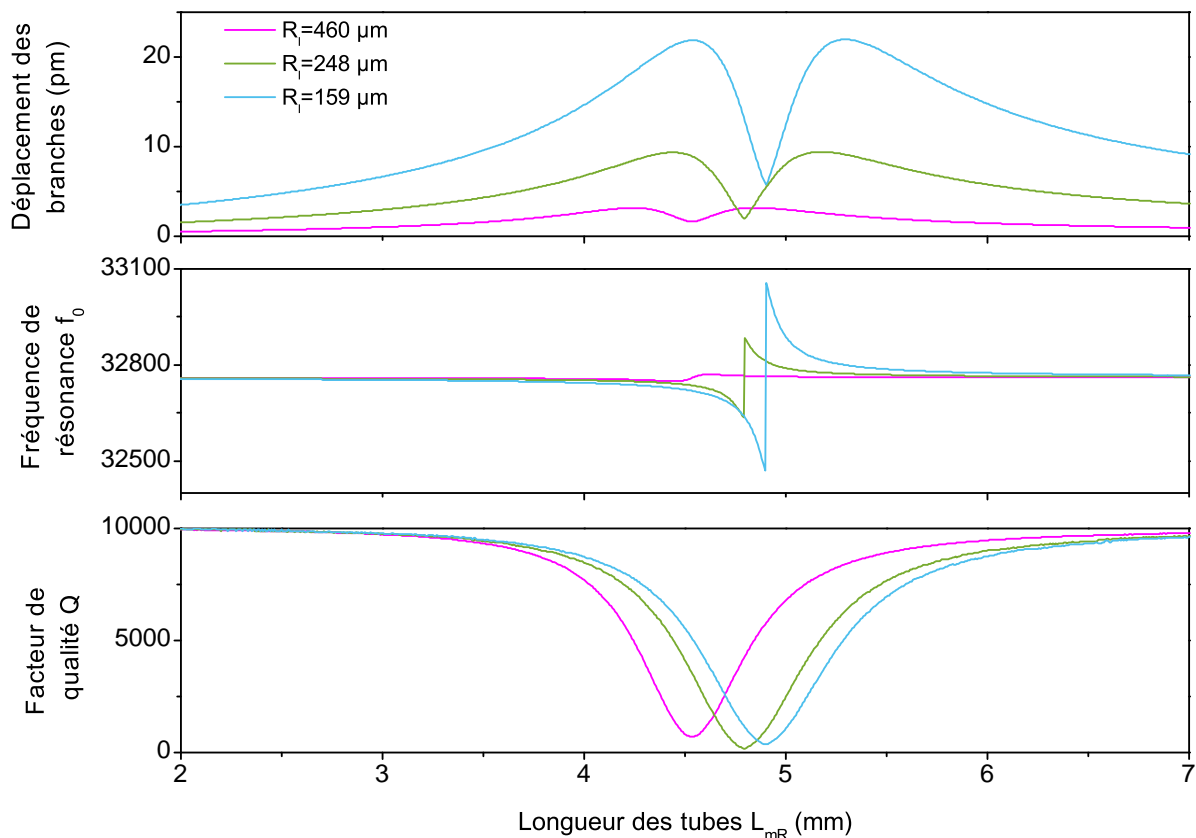


FIGURE 1.25 – Influence de la longueur  $L_{mR}$  des tubes acoustiques lors d'une expérience de QEPAS On-Beam, calculée à l'aide de notre modèle analytique pour différentes valeurs du rayon interne des tubes  $R_I$ .

On constate que la réduction du rayon interne  $R_I$  est bénéfique pour l'amplitude du signal. Cela est dû au gain sur le facteur de qualité acoustique  $Q_a$ . Ensuite, la zone de l'interférence destructive (effondrement du signal) est déplacée vers les longueur de tubes plus importantes, ce qui est dû aux corrections de fin de tubes  $\Delta L_{mR} \approx 0,6R_I$  réduites pour des rayons internes  $R_I$  plus petits.

Ces résultats sont très proches de ceux obtenus par Cao *et al.* (CAO et al. 2012), qui avait utilisé le logiciel de simulation par éléments finis COMSOL. Si l'utilisation de tubes de diamètre minimal semble optimiser la réponse photoacoustique, leur diamètre minimal serait choisi pour qu'un faisceau laser puisse les traverser sans les toucher. En pratique, d'autres limitations non prises en compte par OOFELIE peuvent intervenir,

pouvant apporter une limite basse au rayon interne à choisir. Ces limitations n'ont pas été évoquées par Cao *et al.*, alors qu'elles sont bien réelles comme nous le démontrerons dans le chapitre 3.

### 1.4.5.3 Prise en compte des effets thermiques et visqueux

On rappelle que notre simulation numérique du milieu acoustique ne prend pas en compte la viscosité ni la thermique, mais seulement la compressibilité. Puisque qu'on a vu que le facteur de qualité acoustique a une grande influence sur les résultats, notre modèle analytique va permettre de prévoir la réponse réelle à l'aide d'un modèle portant spécifiquement sur le facteur de qualité acoustique  $Q_a$ .

#### Correction des facteurs de qualité acoustiques

Des effets thermiques et visqueux induisent une perte au niveau des interfaces entre le fluide et les parois. En effet, les cycles de détente et de compression qui caractérisent une onde de pression créent des gradients de température au sein du fluide, et la diffusion de cette chaleur au niveau des parois est ensuite responsable d'une dissipation de l'énergie thermique stockée dans le fluide. Landau (LANDAU et LIFSHITZ 1959, p.303) propose une modélisation de l'amortissement d'une onde acoustique se propageant au sein d'un tube cylindrique simple, en négligeant les effets visqueux et thermiques au sein du fluide pour ne se concentrer que sur celui qui intervient au niveau des parois et qui est prépondérant. A partir du coefficient d'absorption linéique de la pression au sein des tubes, on peut en déduire le facteur de qualité associé :

$$Q_{a,paroi} = \sqrt{\frac{\omega\rho_f}{2\mu}} \frac{R_I}{1 + (\gamma - 1)\sqrt{\kappa/\mu C_P}} \quad (1.81)$$

Dans l'expression précédente,  $\mu$  désigne la viscosité dynamique du fluide,  $\kappa$  sa conductivité thermique et  $C_P$  désigne sa capacité calorifique à pression constante.

Concernant l'amortissement lié aux radiations par les ouvertures de la cavité, on l'a jusqu'à maintenant calculé à l'aide d'OOFELIE en raison de la complexité des ouvertures au niveau de l'insertion du diapason. Afin de mieux cerner son comportement vis-à-vis des paramètres géométriques en présence, on peut donner l'expression obtenue par Moloney *et al.* (MOLONEY et HATTEN 2001) et valable pour un tube de longueur  $L_t$  ouvert à ses deux extrémités :

$$Q_{a,rad} = \frac{L_t v}{\pi R_I^2 f_0} \quad (1.82)$$

Dans le cadre des expériences numériques précédentes, on a  $Q_{a,paroi} \approx 5,5 \cdot 10^4 R_I$ , ce qui donne un ordre de grandeur tout à fait comparable aux coefficients de qualité calculé par OOFELIE pour le facteur de qualité  $Q_{a,rad}$ . Cette contribution n'est donc pas négligeable et les résultats obtenus par OOFELIE sont donc à corriger de cet effet pour obtenir une

valeur davantage conforme à la réalité. Une expression analytique empiriquement corrigée à l'aide des modélisations OOFELIE précédentes, concernant la contribution radiative, nous fait plutôt considérer la formule suivante :

$$Q_{a,rad} = \frac{1}{10} \frac{L_t v}{\pi R_I^2 f_0} \quad (1.83)$$

### Prédictions analytiques

Nous allons utiliser maintenant les expressions 1.83 et 1.81 pour prédire le facteur de qualité de la cavité acoustique. On peut l'écrire sous la forme  $Q_a = [Q_{a,rad}^{-1} + Q_{a,paroi}^{-1}]^{-1}$  en supposant les deux sources de perte indépendantes. Ensuite, nous l'introduisons dans le modèle analytique à la place de la prédiction de OOFELIE que l'on utilisait jusqu'alors. On rappelle que seul le couplage modal  $C_{nm}$  est corrigé arbitrairement à la valeur de  $2 \cdot 10^{-4}$ , comme cela a été fait précédemment afin de remédier à notre modèle trop simpliste donnant la distribution de pression  $\hat{P}_m$ . Les résultats sont montrés sur les figures 1.26 et 1.27 pour différentes valeurs de  $R_I$ .

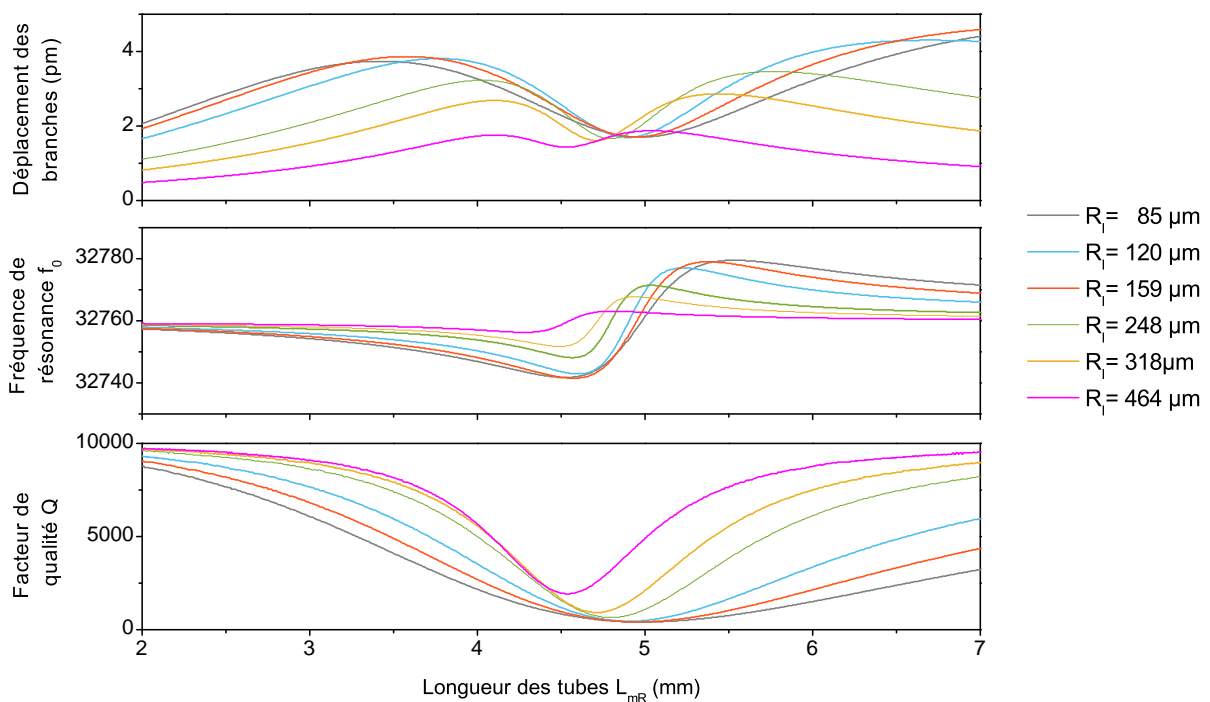


FIGURE 1.26 – Influence de la longueur  $L_{mR}$  des tubes acoustiques lors d'une expérience de QEPAS On-Beam, calculée à l'aide de notre modèle analytique pour différentes valeurs du rayon interne des tubes  $R_I$ .

Les facteurs de qualité estimés dans ce modèle analytique sont de l'ordre de  $Q_a = 10$  au maximum, et varient relativement peu en fonction du diamètre interne. Ceci est dû aux pertes visco-thermiques qui sont prépondérantes pour les diamètres de tubes les plus faibles. Ces valeurs typiques du facteur de qualité acoustique ont bien été mesurées

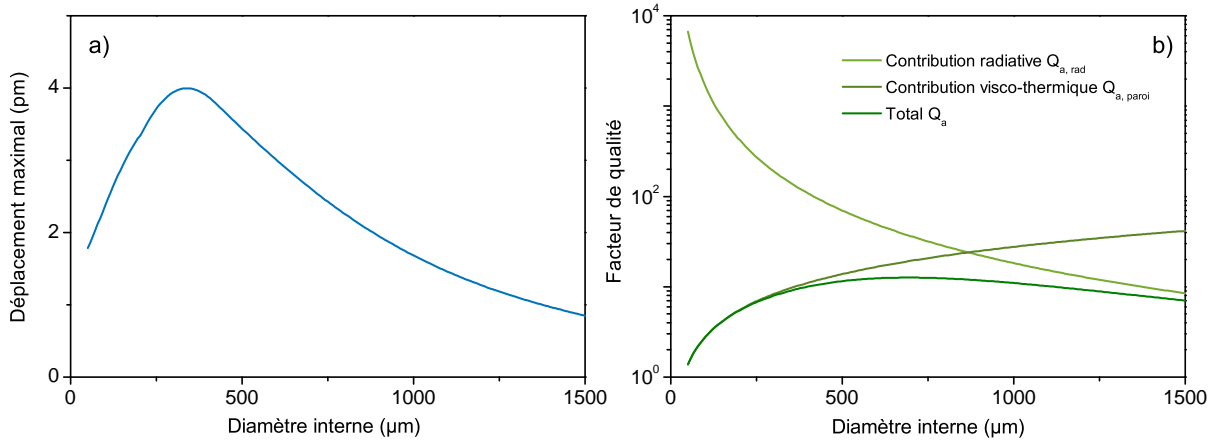


FIGURE 1.27 – Influence du rayon interne  $R_I$  des tubes acoustiques lors d’une expérience de QEPAS On-Beam, calculée à l’aide de notre modèle analytique. a) Déplacement du bout des branches du diapason pour la longueur  $L_{mR}$  la plus favorable. b) Dépendance du facteur de qualité acoustique total et de ses deux contributions radiatives et visco-thermiques.

expérimentalement par Serebryakov *et al.* (SEREBRYAKOV *et al.* 2010). On voit cependant que l’amplitude du signal optimal ( figure 1.27a ) ne dépend pas uniquement de ce paramètre, puisque le lieu de l’optimum ne coïncide pas avec le lieu de l’optimum du facteur de qualité acoustique. En effet, l’amplitude de la pression qui règne à l’intérieur d’une cavité résonante est d’autant plus importante que son volume est faible. Cet effet se voit facilement sur l’expression du déplacement des poutres (équation 1.51), où le volume de la cellule  $V_{cell}$  intervient au dénominateur. L’amplification observée par l’ajout de tubes pour le QEPAS est donc dû en partie au facteur de qualité acoustique mais aussi à la présence même d’un mode acoustique résonant de volume donné. Ces derniers résultats prévoient donc un diamètre interne des tubes optimal situé entre 300 et 400  $\mu\text{m}$  contrairement à la conclusion de Cao (CAO *et al.* 2012).

### 1.4.6 Conclusion

Grâce à l’extension du formalisme analytique qui décrit le QEPAS non résonant, nous avons pu estimer toutes les grandeurs physiques qui interviennent au cours du processus photoacoustique lors de l’utilisation d’un résonateur mécanique en flexion. Cette modélisation est en bon accord avec l’expérience que nous avons menée avec des diapasons en quartz horlogers commerciaux. A l’aide d’un logiciel de simulation par éléments finis, on a montré sur ces mêmes diapasons que la modélisation numérique surestime le signal du capteur d’un facteur 1,6 par rapport au modèle analytique. La raison de cet écart est attribuée au fait que seul le modèle numérique prend en compte la modification du champ de pression créé par la présence du diapason.

Par l’introduction d’une nouvelle équation fondamentale de la photoacoustique, on

a pu décrire pour la première fois une modélisation du QEPAS en milieu résonant. Ce modèle a d'autant plus d'intérêt qu'il s'applique à des systèmes plus performants et plus largement utilisés : le QEPAS avec tubes acoustiques d'amplification. Ce nouveau modèle a permis d'expliquer tous les comportements observés dans la littérature, en particulier le phénomène d'anti-résonance ainsi que l'influence de la longueur et du diamètre interne des tubes. L'inclusion de cette nouvelle description au sein du modèle hybride développé initialement pour le QEPAS non résonant pourrait permettre de décrire quantitativement ce type de configuration à l'avenir.

On a aussi mis en lumière que l'utilisation des outils de simulation par éléments finis doit se faire avec précaution. La viscosité de l'air ou encore la thermique sont autant d'effets qu'il faudrait prendre en compte en toute rigueur pour obtenir un modèle numérique complet. De plus, ce type de modèle est incapable de fournir pour l'instant une estimation du bruit du capteur. Compte tenu du nombre de domaines de la physique mis en jeu, la mise en place d'un modèle semi-analytique présente un excellent compromis entre compréhension et précision de la prédiction.

Concernant le QEPAS résonant avec tubes acoustiques d'amplification, l'absence de couplage entre le diapason et le champ acoustique produit un signal proportionnel à  $\sqrt{Q_a Q}$  selon notre modèle. Les gains en performances dus aux résonances acoustiques et mécaniques sont donc bien cumulables. En pratique, les couplages non nuls induisent un phénomène d'interférence à la résonance du diapason : le champ acoustique qu'il émet devient non négligeable et interfère de façon destructive avec le champ acoustique résonant dans les tubes. Le signal maximal du capteur QEPAS se fait donc lorsque les deux résonances sont légèrement disjointes. L'optimum de rapport signal à bruit a bien lieu lorsque l'interférence destructive est maximale, grâce à un bruit réduit.

Pour revenir au QEPAS non résonant, notre modèle analytique est suffisamment robuste pour permettre de réaliser des optimisations analytiques. En particulier, les diapasons horlogers sont majoritairement utilisés dans des expériences de QEPAS, alors qu'ils n'ont pas été créés pour cette application photoacoustique en particulier. Des gains en performance semblent donc possibles en modifiant leur caractéristiques notamment géométriques : c'est l'objet du chapitre 2.





# Chapitre 2

## Modélisation du facteur de qualité des résonateurs en flexion et détecteur photoacoustique optimal dans l'air

### Objectifs :

L'objectif de cette partie est d'exprimer analytiquement l'amortissement des résonateurs mécaniques en flexion en fonction de leurs dimensions. Ensuite, il sera possible d'effectuer des optimisations sur la géométrie des résonateurs pour optimiser leur facteur de qualité ou leur sensibilité pour la photoacoustique à l'aide du modèle complet développé au premier chapitre.

### 2.1 Modélisation analytique du facteur de qualité des résonateurs en flexion

Grâce au modèle analytique développé au chapitre précédent, il est désormais possible de rechercher des géométries optimales pour le QEPAS, à condition que tous les paramètres du modèle aient été explicités. Il s'avère que seul l'amortissement, défini par le facteur de qualité  $Q$ , a été introduit alors qu'il dépend en réalité de la géométrie. Pourtant, il s'agit bien d'un paramètre clé de la performance et sa modélisation est donc une nécessité.

Les logiciels de simulation par éléments finis sont capables aujourd'hui de prédire quantitativement avec une très bonne précision le comportement mécanique de n'importe quel type de résonateur. En particulier, ils sont capables d'évaluer avec précision leur

amortissement. Cependant, prendre en compte toutes les interactions en présence nécessite des temps de calculs élevés, et n'est pas compatible avec des optimisations sur un nombre important de paramètres. Nous nous concentrons par la suite sur des modèles analytiques de l'amortissement afin de compléter notre modèle du QEPAS lui aussi complètement analytique.

Nous nous restreignons dans cette étude de l'amortissement au cas de résonateurs composés d'une ou plusieurs poutres de sections rectangulaires en flexion, dans la mesure où ces cas couvrent presque l'ensemble des structures existantes utilisables actuellement.

### 2.1.1 Problématique de l'amortissement des résonateurs

#### Introduction

Les résonateurs mécaniques en flexion opérés dans le vide ont déjà été largement étudiés par le passé, en raison de leur propriétés de résonance unique et de leur petite taille.

Les résonateurs mécaniques en flexion ont été utilisés pour des applications temps-fréquence (HETZEL 1960), et tout particulièrement depuis l'invention de l'horlogerie électronique basée sur des diapasons en quartz présentant d'excellents facteurs de qualité (STAUDTE 1971), ceux-là même qui sont désormais largement utilisés pour le QEPAS. Ils ont également été utilisés en tant qu'éléments sensibles pour les applications inertielles (BARBOUR 2011), surtout depuis les années 80. Ces MEMS (Micro ElectroMechanical Systems), connus sous le nom de CVG (Coriolis Vibrating Gyrometers) (CHAUMET et al. 2009; JANIAUD et al. 2004; Olivier LE TRAON, JANIAUD, MASSON et al. 2007) et de VBA (Vibrating Beam Accelerometers) (Olivier LE TRAON, JANIAUD, MASSON et al. 2007; Olivier LE TRAON, JANIAUD, MULLER et al. 1998), ont été pensés pour réaliser respectivement des mesures de rotation et d'accélération de manière ultra précise à l'aide de schémas de détection capacitifs ou piézoélectriques. Pour chaque application, le faible amortissement permet d'atteindre d'excellentes performances et justifie l'effort permanent de recherche à ce sujet.

Des poutres en porte-à-faux vibrant en flexion ont été utilisées en tant que sondes pour les applications de microscopie à force atomique (BINNIG et QUATE 1986). En fonctionnement dit "mode contact intermittent", leur résonance très aiguë et donc faiblement amortie est la clef de la mesure précise de la distance entre le bout d'une pointe déposée à l'extrémité de la poutre et l'échantillon à analyser. Plusieurs applications pour l'utilisation de poutre MEMS en porte-à-faux en tant que détecteur de champs magnétiques ont été reportées plus récemment (HONSCHOTEN et al. 2008; STIPE et al. 2001). Ces dernières sont couvertes d'une fine couche de matériau ferromagnétique qui interagit avec le champ magnétique extérieur, modifiant ainsi les caractéristiques de la résonance. Plus récemment, l'utilisation de NEMS (Nano ElectroMechanical Systems) en tant que micro-balance a permis de mesurer des masses inférieures au zeptogramme ( $10^{-21}$  g) sous vide

(CHIU et al. 2008 ; M. LI et al. 2010).

Certaines applications requièrent cependant que le résonateur soit complètement immergé dans un fluide, qu'il soit liquide ou gazeux. C'est le cas de la mesure de forces de contact, menée avec succès dans le cadre de la photoacoustique, mais aussi pour la détection opto-thermoacoustique (Anatoliy A. KOSTEREV et DOTY 2010) ou bien la mesure de pressions statiques. C'est également le cas pour la détection ultrasensible de composés chimiques (microbalances), et des masses inférieures à l'attogramme ( $10^{-18}$  g) ont déjà été rapportées pour des mesures dans l'air à pression atmosphérique (M. LI et al. 2010). Des mesures de température ont également été proposées en suivant la fréquence de résonance, qui varie légèrement en fonction de l'amortissement. Des précisions de l'ordre de 0,001 °C ont déjà été atteintes de cette manière (HOPCROFT et al. 2007).

Dans chacun de ces cas, le fluide autour du résonateur modifie fortement les caractéristiques de sa résonance, et peut par conséquent fortement réduire les performances des capteurs associés. Il est désormais établi que l'amortissement lié à la présence d'un fluide peut être attribué à plusieurs mécanismes. Les principaux sont l'amortissement visqueux et l'amortissement acoustique, qui reposent chacun sur une propriété physique distincte du fluide que sont la viscosité et la compressibilité. Leurs contributions respectives se comportent différemment par rapport aux multiples dimensions géométriques du résonateur. Un premier modèle analytique complet incluant la viscosité et la compressibilité a déjà été développé par Eysden *et al.* (VAN EYSDEN et John E SADER 2006a). Leur résultat est exact mais traite uniquement du cas de la poutre en porte-à-faux, et échoue à fournir une vision simple ou encore une expression simple du facteur de qualité. De plus, leur approche n'inclue pas la présence possible d'un plan statique à proximité de la vibration. C'est pourtant nécessaire pour traiter le cas de l'amortissement visqueux sur les résonateurs composés de plusieurs poutres tels que les diapasons, comme nous le démontrerons par la suite à l'aide d'une analogie originale.

## L'approche séquentielle

Les autres traitements analytiques de la littérature supposent en général que le fluide constitue un milieu incompressible. L'amortissement se réduit alors aux seuls effets visqueux, pour lesquels les formules analytiques existantes prédisent le facteur de qualité avec une bonne précision (voir la partie suivante 2.1.2). Cependant, cette hypothèse n'est pas toujours valide. Cela a été mis en évidence par l'étude du comportement des diapasons dans des gaz (CHRISTEN 1983), et plus récemment dans les fluides cryogéniques (BRADLEY et al. 2012 ; TUORINIEMI et al. 2012). En milieu cryogénique, il a été montré que les diapasons en quartz commerciaux immergés au sein d'Hélium liquide ou gazeux peuvent nous renseigner sur de nombreux paramètres tels que la viscosité, la pression ou la température (BLAAUWGEERS et al. 2007). Dans ces conditions, l'amortissement acoustique n'est pas négligeable et doit être pris en compte. Si cette application semble loin du QEPAS, nous verrons que l'amortissement acoustique peut devenir prépondérant dans

l'air pour certaines géométries particulières.

D'un point de vue théorique, l'amortissement visqueux et l'amortissement acoustique sont tous deux pris en compte dans les équations de Navier-Stokes. Cependant, aucune solution analytique générale n'est encore apparue dans la littérature si ces deux sources d'amortissement sont prises en compte simultanément. En effet, le système d'équations couplées gouvernant le comportement du fluide et le mouvement du résonateur ne peut pas être découplé simplement (comme nous l'avons vu en ne considérant que la compressibilité dans la partie 1.2.2). Une approche simplifiée consiste à résoudre deux sous-problèmes de manière séquentielle, qui permet artificiellement de découpler le problème. Le mouvement du résonateur est d'abord déterminé en supposant le fluide incompressible, menant à une expression analytique de l'amortissement uniquement liée à la viscosité. Ensuite, le mouvement du résonateur obtenu est utilisé comme condition initiale pour le problème compressible négligeant la viscosité et supposé sans rétro-action sur le mouvement du résonateur.

Nous allons ici généraliser l'approche séquentielle à n'importe quel résonateur mécanique en flexion fait de poutres à section rectangulaire.

### Facteur de qualité intrinsèque

Quand il est placé dans le vide, on supposera que le résonateur est soumis à un amortissement représenté par un facteur de qualité  $Q_{vac}$ .

En pratique, ce dernier est déterminé par plusieurs contributions. On peut citer notamment les principales :

- L'amortissement du support  $Q_{struct}$ , qui est lié à la manière dont le résonateur est fixé au reste du bâti. Cette perte à l'encastrement peut être réduite par un ajustement de la géométrie de la structure autour de ses zones de fixation, à l'aide de simulations par éléments finis notamment. Ces ajustements n'ont aucun impact sur la géométrie des poutres. Cet amortissement est en général prépondérant sur les autres sources d'amortissement dans le vide. En général, on considère la structure extrêmement bien découplée dès que l'on dépasse  $Q_{struct} = 10^6$ .
- L'amortissement thermoélastique, qui est surtout une caractéristique liée au matériau. Pour les résonateurs mécaniques en flexion comme nous les utilisons, cet amortissement est typiquement de l'ordre de  $10^7$  et n'est donc par conséquent pas limitant. Son expression peut s'exprimer comme suit (ZENER 1937) :

$$Q_t = \frac{C_p \rho_p}{E \alpha^2 T_0} \left( \frac{6}{\xi^2} - \frac{6 \sinh \xi + \sin \xi}{\xi^3 \cosh \xi + \cos \xi} \right)^{-1}, \quad (2.1)$$

avec  $E$  le module de Young du matériau,  $\alpha$  son coefficient de dilatation thermique,  $T$  sa température,  $C_p$  sa capacité calorifique à pression constante,  $\kappa$  sa conductivité thermique,  $\rho_p$  sa densité et  $\xi = e \sqrt{\omega \rho_p C_p / (2\kappa)}$ .

- L'amortissement dû aux électrodes, plus difficile à quantifier en raison du peu d'études présentes dans la littérature. Il peut certaines fois être plus important

que l'amortissement du support, notamment lorsque la surface que les électrodes occupent est importante.

## 2.1.2 Le facteur de qualité associé à la viscosité

### 2.1.2.1 Problématique de l'amortissement visqueux

Dans le cadre de la première étape de notre modélisation séquentielle de l'amortissement fluide, on se concentre donc sur le frottement visqueux qui s'exerce sur une poutre à section rectangulaire immergée dans un fluide incompressible. Le problème exact de mécanique des fluides constitue à lui seul un défi d'une complexité extrême et aucune formule analytique ni aucun modèle universel n'est encore apparu dans la littérature à ce jour. Au cours des vingt dernières années, deux types d'approches radicalement différentes ont été utilisées pour répondre à la question.

La première approche vise à résoudre analytiquement le problème complet en utilisant des approximations très réduites, en insérant l'expression des forces de frottement fluide au sein de la théorie des poutres d'Euler-Bernoulli. Sader fut le premier sur cette voie (John Elie SADER 1998), et son approche a été depuis régulièrement complétée (VAN EYSDEN et John E SADER 2009, 2007, 2006a,b). Bien qu'une méthode numérique générale ait été proposée, aucune expression analytique simple ne semble extractible pour les résonateurs présentant une section rectangulaire quelconque. Le cas des poutres en porte-à-faux présentant une section rectangulaire infiniment fine dans la direction normale au déplacement en possède cependant une quel que soit son mode de vibration. Une expression simple peut en être extraite bien qu'elle fasse intervenir des facteurs déterminés à l'aide de simulations numériques. La théorie des poutres d'Euler-Bernoulli a également été mise en oeuvre pour les résonateurs en mouvement latéral dans un fluide par Cox *et al.* (COX, JOSSE, S. HEINRICH et al. 2010). Les auteurs traitent également du cas des poutres en porte-à-faux dont la section est infiniment fine mais cette fois dans la direction du mouvement. Ce formalisme fait appel à la force hydrodynamique introduite par Stokes, et suppose que les effets de bord agissant sur les faces normales au plan de vibration sont négligeables devant la force de friction agissant sur les faces parallèles au plan de vibration.

La seconde approche tente d'établir des analogies afin d'obtenir une solution analytique approchée mais grandement simplifiée. Le premier à pousser cette approche est Hosaka (HOSAKA et ITAO 1999), établissant une analogie entre une poutre en porte-à-faux et une chaîne de sphères. En effet, la solution exacte d'une sphère en mouvement harmonique au sein d'un fluide infini existe et présente une forme extrêmement simple (LANDAU et LIFSHITZ 1959). Hosaka utilise ce résultat bien connu afin d'obtenir une nouvelle expression du facteur de qualité. Cependant, sa solution ne s'applique qu'au mode fondamental de flexion, et n'est valide que si le résonateur est infiniment fin dans la direction normale au déplacement. Les écarts entre théorie et expérience peuvent également être importants

dans certains cas, en particulier pour des résonateurs de taille relativement grande comme nous le verrons par la suite. Utilisant la même analogie, Vignola *et al.* (VIGNOLA et al. 2006) obtient une formule différente en introduisant une surface effective, corrigeant ainsi le résultat de Hosaka pour certains types de poutres.

Au cours des 10 dernières années, les incréments apportés aux deux approches précédentes ont visé à les améliorer à l'aide de simulations numériques. Lee a étendu de cette manière le travail d'Hosaka pour les poutres en porte-à-faux microscopiques (J.-H. LEE et al. 2007), menant à une expression plus fiable mais très restreinte en terme de validité vis à vis d'une modification de géométrie ou de caractéristiques du fluide. Cox a également étendu son propre résultat obtenu pour les structures micrométriques vibrant latéralement à l'aide de simulations numériques, et il a obtenu une expression plus précise de son facteur de qualité valide pour toute poutre ayant une section de forme rectangulaire (COX, JOSSE, S. M. HEINRICH et al. 2012).

Nous allons proposer une nouvelle méthode reposant quelque part entre les deux approches précédemment exposées pour traiter l'amortissement purement visqueux. Nous introduisons une analogie originale au sein du formalisme rigoureux d'abord introduit par Sader afin d'obtenir une meilleure expression analytique. Le formalisme est valide pour n'importe quel mode de vibration, pour toute poutre de section rectangulaire, et quelles que soient ses conditions de fixation aux extrémités. Comme nous le verrons dans nos résultats expérimentaux, les formules obtenues sont simples, complètement analytiques et présentent un très bon accord avec des expériences.

### 2.1.2.2 Présentation du modèle de la poutre simple

#### Le modèle théorique

Reprenons le cas d'une poutre oscillante dans un espace non borné introduite au chapitre précédent (voir section 1.2). On rappelle que chaque extrémité de la poutre est quelconque, et on réutilise les hypothèses nécessaires pour appliquer le formalisme d'Euler Bernoulli (introduites au paragraphe 1.2.1.2.1). L'exemple type du cas encastré libre est à nouveau représenté sur la figure 2.1. Le cas étendu du diapason sera discuté plus loin au sein de la section 2.1.2.3.

La théorie des poutres d'Euler-Bernoulli nous avait permis d'écrire l'équation générale gouvernant l'amplitude de déplacement  $w(x,t)$  de la poutre que l'on réécrit ici :

$$\left[ EI \frac{\partial^4}{\partial x^4} + \rho_p e l \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] w(x,t) = f_{tot}(x,t), \quad (2.2)$$

On rappelle que  $f_{tot}(x,t)$  est la force totale par unité de longueur (le long de l'axe  $x$ ) qui s'exerce le long du contour de la section de poutre. Cette force comprend entre autre la force hydrodynamique  $f_{hydro}(x,t)$  due à l'action du fluide environnant. Elle comprend également une possible force d'excitation  $f_{drive}(x,t)$  (par exemple la force photoacoustique) et une force équivalente due au mouvement brownien des atomes composant le résonateur

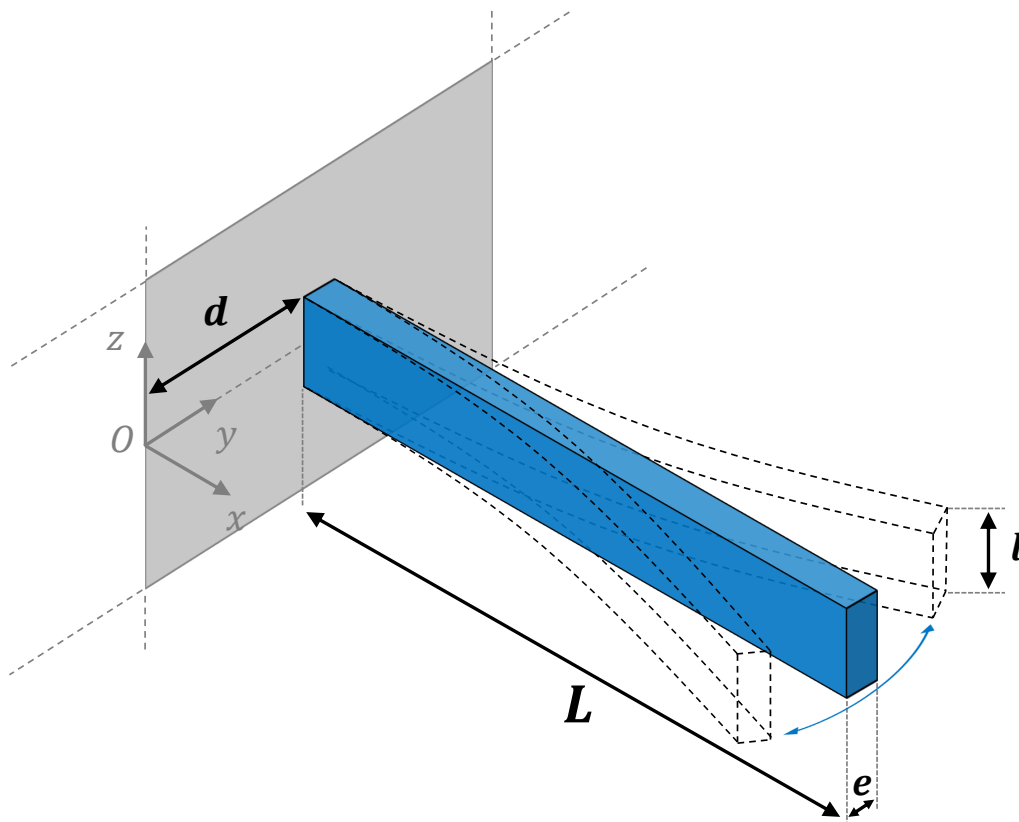


FIGURE 2.1 – Schéma d'une poutre simple oscillante au sein d'un fluide, supposé non borné dans le demi-espace  $x > 0$ .

$f_b(x,t)$  que l'on a détaillé au paragraphe 1.2.1.2.2. Dans ce qui suit, nous rassemblerons sous l'expression  $f_{ext}(x,t) = f_{tot}(x,t) - f_{hydro}(x,t)$  l'ensemble des forces qui ne sont pas dues à l'action visqueuse du fluide. Considérant la transformation de Fourier de l'équation (2.2), on obtient pour toute fréquence angulaire :

$$\left[ EI \frac{\partial^4}{\partial x^4} - \omega^2 \rho_p e l \right] \hat{W}(x, \omega) - \hat{f}_{hydro}(x, \omega) = \hat{f}_{ext}(x, \omega). \quad (2.3)$$

On détaille maintenant les approximations et les hypothèses que l'on fait à propos du fluide autour du résonateur :

- On suppose que le fluide est dans le régime continu, défini par un nombre de Knudsen  $Kn < 0,01$  (voir paragraphe 1.2.1.1).
- Le fluide est supposé incompressible, de densité  $\rho_f$  et de viscosité dynamique  $\mu$ .
- Le champ des vitesses du fluide au niveau de toute section de la poutre est bien approximé par celui d'une poutre identique mais infiniment longue oscillant dans la direction  $x$  avec une amplitude identique. Cette approximation est garantie par la condition ( $L \gg l, e$ ) utilisée pour appliquer la théorie des poutres d'Euler-Bernoulli.

Dans la mesure où l'amplitude des vibrations a déjà été supposée faible devant les dimensions de la poutre pour pouvoir utiliser le modèle d'Euler Bernoulli, tous les effets inertiels non linéaires de nature convective peuvent être négligés. Nous pouvons donc

utiliser les équations de Navier Stokes linéarisées, ce qui nous permet d'écrire  $\hat{f}_{hydro}(x,\omega)$  comme une fonction linéaire du déplacement  $\hat{W}(x,\omega)$ .

Il est parfois commode d'introduire le paramètre  $\beta = \rho_f \omega l^2 / 4\mu$  et la fonction hydrodynamique  $\Gamma_{hydro}(\omega)$  définie par :

$$\hat{f}_{hydro}(x,\omega) = \frac{\pi}{4} \rho_f \omega^2 l^2 \Gamma_{hydro}(\omega) \hat{W}(x,\omega). \quad (2.4)$$

La difficulté se trouve donc désormais dans l'écriture de l'expression de  $\Gamma_{hydro}(\omega)$ .

### L'analogie

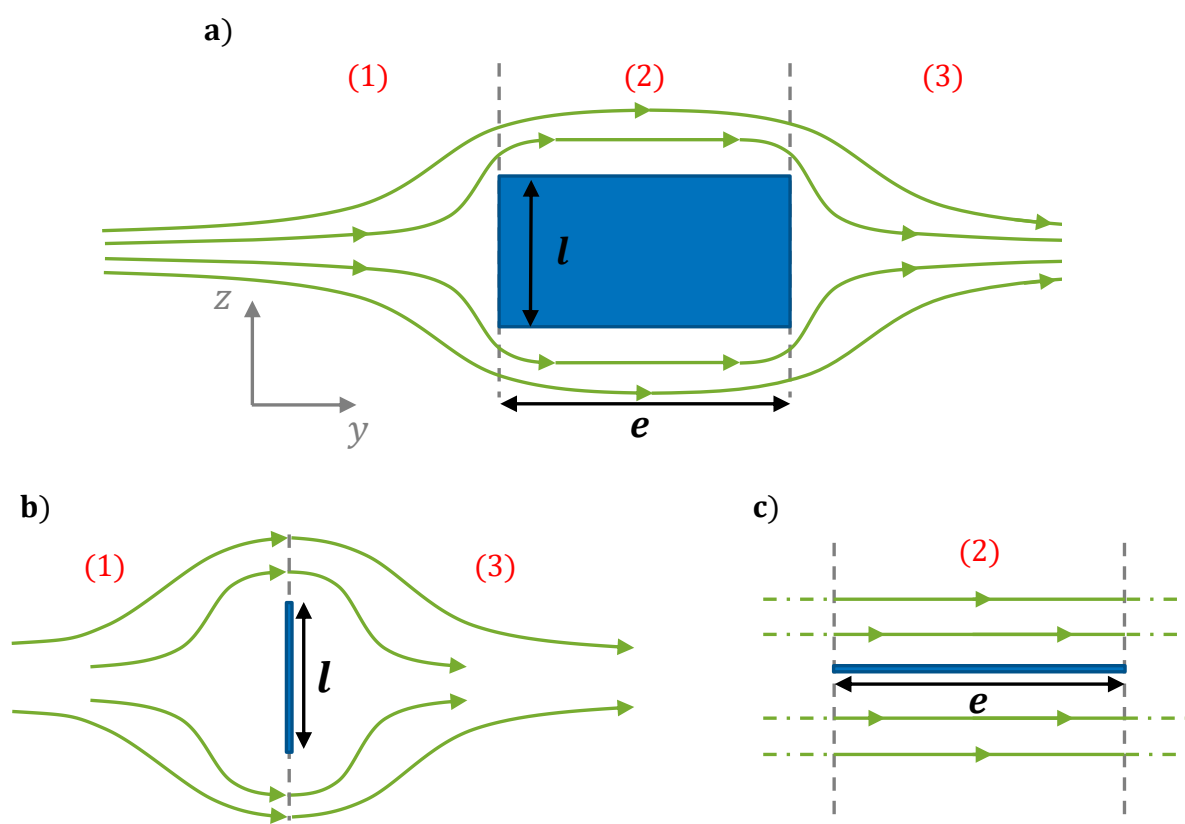


FIGURE 2.2 – Champ de vitesse du fluide supposé incompressible autour d'une section de la poutre oscillante représentée sur la figure 2.1. La situation a) correspond au cas de la poutre à section rectangulaire quelconque, alors que la situation b) (resp. la situation c) se réfère aux cas de la poutre infiniment fine dans la direction  $y$  (resp. dans la direction  $z$ ).

Dans notre modèle, le fluide est supposé laminaire et les lignes du champ de vitesses du fluide forment un motif illustré par la situation a) dans la figure 2.2. Ce motif peut être vu comme la juxtaposition de trois domaines consécutifs (1), (2) et (3). Les domaines (1) et (3) peuvent être joints, et on obtient un nouveau motif très proche de celui correspondant au cas de la poutre infiniment fine dans la direction  $y$  (situation b) de la figure 2.2). Le



motif situé dans le domaine (2) est pour sa part très proche de celui correspondant à la partie centrale du cas de la poutre infiniment fine vibrant dans la direction  $z$  (situation c) dans la figure 2.2).

D'après le principe de superposition utilisable d'après notre hypothèse d'un problème fluide linéarisé, la force hydrodynamique totale  $\hat{f}_{hydro}(x, \omega)$  peut être considérée comme très proche de la somme de deux contributions :

- Une force frontale "avant et arrière"  $\hat{f}_{fb}(x, \omega)$  égale à la force hydrodynamique totale qui s'applique sur la section de la poutre représentée sur la situation b).
- Une force latérale "haut et bas"  $\hat{f}_{ud}(x, \omega)$  égale à la force hydrodynamique totale qui s'applique sur la section de poutre représentée sur la situation c).

La solution globale satisfait toujours les conditions aux limites fluides à l'infini, c'est à dire que la vitesse particulaire est nulle à grande distance de la poutre. L'argument de la superposition n'est pas parfaitement rigoureux au sens mathématique du terme, puisque les domaines ne sont à l'évidence pas indépendants. Toutefois, une erreur relativement faible est attendue puisque la forme générale des lignes de flux est conservée. Cette analogie prend également en compte une partie des effets de bord qui sont inclus dans la situation b), mais les effets de bord présents originellement dans la zone (2) sont négligés. Le principe de superposition se retrouve automatiquement dans la fonction hydrodynamique correspondante :

$$\Gamma_{hydro}(\omega) = \Gamma_{fb}(\omega) + \Gamma_{ud}(\omega). \quad (2.5)$$

### L'expression de $\Gamma_{fb}(\omega)$

Obtenir une expression fiable pour  $\Gamma_{fb}(\omega)$  s'avère très complexe. Ce cas a déjà été heureusement largement étudié, principalement par Sader. Une solution analytique existe et s'écrit en termes de fonctions G de Meijer, mais les expressions en question sont lourdes et aucune formule directe n'est accessible (VAN EYSDEN et John E SADER 2006b). Nous préférons un résultat analytique approché, qui prend comme point de départ la solution du problème de la poutre circulaire :

$$\Gamma_{circ}(\omega) = 1 + \frac{4jK_1(-j\sqrt{j\beta})}{\sqrt{j\beta}K_0(-j\sqrt{j\beta})}. \quad (2.6)$$

$K_0$  et  $K_1$  sont les fonctions modifiées de Bessel de seconde espèce. Ces fonctions peuvent être données par exemple sous leur forme intégrale comme  $K_0(u) = \int_0^{+\infty} e^{-u \cosh t} dt$  et  $K_1(u) = \int_0^{+\infty} \cosh(t) e^{-u \cosh t} dt$ .

L'expression (2.6) peut être ensuite améliorée à l'aide de simulations numériques par Sader en écrivant  $\Gamma_{fb}(\omega) = \Omega(\omega)\Gamma_{circ}(\omega)$ , afin d'apporter un résultat plus précis dans le cas des poutres rectangulaires infiniment fines (John Elie SADER 1998). Le coefficient multiplicatif de correction à appliquer à l'équation 2.6 s'écrit comme suit, en utilisant

$\tau = \log_{10} \beta$  :

$$\begin{aligned}
\Omega(\omega) = & \left( 0,91324 - 0,48274\tau + 0,46842\tau^2 - 0,12886\tau^3 \right. \\
& + 0,044055\tau^4 - 0,0035117\tau^5 + 0,00069085\tau^6 \Big) \\
& \times \left( 1 - 0,56964\tau + 0,48690\tau^2 - 0,13444\tau^3 \right. \\
& + 0,045155\tau^4 - 0,0035862\tau^5 + 0,00069085\tau^6 \Big)^{-1} \\
& + j \left( -0,024134 - 0,029256\tau + 0,016294\tau^2 \right. \\
& - 0,00010961\tau^3 + 0,000064577\tau^4 - 0,000044510\tau^5 \Big) \\
& \times \left( 1 - 0,59702\tau + 0,55182\tau^2 - 0,18357\tau^3 \right. \\
& + 0,079156\tau^4 - 0,014369\tau^5 + 0,0028361\tau^6 \Big)^{-1}
\end{aligned} \tag{2.7}$$

### L'expression de $\Gamma_{ud}(\omega)$

Les forces latérales haut et bas sont très bien approximées par les expressions établies par Stokes. Dans son modèle, il suppose qu'un plan infini est en oscillation à une fréquence angulaire fixe  $\omega$ . En supposant qu'il y a mouvement sans glissement, la formulation incompressible des équations de Navier Stokes mène à :

$$\Gamma_{ud}(\omega) = \frac{2\sqrt{2}e}{\pi l \sqrt{\beta}} (1 + j). \tag{2.8}$$

Pour plus de détails sur l'obtention de l'expression 2.8, le lecteur pourra se référer au travail de Cox *et al.* (COX, JOSSE, S. M. HEINRICH et al. 2012).

### Résolution

En revenant à l'équation de flexion des poutres (2.3), nous obtenons :

$$\left[ EI \frac{\partial^4}{\partial x^4} - \omega^2 \rho_p e l \left( 1 + \frac{\pi \rho_f l}{4 \rho_p e} \Gamma_{hydro}(\omega) \right) \right] \hat{W}(x, \omega) = \hat{f}_{ext}(x, \omega). \tag{2.9}$$

Nous avons déjà rencontré la résolution de ce type d'équation au chapitre précédent (voir paragraphe 1.2.1.2.2). On obtient les modes propres  $\phi_n(x)$  indicés par un entier  $n$  en résolvant l'équation homogène non amortie associée :

$$\left[ EI \frac{\partial^4}{\partial x^4} - \omega_n^2 \rho_p e l \left( 1 + \frac{\pi \rho_f l}{4 \rho_p e} \Gamma_{hydro}^r(\omega_n) \right) \right] \phi_n(x) = 0. \tag{2.10}$$

Dans l'équation (2.10),  $\Gamma_{hydro}^r$  représente la partie réelle de  $\Gamma_{hydro}$ , et  $\Gamma_{hydro}^i$  sera sa partie imaginaire. On utilise alors la résolution de l'annexe A, et on en déduit que les pulsations propres  $\omega_n$  sont définies par l'équation implicite suivante :

$$\frac{\alpha_n^4}{L^4} = \frac{\omega_n^2 \rho_p e l}{EI} \left( 1 + \frac{\pi \rho_f l}{4 \rho_p e} \Gamma_{hydro}^r(\omega_n) \right). \tag{2.11}$$

On rappelle que les nombres  $\alpha_n$  sont fonction des conditions de fixation, et sont également disponibles dans l'annexe A. La fréquence de résonance dans le fluide est donc déplacée par rapport à celle dans le vide, comportement que nous retrouverons expérimentalement.

Les variations de la fonction  $\Gamma_{hydro}^r(\omega)$  en fonction de  $\omega$  sont suffisamment lentes comparées à  $\omega^2$  pour pouvoir supposer que  $\Gamma_{hydro}^r(\omega)$  est à peu près égale à  $\Gamma_{hydro}^r(\omega_n)$  autour de la  $n$ -ième résonance. Par conséquent, nous pouvons identifier à partir du terme imaginaire de l'équation 2.9 le facteur de qualité comme une expression analytique explicite :

$$Q_v = \frac{4\rho_p e / (\pi\rho_f l) + \Gamma_{hydro}^r(\omega_n)}{\Gamma_{hydro}^i(\omega_n)}. \quad (2.12)$$

Le formalisme détaillé précédemment suppose que le facteur de qualité de la poutre est infini en l'absence de fluide environnant. On rappelle qu'en pratique, cette valeur est finie et associée à un facteur de qualité  $Q_{vac}$  mesurable dans le vide. Ce dernier est pris en compte après résolution pour conserver un comportement asymptotique correct lorsque le facteur d'amortissement visqueux disparaît (par exemple à pression très réduite). On ajoutera ainsi une contribution effective à la force hydrodynamique totale  $\Gamma_{vac} = 4j\rho_p e / (\pi\rho_f l Q_{vac})$  pour conserver l'utilisation pratique des fonctions hydrodynamiques.

L'expression du facteur de qualité pourrait être simplifiée davantage dans la mesure où l'on a dans la plupart des cas  $[4\rho_p e / (\pi\rho_f l)] \gg \Gamma_{hydro}^r$ , en particulier pour les résonateurs opérés au sein d'un fluide faiblement visqueux tel que l'air. Sous cette dernière approximation, la règle additive  $\frac{1}{Q_{tot}} = \sum_i \frac{1}{Q_i}$  se déduit directement de l'équation(2.12).

### 2.1.2.3 Le cas du diapason

Le facteur de qualité des diapasons peut être évalué maintenant que l'on a traité le cas de la poutre simple. Un diapason vibrant sur un mode symétrique de flexion dans le plan peut en effet être vu comme deux poutres simples vibrant de manière symétrique. La symétrie impose les mêmes conditions aux limites au problème fluide que celles présentes pour une unique poutre en vibration à une distance  $d = g/2$  d'un plan statique  $y = 0$ , avec  $g$  la largeur de l'espace inter-branche du diapason.

La littérature contient de nombreuses études d'une poutre en porte à faux oscillant proche d'un plan statique (GREEN et John E SADER 2005; NAIK et al. 2003). Si la poutre vibre à une distance trop réduite du plan, un amortissement dit de "squeeze" peut apparaître si la direction de vibration est parallèle à la normale du plan. Étant donné que nous recherchons des modélisations aboutissant à des expressions analytiques simples, nous pouvons pousser plus loin l'analogie introduite dans le paragraphe 2.1.2.2. La force hydrodynamique totale peut être vue comme la somme de 4 contributions, une pour chacun des arêtes de la section de la poutre. Dans le cas d'une poutre vibrant loin de toute

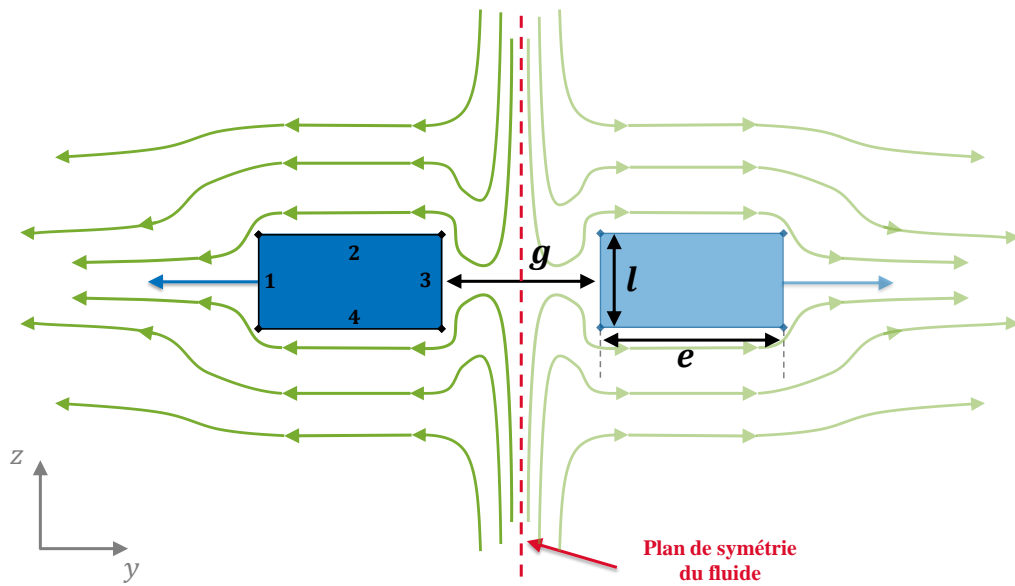


FIGURE 2.3 – Champ de vitesses du fluide autour d'une section de diapason lorsqu'il vibre sur un mode de flexion symétrique. Les quatre bords de la section oscillante sont numérotés 1,2,3 et 4.

structure statique,  $\Gamma_{fb}/2$  est choisi naturellement comme la fonction hydrodynamique exercée sur les côtés faisant face au fluide lors du mouvement (côtés numérotés 1 et 3 sur la figure 2.3), et de manière similaire  $\Gamma_{ud}/2$  est choisi comme contribution exercée sur les deux faces latérales (côtés numérotés 2 et 4 sur la figure 2.3). Lorsque l'un des côtés fait face à une structure statique plane (côté numéroté 3 sur la figure 2.3), une nouvelle fonction hydrodynamique  $\Gamma_{squeeze}(\omega)$  doit être prise en compte afin d'obtenir la force totale s'exerçant sur lui. Ce formalisme étendu devrait être quantitativement moins précis, mais il permet de modéliser un plus grand nombre de situations. Nous verrons que cette approche est suffisante pour expliquer certains comportements expérimentaux rapportés dans le paragraphe 2.2.

### La force de squeeze

L'expression pour  $\Gamma_{squeeze}(\omega)$  peut être estimée en considérant les équations de Reynolds. En utilisant les hypothèses détaillées par Bao (BAO et YANG 2007), la force de squeeze par unité de longueur est donnée par  $\hat{f}_{squeeze}(x,\omega) = -Pl[f_e(\sigma) - jf_d(\sigma)]\hat{W}(x,\omega)/d$ , avec  $P$  la pression du fluide environnant et  $\sigma = 12\mu\omega l^2 / (Pd^2)$  un nombre sans dimensions. Les fonctions  $f_e$  et  $f_d$  ont été introduites par Langlois (LANGLOIS 1961) :

$$\begin{cases} f_e(\sigma) = 1 - \sqrt{\frac{2}{\sigma}} \frac{\sinh\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right) + \sin\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right)}{\cosh\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right) + \cos\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right)}, \\ f_d(\sigma) = \sqrt{\frac{2}{\sigma}} \frac{\sinh\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right) - \sin\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right)}{\cosh\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right) + \cos\left(\sqrt{\frac{\sigma}{2}}\right)}. \end{cases}$$

On peut donc en extraire la fonction  $\Gamma_{squeeze}(\omega)$  :

$$\Gamma_{squeeze}(\omega) = -\frac{4P}{\pi d l \rho_f \omega^2} [f_e(\sigma) - j f_d(\sigma)]. \quad (2.13)$$

La principale difficulté est d'estimer la superposition correcte entre la force de squeeze et la force visqueuse déjà présente sur le côté faisant face au mur statique. Pour la comparaison présentée dans le paragraphe 2.2, nous avons tout simplement additionné les deux contributions, bien qu'une meilleure pondération pourrait être étudiée. La simple addition a le mérite de conserver les limites asymptotiques correctes par rapport à la variable  $d$ , bien que des erreurs soient attendues lorsque ces deux contributions ont une intensité comparable. Nous verrons que nous reproduisons cependant correctement les facteurs de qualité observés à l'aide de diapasons en quartz du commerce sujets à la force de squeeze.

## Résumé et conclusion

Nous avons utilisé une analogie physique basée sur l'observation du comportement du champ de vitesse du fluide afin d'estimer les forces d'amortissement visqueux qui s'appliquent sur chaque côté de chaque section d'une poutre en flexion dans un fluide. Nous avons obtenu une formule complètement analytique capable de prédire le facteur de qualité (équation 2.12) quelles que soient les dimensions de la section rectangulaire. On remarque que la formule dépend seulement implicitement de la longueur  $L$  de la poutre, par l'intermédiaire de la fréquence de résonance. On remarque également que l'amortissement théorique ne dépend pas exactement du ratio des dimensions du résonateur : les dimensions absolues du résonateur ont de l'importance.

Que ce soit pour le cas de la poutre simple ou du diapason, nous avons terminé cette première étape de l'évaluation séquentielle du facteur de qualité des résonateurs mécaniques en flexion. On incorpore à partir de maintenant l'amortissement visqueux obtenu dans le comportement du résonateur, que l'on suppose non affecté par la prise en compte de la compressibilité à venir.

### 2.1.3 Le facteur de qualité lié à la radiation acoustique

On considère maintenant que le milieu est compressible. On suppose que le mouvement du résonateur obtenu précédemment en prenant en compte la viscosité n'est pas affecté par cette nouvelle hypothèse. Le déplacement du résonateur  $w(x,t)$  est donc connu et donné par l'équation 1.39 du chapitre précédent avec  $Q = [Q_v^{-1} + Q_{vac}^{-1}]^{-1}$ .

### 2.1.3.1 État de l'art de l'amortissement acoustique

L'amortissement dû à la radiation acoustique est peu considéré dans le domaine des résonateurs mécaniques en flexion à fort facteur de qualité. L'une des raisons principales est identique à celle que nous avons rapportée pour l'étude de la viscosité : la plupart d'entre eux sont fabriqués à destination d'applications sous vide. Pour les résonateurs nécessitant leur immersion complète dans un fluide, l'amortissement visqueux est connu pour être négligeable uniquement pour des résonateurs de taille macroscopique dans la mesure où le ratio surface sur volume est faible. Leurs propriétés acoustiques ont été étudiées afin d'obtenir des expressions fiables du facteur de qualité total, mais les amortissements dans le vide sont généralement très élevés et par conséquent les facteurs de qualité associés faibles (BLAKE 1971 ; JEYAPALAN et RICHARDS 1979 ; JOHNSTON et BARR 1969).

Pour des résonateurs de taille plus petite présentant de très faibles amortissements dans le vide, le nombre de géométries rapportées reste aujourd'hui plutôt limité, et l'amortissement acoustique est la plupart du temps à peine décelable si ce n'est complètement négligeable. Pourtant, l'amortissement acoustique peut s'avérer limitant pour des géométries bien spécifiques et peut devenir comparable à l'amortissement visqueux, c'est pourquoi sa prise en compte détaillée est importante avant toute tentative d'optimisation pouvant déboucher sur ces géométries spécifiques.

La stratégie pour obtenir le facteur de qualité acoustique  $Q_r$  est de résoudre d'abord l'équation des ondes gouvernant le champ de pression dans tout l'espace autour du résonateur, afin d'en déduire la puissance totale irradiée par ce dernier  $P_r$  vers l'infini. On peut donc récupérer le système d'équations posé au chapitre précédent dans le cas de l'équation fondamentale du QEPAS en ignorant l'effet photoacoustique ( $H = 0$  dans le bloc acoustique du paragraphe 1.2.2.1). Les conditions aux limites imposées par le résonateur vont impacter le facteur de qualité acoustique en fonction du nombre de poutres composant le résonateur ainsi que de leur disposition. On traitera donc dans un premier temps le cas de la poutre simple avant de s'intéresser au cas du diapason.

### 2.1.3.2 L'amortissement acoustique de la poutre simple

Pour une poutre simple oscillant dans un milieu fluide non borné, deux approches analytiques différentes ont été proposées par le passé.

#### 2.1.3.2.1 L'approche acoustique équivalente

L'approche la plus simple établit une analogie entre la poutre oscillante et une collection de points sources acoustique, comme décrit sur la figure 2.4. Nous avons déjà utilisé cette approche pour résoudre le couplage vibroacoustique au chapitre précédent, dans le cadre d'un milieu fluide borné. Chaque mouvement mécanique est en effet équivalent à une injection de volume, et peut donc se traduire en termes acoustiques. L'équation 1.45a constituera donc notre point de départ, avec pour condition aux limites la condition de

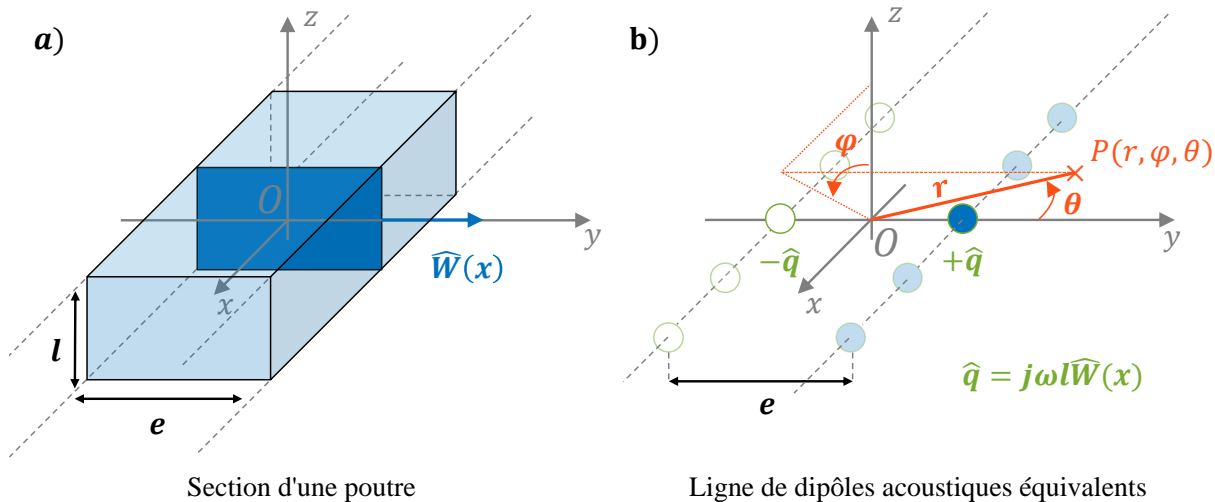


FIGURE 2.4 – Schéma de l'équivalence acoustique pour une poutre simple. a) Section géométrique de la poutre de largeur  $e$  et d'épaisseur  $l$ . L'amplitude du déplacement le long de l'axe  $y$  est représenté par  $\widehat{W}(x, \omega)$ . b) Points sources acoustiques équivalents pour modéliser la poutre, Avec  $S$  la force de la source.

radiation de Sommerfeld (équation 1.15b).

Puisque le résonateur provoque une injection de volume variable suivant  $x$  (l'amplitude du mouvement varie avec la déformée de cette poutre), la contribution totale des différentes sections de la poutre à la puissance acoustique totale irradiée n'est pas immédiate. On recense deux manières d'obtenir cette contribution totale.

### L'approche par points sources

La première manière est de considérer seulement deux points sources dans un espace supposé en 3 dimensions, conformément au schéma présenté sur la figure 2.4 en ne conservant que les points sur l'axe  $y$ . Nous l'appellerons l'approche par point source, et on utilisera le système de coordonnées sphériques recentré et visible sur la figure. Le système est donc équivalent à une section de poutre unique, portant la force acoustique totale de la poutre. Le débit total  $\hat{q}$  porté par le point situé en  $y = e/2$  est donc le débit intégré le long de la poutre, et prendra en compte au moins de manière approchée les possibles interférences dans le champ de pression lointain lié à l'émission en phase du son à toutes les sections. Pour ce faire, nous allons ajouter un déphasage dépendant de l'angle polaire  $\varphi$ . Un exemple de cette méthode peut être trouvé dans l'étude de Jünger, qui s'était limitée au cas  $k_v e \ll 1$  (JUNGER 1972). Nous définissons donc le débit total porté par le point source en  $y = e/2$  par l'équation (2.14) pour notre analogie, en utilisant le lien entre mouvement mécanique et volume injecté déjà présenté au chapitre précédent (équation 1.43).

$$\hat{q}(\omega) = j\omega l \hat{w}(\omega) \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \quad (2.14)$$

Le point source situé en  $y = -e/2$  porte donc nécessairement le débit opposé. La fonction de Green associée à l'équation des ondes en 3 dimensions s'éloignant des sources étant  $G(r, r_0, \omega) = \exp(-jk_v|r - r_0|) / (4\pi|r - r_0|)$ , nous obtenons la solution pour la pression par convolution :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{j\omega\rho_f\hat{q}(\omega)}{4\pi} \left[ \frac{e^{-jk_v R_+}}{R_+} - \frac{e^{-jk_v R_-}}{R_-} \right] \quad (2.15)$$

Les nombres  $R_{\pm} = \sqrt{r^2 + (e/2)^2 \pm re \cos \theta}$  mesurent les distances entre le point d'observation et les deux points sources. Afin de séparer les coordonnées, nous utilisons les identités de potentiels déportés valides si  $r > e/2$  (MORSE et FESHBACH 1953b) :

$$\frac{e^{-jk_v R_{\pm}}}{R_{\pm}} = -jk_v \sum_{m=0}^{+\infty} (2m+1) P_m(\cos \theta) j_m\left(k_v \frac{e}{2}\right) h_m(k_v r) \quad (2.16)$$

Dans l'équation précédente,  $P_m$  sont les polynômes de Legendre,  $j_m$  et  $h_m$  sont respectivement les fonctions de Bessel et de Hankel sphériques. Rassemblant les deux termes sources au sein de la même somme infinie, on remarque que  $[P_m(\cos \theta) - P_m(-\cos \theta)]$  s'annule pour des indices  $m$  pairs en raison des propriétés de parité des polynômes de Legendre. L'équation (2.15) se transforme alors en l'équation (2.17).

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{j\omega\rho_f\hat{q}(\omega)}{4\pi} \left[ -2jk_v \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+3) P_{2m+1}(\cos \theta) j_{2m+1}\left(k_v \frac{e}{2}\right) h_{2m+1}(k_v r) \right] \quad (2.17)$$

La puissance totale acoustique irradiée par le résonateur à l'infini est alors donnée par l'équation (2.18).

$$P_r(\omega) = \int_{\theta=0}^{\pi} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \frac{|\hat{P}(r, \varphi, \theta, \omega)|^2}{2\rho_f v} r^2 \sin \theta d\theta d\varphi \quad (2.18)$$

On rappelle la propriété d'orthonormalité des polynômes de Legendre en notant  $\delta_{ij}$  le symbole de Kronecker :

$$\int_0^{\pi} P_i(\cos \theta) P_j(\cos \theta) \sin \theta d\theta = 2\delta_{ij} / (2i+1) \quad (2.19)$$

En utilisant cette propriété et en prenant la limite asymptotique dans l'expression des fonctions de Hankel sphériques à grande distance du résonateur, on obtient à partir des équations (2.17) et (2.18) l'expression de la puissance acoustique radiée à l'infini.

$$P_r(\omega) = \frac{\omega^4 l^2 \rho_f}{4\pi^2 v} |\hat{w}(\omega)|^2 \int_{\varphi=0}^{2\pi} \left| \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \right|^2 d\varphi \times \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+3) \left[ j_{2m+1}\left(k_v \frac{e}{2}\right) \right]^2 \quad (2.20)$$

Si  $U(\omega)$  désigne l'énergie stockée dans le résonateur, alors le facteur de qualité peut être défini par :



$$Q_r = \frac{\omega U(\omega)}{P_r(\omega)} \quad (2.21)$$

En supposant que toute l'énergie stockée dans la poutre l'est uniquement sous forme d'énergie cinétique, l'équation 1.33 peut être réécrite sous la forme :

$$U(\omega) = \frac{1}{2} |\hat{w}(\omega)|^2 \rho_p e l \omega^2 \int_0^L \phi_n^2(x) dx \quad (2.22)$$

Combinant les équations (2.20) (2.21) et (2.22), nous obtenons l'expression du facteur de qualité acoustique de la poutre simple :

$$Q_r = 2\pi^2 \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{e}{k_v l} \left[ \frac{\int_{\varphi=0}^{2\pi} \left| \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \right|^2 d\varphi}{\int_0^L \phi_n^2(x) dx} \times \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+3) [j_{2m+1}(k_v e/2)]^2 \right]^{-1} \quad (2.23)$$

### L'approche de la ligne infinie

La seconde approche acoustique équivalente a été proposée d'abord par Schmoranzler dans le cas de diapasons encastré-libre (SCHMORANZER et al. 2011). Son approche peut être étendue au cas de la poutre simple quelles que soient ses conditions aux limites. Nous l'appellerons l'approche de la ligne infinie. Les résultats relatifs au cas du diapason seront détaillés par la suite. L'idée est d'introduire dès le début de la résolution les interférences causées par les différentes sections infinitésimales de la poutre d'une manière plus rigoureuse. Dans cette optique, la poutre est supposée infinie dans la direction  $x$ , et le problème acoustique équivalent est alors représenté par deux sources linéiques infinies de force opposée. L'invariance par translation simplifie le problème (P) pour donner un problème 2D, et le débit est désormais donné par unité de longueur par l'équation (2.24).

$$\hat{q}(\omega) = j\omega l \hat{w}(\omega) \quad (2.24)$$

Faisant appel aux coordonnées cylindriques  $(r, \theta, x)$  (qui correspondent aux coordonnées sphériques précédemment introduites par la correspondance  $(r, 0, \theta)$  dans le plan  $yOz$ , considérant  $x$  comme la coordonnée cartésienne le long de l'axe  $x$ ) la fonction de Green est désormais en 2D et s'écrit  $G(r, r_0, \omega) = -jH_0^{(2)}(k_v|r - r_0|)/4$ , avec  $H_0^{(2)}$  la fonction de Hankel à l'ordre 0 et de deuxième espèce que nous avons déjà croisé au chapitre précédent pour résoudre le champ de pression rayonné par l'effet acoustique. La solution du problème est tout à fait similaire ici, avec une force linéique qui n'est plus liée à la puissance du laser mais au déplacement du résonateur. Toutes les étapes précédentes menées dans le cadre de l'approche par points sources restent identiques dans cette nouvelle situation, et nous ne donnerons par conséquent que les étapes principales. Le nouveau champ de pression est :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\omega \rho_f \hat{q}(\omega)}{4} \left[ H_0^{(2)}(k_v R_+) - H_0^{(2)}(k_v R_-) \right] \quad (2.25)$$

La nouvelle identité pour les potentiels déportés, valide si  $r > e/2$  (MORSE et FESH-BACH 1953b), s'écrit désormais :

$$H_0^{(2)}(k_v R) = \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} e^{-jm(\theta-\theta_0)} H_m^{(2)}(k_v r) J_m(k_v r_0) \quad (2.26)$$

avec  $H_m^{(2)}$  et  $J_m$  représentant respectivement les fonctions de Hankel de seconde espèce et les fonction de Bessel de première espèce d'ordre  $m$ , et  $(r_0, \theta_0)$  désignant les coordonnées du centre de la ligne source. Le champ de pression total s'écrit alors :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \omega \rho_f \frac{\hat{q}(\omega)}{2} \left[ \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} e^{-j(2m+1)\theta} H_{2m+1}^{(2)}(k_v r) J_{2m+1}\left(k_v \frac{e}{2}\right) \right] \quad (2.27)$$

L'approximation de cette méthode apparaît lors de l'étape de l'intégration de la puissance irradiée, nécessaire pour obtenir une expression analytique. Toute la puissance irradiée dans les deux demi-espaces au dessus et au dessous des bouts de la poutre est négligée ( pour  $x > L$  et pour  $x < 0$ ). L'intégration a lieu loin du résonateur afin d'utiliser les formes asymptotiques des fonctions de Hankel, et elle nécessite également la prise en compte de la longueur finie de la poutre. On a choisi l'expression  $\hat{q}(x, \omega) = j\omega l \hat{w}(\omega) \phi_n(x)$  pour le débit linéique, et ce choix constitue une approximation supplémentaire dans la mesure où l'on avait supposé une invariance le long de l'axe  $x$ . On obtient la puissance acoustique irradiée :

$$P_r(\omega) = \omega^3 \rho_f |\hat{w}(\omega)|^2 l^2 \int_0^L \phi_n^2(x) dx \sum_{m=0}^{+\infty} \left[ J_{2m+1}\left(k_v \frac{e}{2}\right) \right]^2 \quad (2.28)$$

On en déduit immédiatement le facteur de qualité correspondant :

$$Q_r = \frac{1}{2} \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{e}{l} \left[ \sum_{m=0}^{+\infty} [J_{2m+1}(k_v e/2)]^2 \right]^{-1} \quad (2.29)$$

Aucun des deux modèles acoustiques équivalents présentés précédemment ne sont parfaitement rigoureux à propos du rôle joué par la longueur de la poutre dans l'expression du facteur de qualité. Les deux tentent d'inclure son influence sur la puissance acoustique irradiée, et une comparaison entre les deux modèles est nécessaire pour évaluer lequel montre les meilleurs accords. Nous pouvons raisonnablement attendre de l'approche par la ligne infinie un meilleur accord si la longueur de la poutre est grande devant la longueur d'onde acoustique ( $L \gg \lambda_v$ ) puisque ce cas est mieux en accord avec les hypothèses de ce modèle (invariance le long de la longueur de la poutre). De manière similaire, nous attendons un meilleur accord de l'approche par points sources si la longueur de la poutre est plus petite que la longueur d'onde acoustique ( $L \ll \lambda_v$ ), puisque l'impact du déphasage le long de la poutre a été introduit de manière non rigoureuse.

### 2.1.3.2.2 Le changement de forme de section

Le deuxième type de formalisme fait une hypothèse sur la forme de la section de la poutre afin d'en obtenir une solution analytique. Cette solution semble plus rigoureuse que les deux méthodes précédentes puisqu'il n'est pas question d'analogies. Il a été proposé de remplacer la forme de la section par une forme circulaire (JOHNSTON et BARR 1969) ou par une forme elliptique (BLAKE 1974; JOHNSTON et BARR 1969; MORSE et FESHACH 1953b). Cependant, des hypothèses supplémentaires sont nécessaires. Afin de modéliser des sections rectangulaires arbitraires, l'approche elliptique semble plus proche de la réalité que la forme circulaire, et nous n'allons expliciter que ce cas ici. Dans la description elliptique, l'utilisation des coordonnées elliptiques permet d'écrire une solution exacte en termes de fonctions de Mathieu. Nous l'appellerons l'approche elliptique. Le formalisme requiert que la longueur de la poutre  $L$  soit bien plus grande que la longueur d'onde acoustique  $\lambda_v = 2\pi v/\omega$ , car l'hypothèse de la poutre infiniment longue est nécessaire. Des écarts sont attendus sur tous les modèles utilisant cette dernière hypothèse s'ils sont appliqués sur les premiers modes de flexion car ils présentent des effets de bord relativement élevés. Puisque la puissance acoustique irradiée totale a été donnée plusieurs fois dans littérature, nous reprenons l'expression dérivée par Blake supposant  $k_v l \ll 1$  (BLAKE 1974) :

$$P_r(\omega) = \frac{\pi \rho_f v}{512} (k_v l)^4 \omega^2 |\hat{w}(\omega)|^2 \int_{\varphi=0}^{\pi} \sin^3 \varphi \left| \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \right|^2 d\varphi \quad (2.30)$$

L'énergie stockée dans le résonateur est toujours  $U(\omega)$ , et on obtient donc directement l'expression du facteur de qualité :

$$Q_r = \frac{256 \rho_p}{\pi \rho_f} \frac{1}{(k_v l)^3} \frac{e \int_0^L \phi_n^2(x) dx}{\int_{\varphi=0}^{\pi} \sin^3 \varphi \left| \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \right|^2 d\varphi} \quad (2.31)$$

Le résultat est similaire à l'expression donnée par Lochon & al. (LOCHON et al. 2006) divisée par un facteur  $4\pi^2$  qu'ils ont omis.

### 2.1.3.3 Le cas du diapason

On considère maintenant un diapason immergé au sein d'un fluide compressible non borné. On applique la même stratégie que dans le cadre de la poutre simple afin d'obtenir l'expression du facteur de qualité. Les résultats obtenus dans le cas de la poutre simple ne peuvent pas être simplement adaptés au cas du diapason pour l'amortissement acoustique. L'approche par point source et l'approche de la ligne infinie pour les modes de vibration dans le plan des diapasons ont été étudié respectivement par Sillitto (SILLITTO 1966) et Schmoranzler (SCHMORANZER et al. 2011). Nous n'évoquerons pas l'analogie possible avec deux cylindres infinis (CLUBB et al. 2004) dans la mesure où cette approche est très similaire à celle de Schmoranzler.

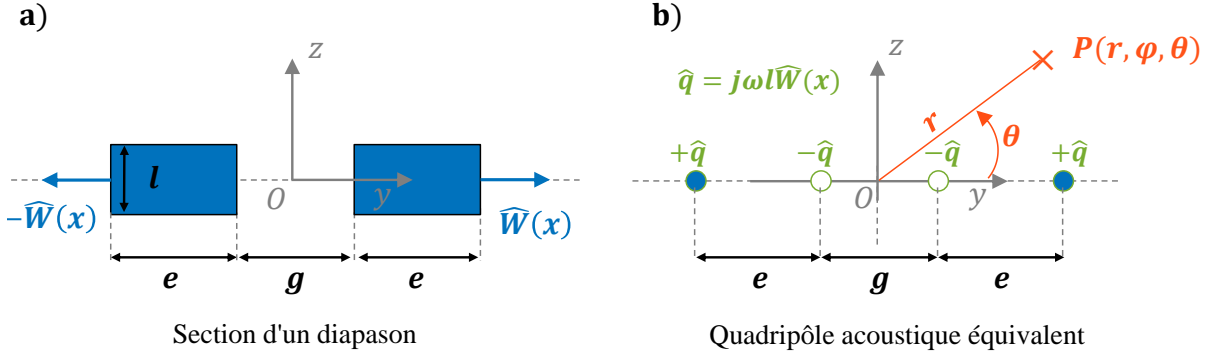


FIGURE 2.5 – Schéma d'un diapason et de ses sources acoustiques équivalentes. a) Le diapason opéré sur un mode de vibration dans le plan, et b) l'équivalent en sources acoustiques ponctuelles de cette vibration.

### 2.1.3.3.1 Le modèle étendu de Sillitto

Nous utilisons les mêmes notations que pour le cas de la poutre simple, à l'exception de l'origine qui est désormais située entre les deux branches conformément à la figure 2.5. Puisque le diapason est composé de deux poutres, l'analogie acoustique devient un ensemble de quatre points sources. Cette configuration acoustique est appelée "quadrupole longitudinal". Ce modèle a d'abord été proposé par Sillitto pour la vibration dans le plan, et nous proposons ici une extension pour éviter d'utiliser l'hypothèse  $L \ll \lambda_v$ .

Pour un mode de vibration dans le plan, la pression est désormais donnée par

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{j\omega\rho_f\hat{q}(\omega)}{4\pi} \left[ -2jk_v \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+1) P_{2m}(\cos\theta) \times \left[ j_{2m}\left(k_v\left(e + \frac{g}{2}\right)\right) - j_{2m}\left(k_v\frac{g}{2}\right) \right] h_{2m}(kr) \right] \quad (2.32)$$

En utilisant l'équation (2.18), la puissance acoustique totale radiée à l'infini est donnée par :

$$P_r(\omega) = \frac{\rho_f\omega^2}{2\pi v} |\hat{q}(\omega)|^2 \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+1) \left[ j_{2m}\left(k_v\left(e + \frac{g}{2}\right)\right) - j_{2m}\left(k_v\frac{g}{2}\right) \right]^2 \quad (2.33)$$

Ici encore, nous essayons d'inclure l'influence de la longueur des branches par l'ajustement de la force de la source acoustique, ce que Sillitto appelle la "longueur effective". Nous choisissons d'utiliser la même expression que celle utilisée dans le cas de la poutre simple, et qui est définie par l'équation (2.15). Remarquant que l'énergie stockée dans le diapason est désormais deux fois celle contenue dans l'une des deux branches dont la valeur a été rappelée avec l'équation (2.22), on obtient le facteur de qualité suivant :

$$Q_r = 4\pi^2 \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{e}{k_v l} \left[ \frac{\int_{\varphi=0}^{2\pi} \left| \int_0^L \phi_n(x) e^{-jk_v x \cos \varphi} dx \right|^2 d\varphi}{\int_0^L \phi_n^2(x) dx} \times \sum_{m=0}^{+\infty} (4m+1) \left[ j_{2m} \left( k_v \left( e + \frac{g}{2} \right) \right) - j_{2m} \left( k_v \frac{g}{2} \right) \right]^2 \right]^{-1} \quad (2.34)$$

Nous retrouvons le résultat de Sillitto en supposant que la longueur totale des branches est faible devant la longueur d'onde acoustique, et le déphasage est donc négligeable et le facteur  $B \equiv \hat{q}$  introduit par Sillitto s'écrit  $B = j\omega l \hat{w}(\omega) L_e$ , avec  $L_e = \int_0^L \phi_n(x) dx$  la longueur effective des branches.

### 2.1.3.3.2 Le modèle de Schmoranz

Une approche différente pour éviter l'hypothèse  $L \ll \lambda_v$  a été proposée par Schmoranz. Nous avons déjà détaillé sa méthode dans le cas de la poutre simple, et nous allons donc uniquement donner les étapes clef par la suite. La puissance acoustique irradiée et intégrée sur un cylindre à grande distance du diapason, négligeant les demi-espaces au dessus et au dessous des branches donne :

$$P_r(\omega) = \frac{\rho_f \omega^3 |\hat{w}|^2 l^2}{2} \frac{\int_0^L \phi_n^2(x) dx}{\sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} \left[ J_{2m} \left( k_v \left( e + \frac{g}{2} \right) \right) - J_{2m} \left( k_v \frac{g}{2} \right) \right]^2} \quad (2.35)$$

Le facteur de qualité acoustique équivalent en utilisant la notation de Kronecker  $\delta_{0,m}$  est :

$$Q_r = 2 \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{e}{l} \left[ \sum_{m=0}^{+\infty} \frac{2}{1 + \delta_{0,m}} \left[ J_{2m} \left( k_v \left( e + \frac{g}{2} \right) \right) - J_{2m} \left( k_v \frac{g}{2} \right) \right]^2 \right]^{-1} \quad (2.36)$$

## 2.1.4 Facteur de qualité total et expressions approchées

### Facteur de qualité total

Dans le cadre des résonateurs de haut facteur de qualité, on supposera que l'on peut utiliser la règle d'additivité des facteurs de qualité obtenus dans le cadre de l'approche séquentielle.

Le facteur de qualité total  $Q$  s'exprimera donc sous la forme suivante :

$$Q = \left[ Q_v^{-1} + Q_r^{-1} + Q_{vac}^{-1} \right]^{-1} \quad (2.37)$$

Dans le cas de la photoacoustique, l'utilisation des tubes d'amplification acoustique modifie à nouveau le problème acoustique à résoudre. En première approximation, on peut négliger la radiation des deux points intérieurs aux branches puisque ces derniers émettent leurs ondes à l'intérieur des tubes. Une meilleure description du facteur de qualité

acoustique du résonateur dans ce cas est donc d'utiliser, par exemple, l'équation 2.36 en omettant la contribution  $J_{2m}$  dans la somme infinie. En contrepartie, le facteur de qualité acoustique  $Q_m$  de la cavité acoustique résonante prendra en compte l'amortissement au sein du domaine intérieur résonant.

### Expressions approchées

Afin d'obtenir une formule directement accessible pour mieux se représenter l'importance des différents paramètres du problème, on propose d'obtenir une expression approximée des différents amortissements.

Pour l'amortissement visqueux  $Q_v$ , on peut effectuer un développement asymptotique du facteur de qualité pour des paramètres  $\beta$  élevés. C'est en pratique toujours le cas de l'air à pression atmosphérique, et la validité de l'hypothèse sera à vérifier à des pressions plus réduites. On négligera la partie réelle des forces hydrodynamiques, qui sont négligeable en pratique pour des résonateurs de fort facteur de qualité, ce qui nous permet d'appliquer la formule 2.12 pour chaque contribution. La fonction hydrodynamique frontale d'une poutre à section circulaire (équation 2.6) peut être simplifiée en utilisant un développement limité des fonctions modifiées de Bessel  $K_\alpha(z)$  valable si  $|z| \gg |\alpha^2 - 1/4|$  :

$$\Gamma_{fb}(\omega) = 1 + 2\sqrt{\frac{2}{\beta}}(1 + j) \quad (2.38)$$

A titre d'exemple, le nombre  $\beta$  vaut environ 300 pour un diapason commercial dans l'air ambiant, et l'utilisation des formes asymptotiques est donc largement justifiée dans ce cas. Puisque la correction de Sader pour obtenir la fonction hydrodynamique sur une poutre de section rectangulaire tend vers 1 pour les grands nombres  $\beta$  (voir eq.2.7), on en déduit donc le facteur de qualité frontal :

$$Q_{fb} = \frac{\rho_p e}{\pi} \sqrt{\frac{\omega}{2\rho_f \mu}} \quad (2.39)$$

L'amortissement visqueux latéral peut se déduire sans développement limité, et on obtient :

$$Q_{ud} = \rho_p l \sqrt{\frac{\omega}{2\rho_f \mu}} \quad (2.40)$$

Le nombre  $\sigma$  défini dans le cadre de l'étude de l'amortissement de squeeze vérifie toujours  $\sigma \ll 1$  pour des pressions suffisantes. Pour un diapason commercial, c'est typiquement le cas au delà de  $P = 2000Pa$ . Dans ces conditions, on peut effectuer un développement limité de la fonction hydrodynamique sur ce paramètre, et on obtient alors :

$$Q_{sq} = \rho_p \frac{ed^3\omega}{l^2\mu} \quad (2.41)$$

Pour l'amortissement acoustique  $Q_r$ , il peut également être simplifié. Pour les diapa-  
sons et dans l'hypothèse  $k_v(e + g/2) \ll 1$ , on peut par exemple ne retenir que les premiers  
termes de la somme apparaissant dans l'expression de  $Q_r$  (équation 2.36). On obtient alors :

$$Q_r = \frac{64 \rho_p}{3 \rho_q} \frac{1}{k_v^4 e l (e + g)^2} \quad (2.42)$$

## 2.2 Validation expérimentale de l'amortissement des résonateurs

Nous allons dans un premier temps vérifier la validité de la modélisation précédente en comparant ses prédictions avec des mesures rapportées dans la littérature. Ensuite, nous effectuerons des mesures sur de nombreux résonateurs à notre disposition, et nous utiliserons également les résultats de simulations numériques. Concernant l'utilisation des formules analytiques que nous avons présentées, on les appliquera en considérant la fréquence de résonance réelle des résonateurs quand c'est possible. En effet, la fréquence de résonance prédite analytiquement peut générer d'importants écarts par rapport à la réalité, et cette correction devient nécessaire pour mieux correspondre à la réalité.

### 2.2.1 Comparaisons avec la littérature

Zhang *et al.* (ZHANG et TURNER 2005) ont publié des résultats expérimentaux à propos de poutres en porte-à-faux de longueur fixée à  $L = 600 \mu\text{m}$  mais présentant une épaisseur s'étalant de  $l = 20 \mu\text{m}$  à  $l = 50 \mu\text{m}$ . Leur largeur  $e = 5 \mu\text{m}$  est identique pour toutes les poutres. Chaque poutre est opérée sur plusieurs modes propres de flexion, ce qui permet de couvrir la dépendance de l'amortissement vis à vis de la fréquence de vibration. La relation entre le coefficient d'amortissement utilisé par les auteurs et le facteur de qualité est  $C_{damping} = \pi\omega\rho_f l^2 \Gamma_{hydro}^i(\omega) / 4$ . Un facteur de qualité typique sous vide de  $Q_{vac} = 10000$  a été choisi, mais ce choix influe peu sur les résultats finaux.

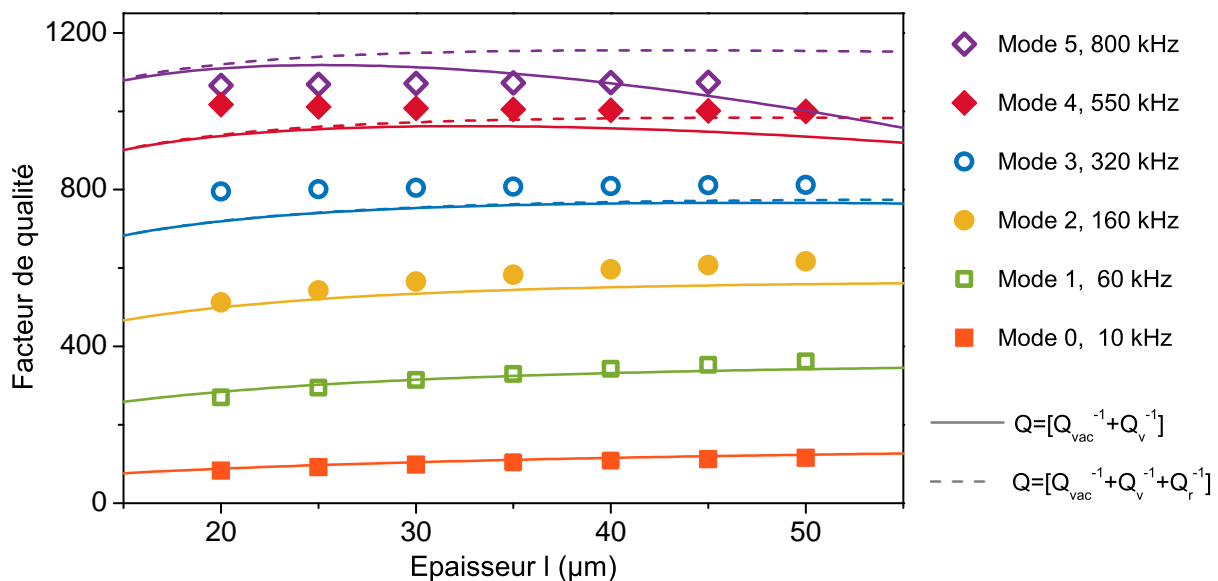


FIGURE 2.6 – Comparaisons entre théorie et expérience dans l'air ambiant entre les données expérimentales de Zhang *et al.* (séries de points) et notre formule analytique originale (séries de lignes). L'étude expérimentale portant sur les différents modes de flexion permet de vérifier la dépendance de la modélisation vis à vis de la fréquence de vibration.



Notre résultat montre le très bon accord avec les tendances expérimentales mesurées, et l'amortissement est bien plus important à basse fréquence. Des désaccords ont tendance à apparaître uniquement sur les modes de rang élevé. L'ordre du mode apparaît indirectement à travers la fréquence de résonance dans notre formule analytique 2.12. On constate également que l'amortissement acoustique est négligeable pour les 4 premiers modes de flexion. A haute fréquence, la longueur d'onde acoustique devient suffisamment faible pour être comparable aux dimensions de la section, et l'amortissement acoustique ne peut plus être négligé.

Dans l'étude de Vignola *et al.* (VIGNOLA *et al.* 2006), un diapason encastré-libre en diamant micrométrique a été fabriqué et son facteur de qualité a été mesuré dans l'air ambiant. La longueur de chaque poutre est de  $L = 5,8 \mu\text{m}$ , sa largeur est de  $e = 0,8 \mu\text{m}$  et son épaisseur est de  $l = 0,2 \mu\text{m}$ . Notre modèle prédit  $Q_{air} = 775$ , qui est cohérent avec la valeur expérimentale rapportée de  $Q_{exp} = 813$ . Même si la taille du résonateur est extrêmement petite, le nombre de Knudsen  $\text{Kn} \sim 0,05$  reste suffisamment faible pour pouvoir considérer le régime fluide comme continu. L'espace entre les deux branches du diapason est également suffisante pour pouvoir considérer l'influence de l'amortissement de squeeze comme négligeable : le critère  $\Gamma_{squeeze}^i(\omega)/\Gamma_{fb}^i(\omega) \sim 4 \cdot 10^{-11} \ll 1$  est en effet largement satisfait. Dans ce cas, l'amortissement acoustique est également négligeable dans la mesure où l'on obtient  $Q_r \approx 6,04 \cdot 10^5$  à l'aide du modèle de Schmoranzler.

En tant que troisième et dernière comparaison avec la littérature, nous utilisons le travail de Lee *et al.* (J.-H. LEE *et al.* 2007) qui ont obtenu des résultats expérimentaux à propos de poutres en porte-à-faux de tailles micrométriques. Ils ont fabriqué ces résonateurs en silicium, avec des dimensions fixées à  $L = 240 \mu\text{m}$ ,  $e = 1,15 \mu\text{m}$  et  $l = 30 \mu\text{m}$ . Pour ces dimensions particulières, nous obtenons  $Q_{air} = 34,8$ , ce qui est très proche de la mesure  $Q_{exp} = 29,3$  des auteurs. Dans la mesure où la largeur des poutres  $e$  est très fine, notre formule se réduit naturellement à la formule de Sader. L'amortissement latéral devient négligeable comparé aux amortissements frontaux, tout comme l'amortissement acoustique qui dépasse  $10^9$  dans ce cas.

Fort de cette comparaison avec ces trois précédents papiers, notre modèle semble cohérent avec les poutres en porte-à-faux micrométriques et les diapasons, avec des longueurs typiques s'étalant de  $1 \mu\text{m}$  à  $100 \mu\text{m}$ . Cependant, certaines formules données dans la littérature deviennent caduques lorsque l'on tente de les appliquer à des résonateurs de taille plus importante. Par exemple, la formule de Newell (NEWELL 1968) surestime très largement le facteur de qualité des grosses structures dans l'air ambiant à pression atmosphérique (voir figure 2.8). Comme nous allons le montrer, notre modèle s'applique également à cette classe de résonateurs.

## 2.2.2 Comparaisons expérimentales en laboratoire

Peu de données expérimentales ont été publiées à propos de l'amortissement dans l'air en régime continu des structures dont la taille caractéristique est de l'ordre du millimètre

ou au delà. Ceci est dû à un facteur de qualité relativement bon par rapport à celui observé dans le vide, par exemple pour les diapasons horlogers commerciaux.

### Notre dispositif expérimental

Une des manières de mesurer expérimentalement le facteur de qualité est d'utiliser la décroissance de la réponse en tension des résonateurs visualisée sur un oscilloscope. Cette tension a pour allure  $V(t) = V(0) \exp(-t/\tau)$ , et on peut relier la décroissance caractéristique au facteur de qualité à l'aide de la fréquence de résonance du résonateur  $f_n$  :

$$Q = \pi\tau f_n \quad (2.43)$$

Une autre manière de faire est de mesurer la bande passante à 3 dB, c'est à dire l'écart  $f_+ - f_-$  entre les deux fréquences vérifiant  $V(f_-) = V(f_+) = V_{max}/\sqrt{2}$ . Cette approche n'est valable que lorsque la résonance est très prononcée et que le filtre ressemble fortement à un passe bande. Le facteur de qualité s'exprime alors :

$$Q = \frac{f_n}{f_+ - f_-} \quad (2.44)$$

Nous avons étudié la dépendance du facteur de qualité de plusieurs résonateurs immergés dans l'air ambiant vis à vis de la pression. Afin de couvrir plusieurs dimensions et différentes conditions d'encastrement, nous avons sélectionné les résonateurs suivants des tableaux 1.1 et 1.2 :

- Les deux diapasons en quartz du commerce TF 1 et TF 2, présentant tout deux une dimension caractéristique de l'ordre de quelques centaines de micromètres. Cela permet en particulier d'étudier la présence d'un mur statique perpendiculaire au plan de vibration à proximité des branches en vibration, comme c'est expliqué au paragraphe 2.1.2.3.
- Le résonateur millimétrique V4D fabriqué dans notre laboratoire. Il permet d'étudier la validité du modèle par rapport à la taille absolue du résonateur.
- Les deux résonateurs encastré-encastré VIA et VIA1.8 fabriqués dans notre laboratoire, présentant une dimension caractéristique de l'ordre de la dizaine de microns. Ils permettent d'étudier l'absence totale de mur statique à proximité et des conditions aux limites de fixation encastrées-encastrées.
- Les deux résonateurs RC et C1 fabriqués dans notre laboratoire, présentant une dimension caractéristique de l'ordre de la longueur d'onde acoustique. Ces deux résonateurs sont susceptibles d'exhiber un facteur de qualité acoustique non négligeable.

Chacun de ces résonateurs a été introduit au sein d'une cloche à vide. Un capteur de pression Pfeiffer TPR280 a été utilisé afin de mesurer la pression à tout instant. La cloche à vide est directement reliée à une pompe à vide par l'intermédiaire d'une bonde,

permettant de maintenir une pression constante dans l'intervalle 1 Pa-10<sup>5</sup> Pa. Le facteur de qualité  $Q_{vac}$  est considéré comme étant la valeur du facteur de qualité lorsque la pression est inférieure à 0,1 Pa. On rappelle que cette valeur résulte de la compétition entre plusieurs sources de dissipation interne (voir paragraphe 2.1.2.2).

La pression apparait dans la formule (2.12) par l'intermédiaire de la densité du fluide  $\rho_f$ . D'après la loi des gaz parfaits, elle décroît linéairement avec la pression  $\rho_f = \rho_{at}P/P_{at}$ , avec  $\rho_{at} = 1,2 \text{ kg.m}^{-3}$  la densité de l'air ambiant à 20 °C et  $P_{at} = 101325 \text{ Pa}$  la pression atmosphérique dans des conditions normales. Nous rappelons que la formule (2.12) est attendue valide seulement au sein du régime continu, c'est à dire lorsque le nombre de Knudsen  $Kn$  est plus petit que 0,01. On a reporté sur les figures des lignes verticales en pointillés afin de délimiter les différents régimes de Knudsen, indiquant la zone sur laquelle les modélisations sont valides.

Nous avons également présenté au chapitre précédent une manière d'obtenir le facteur de qualité  $Q_r$  uniquement dû à l'acoustique à l'aide de logiciels de calcul par éléments finis. Nous utiliserons ce type de résultats pour simuler les valeurs des pertes purement acoustiques et pour ensuite les comparer avec les différents modèles analytiques.

### Les diapasons en quartz commerciaux

Les résultats concernant les deux diapasons en quartz commerciaux sont montrés sur la figure 2.7. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec les valeurs mesurées. Les valeurs sont prédites avec une précision inférieure à 20% pour les deux résonateurs. Ces derniers semblent également sujets à l'amortissement de squeeze, puisque sa présence permet d'expliquer l'inflexion théorique qui intervient autour de la pression  $P = 100 \text{ Pa}$ .

Expérimentalement, le facteur de qualité intrinsèque de TF 2 est meilleur que celui de TF 1, même si c'est l'inverse dans l'air à pression atmosphérique. Une inflexion semble se dessiner entre le régime de glissement ( $0,1 < Kn < 0,01$ ) et le régime de transition ( $0,1 < Kn < 10$ ). Nous ne pouvons pas discriminer de manière irréfutable l'impact respectif des écarts par rapport aux équations de Navier-Stokes et l'amortissement de squeeze dans cette situation. Cependant, l'inflexion est moins prononcée pour TF 1 que pour TF 2, ce qui serait cohérent avec un amortissement présentant une dépendance par rapport au ratio  $l/g$ . L'amortissement de squeeze présente justement cette propriété (GREEN et John E SADER 2005), et pourrait expliquer quantitativement la différence que l'on mesure entre ces deux diapasons du commerce qui présentent par ailleurs des dimensions absolues tout à fait comparables.

La présence d'amortissement de squeeze pourrait également expliquer une partie des écarts qui sont observés entre les valeurs prédites et les valeurs expérimentales. L'ajout de cet amortissement considéré comme indépendant des autres, comme nous l'avons proposé au paragraphe 2.1.2.3, donne une estimation quantitative relativement précise de la valeur réelle. Des expériences spécifiques sur l'amortissement de squeeze serait intéressantes pour améliorer notre modèle. Physiquement, cela signifie que l'amortissement de squeeze

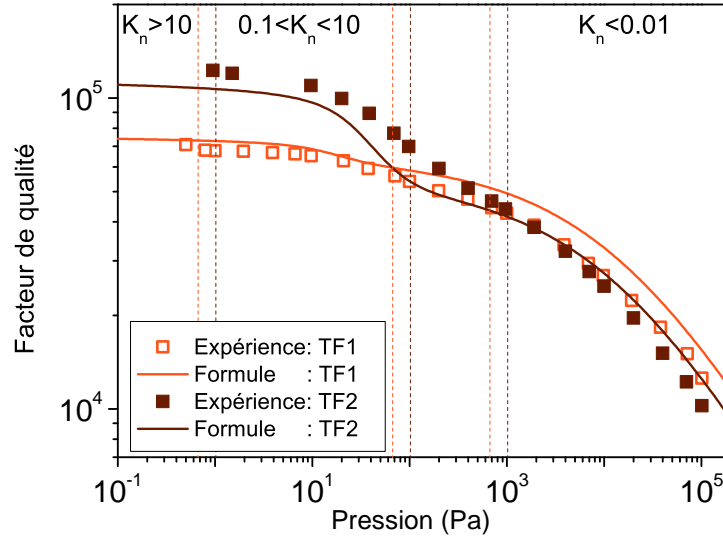


FIGURE 2.7 – Dépendance du facteur de qualité vis-à-vis de la pression pour les deux diapasons en quartz du commerce TF 1 et TF 2. Les lignes verticales en tirets délimitent les différents régimes fluides d'après leur nombre de Knudsen  $Kn$ .

affecte les lignes de flux sur la surface faisant front au mur statique, qui ressemble donc nécessairement moins à celles présentées sur notre analogie illustrée sur la figure (2.2).

Le logiciel de simulation par éléments finis donne, en considérant de l'air à pression atmosphérique comme fluide, un facteur de qualité acoustique de  $Q_r = 3,710^6$  pour le mode fondamental de flexion dans le plan. Cette valeur est bien largement supérieure aux facteurs de qualité visqueux typiques qui sont de l'ordre de  $10^4$ , et qui confirme donc qu'il est pertinent de négliger l'amortissement acoustique sur ce type de résonateur à condition qu'ils soient opérés sur des modes à basse fréquence. Pour ces diapasons, nous avons en outre dans l'air  $k_v e \ll 1$  et il est donc possible d'utiliser les expressions analytiques simplifiées pour le facteur de qualité acoustique. Le ratio entre les valeurs prédites par l'approche par point source et l'approche de la ligne infinie est, pour le mode fondamental de flexion :

$$\frac{Q_{r,point}}{Q_{r,line}} \sim \frac{10}{k_v L} \quad (2.45)$$

Ce ratio simplifié montre qu'il n'existe pas de modèle analytique couvrant précisément toutes les formes possibles de résonateur, puisque les deux expressions ne se comportent pas de la même façon vis-à-vis de la fréquence de vibration et de la longueur des branches. Les applications numériques donnent  $Q_{r,line} = 2,3 \cdot 10^6$  et  $Q_{r,point} = 1,1 \cdot 10^7$  respectivement pour l'approche de la ligne infinie et l'approche par point source, ce qui est cohérent avec la simulation numérique. Il semble que l'approche de la ligne infinie soit plus précise pour les diapasons commerciaux alors que la longueur d'onde acoustique vérifie  $\lambda_v \sim 10,6 \text{ mm} > L$ . Lorsque la longueur des branches et la longueur d'onde acoustique sont comparables, aucune conclusion ne peut être tirée quant à privilégier un modèle par rapport à l'autre

dans le cas général.

### La poutre millimétrique V4D

Nous n'avons pas pu effectuer de mesures à des pressions inférieures à  $P=10$  Pa pour V4D car sa résonance est trop étroite pour nos instruments. La fréquence de notre générateur ne peut pas être réglée plus précisément qu'au millihertz, alors que l'incertitude de la mesure de la bande passante à 3 dB pour des facteurs de qualité supérieurs à 200000 nécessite une précision encore supérieure. Ces valeurs pourraient cependant être obtenues à l'aide de techniques de mesures alternatives, comme par exemple la mesure du temps de décroissance.

Les résultats expérimentaux montrés sur la figure 2.8 ne font pas nettement apparaître une quelconque transition entre deux régimes fluides, ni d'inflexions caractéristiques de l'amortissement de squeeze. Ceci confirme notre remarque permettant de considérer V4D comme une poutre simple en flexion, bien qu'elle fasse techniquement partie d'un diapason (voir présentation de V4D au chapitre précédent). Nous mesurons une erreur relative maximale de l'ordre de 8% entre théorie et expérience sur l'ensemble des pressions du régime continu. A nouveau, l'amortissement acoustique est négligeable dans la mesure où il est toujours supérieur à sa valeur à pression atmosphérique sur toute l'étendue de mesure ( $Q_r = 4,4 \cdot 10^6$  en utilisant l'approche elliptique). Trois formules portant sur le facteur de qualité uniquement visqueux ont été appliquées au cas de V4D. la première et la plus simple a été introduite par Newell (NEWELL 1968), la seconde a été obtenue par Hosaka grâce à son analogie avec une chaîne de sphères (HOSAKA et ITAO 1999), et la troisième et plus récente est issue de l'optimisation numérique rapportée par Cox (COX, JOSSE, S. M. HEINRICH et al. 2012).

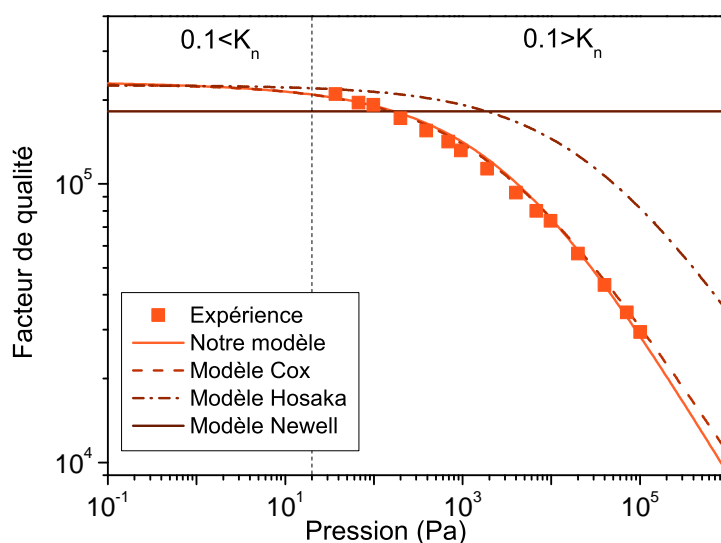


FIGURE 2.8 – Comparaison théorie-expérience pour la dépendance du facteur de qualité vis-à-vis de la pression pour V4D. La ligne verticale en pointillés délimite la zone où le fluide est en régime continu ( $Kn < 0,1$ ) et sur laquelle les modèles sont supposés valides.

La formule de Newell ne dépend pas de la densité du fluide environnant, et devient par conséquent de moins en moins précise à mesure que cette dernière augmente. Pour de l'air à pression atmosphérique, les désaccords sont très importants et la formule échoue même à donner le bon ordre de grandeur.

La formule de Hosaka est meilleure puisque la tendance est respectée, même si elle sous estime largement l'amortissement réel, pouvant aller jusqu'à un facteur 3 à pression atmosphérique. Sa formule reste néanmoins utile pour percevoir rapidement la dépendance du facteur de qualité par rapport aux nombreux paramètres mécaniques et fluide qui interviennent dans le problème.

Seule la formule de Cox est capable de reproduire le très bon accord pour V4D. Une comparaison plus détaillée entre nos deux expressions confirme largement leur très bon accord. Les deux modèles possèdent les même limites asymptotiques lorsque  $l$  tend vers zero, puisque tous deux utilisent le résultat du second problème de Stokes. Cependant, la manière dont la largeur  $e$  est prise en compte est très différente, puisque Cox a utilisé un ajustement numérique alors que nous avons utilisé un autre comportement asymptotique afin de conserver un résultat purement analytique. Notre modèle reste plus précis lorsque  $e$  tend vers zero, puisque nous retrouvons le résultat analytique précis de Sader.

### Les poutres micrométriques encastrées-encastrées

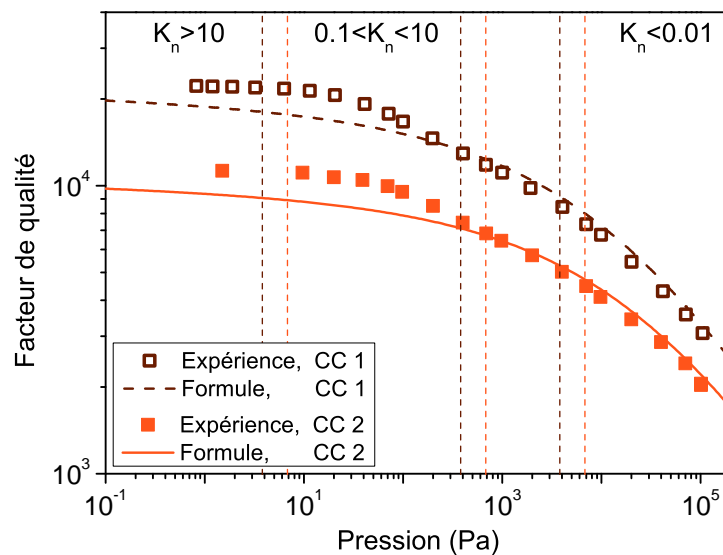


FIGURE 2.9 – Dépendance du facteur de qualité vis-à-vis de la pression pour les poutres encastrées-encastrées VIA et VIA1.8, vibrant sur leur mode fondamental de flexion. Les lignes verticales en tirets délimitent les différents régimes fluides d'après leur nombre de Knudsen  $Kn$ .

Pour troisième et dernière expérience, nous avons choisi des résonateurs présentant une taille caractéristique de section de l'ordre de la dizaine de micromètres, et avec des conditions aux limites encastrées-encastrées. Les résultats sont montrés sur la figure 2.9. Nous

pouvons clairement remarquer l'inflexion caractéristique du passage du régime continu au régime moléculaire, et qui implique les désaccords importants avec le modèle théorique. La formule analytique prédit cependant très bien les valeurs observées sur l'ensemble des régimes continus et de glissement avec une erreur relative maximale de 8%. Comme toutes les structures vues jusqu'à maintenant, l'amortissement acoustique est largement négligeable. A pression atmosphérique, l'approche elliptique donne des valeurs de  $Q_r = 1,4 \cdot 10^8$  et  $Q_r = 1,2 \cdot 10^8$  respectivement pour VIA et VIA1.8.

### La poutre encastres-encastres RC

Des simulations numériques ont été effectuées à l'aide du logiciel de simulation par éléments finis "OOFELIE Multiphysics" pour obtenir les valeurs numériques du facteur de qualité purement acoustique. Nous obtenons les résultats présentés sur la figure 2.10 pour le résonateur RC.

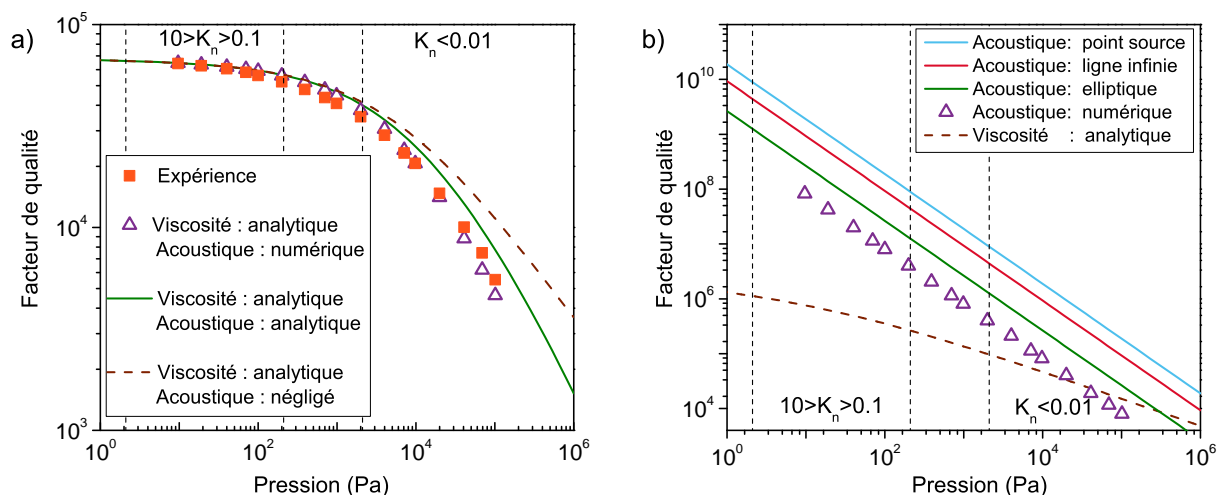


FIGURE 2.10 – a) Résultats expérimentaux du facteur de qualité total de la poutre RC, sujette à la fois à l'amortissement visqueux et acoustique. Le modèle acoustique utilisé est l'approche elliptique b) Comparaison entre les différents modèles analytiques possibles pour l'amortissement acoustique et simulation numérique correspondante. Les valeurs de l'amortissement visqueux seul sont également fournies (utilisant notre modèle analytique) afin de comparer les importances relatives des deux types d'amortissement.

Il a déjà été montré sur tous les résonateurs précédents que l'amortissement visqueux peut être prédit avec une précision relative n'excédant  $\pm 20\%$ . Si on ne considère que l'amortissement visqueux (courbe en pointillés), les résultats montrés sur la figure 2.10a) montrent que l'erreur de prédiction est d'environ 90%, ce qui constitue une forte indication sur le fait qu'un amortissement additionnel est présent. Nous avons utilisé à la fois les modèles analytiques visqueux et les modèles acoustiques développés dans les paragraphes précédents pour affiner les prédictions du facteur de qualité total. Nous remarquons que la combinaison entre une prédiction analytique de la viscosité et numérique de l'acoustique



produit un excellent accord. Les écarts n'excèdent jamais 6% sur l'ensemble des pressions testées, ce qui est déjà bien en deçà de la précision de prédiction sur l'amortissement visqueux pur. Les simulations par éléments finis s'avèrent donc précieuses pour prédire l'amortissement acoustique pur, et on peut utiliser ces résultats comme référence pour comparer les performances des modèles analytiques que nous avons présentés dans les paragraphes précédents.

Une combinaison de modèles purement analytiques (la ligne verte continue) a été obtenue en choisissant l'approche elliptique en tant que modèle d'amortissement acoustique. La prédiction du facteur de qualité total présente alors une erreur maximale relative de 35%, valeur impactée par la précision du modèle visqueux, par la précision du modèle acoustique ainsi que par la validité de la méthode séquentielle calculant les deux amortissements l'un après l'autre. Dans la figure 2.10b), nous voyons que les prédictions analytiques sous-estiment la valeur réelle, qui devrait être proche de la valeur prédite par les simulations éléments finis (points noirs carrés). Cependant, chaque modèle reproduit bien la bonne dépendance du facteur de qualité vis à vis de la pression, évoluant avec la densité du fluide en  $\rho_f^{-1}$ . Les deux modèles impliquant l'équivalent acoustique sous-estiment largement la valeur réelle, d'un facteur 10 pour l'approche de la ligne infinie et d'un facteur 20 pour l'approche par point source. L'approche elliptique présente des valeurs presque acceptables avec une sous-estimation d'un facteur 3. Des simulations numériques prenant en compte à la fois l'acoustique et la viscosité seraient probablement d'une aide précieuse pour préciser la validité de l'approche séquentielle. Dans tous les cas, il semble que les formules analytiques ne sont pas très précises pour évaluer l'amortissement acoustique des poutres simples, du moins sur le mode de flexion fondamental comme c'est le cas dans notre expérience.

## Le diapason C1

On rappelle que l'épaisseur du diapason C1 est de  $l = 1$  mm, ce qui est relativement large devant la longueur d'onde acoustique  $\lambda_v = 8$  mm dans l'air ambiant. La longueur totale des branches  $L = 6,8$  mm est également de l'ordre de la longueur d'onde, et la largeur des branches est de  $e = 4$  mm. Les résultats sont rapportés sur la figure 2.11.

On peut utiliser ici le même argument que dans le cas de la poutre RC, à savoir que les données expérimentales de la figure 2.11a) montrent un amortissement très important qui ne peut être expliqué par les pertes visqueuses seules. Sous l'hypothèse que l'amortissement acoustique est responsable de l'écart observé, nous obtenons à nouveau des prédictions précises en utilisant une modélisation par éléments finis pour le prédire. Dans le cas de ce diapason C1, les modèles analytiques prédisent particulièrement bien l'amortissement effectivement observé. Dans la figure 2.11b), on voit que les résultats obtenus au paragraphe 2.1.3.3.1 pour l'approche par point source et dans le paragraphe 2.1.3.3.2 pour l'approche de la ligne infinie sont très proches. L'expérience, qui correspond à un cas où  $L \sim \lambda_v$ , montre que les deux modèles analytiques sont précis et donnent des résultats



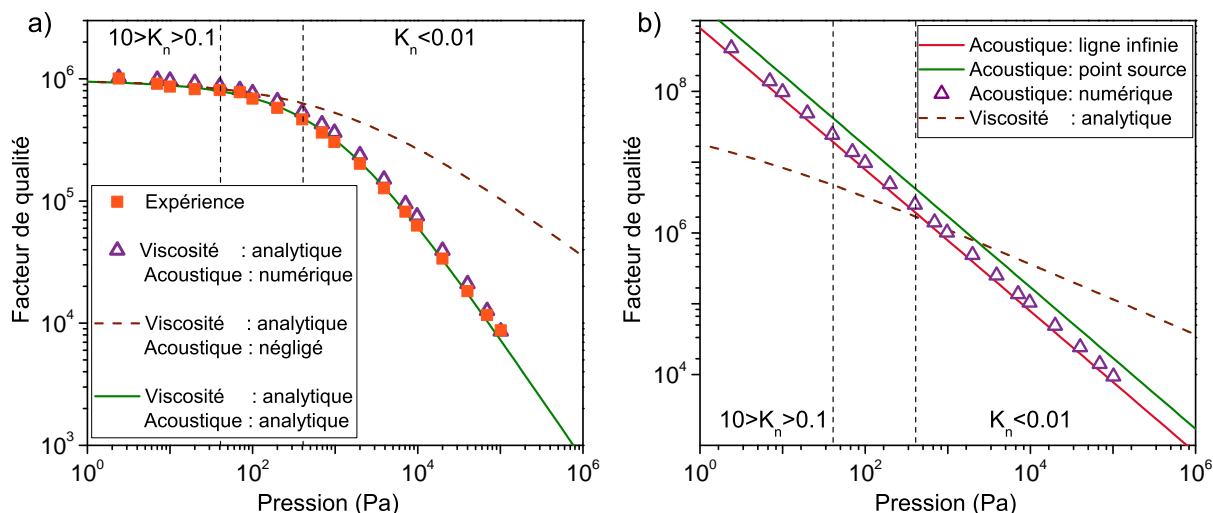


FIGURE 2.11 – a) Résultats expérimentaux du facteur de qualité total du diapason C1, sujet à la fois à l'amortissement visqueux et acoustique. Le modèle acoustique utilisé est l'approche par point source b) Comparaison entre les différents modèles analytiques possibles pour l'amortissement acoustique et simulation numérique correspondante. Les valeurs de l'amortissement visqueux seul sont également fournies (utilisant notre modèle analytique) afin de comparer les importances relatives des deux types d'amortissement.

quasiment identiques à ceux de la simulation numérique.

## Conclusion

Nous avons montré qu'un traitement séquentiel des pertes d'un résonateur mécanique en flexion au sein d'un fluide permet d'en prédire le facteur de qualité avec une bonne précision. L'utilisation d'une ligne infinie de points sources en tant qu'équivalent acoustique pour les diapasons produit une prédiction très précise de l'amortissement acoustique lorsque la longueur des branches est de l'ordre de la longueur d'onde acoustique qu'il génère dans le fluide. Pour ce qui est des pertes acoustiques des poutres simples, nous avons montré que les modèles par équivalence acoustique peuvent largement sous-estimer la valeur réelle, alors que l'approche elliptique produit un résultat plus raisonnable. Dans tous les cas et s'il s'avère que la géométrie du résonateur étudié ne correspond pas aux hypothèses faites pour obtenir les différents résultats analytiques, il est toujours préférable de faire appel à des simulations par éléments finis faisant appel à des milieux fluides non visqueux pour estimer les pertes acoustiques précisément.

## 2.3 Optimisation de forme et géométrie optimale pour la photoacoustique

Nous allons maintenant utiliser tous les résultats analytiques précédemment obtenus dans le but d'optimiser la géométrie des résonateurs. Nous aurons deux objectifs distincts pour cette étape : d'une part la maximisation du facteur de qualité, et d'autre part la maximisation du rapport signal à bruit de la technique photoacoustique.

Bien que les modèles analytiques soient valables pour les poutres simples en flexion comme pour les diapasons, nous nous restreindrons à l'optimisation des diapasons. En effet, leur amortissement acoustique est plus faible en vertu de la nature quadripolaire de leur émission acoustique. De plus, leur facteur de qualité associé à la dissipation dans le support est en général bien plus facile à maximiser grâce à leur symétrie naturelle. Les diapasons auront donc un meilleur facteur de qualité que les poutres simples, à condition que l'amortissement de squeeze soit maintenu négligeable. Par conséquent, l'effet photoacoustique sera meilleur pour les diapasons que pour les poutres simples en vertu de l'expression du rapport signal à bruit évoluant en  $\sqrt{Q}$  démontré dans la partie précédente (paragraphe 1.69). De plus, l'addition des signaux des deux branches dans le cas du diapason fournit un gain supplémentaire de  $\sqrt{2}$  (équation 1.74).

Comme nous l'avons vérifié expérimentalement dans le chapitre précédent, l'expression de Schmoranzner semble être la mieux adaptée pour décrire l'amortissement acoustique des diapasons (équation 2.36). Nous utiliserons cette expression par la suite pour évaluer la contribution acoustique  $Q_r$  au facteur de qualité total  $Q$ . Concernant l'amortissement visqueux  $Q_v$ , on a démontré que notre nouveau modèle analytique permet de l'estimer avec une erreur relative n'excédant pas 15%, et nous prendrons également en compte l'amortissement de squeeze donné par l'équation 2.12.

Au cours des optimisations de géométrie qui vont suivre, on a supposé un amortissement structurel uniforme  $Q_{struct}$  infini, et on a pris en compte l'amortissement thermoélastique  $Q_t$ . L'amortissement dans le vide  $Q_{vac} = (Q_{struct}^{-1} + Q_t^{-1})^{-1}$  qui regroupe l'amortissement structurel et thermoélastique est donc variable d'une géométrie à une autre. Le facteur de qualité total est donné par l'équation 2.37, et on utilisera les valeurs  $E = 78,3$  GPa pour le module de Young du Quartz et  $\rho_p = 2650$  kg.m<sup>-3</sup> pour sa densité.

On fixera la distance entre les deux branches  $g$  comme égale à l'épaisseur  $l$ . Ce choix est fait pour des questions de faisabilité pratique, puisque la gravure chimique du quartz se fait plus difficilement pour des rapports  $g/l < 1$ . Le fluide ambiant considéré sera de l'air à pression atmosphérique. Dans la mesure où les expressions des différents amortissements fluides n'évoluent pas de la même manière par rapport à la pression, la géométrie optimale du résonateur dépend de cette dernière.

## 2.3.1 Diapason optimal pour le facteur de qualité

### 2.3.1.1 Optimisation à longueur fixée

On se restreint à l'espace des paramètres  $(e, l, L)$  tel que :

- Les dimensions d'une section de poutre  $(e, l)$  doivent être plus petites que  $L/2$ . Cette restriction est nécessaire afin de pouvoir utiliser l'expression des facteurs de qualité que l'on a obtenus, qui dérivent eux même du formalisme de flexion d'Euler Bernoulli. Au delà, la théorie des poutres peut présenter de sévères écarts avec la réalité.
- Chaque branche du diapason doit couvrir la zone d'intérêt des réalisations en quartz, et on choisira l'intervalle  $3 \mu\text{m} < L < 0,1 \text{ m}$ .

### Mode fondamental de flexion

Pour une longueur donnée  $L$ , on trace les valeurs du facteur de qualité total sur la figure 2.12)a).

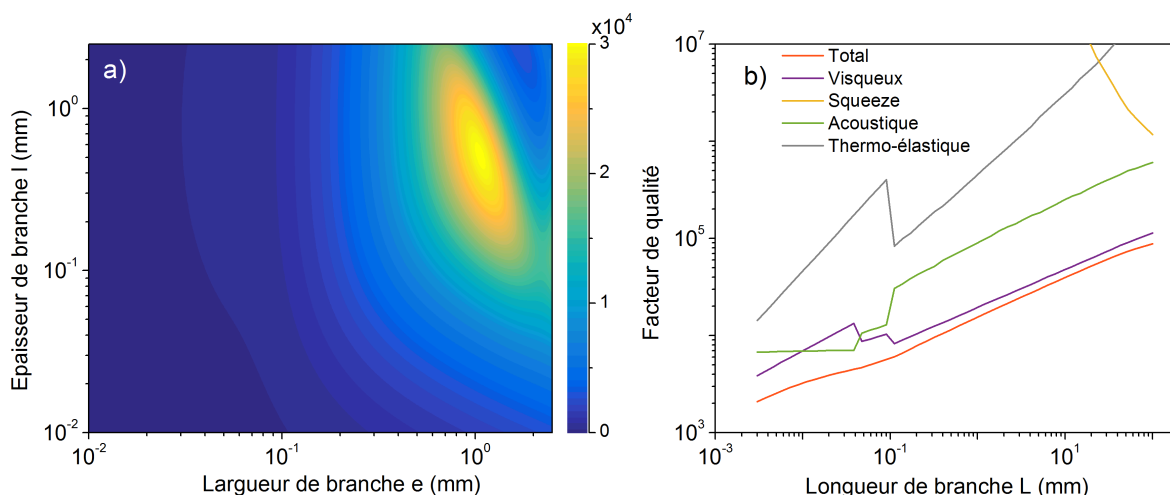


FIGURE 2.12 – a) Facteur de qualité d'un diapason encastré-libre vibrant sur son mode fondamental de flexion, dans l'air ambiant, en fonction des dimensions de sa section. La longueur de ses branches est fixée à  $L = 5 \text{ mm}$ . b) Facteurs de qualité du diapason en fonction de la longueur de ses branches, optimisés sur sa section.

On rappelle que la fréquence de résonance fondamentale dans le vide est donnée par la formule d'Euler Bernoulli  $f_0 = (\alpha_0/L)^2 e \sqrt{E/(12\rho_p)}$ , avec  $\alpha_0 = 1,875$ . La fréquence de résonance augmente donc linéairement avec la largeur des branches  $e$  sur la figure 2.12)a), tout en restant constante par rapport à l'épaisseur  $l$ .

L'unique optimum qui se dégage sur la figure 2.12a) résulte d'un compromis entre l'amortissement visqueux et l'amortissement acoustique. En effet, l'amortissement visqueux décroît à mesure que la fréquence augmente (quand  $e$  augmente), alors que l'amortissement acoustique a le comportement inverse. Pour des largeurs importantes  $e$ , la fré-

quence de résonance est suffisamment grande pour que la longueur d'onde acoustique devienne comparable avec les dimensions de la section du diapason : l'amortissement acoustique devient prédominant.

L'optimisation par rapport à la longueur totale de la poutre, montrée sur la figure 2.12b), montre que plus la longueur est importante meilleur sera le facteur de qualité. Ce n'est pas une surprise puisqu'on a déjà expliqué que des formes massives présentent un rapport surface sur volume plus faible, diminuant l'influence des forces de surface telles que l'amortissement visqueux par rapport aux forces de volume telles que l'inertie. De plus, le fait que la fréquence de résonance soit une fonction linéaire de  $e/L^2$  montre que les pertes acoustiques seront aussi réduites pour des tailles importantes. Le compromis que l'on a mis en évidence pour  $L$  fixé n'existe donc pas quand  $L$  augmente : plus la structure est massive, moins l'amortissement fluide sera important. L'amortissement thermoélastique ainsi que l'amortissement de squeeze peuvent être considérés comme négligeable au niveau des optimums. Sur la figure, on remarque des ruptures de pentes, qui correspondent à des sauts brutaux de position de l'optimum sur la carte. Le facteur de qualité total sur lequel porte l'optimisation est quant à lui bien continu.

### Section analytique optimale à longueur fixée

On peut retrouver les résultats numériques précédents par un raisonnement analytique simplifié. Puisque seuls les amortissements acoustiques et visqueux importent lors de la vibration dans l'air à pression atmosphérique, on peut utiliser les expressions analytiques simplifiées 2.40, 2.39, 2.41 et 2.42.

Un minimum local de la quantité  $Q^{-1} = Q_a^{-1} + Q_v^{-1}$  satisfait la condition  $\partial/\partial e [Q^{-1}] = \partial/\partial l [Q^{-1}] = 0$ . En résolvant cette équation sous la condition  $k_v(e + l/2) \ll 1$ , (la longueur d'onde acoustique est faible comparée aux dimensions typiques aux alentours de l'optimum), on obtient :

$$\begin{cases} e = \varrho l \\ l = \zeta L^{18/19} \\ \varrho = \left( 3\pi - 7 + \sqrt{9\pi^2 + 426\pi + 49} \right) / 26 \\ \zeta = \left[ \frac{2^{22} 3^{2.5} v^8}{\alpha_0 \varrho^{11} [\varrho^2 + 4\varrho + 3]^2} \left( \frac{\rho_p}{E} \right)^{4.5} \frac{\mu}{\rho_f} \right]^{1/19} \end{cases}$$

Une application numérique rapide dans le cas du quartz oscillant dans l'air à pression atmosphérique donne  $\varrho \sim 1,6$  et  $\zeta \sim 9,3 \cdot 10^{-2} \text{ m}^{1/19}$ . Si la longueur des branches est multipliée par un facteur  $M$ , alors la section optimale présentera un ratio  $e/l$  inchangé, tandis que l'épaisseur optimale  $l$  sera multipliée par un facteur  $M^{18/19}$ . Le diapason optimal pour le facteur de qualité est donc quasiment homothétique, ce qui explique la linéarité observée sur la figure 2.12b). La première partie non linéaire est due aux contraintes d'optimisation qui repousse la solution analytique que nous venons de trouver hors du

domaine de résolution.

### Influence du mode de flexion et des conditions de fixation

On peut tracer la même carte d'optimisation en se plaçant désormais sur les modes 2 et 3 de flexion ( $n = 1$  et  $n = 2$  respectivement), en supposant que l'expression du facteur de qualité acoustique reste valable. Les résultats sont montrés sur la figure 2.13.

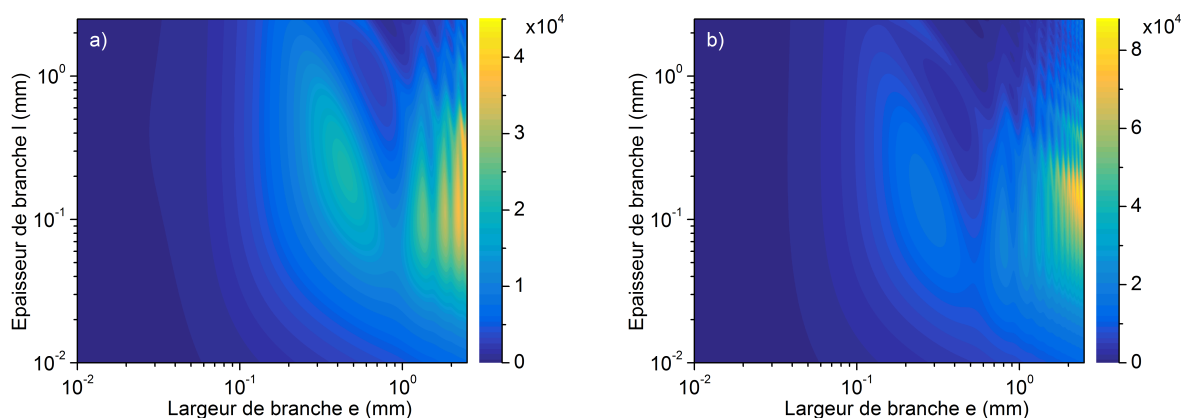


FIGURE 2.13 – Facteur de qualité d'un diapason de hauteur de branche  $L = 5$  mm dans l'air ambiant, lorsqu'il vibre a) sur sa première harmonique  $n = 1$  et b) sur sa seconde harmonique  $n = 2$ .

On constate que des oscillations apparaissent, qui correspondent mathématiquement à la présence de fonctions de Bessel dans l'expression de l'amortissement acoustique. Physiquement, cela correspond aux interférences qui ont lieu entre les différents points sources acoustiques équivalents au résonateur. Ces interférences n'apparaissent pas sur la carte du mode fondamental car les dimensions du diapason restent faibles devant la longueur d'onde acoustique. Pour les modes d'ordre supérieur, la longueur d'onde acoustique est réduite et les effets d'interférences entrent dans le domaine d'optimisation.

La valeur maximale du facteur de qualité atteinte sur tout le domaine augmente avec l'ordre du mode. Le facteur de qualité acoustique prend périodiquement des valeurs élevées à mesure que  $e$  augmente, et les fréquences de résonance associées qui augmentent profitent au facteur de qualité visqueux. A géométrie fixée, il est donc préférable d'opérer le diapason à une fréquence maximale.

Les conditions de fixation du diapason jouent le même rôle que les modes d'ordre supérieurs dans les valeurs du facteur de qualité. En effet, seuls les coefficients  $\alpha_n$  intervenant dans le calcul de la fréquence de résonance de la poutre (voir annexe A) sont modifiés. On montre le cas de la fixation encastree-encastree et le cas de la fixation articulee-articulee sur la figure 2.14.

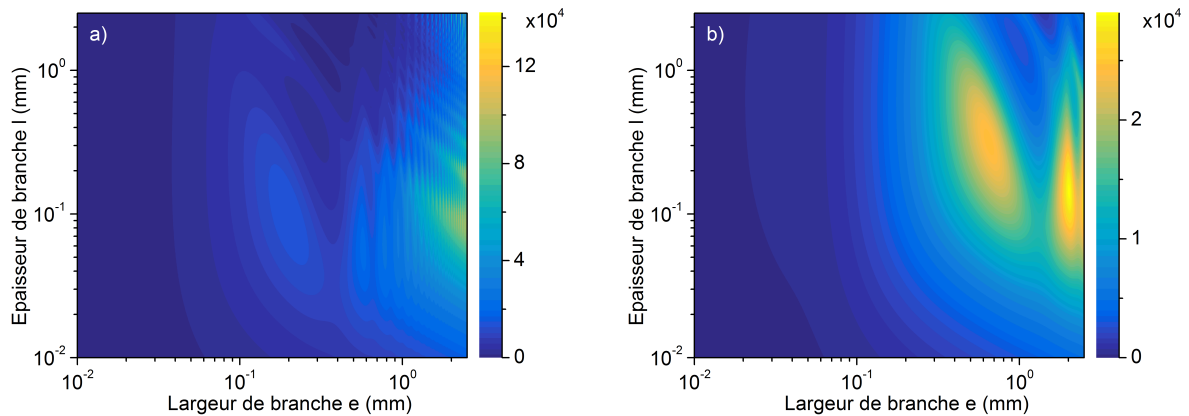


FIGURE 2.14 – Facteur de qualité d’un diapason de hauteur de branche  $L = 5$  mm vibrant sur son mode fondamental dans l’air ambiant, pour des conditions d’encastrement a) encastéré-encastéré et b) articulé-articulé.

### 2.3.1.2 Optimisation à épaisseur fixée

Malgré le constat précédent tendant à choisir une poutre la plus massive possible et à l’opérer sur un mode d’ordre élevé, il faut prendre en compte d’autres critères techniques avant toute réalisation :

- La localisation de l’optimum ne devrait pas être proche de la frontière  $e = L/2$ , où la validité des expressions des facteurs de qualité sont discutables.
- Pour les modes supérieurs à  $n = 0$ , l’existence des modes d’ordres supérieurs prévus par la théorie des poutre n’est pas assurée tant la largeur est importante par rapport à la longueur. En effet, il est difficile d’obtenir des nœuds de vibration sur la hauteur de la poutre.
- Ces structures à la limite du formalisme d’Euler Bernoulli sont difficiles à découpler du support, alors qu’il nous faut un excellent découplage par rapport au support  $Q_{struct}$ .
- L’optimum n’est atteint que pour des valeurs très précises du rapport entre  $e$  et la longueur d’onde acoustique (aux sommets des oscillations sur la figure). Le moindre écart dans la réalisation ou de validité du modèle peut résulter en un diapason non optimal.

L’optimum local qui se dessine nettement au centre des cartes d’optimisation est en revanche présent à tous les ordres, et il diminue en valeur à mesure que l’ordre du mode augmente. Ce maximum local est relativement tolérant quant aux dimensions associées. Il est par conséquent bien adapté pour une réalisation pratique, d’autant que la poutre associée vérifie bien les hypothèses d’Euler Bernoulli. La poutre qui présente le mode fondamental le plus bas en fréquence maximise la valeur du facteur de qualité pour ce maximum local. Il s’agit du cas encastéré-libre, qui présente le coefficient  $\alpha_0$  minimal.

Si on souhaite fabriquer le diapason encastéré-libre optimal pour le facteur de qualité,

des contraintes techniques additionnelles doivent être prises en compte. D'abord, notre recherche de diapasons massifs nous pousse à utiliser la taille maximale des wafers de quartz disponibles. Nous avons utilisé des wafers de 4 pouces de diamètre et de 2 mm d'épaisseur, les tailles les plus importantes dont nous disposons à l'ONERA. Ensuite, il faut s'assurer que le découplage par rapport au support est compatible avec les facteurs de qualité élevés recherchés ici. Pour ce faire, la zone de fixation commune des deux branches doit être suffisante et la longueur des branches ne pourra donc pas dépasser 4 cm avec nos wafers 4 pouces. Enfin, le rapport de section  $e/l$  ne devra pas dépasser 4. Sinon, des contraintes importantes vont apparaître dans la zone de fixation commune, nécessitant alors de l'allonger pour conserver un excellent découplage par rapport au support.

En dépit des restrictions additionnelles, nous allons voir qu'on s'éloigne peu des valeurs optimales sans contraintes. On a tracé sur la figure 2.15a) la nouvelle carte d'optimisation, à épaisseur  $l = 2$  mm fixée (car  $l$  est le paramètre limitant).

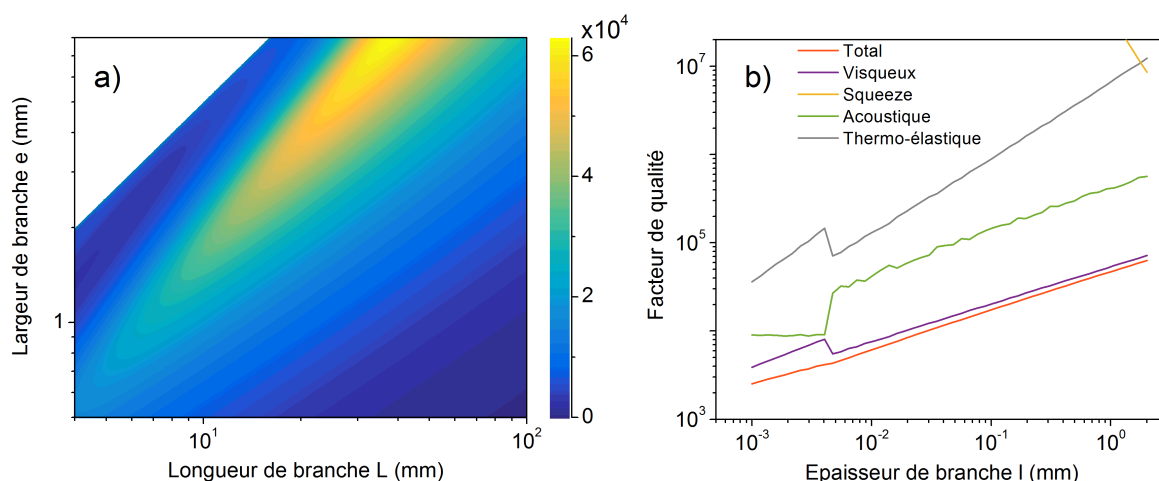


FIGURE 2.15 – a) Facteur de qualité d'un diapason d'épaisseur  $l = 2$  mm vibrant sur son mode fondamental de flexion dans l'air ambiant en fonction de ses autres dimensions  $e$  et  $L$ . b) Facteurs de qualité du diapason en fonction de l'épaisseur  $l$  ses branches, optimisés à chaque fois sur ses deux autres dimensions  $e$  et  $L$ .

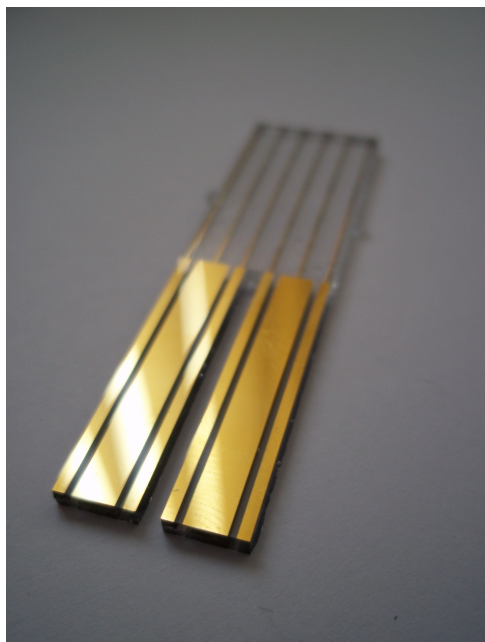
On y voit que le facteur de qualité optimal réalisable avec une épaisseur  $l = 2$  mm correspond à une largeur  $e = 8$  mm et une longueur  $L = 38,4$  mm. La fréquence de résonance associée est de  $f = 4,8$  kHz. Son facteur de qualité théorique est de  $Q = 63000$ , et on rappelle que cette valeur suppose un  $Q$  encastrement parfait ( $Q_{struct}$  infini). Ce diapason est nommé U1.

On a fabriqué un diapason baptisé U1Y proche de cet optimum, avec pour caractéristiques  $l = 2$  mm,  $e = 7$  mm,  $L = 30$  mm et  $g = 2$  mm. Ce diapason présente une fréquence de résonance fondamentale autour de  $f = 5,4$  kHz, et il est usiné de sorte à ce que les branches soient parallèles à l'orientation  $y$  du quartz. Le paramètre le plus sensible à contrôler est le ratio entre la longueur d'onde acoustique et les dimensions de la section



du diapason, car l'amortissement acoustique évolue très rapidement en fonction de ce dernier. C'est la raison pour laquelle la longueur du diapason a été délibérément réduite par rapport à la prédiction du formalisme d'Euler-Bernoulli, afin d'obtenir la fréquence de résonance correcte de la structure (calculée à l'aide du logiciel OOFELIE). On remarque ici que le formalisme d'Euler-Bernoulli présente un écart important dans la prédiction de la fréquence de résonance, en raison de l'élanement  $e/L$  relativement faible à la limite des hypothèses du modèle.

On montre sur la figure 2.16 le diapason une fois réalisé, ainsi qu'un tableau comparatif entre la prédiction théorique et les mesures effectuées.



|                      | U1<br>Théorie     | U1Y<br>Théorie    | U1Y<br>Mesure     |
|----------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| Largeur $e$          | 8 mm              | 7 mm              | 7 mm              |
| Épaisseur $l$        | 2 mm              | 2 mm              | 2 mm              |
| Longueur $L$         | 38,4 mm           | 30 mm             | 30 mm             |
| Fréquence $f_0$      | 4,76 kHz          | 6,83 kHz          | 5,48 kHz          |
| Support $Q_{struct}$ | $1,50 \cdot 10^5$ | $1,50 \cdot 10^5$ | $1,50 \cdot 10^5$ |
| Thermo $Q_t$         | $1,23 \cdot 10^7$ | $1,35 \cdot 10^7$ |                   |
| Squeeze $Q_{sq}$     | $8,58 \cdot 10^6$ | $1,08 \cdot 10^7$ | -                 |
| Visqueux $Q_{ud}$    | $1,38 \cdot 10^5$ | $1,65 \cdot 10^5$ | -                 |
| Visqueux $Q_{fb}$    | $1,51 \cdot 10^5$ | $1,56 \cdot 10^5$ | -                 |
| Acoustique $Q_r$     | $5,71 \cdot 10^7$ | $2,01 \cdot 10^5$ | -                 |
| Total $Q$            | $4,46 \cdot 10^4$ | $4,12 \cdot 10^4$ | $4,08 \cdot 10^4$ |

FIGURE 2.16 – Photographie du résonateur U1Y réalisé à l'ONERA et comparaison théorie expérience de ses performances. L'amortissement structurel a été fixé à  $Q_{struct} = 1,5 \cdot 10^5$  dans les modèles théoriques, de manière à le faire correspondre à notre mesure sous vide.

L'accord obtenu entre théorie et expérience est excellent en apparence, mais en partie dû à une coïncidence : la fréquence de résonance théorique est surestimée, diminuant ainsi artificiellement le facteur de qualité. Si on remplace la fréquence de résonance théorique par celle observée, alors le facteur de qualité total obtenu en appliquant nos formules analytiques devient  $Q = 4,37 \cdot 10^4$ , soit une erreur relative de 7%. Cette erreur reste faible et l'accord obtenu est très bon. On voit également que U1Y est très proche de U1 en terme de facteur de qualité, ce qui valide à posteriori notre choix légèrement différent de réalisation.

Il s'agit là d'un record de facteur de qualité dans l'air dans des conditions normales de température et de pression. Jusqu'à maintenant, les valeurs maximales reportées étaient justement celles des diapasons commerciaux utilisés dans l'horlogerie, avec des valeurs n'excédant pas  $Q = 1,5 \cdot 10^4$ .



### 2.3.2 Diapason optimal pour la photoacoustique en espace libre

Maintenant que l'on dispose d'une formule analytique fiable pour le facteur de qualité, il est possible d'utiliser le modèle analytique complet que nous avons exposé au premier chapitre afin d'optimiser la forme du résonateur sur le critère de minimisation du NNEA. Il s'agit donc bien là d'optimiser le capteur de manière à maximiser la sensibilité pour la technique QEPAS en milieu acoustique non résonant.

A chaque géométrie sondée, le laser est placé à la position  $h$  qui maximise le rapport signal à bruit le long des branches.

#### 2.3.2.1 Optimisation à longueur fixée

D'une manière similaire à l'optimisation du facteur de qualité, on fixe dans un premier temps la longueur du diapason à  $L = 5$  mm.

#### Mode fondamental de flexion

La plupart du temps, le QEPAS est utilisé sur le mode fondamental de résonance du diapason. On trace les valeurs de NNEA prédites analytiquement sur la figure 2.17a) dans ce cas.

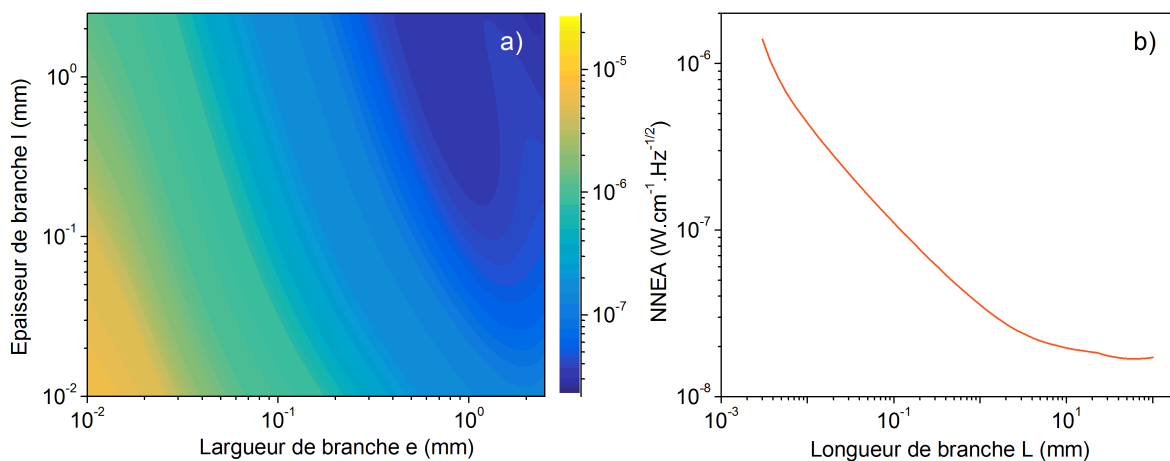


FIGURE 2.17 – a) NNEA d'un diapason encastré-libre vibrant sur son mode fondamental de flexion, dans l'air ambiant, en fonction des dimensions de sa section. La longueur de ses branches est fixée à  $L = 5$  mm. b) NNEA du diapason en fonction de la longueur de ses branches, optimisé sur sa section.

L'optimum peut se situer pour certaines longueurs  $L$  sur le bord du domaine d'optimisation. C'est le cas par exemple sur la figure 2.17a), où l'optimum se situe dans le coin supérieur droit. L'optimum du NNEA n'est donc pas confondu avec l'optimum pour le facteur de qualité.

Ceci est dû à la dépendance de la force photoacoustique et de la force équivalente au bruit à la géométrie, qui n'est pas identique à celle de  $Q$ . Un optimum local se dessine néanmoins à l'intérieur du domaine, et sa position est proche de celle mise en évidence pour le facteur de qualité sur la figure 2.12. Cette remarque démontre que le facteur de qualité  $Q$  reste étroitement lié à l'optimum du NNEA.

Pour des longueurs de branches  $L$  élevées, la figure 2.17b) montre que les gains en termes de NNEA deviennent difficiles. L'avantage de réaliser des résonateurs massifs afin d'obtenir de meilleurs facteurs de qualité, que nous avons détaillé au cours de l'optimisation précédente, reste vrai pour le NNEA au delà de 10 mm mais apporte un gain à la marge. D'après la figure 2.17, on pourra donc atteindre un NNEA minimal de  $2,16 \cdot 10^{-8} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  pour le mode fondamental, lorsque la hauteur des branches est de  $L = 5 \text{ mm}$ .

### Influence du mode de flexion

On peut tracer la même carte d'optimisation en se plaçant désormais sur le deuxième mode ( $n = 1$ ), en supposant que l'expression du facteur de qualité acoustique reste valable. Les résultats sont montrés sur la figure 2.18.

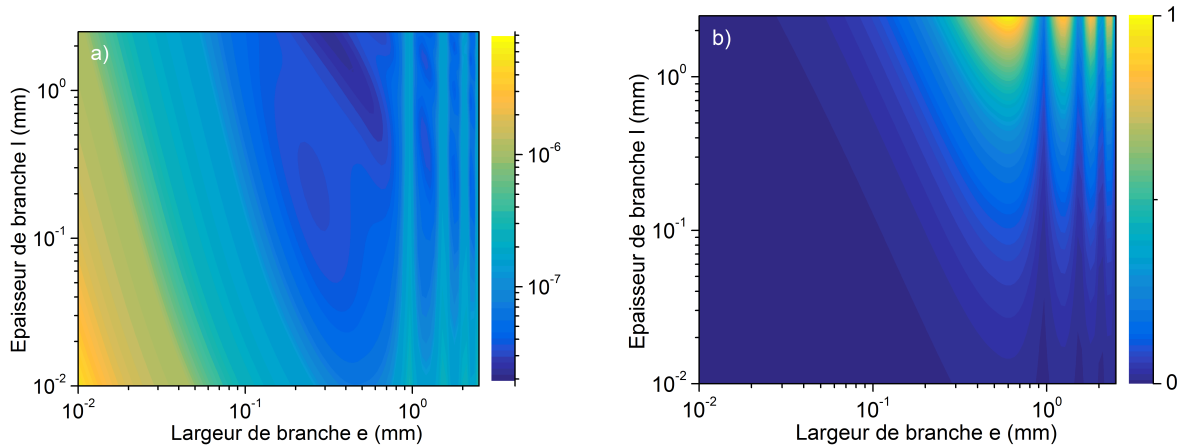


FIGURE 2.18 – a) NNEA d'un diapason de hauteur de branche  $L = 5 \text{ mm}$  dans l'air ambiant, lorsqu'il vibre sur sa première harmonique  $n = 1$  et b) La force photoacoustique normalisée correspondante, conformément à l'équation 1.38.

L'optimum global qui se situe sur les bords du domaine d'optimisation est légèrement meilleur que dans le cas du mode fondamental. La différence est néanmoins très mince, puisqu'on retrouve une valeur minimale de  $1,77 \cdot 10^{-8} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$  pour le premier ordre. Il est intéressant de noter l'apparition de bandes où la force photoacoustique trouve un minimum sur la figure 2.18b). Ceci est lié à notre hypothèse que le diapason ne modifie pas le champ de pression photoacoustique du fait de sa présence. Par conséquent, il existe des fréquences de fonctionnement pour lesquelles la largeur des branches du diapason

est exactement égale à la longueur d'onde acoustique. Les forces de pression agissant sur les flancs interne et externe sont alors très proches et le diapason n'est pas efficacement excité.

### 2.3.2.2 Optimisation à épaisseur fixée

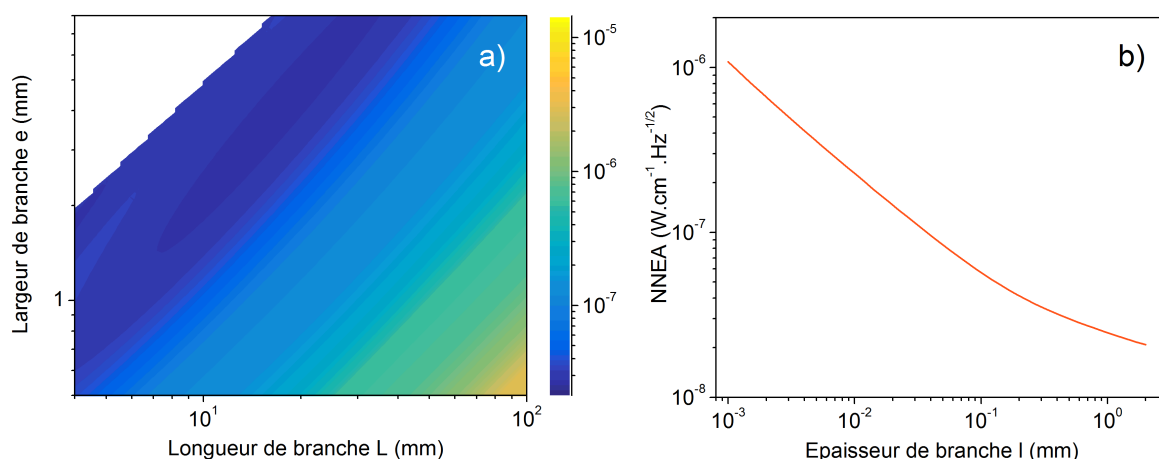


FIGURE 2.19 – a) NNEA d'un diapason d'épaisseur  $l = 2$  mm vibrant sur son mode fondamental de flexion dans l'air ambiant en fonction de ses autres dimensions  $e$  et  $L$ . b) NNEA du diapason en fonction de l'épaisseur  $l$  ses branches, optimisés à chaque fois sur ses deux autres dimensions  $e$  et  $L$ .

Les arguments techniques utilisés lors de l'optimisation du facteur de qualité sont valables ici dans notre optimisation de la sensibilité de la technique QEPAS. Par conséquent, nous allons donc plutôt imposer l'épaisseur  $l$  et procéder à une optimisation des deux autres dimensions  $e$  et  $L$ . Les résultats sont donnés sur la figure 2.19.

Le NNEA minimal réalisable avec un wafer de quartz d'une épaisseur de  $l = 2$  mm est donc de  $2,13 \cdot 10^{-8} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$ , et correspond à une largeur  $e = 3,7$  mm et une longueur  $L = 16$  mm. La fréquence de résonance associée est de  $f = 12,7$  kHz. Ce diapason, optimal au sens de la sensibilité pour la technique QEPAS en espace libre, sera baptisé U2.

### 2.3.3 Diapason optimal pour la photoacoustique en milieu résonant

Plaçons nous maintenant en milieu résonant, c'est à dire qu'on s'autorise à placer le résonateur au sein d'une cavité accueillant une résonance acoustique. Nous allons présenter une idée nouvelle qui, à notre connaissance, n'a pas été réalisée ni proposée dans la littérature.

### 2.3.3.1 Récupération des ondes acoustiques

La viscosité, qui amortit le mouvement du résonateur, constitue une dissipation irréversible de l'énergie contenue dans le résonateur. En revanche, la compressibilité constitue une conversion de l'énergie contenue dans le résonateur vers des ondes mécaniques de pression, et ce processus est réversible. On propose donc de récupérer cette énergie irradiée sous forme d'ondes sonores pour la réinjecter ultérieurement dans le résonateur.

#### Principe de la récupération

Considérons un modèle très simple en 1 dimension pour comprendre le principe de la récupération de l'énergie acoustique. Une poutre en flexion est représentable par deux sources acoustiques ponctuelles situées en  $y_+$  et  $y_-$  et de débit respectif  $+\hat{q}$  et  $-\hat{q}$ . On positionne deux parois réfléchissant les ondes acoustiques aux abscisses  $y_1$  et  $y_2$  conformément à la figure 2.20. On notera  $r_i$  le coefficient de réflexion des ondes acoustiques en  $y_i$ .

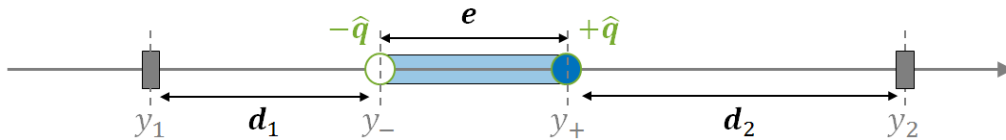


FIGURE 2.20 – Schéma illustrant la configuration de récupération de l'énergie acoustique émise par un résonateur mécanique en flexion.

On supposera que la présence de la poutre ne permet pas la transmission des ondes acoustiques. Ainsi, l'onde acoustique émise par le point  $y_+$  se propage seulement dans la direction des  $y$  positifs. De même, l'onde acoustique émise par le point  $y_-$  ne se propage que dans le sens des  $y$  décroissants. L'onde se propageant dans le sens des  $y$  positifs va se propager jusqu'à rencontrer la paroi en  $y_2$ , sur laquelle elle va se réfléchir pour revenir ensuite à nouveau sur  $y_+$ . A cet instant, l'onde de pression exerce une nouvelle force sur la poutre.

En reprenant les modèles acoustiques développés dans la première partie de ce chapitre, on peut écrire une relation entre le mouvement du résonateur  $\hat{w}$  et la pression  $\hat{P}$  qu'il génère comme  $\hat{P} = j\omega A\hat{w}$ , avec  $A$  une constante de proportionnalité ne dépendant que des caractéristiques physiques du fluide et de la poutre.

L'onde acoustique initialement émise par  $y_+$  est donc piégée entre les abscisses  $y_+$  et  $y_2$  à droite. Une résonance de type Fabry-Perot intervient alors, et on peut écrire ainsi la force surfacique en régime permanent qui agit sur le résonateur en  $y_+$  :

$$F = -j\omega A\hat{w} \left[ 1 + \frac{r_2 e^{2jk_v d_2} (1 + r_+)}{1 - r_2 r_+ e^{2jk_v d_2}} \right] \quad (2.47)$$

Le même raisonnement s'applique pour l'onde résonante entre  $y_1$  et  $y_-$ . On connaît

donc l'expression de la force issue de l'interaction vibroacoustique agissant sur la poutre. En reprenant l'équation 1.39 décrivant le mouvement du résonateur, on peut écrire :

$$\left[ K + j\eta\omega - M\omega^2 \right] \hat{w} = F_0 - j\omega A \hat{w} \left[ 2 + \frac{r_2 e^{2jk_v d_2} (1 + r_+)}{1 - r_2 r_+ e^{2jk_v d_2}} + \frac{r_1 e^{2jk_v d_1} (1 + r_-)}{1 - r_1 r_- e^{2jk_v d_1}} \right] \quad (2.48)$$

Puisque l'on traite séparément le terme vibroacoustique, l'amortissement  $\eta$  ne contient que les contribution sous vide et la contribution visqueuse. Finalement, on peut introduire un amortissement vibroacoustique qui s'écrit :

$$\eta_r = Re \left[ A \left[ 2 + \frac{r_2 e^{2jk_v d_2} (1 + r_+)}{1 - r_2 r_+ e^{2jk_v d_2}} + \frac{r_1 e^{2jk_v d_1} (1 + r_-)}{1 - r_1 r_- e^{2jk_v d_1}} \right] \right] \quad (2.49)$$

En négligeant la variation de masse effective apportée par la partie imaginaire de la force vibroacoustique, on récupère donc la forme classique d'un résonateur vibrant en milieu infini.

$$\left[ K + j(\eta + \eta_r)\omega - M\omega^2 \right] \hat{w} = F \quad (2.50)$$

Afin de simplifier l'analyse du nouveau terme d'amortissement, on supposera  $r_1 = r_2 = r_+ = r_- = r$  et on choisira  $d_1 = d_2 = d$ .

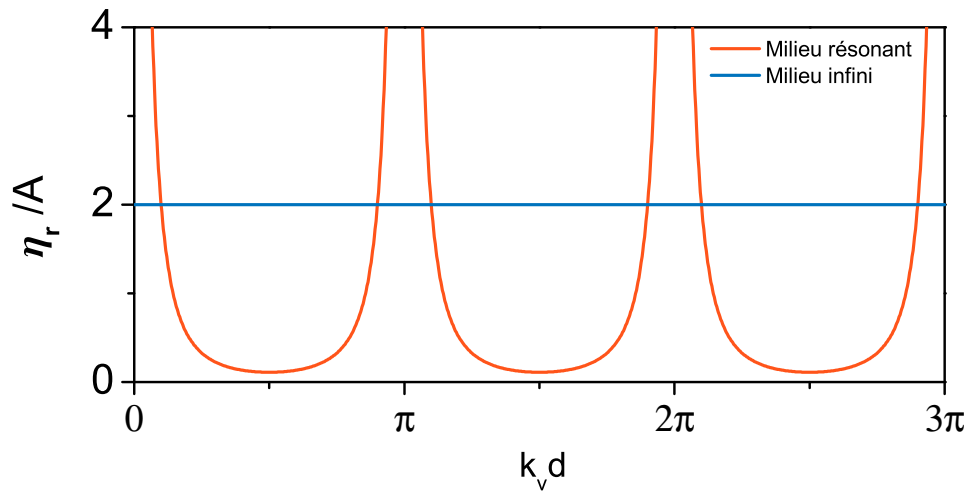


FIGURE 2.21 – Effet de la récupération des ondes acoustiques sur l'amortissement vibroacoustique d'une poutre en flexion, avec  $r = 0,9$ .

Dans le cadre de ce modèle simple, il apparait que certaines distances particulières  $d$  permettent de réduire l'amortissement par rapport au cas de la vibration en milieu infini. Le minimum est assuré par la relation  $k_v d = \pi/2$ , ce qui signifie donc qu'il faut placer la paroi réfléchissante à  $d = \lambda_v/4 + n\lambda_v/2$  de la poutre en flexion. Physiquement, la réflexion des ondes acoustiques vient s'opposer au mécanisme vibroacoustique qui les crée, et la poutre se comporte alors comme si le milieu était incompressible.

### Optimisation en milieu résonant

D'après le paragraphe précédent, il est possible en principe de récupérer les ondes acoustiques émises par une poutre en flexion. Dans l'hypothèse où le dispositif de récupération en question est parfait, les optimisations sont modifiées en négligeant la contribution acoustique au facteur de qualité.

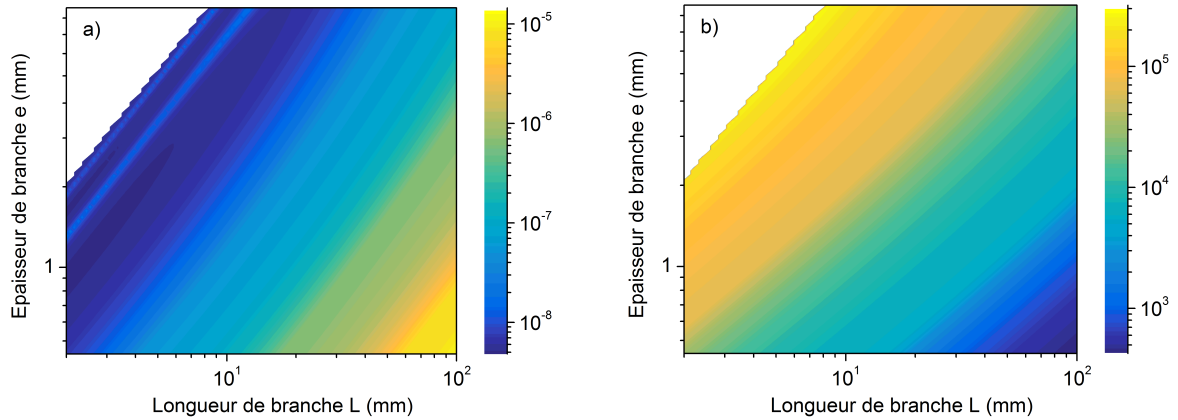


FIGURE 2.22 – a) Cartes d'optimisation du NNEA d'un diapason d'épaisseur de branche  $l = 2$  mm dans l'air ambiant en négligeant l'amortissement acoustique, lorsqu'il vibre sur son fondamental  $n = 0$  et b) le facteur de qualité associé.

Ces nouvelles optimisations montrent que plus la fréquence est élevée, plus le facteur de qualité est élevé. Cette caractéristique est la conséquence directe de l'expression de l'amortissement visqueux qui devient prépondérant, et le compromis qui existait avec l'amortissement acoustique disparaît. Pour une épaisseur de  $l = 2$  mm donnée, il faut donc en principe minimiser la longueur  $L$  et maximiser la largeur  $e$  pour maximiser le facteur de qualité total.

Concernant l'application photoacoustique, on montre sur la figure 2.22a) la nouvelle carte d'optimisation du NNEA, dont le domaine a été légèrement étendu par la nouvelle condition  $e < L$  au lieu de  $e < L/2$  auparavant. La bande oblique défavorable dans le coin supérieur gauche est due à la force photoacoustique, comme nous l'avons déjà expliqué auparavant pour les modes de flexion d'ordre supérieur.

Le meilleur diapason devra donc être conçu en maximisant sa fréquence de résonance  $f_0$ , tout en assurant qu'il vérifie la relation de maximisation de la force photoacoustique :

$$e = v/2f_0 \quad (2.51)$$

Dans le cadre du formalisme d'Euler-Bernoulli, cette dernière équation peut se réécrire comme une simple proportionnalité entre la largeur  $e$  et la hauteur  $L$  :

$$\frac{e}{L} = \sqrt{\frac{v}{\alpha_0^2} \sqrt{\frac{3\rho_p}{E}}} \quad (2.52)$$

Cette dernière condition dépend donc du gaz par l'intermédiaire de la célérité du son  $v$ . D'après la figure 2.22, la zone de l'optimum en fonction de  $L$  suit une ligne dont l'équation est proche de  $L = 2e$ . Même si un compromis sur la fréquence de résonance n'est plus imposé par le facteur de qualité, il faut tout de même prendre en compte le temps de relaxation des gaz sondés, et qui implique d'utiliser des fréquences de résonances inférieures à 30 kHz. On en déduit que l'un des meilleurs diapasons réalisables :  $e = 5,6$  mm,  $l = 2$  mm,  $g = 2$  mm et  $L = 12$  mm pour un NNEA de l'ordre de  $6,5 \cdot 10^{-9} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$ .

En raison du faible rapport entre la hauteur  $L$  et la largeur  $e$ , il est préférable de confirmer la relation 2.51 à l'aide de simulations par éléments finis avant toute réalisation pratique. Ainsi, on a réussi à réaliser un diapason nommé C2 vérifiant la relation avec les caractéristiques suivantes :  $e = 8$  mm,  $l = 2$  mm,  $g = 2$  mm,  $L = 13,6$  mm et  $f_0 = 21230$  Hz. Cette géométrie assure théoriquement un NNEA de  $8,2 \cdot 10^{-9} \text{W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2}$ , avec un facteur de qualité de  $Q = 1,27 \cdot 10^5$  sous réserve d'un facteur de qualité  $Q_{struct} = 1 \cdot 10^6$ .

Il est présenté sur la figure 2.23, sur lequel on constate que les branches du diapason représentent moins de la moitié du volume total du résonateur. Le fait que les branches soient courtes implique des déformations importantes dans la zone commune de fixation. Ces zones produisent donc une forte réponse piézoélectrique, c'est la raison pour laquelle elles sont couvertes d'électrodes dorées. Un effort important a été apporté au découplage de la vibration par rapport au support pour assurer un  $Q_{struct}$  élevé, et qui se matérialise par un pied de fixation original (qui correspond aux zones non recouvertes d'électrodes sur la figure 2.23).

Ce diapason a également été réalisé à l'échelle 1/2, et nous l'avons déjà rencontré sous le nom de C1 pour vérifier l'accord de prédiction de l'amortissement acoustique (voir figure 2.11).

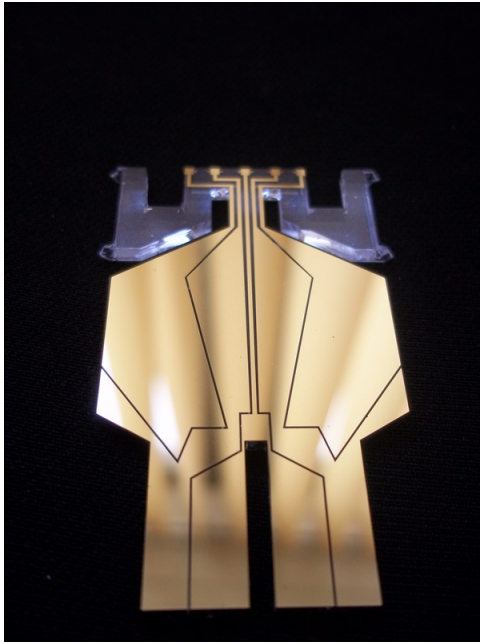
## Simulation numérique du dispositif de récupération

On vient de voir qu'un dispositif idéal de récupération des ondes acoustiques permettrait d'améliorer le facteur de qualité et le NNEA d'un diapason. Mais comment fabriquer un tel dispositif sur un cas pratique ? Sachant que l'efficacité de récupération est essentielle, comment la maximiser ?

Considérons le diapason C2 que l'on vient d'obtenir à l'issue de notre optimisation. Placé dans l'air sans dispositif de récupération, il présente un amortissement acoustique prépondérant (voir figure 2.23) et un amortissement visqueux relativement faible. On utilise le logiciel de simulation OOFELIE afin de mieux cerner les caractéristiques de son émission acoustique en milieu infini, que l'on présente sur la figure 2.24.

L'émission acoustique du diapason C2 apparaît comme remarquablement sphérique à grande distance. Conformément au modèle simplifié en 1 dimension que nous avons présenté, les parois de renvoi des ondes acoustiques à choisir doivent épouser les plans équiphases des ondes acoustiques qui s'échappent. On propose donc une géométrie d'abord





|                      | Sans Récupération | Avec Récupération |
|----------------------|-------------------|-------------------|
| Largeur $e$          | 8 mm              | 8 mm              |
| Epaisseur $l$        | 2 mm              | 2 mm              |
| Longueur $L$         | 13,6 mm           | 13,6 mm           |
| Fréquence $f_0$      | 21,23 kHz         | 21,23 kHz         |
| Support $Q_{struct}$ | $1,00 \cdot 10^6$ | $1,00 \cdot 10^6$ |
| Thermo $Q_t$         | $5,48 \cdot 10^7$ | $5,48 \cdot 10^7$ |
| Squeeze $Q_{sq}$     | $3,82 \cdot 10^7$ | $3,82 \cdot 10^7$ |
| Visqueux $Q_{ud}$    | $2,91 \cdot 10^5$ | $2,91 \cdot 10^5$ |
| Visqueux $Q_{fb}$    | $2,96 \cdot 10^5$ | $2,96 \cdot 10^5$ |
| Acoustique $Q_r$     | $7,76 \cdot 10^3$ | -                 |
| Total $Q$            | $7,32 \cdot 10^3$ | $1,27 \cdot 10^5$ |

FIGURE 2.23 – Photographie du résonateur C2 réalisé à l'ONERA et comparaison de ses performances théoriques avec et sans dispositif de récupération idéal de l'énergie acoustique. L'amortissement structural a été fixé à  $Q_{struct} = 1,0 \cdot 10^6$  dans les modèles théoriques, de manière à le faire correspondre à notre mesure sous vide, et la fréquence de résonance est imposée par le résultat obtenu par éléments finis.

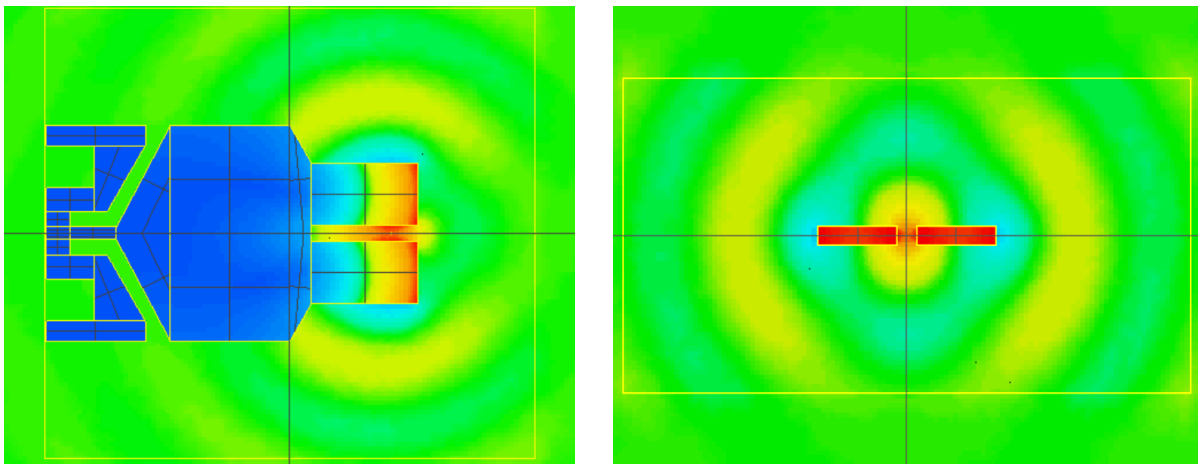


FIGURE 2.24 – Emission acoustique du diapason C2 dans l'air en milieu infini, avec à gauche une vue de face et à droite une vue de dessus. Les couleurs sur le diapason montrent l'amplitude de déformation maximale au cours du mouvement. Les couleurs au sein du fluide montrent la surpression liée au mouvement du diapason.

cylindrique, afin de conserver une forme simple et aisément réalisable en pratique. Cette forme est montrée en semi-transparence sur la figure 2.25.

Le rayon  $R_{cr}$  et la hauteur  $L_{cr}$  du cylindre intérieur sont d'abord choisis comme étant égaux chacun à la longueur d'onde acoustique dans l'air, et une première simulation est effectuée en supposant que le matériau qui constitue la cavité résonante réfléchit



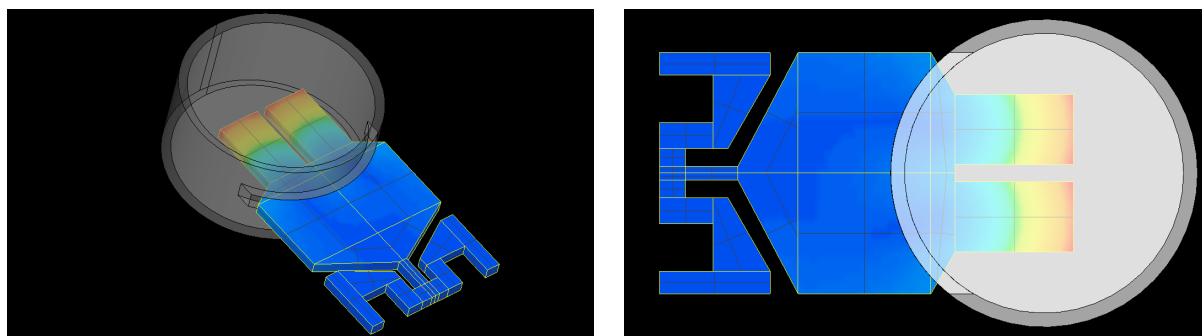


FIGURE 2.25 – Cavité résonante retenue pour C2 afin de récupérer les ondes acoustiques qu'il émet. Les couleurs sur le diapason montrent l'amplitude de déformation maximale au cours du mouvement.

parfaitement les ondes acoustiques. Les effets thermiques ou d'amortissement des ondes acoustiques sont ignorés au cours de nos simulations, et seule l'interaction vibroacoustique est donc prise en compte.

Le champ acoustique rayonné devient alors une onde stationnaire résonante à l'intérieur de la cavité, et le résultat de simulation numérique associé est montré sur la figure 2.26.

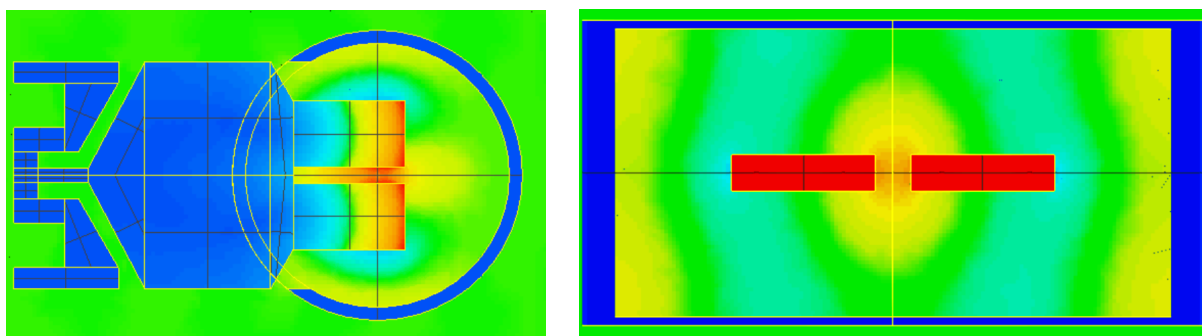


FIGURE 2.26 – Mode acoustique excité par le diapason C2 dans l'air avec une cavité de récupération cylindrique, avec à gauche une vue de face et à droite une vue de dessus. Les couleurs sur le diapason montrent l'amplitude de déformation maximale au cours du mouvement. Les couleurs au sein du fluide montrent la surpression liée au mouvement du diapason.

Les prédictions quantitatives de OOFELIE montrent que l'amortissement acoustique devient négligeable dans la configuration montrée sur la figure 2.26, à condition que l'ouverture pratiquée dans la cavité où sont insérées les branches du diapason reste très étroite devant la longueur d'onde acoustique. En effet, si OOFELIE prédit avec succès un facteur de qualité acoustique  $Q_r \sim 8000$  en l'absence de cavité acoustique, il prédit  $Q_r \sim 2,6 \cdot 10^6$  en sa présence. La simulation numérique valide donc le principe de récupération, et seule la contribution visqueuse devrait alors intervenir dans le facteur de qualité observé.

### Mise en œuvre expérimentale du principe

La cavité précédente a été réalisée en inox, et on montre l'assemblage final sur la figure 2.27.

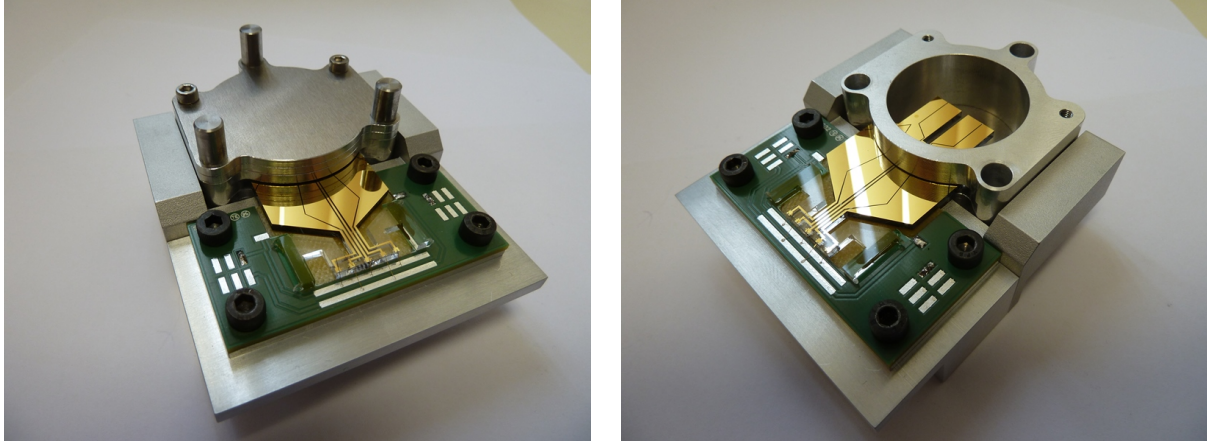


FIGURE 2.27 – Réalisation pratique du diapason C2 et de sa cavité résonante cylindrique. L'image de gauche montre le système lors de la mesure de ses performances, et celle de droite montre le système ouvert.

Pour un premier diapason C2 que nous avons réalisé et que nous appellerons C2-D par la suite, on mesure un facteur de qualité sous vide de  $Q_{vide} = 4,5 \cdot 10^5$ . Ce facteur de qualité est excellent et permet d'envisager un impact limité sur les valeurs obtenues à pression atmosphérique.

On mesure ensuite un facteur de qualité de  $Q = 7600$  dans l'air ambiant sans cavité acoustique environnante, ce qui est très proche de la valeur que nous avons prédite (tableau 2.23). Cette mesure confirme à nouveau la pertinence du modèle de prédiction du facteur de qualité acoustique dans l'air ambiant.

Après la pose de la cavité cylindrique en inox précédemment décrite avec pour dimensions intérieures  $R_{cr} = 16$  mm et  $L_{cr} = 16$  mm, on mesure un facteur de qualité de  $Q = 75000$ ! Cette mesure, rapportée sur la figure 2.28d), démontre deux points importants :

D'une part l'idée de la récupération des ondes acoustiques fonctionne en pratique, puisque la mesure précédente montre une multiplication du facteur de qualité par un facteur 10. Il est difficile de mesurer l'efficacité exacte de la récupération à partir de cette seule mesure. En supposant que notre formule de l'amortissement visqueux soit valable bien que l'hypothèse  $e \ll L$  ne soit pas vérifiée, on déduit un facteur de qualité acoustique  $Q_r = 2,4 \cdot 10^5$ . Cette valeur est un ordre de grandeur inférieur à la prédiction de OOFELIE. Il est pour l'instant prématuré d'attribuer l'écart aux effets physiques négligés au cours de la simulation, ou bien à la justesse de la formule analytique de prédiction de l'amortissement visqueux.

D'autre part, on vient de prouver qu'il est possible de dépasser la limite physique imposée sur les résonateurs vibrants en milieu non résonant! On a en effet démontré lors

de l'optimisation du facteur de qualité en milieu non résonant qu'il n'est pas possible de dépasser  $Q = 6,3 \cdot 10^4$  en supposant un facteur de qualité sous vide infini. Cette nouvelle méthode mettant en œuvre une coopération entre le résonateur et son environnement peut s'étendre à d'autres domaines de la physique nécessitant des facteurs de qualité maximaux.

### Influence de la forme du dispositif de récupération

Afin de réaliser plus rapidement (et à un coût très réduit) des dispositifs de récupération, des impressions 3D ont été réalisées en utilisant des géométries variées. Les dispositifs réalisés sont montrés sur la figure 2.28, où la motif présent à l'intérieur de la cavité de récupération a été imprimé en sur-épaisseur à sa surface. Les résultats obtenus avec le diapason C2-D, lorsque ce dernier vibre sur son mode fondamental de flexion dans l'air ambiant, sont montrés sur le tableau 2.1. Le facteur de qualité est extrait du temps de décroissance mesuré à l'aide d'un oscilloscope, comme montré sur la figure 2.28d) et à l'aide de l'équation 2.43. Le matériau employé pour l'impression 3D est de l'acrylonitrile butadiène styrène (ABSplus), un polymère thermoplastique.

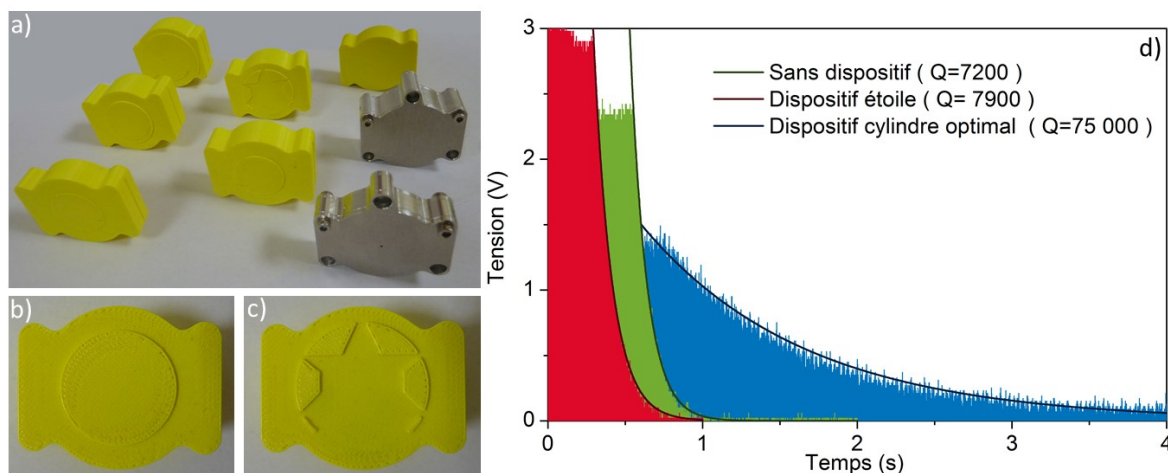


FIGURE 2.28 – a) Différents dispositifs de récupération de l'énergie acoustique, réalisés soit en inox soit en ABSplus (imprimé en 3D). b) Dispositif "cylindre" imprimé en 3D de dimensions internes  $L_{cr} = 16$  mm et  $R_{cr} = 12$  mm. c) Dispositif "étoile" imprimé en 3D, avec une forme en étoile sur sa section (inscrite dans un diamètre interne  $R_{cr} = 16$  mm), et uniforme sur sa longueur avec  $L_{cr} = 16$  mm. d) Mesures expérimentales du temps de décroissance du diapason C2-D. Le dispositif étoile est celui présenté en c), et le cylindre optimal est le meilleur dispositif que nous ayons obtenu : le cylindre inox  $L_{cr} = 16$  mm et  $R_{cr} = 16$  mm.

TABLE 2.1 – Performance comparée des dispositifs de récupération de l'énergie acoustique, appliquée au diapason C2-D vibrant dans l'air ambiant.

| Dispositif | Matériau | Longueur<br>$L_{cr}$ (mm) | Rayon interne<br>$R_{cr}$ (mm) | $Q$   |
|------------|----------|---------------------------|--------------------------------|-------|
| Aucun      | -        | -                         | -                              | 7600  |
| Étoile     | ABSplus  | 16                        | 16                             | 7900  |
| Cylindre   | ABSplus  | 8                         | 12                             | 30300 |
| Cylindre   | ABSplus  | 16                        | 14                             | 33500 |
| Cylindre   | ABSplus  | 16                        | 22                             | 38400 |
| Cylindre   | ABSplus  | 12                        | 12                             | 43400 |
| Cylindre   | ABSplus  | 16                        | 12                             | 46800 |
| Cylindre   | ABSplus  | 16                        | 16                             | 50500 |
| Cylindre   | Inox     | 8                         | 16                             | 61900 |
| Cylindre   | Inox     | 16                        | 16                             | 75000 |

Les valeurs données dans le tableau 2.1 varient en pratique par rapport au positionnement exact du dispositif de récupération. Ainsi, la mesure n'est pas reproductible à mieux que quelques %. On peut néanmoins tirer des premières conclusions de nos expériences.

Comme on pouvait s'y attendre, l'utilisation de l'inox aboutit à des récupérations plus efficaces. En effet, la densité de l'inox est 8 fois supérieure à celle de l'ABSplus, et par conséquent les ondes acoustiques sont plus efficacement réfléchies à l'intérieur du dispositif. De plus, l'impression 3D ne produit pas des surfaces de réflexion parfaitement lisse (voir par exemple l'état de surface sur la figure 2.28b) , ce qui induit des interférences à la réflexion et réduit encore davantage le rendement de la réflexion. Les dispositifs de récupération en ABSplus fonctionnent néanmoins tout à fait convenablement, comme on le constate sur le cylindre  $L_{cr} = 16$  mm et  $R_{cr} = 16$  mm que l'on a réalisé à l'identique pour les deux matériaux.

### 2.3.3.2 Application à la photoacoustique

On a détaillé dans le chapitre 1 l'utilisation de tubes afin de produire une résonance acoustique lors de l'utilisation de diapasons commerciaux pour le QEPAS (voir figure 1.2). L'idée sous-jacente est d'amplifier l'intensité des ondes de pression générées par l'effet photoacoustique, afin de maximiser la force de pression qui s'exerce sur les branches du diapason.

Notre démonstration de la récupération des ondes acoustiques est cumulable avec l'utilisation de tels tubes. Le milieu acoustique résonant ne fait alors qu'un avec celui contenu à l'intérieur de la paroi.

### Adaptation de la cavité acoustique de récupération

On choisit donc d'insérer des tubes de faible diamètre dans lesquels va passer un faisceau laser. On présente un arrangement possible sur les figures 2.29 et 2.30.

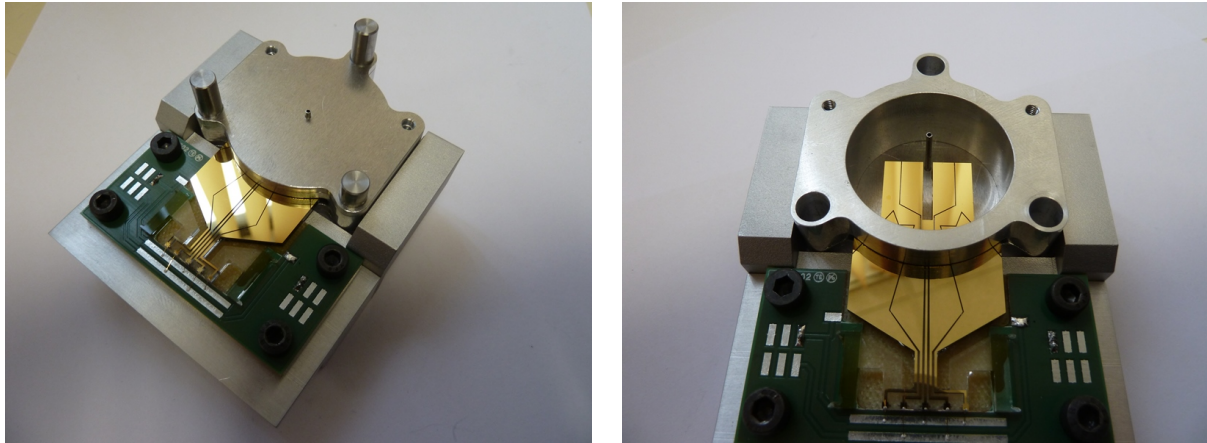


FIGURE 2.29 – Réalisation d'une cavité acoustique résonante adaptée au diapason C2 dans l'air pour la photoacoustique, avec à gauche son aspect en fonctionnement et à droite une vue de l'intérieur. Dans cet exemple, un seul tube est utilisé et une ouverture est pratiquée dans le tube au niveau du diapason, dans une configuration proche du On-Beam.

En plus des deux paramètres  $R_{cr}$  et  $L_{cr}$  que nous avons introduits pour dimensionner la cavité de récupération de l'énergie acoustique, on doit introduire d'autres paramètres pour caractériser les tubes supposés parallèles à l'axe  $z$ . On désignera par  $R_I$  et  $R_O$  les rayons internes et externes des tubes,  $L_{mR}$  leur longueur et  $d_{mR}$  la distance entre les tubes et le diapason sur l'axe  $z$  : les tubes se situent entre  $z = \pm(l/2 + d_{mR})$  et  $z = \pm(l/2 + d_{mR} + L_{mR})$ . Enfin, on réutilisera le paramètre  $h$  qui désigne l'altitude du faisceau laser sur l'axe  $x$  pour repérer l'altitude du centre des tubes sur ce même axe.

On présente sur la figure 2.30 une simulation numérique OOFELIE d'une expérience de photoacoustique. Le trait rouge représente le faisceau laser, et deux tubes sont positionnés de part et d'autre du diapason dans une configuration On-Beam. Le rayon interne du dispositif de récupération acoustique est  $R_{cr} = 16$  mm et sa longueur est de  $L_{mR} = 8$  mm sur cet exemple. Le rayon interne des tubes est de  $R_I = 0,6$  mm.

On repère très nettement sur la simulation précédente le rôle des tubes pour amplifier l'onde de pression, ainsi que l'onde stationnaire de récupération de l'énergie acoustique.

### Influence de la longueur des tubes additionnels

Comme pour le diapason horloger commercial que l'on a mis en œuvre au chapitre 1, la longueur optimale des tubes  $L_{mR}$  des tubes n'est pas immédiate à obtenir et dépend du couplage vibroacoustique. Pour s'en convaincre, on a simulé la réponse du système en fonction de  $L_{mR}$ , et ce pour trois types de position différentes des tubes. Pour ces simulations, seul l'amortissement acoustique est calculé par OOFELIE, et il faut donc



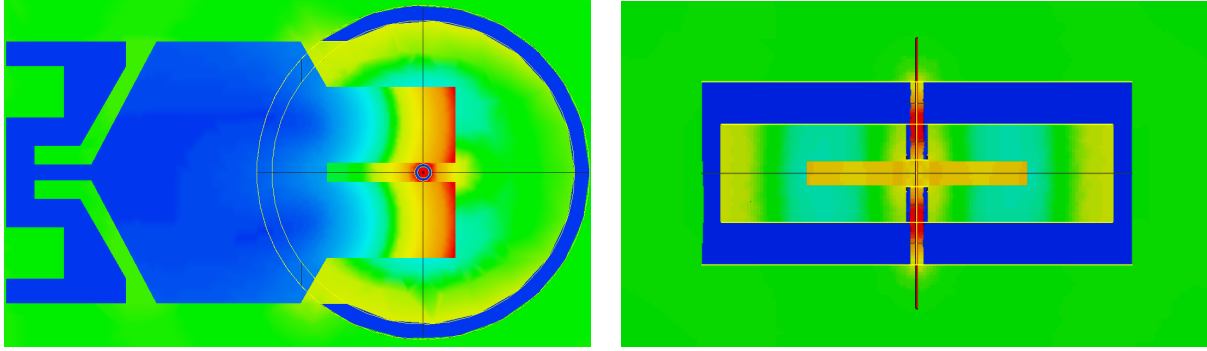


FIGURE 2.30 – Simulation numérique On-Beam par éléments finis d'une cavité acoustique résonante adaptée au diapason C2 dans l'air pour la photoacoustique, avec à gauche une coupe dans le plan  $z = 0$  et à droite coupe dans le plan  $x = h$ . Les couleurs sur le diapason montrent l'amplitude de déformation maximale au cours du mouvement. Les couleurs au sein du fluide montrent la surpression liée au mouvement du diapason.

prendre en compte l'amortissement visqueux analytique afin de pouvoir comparer les réponses entre elles. Les résultats, normalisés par rapport à la réponse du diapason en l'absence de dispositif de confinement et de tubes, sont montrés sur la figure 2.31. Le facteur de qualité du système, prenant en compte l'amortissement visqueux analytique et l'amortissement acoustique prédit par OOFELIE, vaut environ  $1,2 \cdot 10^5$  (hors effondrement à l'anti-résonance).

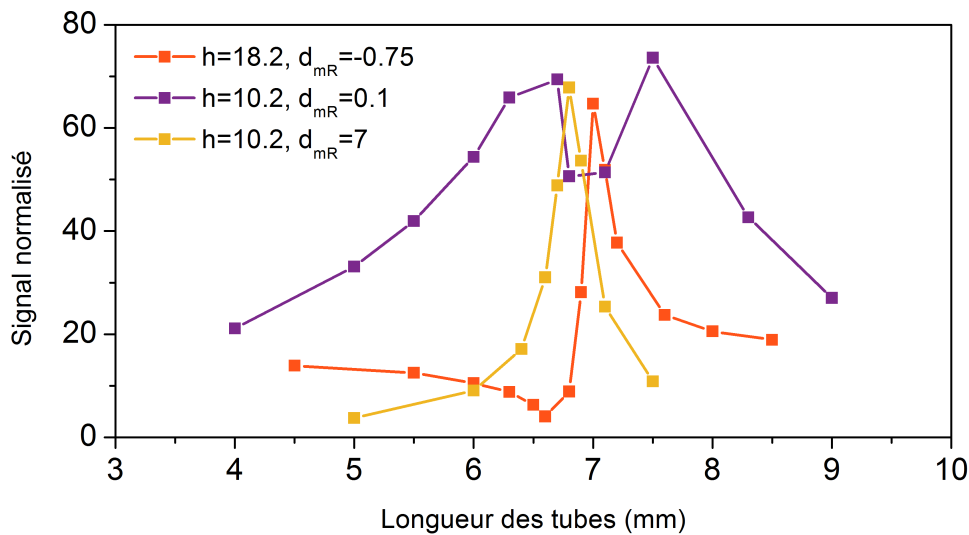


FIGURE 2.31 – Simulation par éléments finis du déplacement des branches du diapason en fonction de la longueur des tubes  $L_{mR}$ . Les résultats présentés tiennent compte de l'amortissement acoustique calculé par OOFELIE ainsi que de l'amortissement visqueux ajouté manuellement à partir des formules analytiques. Ils sont normalisés par rapport au signal obtenu sans dispositif de récupération ni tubes.

L'allure de la réponse n'est pas du tout la même suivant la position des tubes autour du diapason. Le déplacement optimal des branches semble néanmoins sensiblement identique

d'un cas à l'autre. On remarque le caractère très sensible des résonances simulées, qui montrent que quelques centaines de microns de différences sur la longueur des tubes peut avoir des différences notables de gain. En pratique, des variations de température peuvent entraîner des modifications de la fréquence de résonance du diapason et de la célérité du son, qui entraînent à leur tour des modifications de longueurs de tubes optimales.

On retrouve dans la configuration On-Beam ( $h = 10,2$  mm,  $d_{mR} = 0,1$  mm) un comportement anti-résonant que nous avons déjà détaillé dans le chapitre 1. Cette configuration a l'avantage d'être relativement moins sensible à la longueur que les deux autres. Retenons également que l'amélioration maximale prédite du signal ici est d'un facteur 70 au mieux pour un facteur de qualité du diapason multipliée par 16 (par rapport au cas sans dispositif de récupération), que l'on pourra comparer avec nos expériences de photoacoustiques du chapitre 3.

### 2.3.4 Etude comparative des différents résonateurs optimisés

Avant de mettre en œuvre expérimentalement les diapasons originaux que l'on vient d'obtenir, on propose d'évaluer leurs performances attendues.

#### 2.3.4.1 Comparaison des sensibilités en milieu non résonant

Nous allons maintenant produire un comparatif entre les différents diapasons optimisés que nous avons obtenus, afin d'identifier la voie la plus prometteuse ainsi que pour estimer les gains à attendre par rapport à l'utilisation de diapasons horlogers du commerce. On utilisera le modèle semi-analytique détaillé dans le chapitre 1. Nous corrigerons donc les valeurs obtenues grâce au modèle analytique par les valeurs numériques de OOFELIE pour le signal photoacoustique, conformément à l'équation 1.78.

On se place dans le cadre d'une expérience de photoacoustique décrite au paragraphe 1.4.5 du chapitre précédent. Il s'agit donc de détecter 2,7% de  $CO_2$  dans l'air ambiant, en sondant sa raie d'absorption située à  $k = 6490,05$   $cm^{-1}$  et en supposant que l'électronique de détection n'apporte aucun bruit venant s'ajouter au bruit brownien du résonateur. On montre dans le tableau 2.2 une comparaison entre U1, U2, C2 (sans dispositif de récupération) et le diapason horloger commercial TF1.

On note que le NNEA de TF1 est deux fois moins bon que celui prédit dans le  $CO_2$  pur dans le chapitre 1, alors que le NNEA est normalisé par rapport à l'absorption linéique  $\alpha_G$  du gaz sondé. En effet, l'expérience dans le  $CO_2$  pur donnerait un NNEA de  $1,95 \cdot 10^{-8} cm^{-1} \cdot W \cdot Hz^{-1/2}$  à facteur de qualité comparable. C'est lié principalement à la vitesse du son dans le gaz, responsable d'une part d'une force photoacoustique plus importante car l'épaisseur des branches est plus proche de  $\lambda_v/2$ , d'autre part de l'amplitude

TABLE 2.2 – Comparaison des performances semi-analytiques des différents diapasons optimisés comparés au diapason horloger commercial TF1, sans l'utilisation de milieu acoustique résonants.

| Grandeur   | TF1                   | U1                    | U2                    | C2                    |
|--|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| Caractéristiques du laser                          |                       |                       |                       |                       |
| Puissance $P_L$ (mW)                               | 17                    | 17                    | 17                    | 17                    |
| Caractéristiques de résonance dans le fluide       |                       |                       |                       |                       |
| Fréquence $f_0$ (Hz)                               | 32764                 | 4763                  | 12688                 | 21230                 |
| Facteur de qualité $Q_{struct}$                    | 77000                 | $1,00 \cdot 10^6$     | $1,00 \cdot 10^6$     | $1,00 \cdot 10^6$     |
| Facteur de qualité $Q_t$                           | $4,81 \cdot 10^5$     | $1,23 \cdot 10^7$     | $5,48 \cdot 10^7$     |                       |
| Facteur de qualité $Q_v$                           | 20224                 | 71421                 | 72754                 | $1,46 \cdot 10^5$     |
| Facteur de qualité $Q_r$                           | $2,29 \cdot 10^6$     | $5,73 \cdot 10^5$     | $8,25 \cdot 10^4$     | 7790                  |
| Facteur de qualité $Q$                             | 15400                 | 59427                 | 37026                 | 7341                  |
| Caractéristiques du bruit                          |                       |                       |                       |                       |
| Densité $F_b/\sqrt{\Delta f}$ (Nrms.Hz $^{-1/2}$ ) | $6,62 \cdot 10^{-13}$ | $3,64 \cdot 10^{-12}$ | $3,31 \cdot 10^{-12}$ | $1,30 \cdot 10^{-11}$ |
| Caractéristiques signal analytique                 |                       |                       |                       |                       |
| Position optimale h/L (%)                          | 85                    | 84                    | 81                    | 75                    |
| Déplacement $\max_x(\hat{W})$ (m)                  | $2,42 \cdot 10^{-13}$ | $6,51 \cdot 10^{-13}$ | $3,41 \cdot 10^{-13}$ | $3,23 \cdot 10^{-14}$ |
| Force photoacoustique $F_n$ (N)                    | $6,76 \cdot 10^{-13}$ | $8,00 \cdot 10^{-12}$ | $9,20 \cdot 10^{-12}$ | $2,26 \cdot 10^{-11}$ |
| Caractéristiques signal OOFELIE                    |                       |                       |                       |                       |
| Position optimale h/L (%)                          | 85                    | 84                    | 81                    | 75                    |
| Facteur de qualité $Q_{OO}$                        | 9983                  | 58576                 | 27136                 | 8811                  |
| Déplacement $\max_x(\hat{W}_{OO})$ (m)             | $3,00 \cdot 10^{-13}$ | $1,03 \cdot 10^{-12}$ | $4,71 \cdot 10^{-13}$ | $4,59 \cdot 10^{-14}$ |
| Force photoacoustique $F_{n,OO}$ (N)               | $1,29 \cdot 10^{-12}$ | $1,28 \cdot 10^{-11}$ | $1,73 \cdot 10^{-11}$ | $2,68 \cdot 10^{-11}$ |
| Caractéristiques du capteur                        |                       |                       |                       |                       |
| Rapport signal à bruit                             | 11,0                  | 19,9                  | 29,6                  | 11,6                  |
| NNEA (cm $^{-1}$ .W.Hz $^{-1/2}$ )                 | $3,05 \cdot 10^{-8}$  | $1,71 \cdot 10^{-8}$  | $1,15 \cdot 10^{-8}$  | $2,92 \cdot 10^{-8}$  |

de l'onde de pression évolue en  $1/v^2$ . Ce facteur de différence qui dépend donc du gaz majoritaire sera par contre le même pour tous les diapasons.

On s'attend donc à des gains de l'ordre d'un facteur 2 et 3 sur le NNEA pour les diapasons U1 et U2 respectivement. Ces améliorations constituent en principe une limite aux gains que l'on peut obtenir en jouant sur la forme des diapasons.

Les résultats sur C2 sont à prendre avec précaution, car les branches sont très courtes devant les dimensions de sa section. Par conséquent, les hypothèses nécessaires pour utiliser le formalisme d'Euler-Bernoulli sont discutables. La correction effectuée à l'aide de OOFELIE résout le problème pour déterminer le signal correct, mais le niveau de bruit



brownien exact reste inaccessible numériquement. On peut espérer néanmoins qu'en milieu résonant après addition du dispositif de récupération de l'énergie acoustique, on puisse améliorer sa sensibilité de par son facteur de qualité amélioré et indépendamment du gain apporté par d'éventuels tubes acoustiques.

On remarque également que le facteur d'écart entre la prédiction analytique et la prédiction numérique, que l'on a expliqué au chapitre précédent par une forme de résonance acoustique entre les branches du diapason, se confirme ici pour TF1 et vaut 1,9. Ce même facteur se retrouve également sur le diapason optimisé U2, et il est plus réduit pour les diapasons U1 et C2 avec 1,6 et 1,2 respectivement.

On rappelle que l'on a fixé  $g = l$  pour des questions de faisabilité technique avec le Quartz. Sans cette hypothèse, un nouveau compromis entre l'amortissement de squeeze et l'amplitude de la force de pression apparaîtrait. Le premier a tendance à limiter le facteur de qualité si  $g$  est trop faible, alors que le second a au contraire tendance à augmenter la force photoacoustique. Notre modèle analytique montre néanmoins que l'optimisation sur  $g$  est négligeable en configuration On-Beam.

Enfin, on a vu que l'utilisation d'un mode supérieur de flexion du diapason revient avant tout à modifier sa fréquence de résonance, et nos optimisations couvrent donc ces cas de figure. En pratique, la fréquence de résonance augmentée peut entraîner des changements significatifs dans la valeur du facteur de qualité ou encore de la force photoacoustique pour un diapason donné, et ainsi sensiblement augmenter ses performances. C'est ce qui pourrait expliquer par exemple le cas du diapason special de Sampaolo *et al.* (A. SAMPAOLO *et al.* 2015), qui présente un gain expérimental d'un facteur 5 lors de l'utilisation de la première harmonique de flexion par rapport au fondamental. L'application de notre modèle analytique au résonateur qu'ils décrivent confirme bien un tel ordre de grandeur. Un tel gain s'explique principalement par l'amplitude de la force de pression proportionnelle à la fréquence de fonctionnement, plus que par l'évolution du facteur de qualité. Habituellement, ce gain est compensé par un bruit brownien qui augmente. Si un tel gain est possible pour un diapason particulier donné, il est largement variable d'un diapason à l'autre. Nos diapasons originaux, qui sont optimisés pour un mode de flexion fondamental, seraient donc moins performants sur un mode d'ordre supérieur.

### 2.3.4.2 Comparaison de mises en œuvre

Indépendamment de leur sensibilité légèrement améliorée, les nouveaux diapasons présentent d'autres avantages par rapport aux diapasons horlogers généralement utilisés.

D'abord, les diapasons tels que U1 ou U2 présentent une fréquence de fonctionnement 6 et 2.5 fois plus basse, ce qui permet d'adresser des gaz dont les temps de relaxation  $\tau_{V-T}$  sont plus longs sans perte de sensibilité. On a vu en effet que la sensibilité optimale de l'instrument est garantie tant que  $2\pi f_n \tau_{V-T} \ll 1$ , sinon elle décroît en  $1/\sqrt{1 + (2\pi f_n \tau_{V-T})^2}$ . De plus, on peut anticiper le fait que l'addition de tubes sera bénéfique du fait de la dépendance des modes acoustiques résonant de pression avec  $1/f_n$ . Les modèles analytiques

que l'on a développés au chapitre 1 le confirment, même si on peut également s'attendre à ce que l'ouverture plus importante de la cavité acoustique sur l'extérieur ne dégrade le facteur de qualité acoustique.

Tous ces nouveaux diapasons sont également bien plus facile à mettre en œuvre que les diapasons commerciaux. En particulier, l'alignement est souvent critique et la distance entre les deux branches de  $g = 2$  mm permet d'éviter tout contact entre le laser et les branches en configuration on-beam. Ce large espace permet également l'emploi de laser de longueur d'onde élevée jusque dans la zone TéraHertz, et ce sans nécessairement focaliser le faisceau trop fortement.

Enfin, ces nouveaux diapasons sont moins fragiles que les diapasons horlogers de par leur plus grande taille, bien qu'ils soient aussi plus onéreux et moins compact. L'argument de compacité doit néanmoins être nuancé, car actuellement les systèmes sont avant tout limité par le volume nécessaire à la source laser et à son électronique d'alimentation et de détection.

### 2.3.4.3 Conclusion

Grâce à de nouvelles formules analytiques décrivant le facteur de qualité des diapasons lorsqu'ils sont immergés au sein d'un fluide, on a pu déduire de nos modèles analytiques des formes optimales pour la détection QEPAS. On a démontré en particulier que des gains en sensibilité sont possibles en modifiant la forme des résonateurs, et que les gains les plus intéressants sont conditionnés à l'augmentation de la taille absolue des résonateurs. Les formes optimisées dépendent néanmoins du gaz majoritaire utilisé, comme par exemple de sa densité.

Concernant le matériau de composition des résonateurs, l'utilisation du Quartz nous limite aujourd'hui de par la taille maximale des wafers disponibles. L'utilisation d'autres matériaux pourrait permettre d'aller encore au delà, bien que les gains en termes de sensibilité seront très réduits.

Dans tous les cas, les gains attendus de l'ordre de 2-3 pour le QEPAS non résonant sont relativement faibles mais correspondent bien à une limite physique de la technique. On va maintenant mettre en œuvre dans le chapitre 3 ces diapasons au cœur d'expériences de QEPAS pour vérifier la prédictibilité de notre approche, ainsi que pour évaluer les performances réelles des résonateurs optimisés. Afin d'évaluer leurs sensibilités ultimes, on utilisera dans un second temps des tubes d'amplification en configuration On-Beam.

# Chapitre 3

## Expériences photoacoustiques QEPAS à l'aide de résonateurs optimisés

### Objectifs :

L'objectif de ce chapitre est de mettre en œuvre les diapasons optimaux définis dans le chapitre précédent afin d'évaluer leurs performances et de les comparer à la théorie. Il s'agit également de quantifier les gains apportés par l'emploi d'acoustique résonante, dont les prédictions quantitatives par nos modèles ne sont pas garanties.

### 3.1 Détection QEPAS de $CO_2$ avec une diode laser en milieu non résonant

Effectuons d'abord une mesure comparative des performances de trois diapasons en milieu non résonant : un diapason commercial que nous avons dénommé TF1 dans les parties précédentes, le diapason U1 et le diapason C2. Le diapason C2 est mis en œuvre sans son dispositif de confinement de l'énergie acoustique. Le temps a manqué pour pouvoir réaliser également le diapason U2, prédit comme optimal pour le QEPAS.

#### 3.1.1 Mise en place de l'expérience type

Pour cette expérience de comparaison, nous utiliserons une diode laser de la marque EM4 qui fonctionne en continu (CW) et dont les caractéristiques sont données dans le tableau 3.1.

## La source cohérente

TABLE 3.1 – Caractéristiques du laser de la marque EM4 utilisé dans nos expériences.

|           | max $P_{LD}$ (mW) | $\lambda_L$ ( $\mu\text{m}$ ) | $k_L$ ( $\text{cm}^{-1}$ ) |
|-----------|-------------------|-------------------------------|----------------------------|
| Diode EM4 | $\sim 50$         | $\sim 1,540$                  | 6488 – 6493                |

Les diodes laser commerciales sont très pratiques à mettre en œuvre dans des expériences de photoacoustique. Leur stabilité en longueur d’onde permet d’adresser une longueur d’onde donnée de manière précise avec un positionnement possible à moins de  $0,01 \text{ cm}^{-1}$  près. Le pompage électrique permet d’ajuster facilement la puissance moyenne extraite par un réglage de la composante continue du courant utilisé  $I_{DC}$ . De plus, il est possible de superposer une modulation à la fréquence  $f$  de plus faible amplitude  $I_{AC}$  sur la composante  $I_{DC}$ , ce qui permet d’obtenir une légère modulation de la puissance. Cette modulation du courant s’accompagne d’une modulation de la longueur d’onde d’émission. On écrira donc le courant injecté dans la diode comme :

$$I = I_{DC} + I_{AC} \cos(2\pi ft) \quad (3.1)$$

Un contrôleur ITC510 est utilisé pour piloter notre diode EM4. Le courant continu peut être réglé entre 0 mA et 600 mA (limite de sécurité pour la diode), permettant d’obtenir des puissances optiques en sortie allant de 0 mW à 50 mW. Lorsque l’on utilise la modulation analogique pour créer une modulation  $I_{AC}$ , le lien entre consigne en tension et modulation en courant est de  $100 \text{ mA.V}^{-1}$ .

## Dispositif expérimental

Le schéma du montage QEPAS que nous avons utilisé est montré sur la figure 3.1. Il permet d’utiliser sur la même expérience deux types de modulation pour créer l’effet photoacoustique : la modulation d’amplitude de la puissance laser et la modulation de sa longueur d’onde. Nous détaillerons ce point au paragraphe suivant.

Les hublots de la cellule ont été traités, de manière à transmettre un maximum de la puissance disponible entre les branches du diapason. Une atténuation a lieu entre la puissance observée à la sortie du modulateur fibré MZ et celle présente dans la cellule (d’un facteur de 0,85 mesuré expérimentalement). Par la suite, les puissances seront toutes mesurées à l’intérieur de la cellule et prennent donc en compte cette atténuation.

Une vue en transparence de l’enceinte contenant le gaz est montrée sur la figure 3.2, avec dans cet exemple le diapason C2 utilisé conjointement avec son dispositif de récupération de l’énergie acoustique.

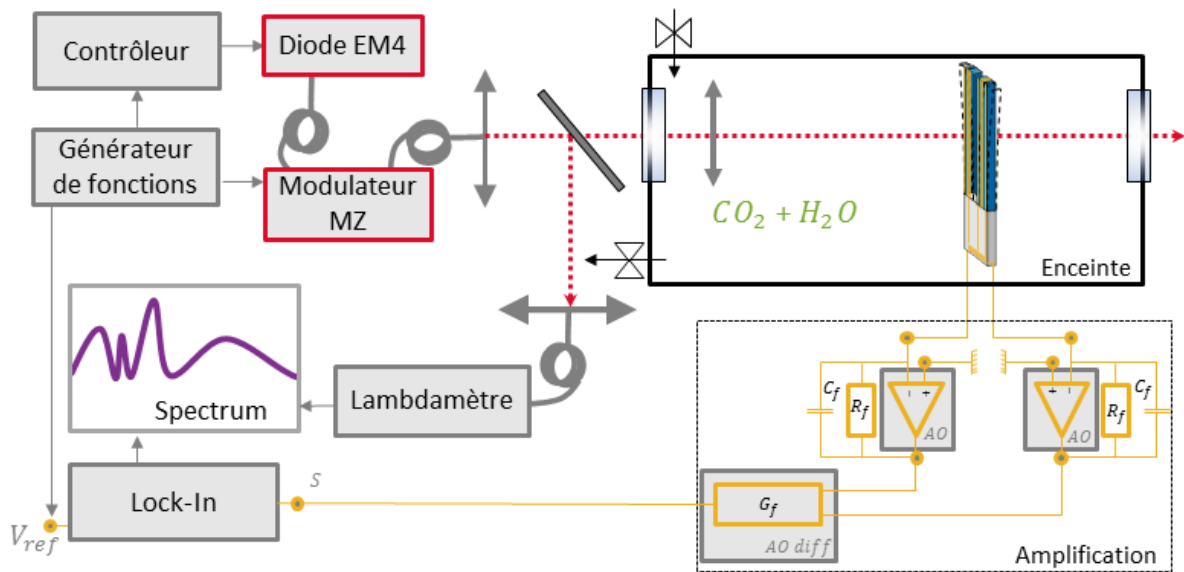


FIGURE 3.1 – Schéma du dispositif expérimental QEPAS utilisé pour caractériser les performances des diapasons. Deux types de modulation sont utilisés pour générer l'effet photoacoustique : la modulation d'amplitude avec un modulateur Mach-Zehnder et la modulation de longueur d'onde à l'aide du contrôleur de la diode laser.

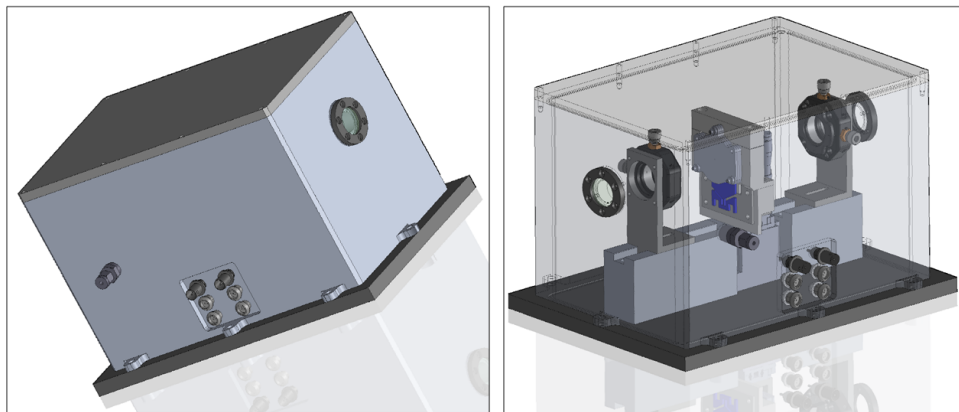


FIGURE 3.2 – Schéma de l'enceinte de gaz réalisée pour la caractérisation des diapasons optimisés.

Il s'agit d'une enceinte d'un volume de l'ordre de 3 litres au sein de laquelle sont placés les diapasons et destinée à accueillir les différents gaz à mesurer. Les différents connecteurs permettent la continuité électrique avec l'extérieur de façon étanche :

- Câble pour l'alimentation du circuit d'amplification +5V/-5V. L'alimentation est située à l'extérieur de la cellule, tandis que le circuit d'amplification est situé à l'intérieur de la cellule et proche du diapason.
- Lecture du signal photoacoustique (Cable coaxial), issu du circuit d'amplification.
- Capteur de température et d'humidité (Sensirion SHT75).
- Microphone pour générer du son à l'intérieur de l'enceinte lorsque celle-ci est fermée.

L'alignement latéral et vertical du diapason est assuré par des platines de translation placées dans la cellule, et le faisceau laser est toujours centré sur les hublots d'entrée et de sortie. Un rail interne permet d'ajouter des optiques le long du trajet laser, et on y placera uniquement une lentille de focale  $f = 50$  mm afin de focaliser le faisceau laser entre les branches des diapasons.

### Protocole de mesure

Le protocole expérimental suivi est le suivant pour chaque expérience qui va suivre :

- On place le diapason dans la cellule.
- On effectue l'alignement de manière à garantir que le faisceau traverse le système sans le toucher et avec des pertes minimales. On vérifie à cet instant que le fond laser (excitation directe du diapason par le laser sans effet PA) est négligeable devant le bruit présent en son absence.
- On ferme la cellule de manière étanche, puis on vide la cellule de son gaz à l'aide d'une pompe reliée à la cellule. Un capteur capacitif Mks Series 902 nous permet de mesurer en permanence la pression dans la cellule.
- On remplit à nouveau la cellule à l'aide d'une bouteille de gaz certifiée, jusqu'à atteindre la pression désirée.

Malgré le vide qui est réalisé avant d'injecter un gaz, l'humidité relative observée ne descend jamais en dessous de 10%. Ensuite, une fois la chambre scellée, on observe une augmentation continue du taux d'humidité jusqu'à 15% environ. On attribue cette remontée à la désorption des parois qui ont stocké de l'eau. L'humidité relative du mélange utilisé au cours de toutes les mesures qui vont suivre est comprise entre 10% et 20%. À une température typique de 25°C, la pression de vapeur saturante de l'eau dans l'air est de 31,7 mbar. La concentration en  $H_2O$  dans notre cellule est donc comprise entre 3000 et 6000 ppm. On pourrait éviter cette présence d'eau en chauffant la cellule et en la pompant pendant plusieurs heures, cependant elle est souhaitable comme nous allons le voir par la suite.

### Le gaz cible de l'expérience comparative

Nous utiliserons un gaz composé de  $CO_2$  pur pour cette première expérience. La présence de vapeur d'eau est bénéfique puisqu'elle permet d'abaisser le temps de relaxation  $\tau_{V-T}$  du gaz (WYSOCKI et al. 2006). Le spectre d'absorption du  $CO_2$  simulé à l'aide de HITRAN 2012 est montré sur la figure 3.3.

L'absorption due à la vapeur d'eau est complètement négligeable devant celle du  $CO_2$  dans la fenêtre spectrale considérée (3 ordres de grandeur entre les deux espèces). Dans cette première partie décrivant notre "expérience type", on va s'intéresser au pic d'absorption situé à  $k = 6490,05$   $cm^{-1}$  uniquement.

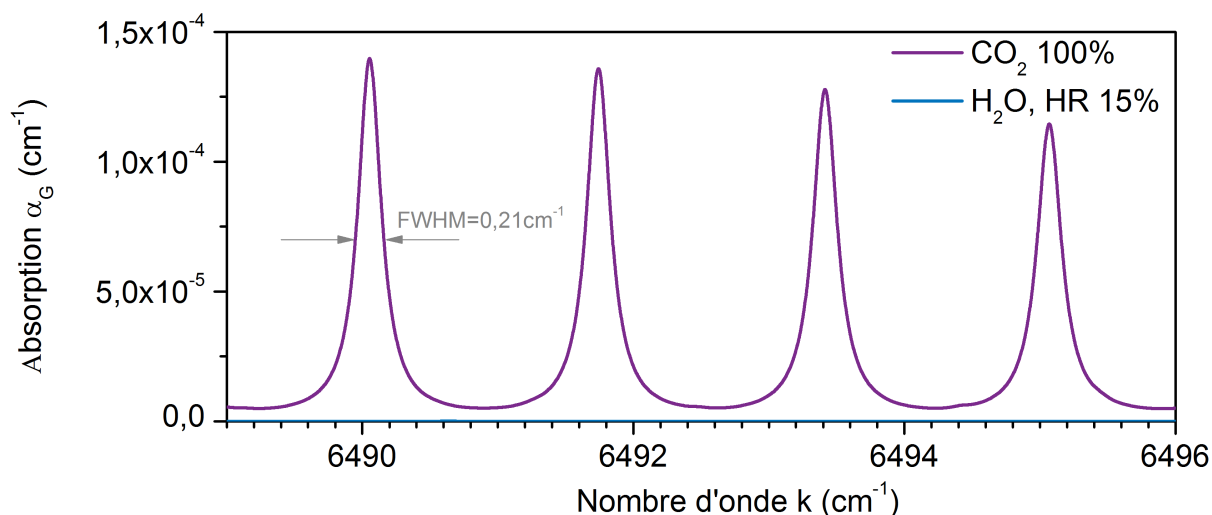


FIGURE 3.3 – Simulation du spectre d'absorption d'un mélange de  $\text{CO}_2$  et d' $\text{H}_2\text{O}$  d'humidité relative 15%, de  $k = 6489 \text{ cm}^{-1}$  à  $k = 6496 \text{ cm}^{-1}$ , à l'aide de HITRAN. Le mélange est à pression et température ambiantes.

### L'électronique de détection et détection synchrone

L'amplificateur opérationnel AD8066 sera utilisé pour amplifier les signaux piézoélectriques issus des diapasons. Ce dernier est caractérisé par un bruit de  $V_{AO} = 7 \text{ nV} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  d'après les données constructeur. Les résistances et capacités de retour  $R_f$  et  $C_f$  sont choisies comme  $R_f = 2,2 \text{ M}\Omega$  et  $C_f = 1 \text{ pF}$  pour tous les diapasons.

L'amplificateur opérationnel différentiel AD620, qui effectue la différence des tensions amplifiées issues des deux branches, aura un gain final  $G_f$  qui peut varier d'un diapason à l'autre. Il sera précisé au cas par cas par la suite, mais il ne modifie pas le rapport signal à bruit.

Nous utiliserons une détection synchrone Stanford Research Systems SR530, réglée avec  $\tau_{PRE} = 3 \text{ s}$  et  $\tau_{POST} = 1 \text{ s}$  soit une bande passante de  $\Delta f = 0,0625 \text{ Hz}$  (voir l'équation 1.77).

#### 3.1.2 Les schémas de modulation utilisés

Afin de maximiser l'effet photoacoustique, on doit utiliser un schéma de modulation qui vise à maximiser l'énergie déposée dans le milieu à la fréquence de résonance du diapason  $f = f_0$ . Dans notre modèle, ce schéma de modulation a pour vocation de maximiser le coefficient  $\hat{c}(\omega)$  donné à l'équation 1.12c et que l'on rappelle ci-dessous :

$$\hat{c}(\omega_0) = \frac{\omega_0}{2\pi} \left[ \int_{-\pi/\omega_0}^{\pi/\omega_0} \alpha_G(t) P_L(t) \exp(-j\omega_0 t) dt \right]. \quad (3.2)$$

Il nous faut donc choisir judicieusement la forme temporelle de la puissance optique  $P_L(t)$  incidente sur la cellule de gaz et/ou la forme temporelle de l'absorption  $\alpha_G(t)$  du gaz.

### Modulation d'amplitude (AM)

La première technique de modulation que nous utiliserons est une modulation d'amplitude pure (AM). Il s'agit de moduler la puissance  $P_{LD}(t)$  émise par la diode laser tout en assurant que  $\alpha_G$  est constant dans le temps. La longueur d'onde sera donc constante au cours d'une mesure. Ce n'est qu'en changeant la température de la diode après la mesure que l'on va modifier la longueur d'onde, et ainsi pouvoir lancer une nouvelle mesure à une longueur d'onde différente. Le spectre est donc obtenu de manière séquentielle. Puisque des modifications du courant de pompage de la diode laser entraînent des modifications de longueurs d'onde, on choisira d'effectuer la modulation AM de manière externe à la diode. On choisit donc  $I_{AC} = 0$  et  $I_{DC}$  reste constant. Plusieurs techniques sont possibles, comme l'utilisation d'un chopper mécanique qui obture périodiquement le faisceau à la fréquence  $f_0$ .

Nous utiliserons plutôt un modulateur Mach-Zehnder (MZ). Il s'agit d'un interféromètre de Mach-Zehnder conventionnel, et dont l'un des bras comporte un cristal de  $LiNbO_3$ . Lorsque le cristal est soumis à une tension, son indice de réfraction est modifié et l'onde qui le traverse subit donc un déphasage. En fonction de la tension électrique de pilotage du MZ, il est donc possible d'obtenir une interférence constructive ou destructive entre les deux bras du MZ. La puissance optique obtenue en sortie du MZ peut s'écrire en première approximation comme

$$P_L(t) = \frac{P_{LD}}{2} (1 + \cos \beta V(t)), \quad (3.3)$$

avec  $\beta$  une constante de proportionnalité et  $V$  la tension imposée au MZ. La forme du profil  $P_L(t)$  obtenu en sortie du MZ peut donc être arbitrairement choisie par une consigne de tension adéquate  $V(t)$ . Certaines consignes produiront un coefficient  $\hat{c}(\omega_0)$  plus important que d'autres, et une optimisation est donc possible à ce niveau.

### Modulation de longueur d'onde (WM)

La modulation de longueur d'onde présente de nombreux avantages par rapport à la modulation AM.

Le plus important d'entre eux réside en la réduction du fond cohérent provenant des absorptions parasites, que l'on a dénommé précédemment le "fond laser". En modulation AM, il s'agit principalement de l'absorption qui a lieu lors de la traversée des hublots de la cellule, ainsi que celle qui a lieu lorsque le laser entre en contact direct avec le diapason. Le signal parasite cohérent alors généré est à la même fréquence que la modulation de l'amplitude, c'est à dire à la fréquence de résonance du diapason, qui le détecte donc efficacement.

La modulation de la longueur d'onde du laser se fait à la fréquence  $f_0/2$ , si bien que le bruit parasite est modulé lui aussi à cette fréquence. Il n'excite donc pas le diapason



de manière efficace car loin de sa fréquence de résonance, et le fond est largement réduit voir supprimé.

Comme pour la modulation d'amplitude, il existe des formes de modulation de la longueur d'onde  $\alpha_G(t)$  plus performantes que d'autres. Cet aspect a été étudié théoriquement par Iguchi (IGUCHI 1986) et expérimentalement par Saarela *et al.*, qui ont montré qu'une forme en "quasi-carré" adaptée à la raie d'absorption visée est optimale et permet d'obtenir des gains de l'ordre de 1,8 (et 1,57 expérimentalement) par rapport à une modulation sinusoïdale plus classique (IGUCHI 1986; SAARELA *et al.* 2009). Malgré cela, on utilisera une modulation sinusoïdale du courant de pompage dans cette première expérience pour des questions de simplicité de mise en œuvre. L'amplitude de la modulation a également son importance. On va chercher à employer un indice de modulation de la longueur d'onde proche de  $m = 2,2$ , car c'est le point de fonctionnement optimal pour une modulation de la longueur d'onde sinusoïdale (IGUCHI 1986). Cet indice est défini comme l'amplitude de la modulation en longueur d'onde divisée par la demi-largeur à mi-hauteur (HWHM) de la raie sondée. En reprenant la notation  $\delta$  de l'équation 1.14, il s'écrit donc  $m = \delta/HWHM$ .

Puisque la raie sondée vers  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$  possède une largeur à mi-hauteur  $FWHM = 0,21 \text{ cm}^{-1}$  dans du  $CO_2$  pur, on va donc chercher à imposer une amplitude de modulation  $\delta = 0,23 \text{ cm}^{-1}$ . Nous avons caractérisé notre diode EM4 pour obtenir l'amplitude du courant  $I_{AC}$  à utiliser pour produire une telle amplitude de modulation. Pour ce faire, la diode EM4 a été injectée dans une cavité Fabry-Perot fibrée de finesse  $Q = 100$  et d'intervalle spectral libre ISL= 300 MHz. Pour une amplitude de 300 mV appliquée au contrôleur de courant (qui correspond à une amplitude de modulation du courant de  $I_{AC} = 30 \text{ mA}$ ), les résultats sont montrés sur la figure 3.4.

En exploitant le fait que les pics de transmission du Fabry-Perot sont distants de l'ISL, on peut reconstruire la courbe du nombre d'onde en fonction du temps (présentée sur la figure 3.4b). On en déduit que la longueur d'onde suit effectivement la consigne imposée sinusoïdale, puisque la sinusoïde ajustée aux points expérimentaux est en très bon accord. Son amplitude est de  $\delta = 0,26 \text{ cm}^{-1}$ , très proche de la valeur de  $0,23 \text{ cm}^{-1}$  recherchée. L'amplitude de consigne théorique exacte à adopter ici est donc de 530 mV pic-pic pour assurer un indice de modulation de  $m = 2,2$ .

La modulation de la longueur d'onde s'accompagne d'une modulation en amplitude de la diode EM4. On voit sur la figure 3.4b) que l'amplitude de la fluctuation est d'environ 2,6 mW autour de sa valeur moyenne de 22,5 mW, soit 12%.

Comme nous le verrons plus loin, l'utilisation de la modulation en longueur d'onde ne permet pas d'obtenir directement le spectre d'absorption du gaz comme c'est le cas pour la modulation en amplitude. Une étape de démodulation supplémentaire est nécessaire (ANGELMAHR *et al.* 2008; SCHILT *et THÉVENAZ* 2006).

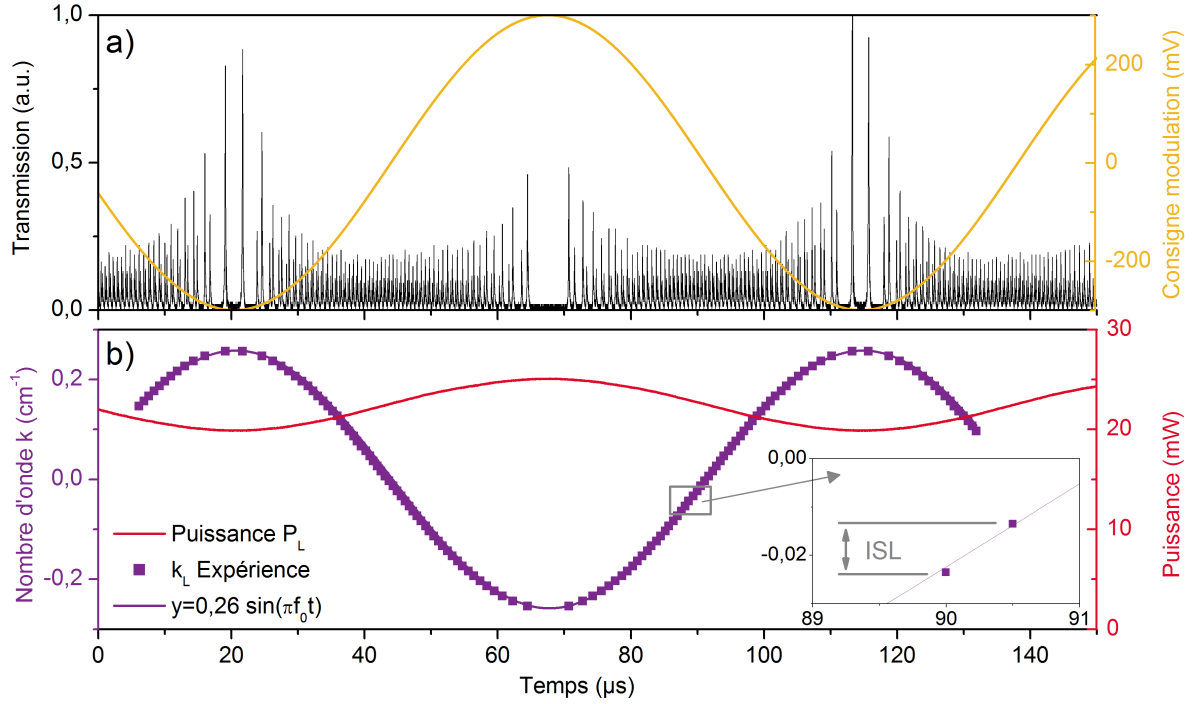


FIGURE 3.4 – Caractérisation de la diode EM4 à  $I_{DC} = 300$  mA et  $I_{AC} = 30$  mA, avec a) Transmission Fabry-Perot en fonction du temps, superposé à la consigne de tension imposée au contrôleur du pompage de la diode EM4. b) Puissance mesurée et reconstruction du nombre d'onde en fonction du temps en utilisant le fait que l'ISL du Fabry-Perot utilisé vaut 300 MHz. On note une modulation d'amplitude résiduelle d'environ 10% par rapport à la puissance moyenne.

### Incidence de la modulation sur le NNEA

On remarque qu'il existe une perte de puissance moyenne lorsque le MZ est utilisé (cas AM), ce qui peut avoir une influence sur le NNEA mesuré expérimentalement par rapport au cas WM. En effet, cette valeur est souvent obtenue après normalisation par la puissance moyenne incidente sur le diapason, et non par la puissance moyenne avant modulation.

Pour illustrer ce problème de définition, supposons que l'on utilise deux systèmes de modulation purement sinusoïdale AM ou WM. On suppose que la composante continue du pompage  $I_{DC}$  assure une puissance moyenne  $P_{LD}$  à la sortie de la diode laser. Dans le cas AM, cela revient à imposer un signal triangulaire sur le MZ, qui se transforme en modulation sinusoïdale parfaite de la puissance transmise (équation 3.3), tandis que l'absorption du gaz est constante et égale à  $\alpha_G(k_c)$ . On obtient donc une puissance en sortie qui vaut :

$$P_L(t) = \frac{P_{LD}}{2} (1 + \cos(2\pi f_0 t)), \quad (3.4)$$

Dans le second cas du WM, on suppose une modulation parfaitement sinusoïdale de

l'absorption, et on néglige la modulation de la puissance qui a également lieu en pratique :  $P_L(t) = P_{LD}$ . On obtient donc :

$$\alpha_G(t) = \frac{\alpha_G(k_c)}{2} (1 + \cos 2\pi f_0 t), \quad (3.5)$$

Le calcul du coefficient  $\hat{c}(\omega_0)$  donné par l'équation 3.2 donne  $\alpha_G(k_c)P_{LD}/4$  dans les deux cas, et le rapport signal à bruit est donc identique quelle que soit la méthode de modulation. Pourtant, on mesure respectivement  $P_{LD}/2$  et  $P_{LD}$  de puissance incidente sur le diapason pour les cas AM et WM. À puissance laser équivalente extraite de la diode, la normalisation NNEA par la puissance laser incidente est donc favorable au cas AM (d'un facteur 2 dans notre exemple).

### 3.1.3 Les diapasons utilisés pour la comparaison

#### Présentation

On montre sur la figure 3.5 les trois diapasons que l'on va comparer : U1X-B, Euro 1 et C2-A. Leurs caractéristiques sont présentées dans la tableau 3.2.

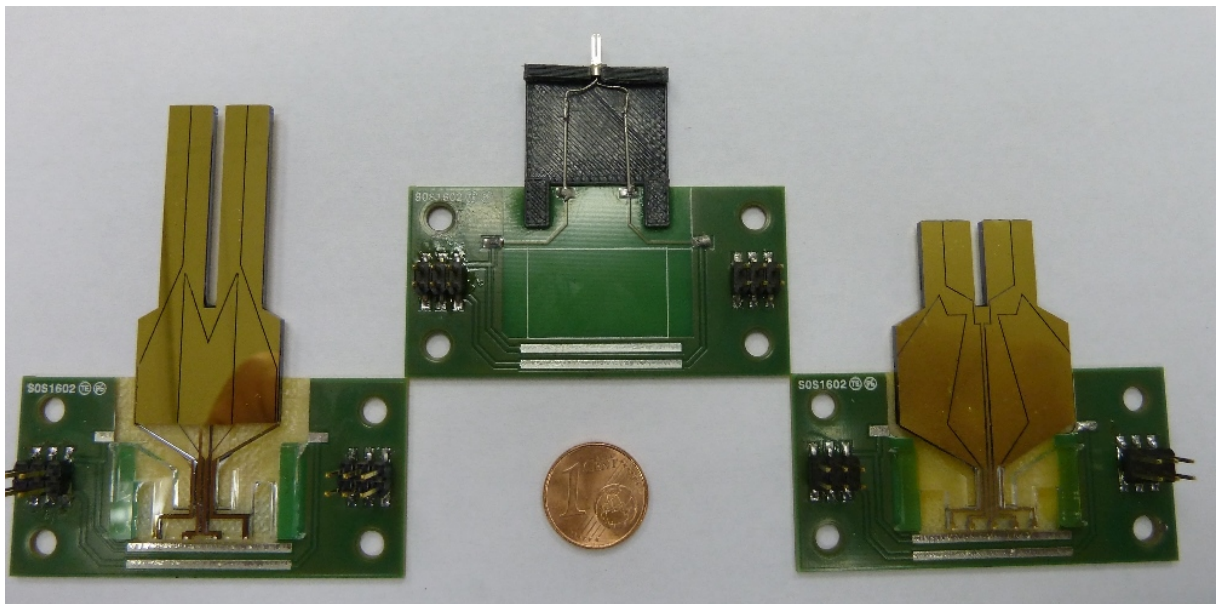


FIGURE 3.5 – Photographie des trois diapasons utilisés pour la comparaison, avec de gauche à droite le diapason U1X-B, le diapason horloger commercial Euro 1 et enfin le diapason C2-A.

Les facteurs de qualité annoncés ont été mesurés par détermination de la bande passante de la résonance à 3 dB en utilisant le signal photoacoustique comme source d'excitation, conformément à la formule 2.44. Les densités spectrales de bruit sont mesurées à l'aide de la détection synchrone en configuration "Xnoise/Ynoise", qui mesure directement la valeur souhaitée. Les valeurs données sont valides à quelques % près en raison de la nature aléatoire du bruit.

TABLE 3.2 – Caractéristiques des diapasons utilisés pour une comparaison de leurs performances dans du  $CO_2$  pur humidifié.

| Grandeur  | U1X-B                         | Euro 1  | C2-A    |
|---|-------------------------------|---------|---------|
|   | Géométrie                     |         |         |
| Largeur $e$ (mm)  | 7                             | 0,6     | 8       |
| Épaisseur $l$ (mm)  | 2                             | 0,34    | 2       |
| Longueur $L$ (mm)   | 31                            | 3,75    | 13,6    |
| Inter-branche $g$ (mm)  | 2                             | 0,31    | 2       |
|   | Caractéristiques de résonance |         |         |
| Fréquence $f_0$ (Hz)  | 4912,78                       | 32738,1 | 21232,8 |
| Facteur de qualité $Q$  | 28900                         | 9100    | 6100    |
|   | Caractéristiques de détection |         |         |
| Gain $G_f$  | 1000                          | 300     | 50      |
| Densité $S_b/\sqrt{\Delta f}$ ( $\mu\text{Vrms.Hz}^{-1/2}$ ) ( $f = f_0$ )    | 240                           | 425     | 85      |
| Densité $S_b/\sqrt{\Delta f}$ ( $\mu\text{Vrms.Hz}^{-1/2}$ ) ( $f \neq f_0$ ) | 240                           | 112     | 28      |

## Discussion

Bien que l'on ait défini la géométrie des diapasons optimisés C2 et U1 au chapitre 2, leur réalisation pratique peut aboutir à de légères différences d'un échantillon à l'autre (usinage imparfait, ...). Même si leurs dimensions de branches sont parfaitement identiques, ils peuvent présenter de légères différences de fréquence de résonance ou de facteur de qualité dans le vide. C'est pour cette raison que la réalisation pratique de C2 que l'on utilise ici a été nommée C2-A.

Afin de comparer les diapasons optimisés avec ceux couramment utilisés lors d'expériences QEPAS, on considère le diapason Euro 1 que nous avons déjà employé au chapitre 1 lors de vérifications pour l'accord de nos modèles de prédiction.

Le diapason U1X-B est une réalisation particulière du résonateur U1 défini au chapitre 2. Contrairement à la réalisation U1Y que l'on a présenté, ses branches sont désormais disposées selon l'orientation cristalline X du quartz. Cela permet d'éviter la présence de dièdres d'usinages qui pourraient réduire l'inter-branches et nous poser des difficultés à l'alignement. Aussi, un système de découplage plus élaboré a été utilisé pour augmenter le facteur de qualité sous vide, et ainsi moins impacter le facteur de qualité expérimental dans le gaz. Contrairement à nos attentes, le facteur de qualité de U1X-B sous vide est décevant (du même ordre de grandeur que U1Y, qui n'avait pourtant pas de dispositif de découplage). La raison exacte n'est pas clairement comprise à ce jour. Il est possible que le découplage ne soit pas correctement réalisé malgré les simulations par éléments

finis préalables, puisque l'on observe une dépendance du facteur de qualité par rapport à l'orientation (verticale ou horizontale) du résonateur. Il ne faut pas non plus exclure la possibilité que la viscosité interne de l'or qui compose les électrodes joue un rôle important, dans la mesure où cet effet peut devenir important à basse fréquence (BOURGETEAU-VERLHAC et al. 2016 ; O. LE TRAON et al. 2010).

On remarque également que la densité spectrale de bruit de U1X-B est identique pour  $f = f_0$  que pour  $f \neq f_0$ , contrairement aux deux autres diapasons. Le bruit de la mesure est donc limité dans ce cas par le circuit électronique ( le bruit des amplificateurs opérationnels à transimpédance), et non par le bruit brownien du résonateur. Les performances de U1X-B seront donc réduites par rapport à nos prévisions du chapitre 2. La raison de cette prédominance du bruit électronique reste un mystère à l'heure de l'écriture de ce mémoire. Le niveau de bruit électronique est correctement modélisé par nos modèles, et les paramètres électriques du résonateur mesurés sont théoriquement compatibles avec une prédominance du bruit brownien à la résonance. Ces modèles fonctionnent correctement pour les deux autres résonateurs.

### 3.1.4 Performances photoacoustiques comparées des diapasons

#### Mesures expérimentales AM

Pour la mise en œuvre de la modulation purement AM, on a utilisé un signal triangulaire pour consigne du modulateur MZ. D'après l'équation 3.3, on obtient une modulation purement sinusoïdale de la puissance, ce que confirment les traces à l'oscilloscope de la figure 3.6.

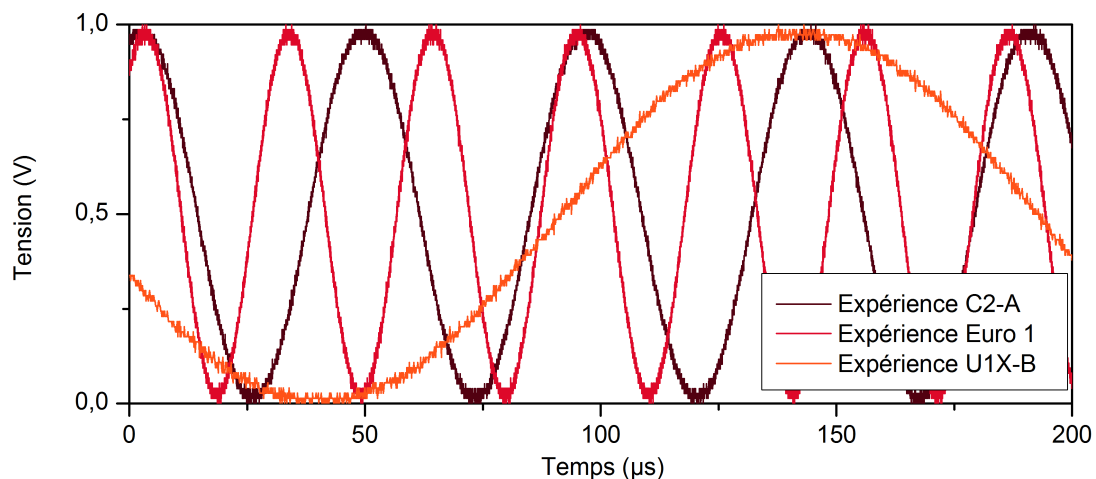


FIGURE 3.6 – Tension mesurée à l'aide d'une photodiode, représentative de la puissance laser modulée à l'aide du MZ pour générer l'effet photoacoustique.

On se place à un courant de la diode  $I_{DC} = 300$  mA, ce qui correspond à une puissance moyenne incidente sur le diapason mesurée à 11 mW. La longueur d'onde est constante, et le signal est mesuré à la position  $k = 6490,05$  cm<sup>-1</sup>. Ensuite, le fond laser est mesuré

à la position  $k = 6489,10 \text{ cm}^{-1}$  pour mesurer l'importance des absorptions parasites en présence. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3.3.

TABLE 3.3 – Comparaison des performances des diapasons U1X-B, Euro 1 et C2-A dans du  $CO_2$  pur humidifié, dans le cadre d'une modulation AM de la diode laser. Il est à noter que les gains électroniques varient en fonction du diapason conformément aux données du tableau 3.2.

| Grandeur  | U1X-B  | Euro 1               | C2-A                 |
|---|--|----------------------|----------------------|
|   | Caractéristiques du laser                                  |                      |                      |
| Puissance $P_L$ (mW)  | 11   | 11                   | 11                   |
|   | Caractéristiques du bruit (laser OFF)                      |                      |                      |
| Signal Lock-In $S_b$ ( $\mu\text{Vrms}$ )                       | 60   | 101                  | 21                   |
|   | Caractéristiques du signal à $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$ |                      |                      |
| Position h/L (%)  | 84   | 85                   | 75                   |
| Signal Lock-In $ \hat{S} $ ( $\mu\text{V}$ )                    | 8060   | 17000                | 3950                 |
| Phase Lock-In $\arg(\hat{S})$ ( $^\circ$ )                      | -59  | -38,5                | +55                  |
|   | Caractéristiques du signal à $k = 6489,1 \text{ cm}^{-1}$  |                      |                      |
| Signal Lock-In $ \hat{S} $ ( $\mu\text{V}$ )                    | 424  | 850                  | 134                  |
|   | Caractéristiques du capteur signal à fond                  |                      |                      |
| Rapport signal à fond SBR                                       | 19   | 20                   | 29                   |
| NNEA ( $\text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ) | $3,24 \cdot 10^{-7}$                                       | $3,08 \cdot 10^{-7}$ | $2,09 \cdot 10^{-7}$ |
|   | Caractéristiques du capteur signal à bruit                 |                      |                      |
| Rapport signal à bruit SNR                                      | 134  | 132                  | 186                  |
| NNEA ( $\text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ) | $4,59 \cdot 10^{-8}$                                       | $3,66 \cdot 10^{-8}$ | $3,31 \cdot 10^{-8}$ |

On voit qu'un fond acoustique résiduel existe lorsque la longueur d'onde est réglée hors des raies d'absorption du gaz (ici à  $k = 6489,10 \text{ cm}^{-1}$ ). Ce signal, qui existe pour les trois diapasons, provient soit de l'absorption au sein des hublots ou de la lentille de focalisation, soit du laser qui touche les branches. Étant donné l'interbranche de 2 mm pour C2-A et U1X-B, le premier effet est certainement prépondérant pour ces diapasons. Dans le cas de Euro 1, il se peut que le laser touche légèrement les branches, même si la focalisation permet d'atteindre un waist de  $w_L \approx 50 \text{ }\mu\text{m}$  beaucoup plus petit que les 300  $\mu\text{m}$  d'inter-branche. Cependant, la moindre fraction de puissance qui entre en contact avec les branches est suffisante pour générer un fond important. Cela peut arriver si la qualité spatiale du faisceau n'est pas parfaite, ou en cas de réflexions parasites (même diffuses).



Si on considère le bruit brownien du résonateur pour calculer le NNEA, on voit que le diapason C2-A est légèrement meilleur que le diapason Euro 1.

### Mesures expérimentales WM

Pour cette mesure, on conserve le pompage de la diode EM4 à  $I_{DC} = 300$  mA et on met le modulateur MZ à la masse. La puissance incidente sur les diapasons est alors constante et on mesure  $P_L = 23$  mW.

Afin de mettre en place une modulation de la longueur d'onde de forme sinusoïdale optimisée comme on l'a décrit précédemment, on impose une modulation en tension d'amplitude pic-pic 530 mV (c'est à dire  $I_{AC} = 26,5$  mA). On obtient alors les résultats montrés sur le tableau 3.4.

TABLE 3.4 – Comparaison des performances expérimentales des diapasons U1X-B, Euro 1 et C2-A dans du  $CO_2$  pur humidifié, dans le cadre d'une modulation WM de la diode laser.

| Grandeur                                   | U1X-B  | Euro 1               | C2-A                 |
|--|--|----------------------|----------------------|
|  | Caractéristiques du laser                            |                      |                      |
| Puissance $P_L$ (mW)                       | 23   | 23                   | 23                   |
|  | Caractéristiques du bruit (laser OFF)                |                      |                      |
| Signal Lock-In $S_b$ ( $\mu$ Vrms)         | 60   | 106                  | 21                   |
|  | Caractéristiques du signal à $k = 6490,05$ $cm^{-1}$ |                      |                      |
| Position h/L (%)                           | 84   | 85                   | 75                   |
| Signal Lock-In $ \hat{S} $ ( $\mu$ V)      | 5230   | 10607                | 2602                 |
| Phase Lock-In $\arg(\hat{S})$ ( $^\circ$ ) | +6   | -73                  | +99                  |
|  | Caractéristiques du signal à $k = 6489,1$ $cm^{-1}$  |                      |                      |
| Signal Lock-In $ \hat{S} $ ( $\mu$ V)      | bruit  | bruit                | bruit                |
|  | Caractéristiques du capteur signal à bruit           |                      |                      |
| Rapport signal à bruit                     | 87   | 100                  | 124                  |
| NNEA ( $cm^{-1}.W.Hz^{-1/2}$ )             | $1,45 \cdot 10^{-7}$                                 | $1,26 \cdot 10^{-7}$ | $1,03 \cdot 10^{-7}$ |

En modulation WM, on observe que le fond est inexistant, alors que le faisceau laser est exactement dans la même configuration que dans le cas AM. On confirme donc que la méthode de modulation de la longueur d'onde est très intéressante dans ce cas où les raies d'absorption sont nettement définies.

Le ratio entre le NNEA obtenu dans le cas WM avec celui obtenu dans le cas AM donne 3,2, 3,4 et 3,1 respectivement pour les diapasons U1X-B, Euro 1 et C2-A. On a déjà

expliqué qu'un facteur 2 est présent en raison de la définition du NNEA expérimental, qui est normalisé par rapport à la puissance laser moyenne incidente sur le diapason. Le facteur 1,5 restant provient de la forme de la modulation : la modulation sinusoïdale de la longueur d'onde dans le cas WM ne donne pas une modulation sinusoïdale parfaite de l'absorption comme décrite par l'équation 3.5. La valeur du coefficient  $\hat{c}$  à  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$  de l'expérience précédente vaut en effet  $80 \mu\text{W}\cdot\text{m}^{-1}$  et  $54 \mu\text{W}\cdot\text{m}^{-1}$  dans les cas AM et WM respectivement. Les deux expériences utilisant des formes de modulation différentes sont donc bien en accord.

### Comparaisons avec le modèle analytique et analyse

Nous allons maintenant comparer les mesures obtenues précédemment à notre modèle analytique. On a déjà expliqué au chapitre 1 qu'un certain nombre de paramètres doivent être ajustés aux valeurs expérimentales dont on dispose pour que le modèle soit adapté.

- La fréquence de résonance dans le vide (le formalisme d'Euler-Bernoulli induit parfois d'importants écarts, surtout sur C2-A)
- On doit prendre en compte de temps de relaxation  $\tau_{V-T}$ , que l'on peut déduire des expériences précédentes grâce à la phase mesurée de la détection photoacoustique. On sait qu'il est négligeable pour les trois diapasons dans le cas du  $CO_2$  humidifié à plus de 5% (WYSOCKI et al. 2006).
- Le facteur de qualité mesuré expérimentalement doit être utilisé pour plus de précision.

En choisissant le même schéma AM que celui de notre expérience précédente, on obtient les résultats analytiques reportés dans le tableau 3.5.

On avait déjà montré que le modèle était en bon accord avec notre mesure sur le diapason Euro 1 (chapitre 1). Ici, l'expérience est légèrement plus favorable, et la valeur obtenue se situe entre la prédiction analytique et la prédiction semi-analytique (prenant en compte la simulation par éléments finis). On rappelle que la prédiction semi-analytique prédit un résultat environ deux fois meilleur que la prédiction analytique en raison de la résonance qui a lieu entre les branches du diapason.

Les résultats pour le diapason C2-A sont également en très bon accord, ce qui valide la pertinence de notre modèle sur des géométries de diapasons variées. L'expérience est ici légèrement moins favorable que la prédiction analytique, mais on sait que ce diapason peut s'écarter fortement des hypothèses d'Euler-Bernoulli. On a montré en fin de chapitre 2 que le calcul par éléments finis donne un facteur d'amplification lié à la résonance entre les branches de 1,2, ainsi les prédictions analytiques et semi-analytiques sont relativement proches.

L'expérience montre des performances réduites de moitié par rapport à la prédiction pour le diapason U1X-B. On rappelle que ce diapason est limité par l'électronique de



TABLE 3.5 – Comparaison des performances des diapasons U1X-B, Euro 1 et C2-A dans du  $CO_2$  pur humidifié, obtenues à l'aide de notre modèle analytique en modulation AM.

| Grandeur   | Analytique<br>U1X-B    | Analytique<br>Euro 1   | Analytique<br>C2-A     |
|--|------------------------|------------------------|------------------------|
| Caractéristiques du laser                                |                        |                        |                        |
| Puissance $P_L$ (mW)                                     | 11                     | 11                     | 11                     |
| Caractéristiques de résonance                            |                        |                        |                        |
| Fréquence $f_0$ (Hz)                                     | 4912,78                | 32738,1                | 21232.8                |
| Facteur de qualité $Q$                                   | 28900                  | 9100                   | 6100                   |
| Coefficient $c_p$ (C.m <sup>-1</sup> )                   | 1,15 10 <sup>-4</sup>  | 1,38 10 <sup>-5</sup>  | 2,99 10 <sup>-4</sup>  |
| Caractéristiques du bruit                                |                        |                        |                        |
| Densité $F_b/\sqrt{\Delta f}$ (Nrms.Hz <sup>-1/2</sup> ) | 4,46 10 <sup>-12</sup> | 8,61 10 <sup>-13</sup> | 1,43 10 <sup>-11</sup> |
| Densité $V_b/\sqrt{\Delta f}$ (Vrms.Hz <sup>-1/2</sup> ) | 3,89 10 <sup>-12</sup> | 6,22 10 <sup>-8</sup>  | 4,78 10 <sup>-8</sup>  |
| Bruit Lock-In $S_b$ (V)                                  | 3,39 10 <sup>-4</sup>  | 5,93 10 <sup>-5</sup>  | 1,33 10 <sup>-5</sup>  |
| Caractéristiques du signal analytique                    |                        |                        |                        |
| Position optimale h/L (%)                                | 84                     | 85                     | 75                     |
| Déplacement maximal $\max_x(\hat{W})$ (m)                | 1,19 10 <sup>-11</sup> | 5,93 10 <sup>-12</sup> | 6,80 10 <sup>-13</sup> |
| Force photoacoustique $F_n$ (N)                          | 2,26 10 <sup>-10</sup> | 2,22 10 <sup>-11</sup> | 5,72 10 <sup>-10</sup> |
| Voltage Lock-In $ \hat{S} $ (V)                          | 9,25 10 <sup>-2</sup>  | 8,1 10 <sup>-3</sup>   | 2,9 10 <sup>-3</sup>   |
| Caractéristiques du capteur                              |                        |                        |                        |
| Rapport signal à bruit                                   | 273                    | 135                    | 215                    |
| NNEA (cm <sup>-1</sup> .W.Hz <sup>-1/2</sup> )           | 2,20 10 <sup>-8</sup>  | 4,41 10 <sup>-8</sup>  | 2,80 10 <sup>-8</sup>  |

détection et non par son bruit brownien, ce qui explique une dégradation de son NNEA expérimental (comparé à notre modélisation qui prédit que le bruit brownien est prépondérant). Malgré cette limitation, son NNEA expérimental n'est que 25% plus élevé que celui du diapason commercial. A titre de comparaison, l'un des derniers diapasons de forme optimisée apparu dans la littérature est 4 fois moins bon que les diapasons commerciaux (HENG et al. 2016). Les deux limitations du diapason U1X-B par rapport à notre modèle, à savoir un facteur de qualité réduit de moitié et la limitation par le bruit électronique, nous donne confiance en la possibilité d'atteindre le gain de 2 annoncé dans l'air annoncé dans le chapitre 2 par rapport à un diapason commercial.

Ces résultats concernant nos deux diapasons originaux confirment également notre confiance dans les résultats obtenus dans le chapitre 2 concernant les diapasons optimaux, et qui permettent de conclure qu'un gain maximal de 2-3 peut être atteint en jouant sur la forme des résonateurs.

On remarque à nouveau que la comparaison entre les différents diapasons nécessite beaucoup de précautions, tant la chaîne de détection QEPAS fait intervenir des paramètres

variables avec la géométrie et la fréquence de fonctionnement. On vient de prouver par exemple que, contrairement aux idées reçues, même un facteur de qualité plus faible que ceux des diapasons commerciaux permet tout de même d'obtenir des sensibilités tout à fait comparables si ce n'est meilleures.

### 3.1.5 Conclusion

On vient de réaliser deux diapasons originaux dont les performances sont sensiblement égales à celles des diapasons commerciaux. Leurs fréquences de résonance abaissées permet d'adresser des gaz à temps de relaxation plus lents, en particulier le résonateur U1X-B. Leurs interbranches élargis les rendent également beaucoup plus aisés à mettre en oeuvre, avec notamment un alignement optique simplifié très important pour de plus grandes longueurs d'onde. On rappelle que le diapason C2 a été créé pour être utilisé en milieu résonant, avec notamment son dispositif de récupération de l'énergie acoustique. Il est difficile de prédire l'effet que peuvent avoir des tubes d'amplification sans effectuer des expériences, par manque de recul sur la fiabilité des prédictions analytiques/numériques. Plusieurs études indépendantes de la littérature rapportent un facteur 30 d'amplification possible pour un diapason commercial (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010 ; SEREBRYAKOV et al. 2010 ; YI, CHEN, SUN et al. 2012). Il n'y a cependant aucune raison pour qu'un tel gain se reporte sur nos diapasons optimisés dans la mesure où leur fréquence et leurs dimensions n'ont rien à voir. Les expériences à suivre visent à élucider ce point.

## 3.2 Détection QEPAS avec une diode laser en milieu résonant

Nous allons maintenant évaluer les gains liés à l'utilisation d'éléments acoustiques résonants, ainsi que comparer le comportement du QEPAS résonant avec notre nouvelle théorie exposée au chapitre 1.

### 3.2.1 Influence de la géométrie du résonateur acoustique

Pour cette seconde expérience, on cherche à détecter 2.7% de  $CO_2$  dans  $N_2$  afin de se rapprocher de la majorité des cas pratiques qui visent à détecter un gaz à l'état de trace dans l'air ambiant.

#### 3.2.1.1 Dispositif expérimental

On considère donc la même expérience que dans le paragraphe précédent, à l'exception du gaz utilisé qui présente désormais le spectre d'absorption de la figure 3.7. De l'eau est toujours présente, avec une humidité relative comprise entre 10% et 20%.

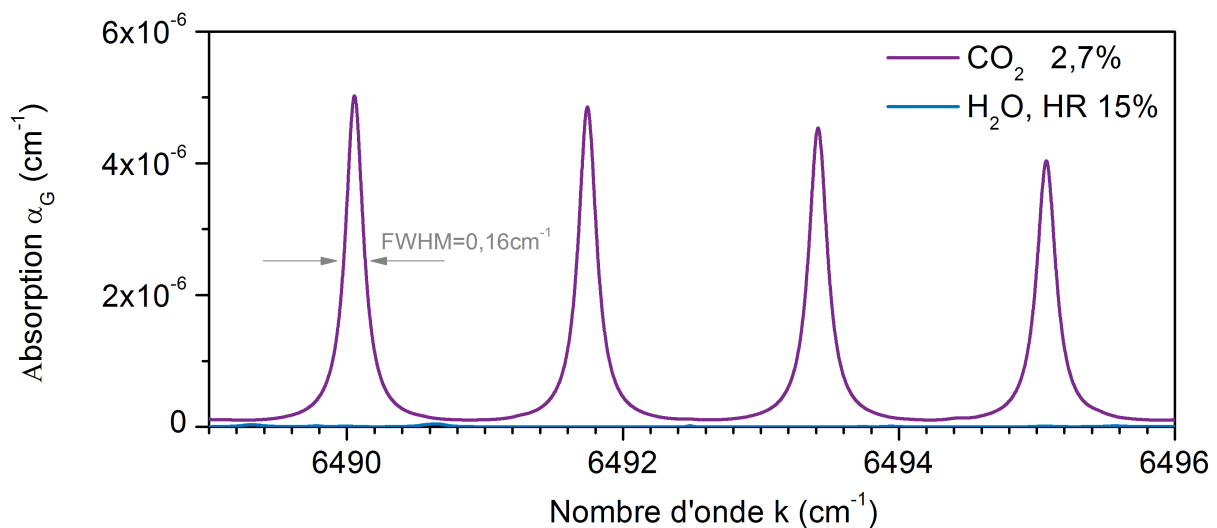


FIGURE 3.7 – Simulation HITRAN du spectre d'absorption d'un mélange de  $CO_2$  à 2.7%, d' $H_2O$  d'humidité relative 15% et de  $N_2$ , de  $k = 6489 \text{ cm}^{-1}$  à  $k = 6496 \text{ cm}^{-1}$ . Le mélange est à pression et température ambiante.

Puisque le gaz majoritaire est désormais le diazote  $N_2$ , l'élargissement de la raie d'absorption est modifiée. On obtient une largeur totale à mi hauteur de  $0,16 \text{ cm}^{-1}$  à l'aide des données HITRAN2012. La modulation WM sinusoïdale est donc ajustée par rapport au cas du  $CO_2$  pur. La consigne optimale sera alors de  $400 \text{ mV}_{PP}$  au lieu de  $530 \text{ mV}_{PP}$  utilisés précédemment, soit une amplitude de modulation de la diode  $I_{AC} = 20 \text{ mA}$ .

Les tubes d'amplification utilisés sont obtenus en découpant des aiguilles hypodermiques médicales. Des aiguilles de l'entreprise BD ont été choisies et leurs caractéristiques sont données sur la figure 3.8.

| Diamètre externe ( $\mu\text{m}$ ) | Diamètre interne ( $\mu\text{m}$ ) | Longueur (mm) | Code couleur BD |
|------------------------------------|------------------------------------|---------------|-----------------|
| 1257                               | 927                                | 40            | Magenta         |
| 813                                | 495                                | 50            | Vert            |
| 711                                | 445                                | 40            | Noir            |




FIGURE 3.8 – Aiguilles hypodermiques utilisées pour réaliser des tubes acoustiques rigides de faible diamètre interne.

Les dimensions optimales expérimentales des tubes, rapportées dans la littérature pour les diapasons commerciaux vibrant à une fréquence proche de 32 kHz, sont de  $L_{mR} = 4,4$  mm (leur longueur) et  $R_I = 0,3$  mm (leur rayon interne) (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010 ; DONG, SPAGNOLO et al. 2011). Les gains en rapport signal à bruit des mesures sont alors de 30 comparés à la mesure sans les tubes. Étant donné les diamètres extrêmement réduits des tubes optimaux, l'alignement du laser pour un passage sans contact peut poser des problèmes de mise en œuvre.

### 3.2.1.2 Le diapason Euro 1

On va chercher d'abord à confirmer le facteur de gain que l'on obtient par l'addition de tubes qui ne sont pas du diamètre optimal. Cette étude utilisant le diapason Euro 1 vise aussi à valider le modèle original que l'on a proposé dans le chapitre 1.

#### Influence de la taille des tubes

On a utilisé les aiguilles BD roses, qui ont un rayon interne de  $R_I = 464$   $\mu\text{m}$ . Les tubes sont positionnés en configuration on-beam, et sont disposés à une distance comprise entre  $d_{mR} = 20$   $\mu\text{m}$  et  $d_{mR} = 50$   $\mu\text{m}$  du diapason. La hauteur  $h$  correspond à 85% de la hauteur des branches, le point de fonctionnement optimal en l'absence de tubes. Pour cette mesure, on utilise un courant  $I_{DC} = 300$  mA et une modulation  $I_{AC} = 15$  mA (non optimal). Ainsi, la puissance moyenne incidente sur le système QEPAS est de  $P_L = 23$  mW et la longueur d'onde est changée de manière sinusoïdale avec une amplitude de  $0,13$   $\text{cm}^{-1}$ .

Sur la figure 3.9, on a ajusté les paramètres de notre nouveau modèle analytique présenté dans le chapitre 1 afin d'obtenir le meilleur accord qualitatif possible. De manière générale, notre modèle analytique reproduit bien la tendance observée sur nos expériences. Seule l'anti-résonance sur le signal n'est pas expérimentalement observée clairement, bien qu'elle soit à la fois prédite par le modèle analytique et par les simulations par éléments finis (voir chapitre 1).

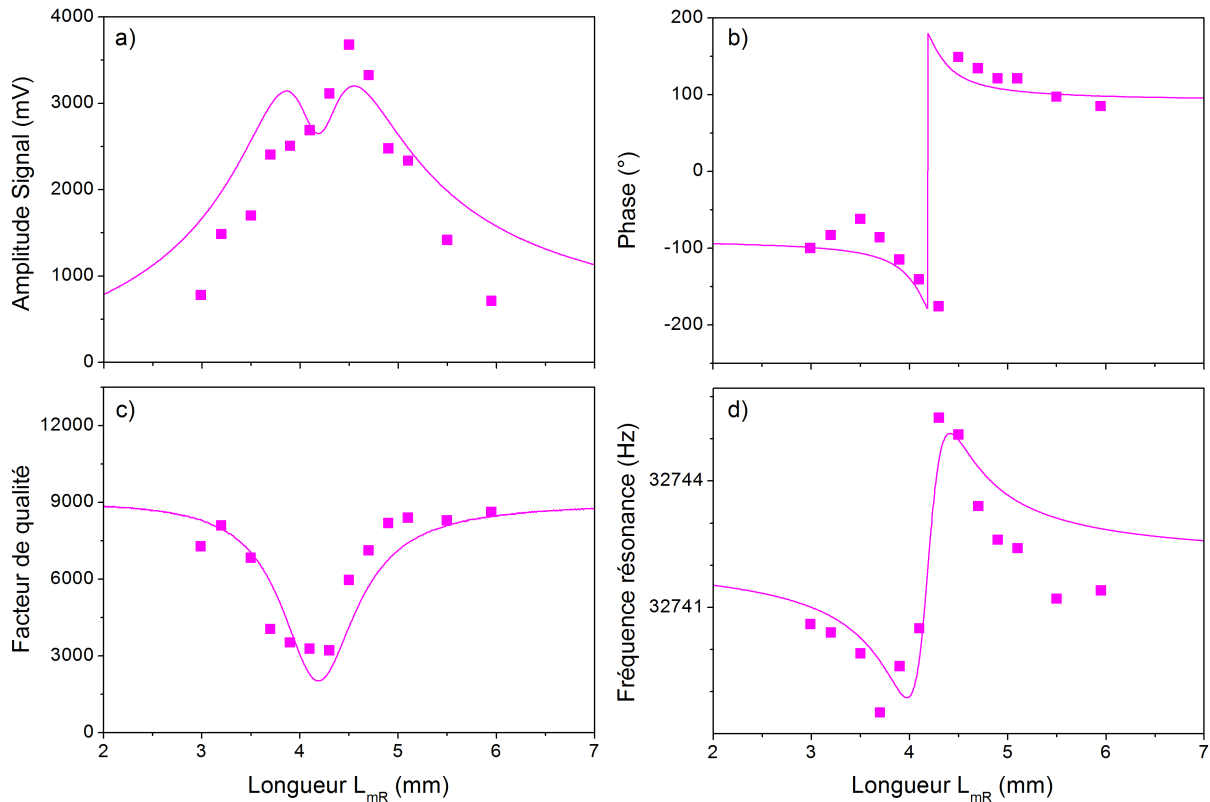


FIGURE 3.9 – Influence de la longueur des tubes acoustiques sur les paramètres de la détection QEPAS.

On a également tracé le rapport signal à bruit correspondant sur la figure 3.10. Le bruit brownien évolue lui aussi en fonction de la longueur des tubes car il est proportionnel à  $\sqrt{Q}$ . L'antirésonance prévue sur le signal n'apparaît finalement pas sur cette courbe du rapport signal à bruit : on a donc théoriquement intérêt à se placer sur le lieu du minimum du facteur de qualité, et le signal moindre est compensé par un bruit plus faible. Le temps de réponse est également accéléré en raison du facteur de qualité plus faible.

Il est à noter que la répétabilité des mesures n'est pas parfaite. Chaque mesure présentée sur la figure 3.9 n'est reproductible qu'à  $\pm 5\%$ . Cette variabilité pourrait venir de notre imprécision sur la distance des tubes  $d_{mR}$  par rapport au diapason, qui n'est pas maîtrisée à mieux que 50  $\mu\text{m}$  près dans cette expérience.

On obtient une longueur optimale des tubes expérimentale de  $L_{mR} = 4,3$  mm (SNR optimal), bien que le signal soit maximal pour  $L_{mR} = 4,5$  mm (signal maximal). Ce résultat est cohérent avec la valeur de  $L_{mR} = 4,4$  mm que l'on trouve dans la littérature. À cet optimum, on observe que le facteur de qualité est divisé par 3 par rapport à sa valeur en l'absence de tube. Le bruit du système est alors réduit à une densité spectrale de bruit de  $230 \mu\text{Vrms}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$ . Le rapport signal à bruit se calcule alors facilement, sachant que les réglages de la détection synchrone sont les mêmes que dans la partie précédente ( $\Delta f = 1/16$  Hz) :

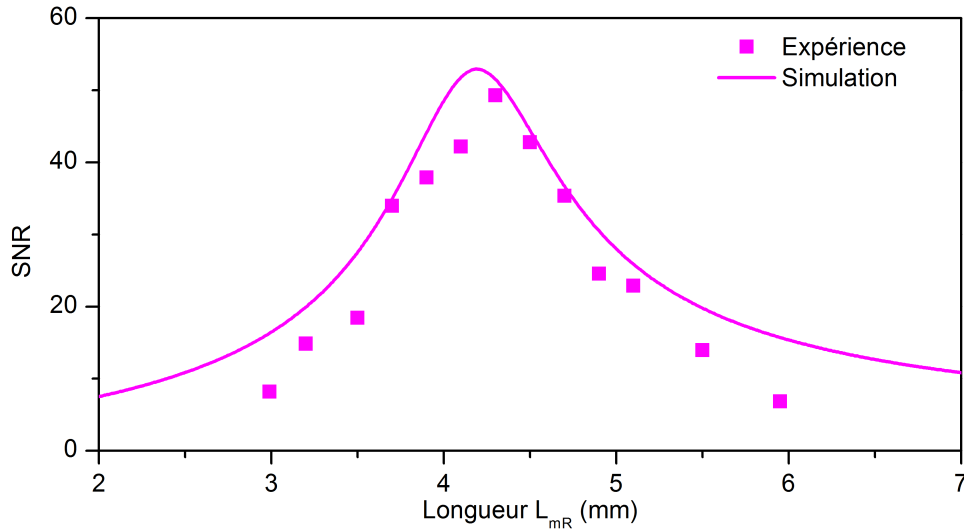


FIGURE 3.10 – Influence de la longueur des tubes acoustiques sur le rapport signal à bruit (SNR).

$$\text{SNR} = \frac{3100}{230 \times \sqrt{1/16}} = 54 \quad (3.6)$$

On rappelle qu'il existe un facteur  $\sqrt{2}$  entre le signal qu'on lit sur la détection synchrone (affiché en valeur RMS), et l'amplitude du signal qui vaut ici 3100  $\mu\text{V}$ . On peut alors en déduire le NNEA à partir de cette mesure :

$$\text{NNEA} = \frac{5 \cdot 10^{-6} \times 23 \cdot 10^{-3}}{54 \times \sqrt{1/16}} = 8,5 \cdot 10^{-9} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2} \quad (3.7)$$

On est donc proche des records de NNEA annoncés pour ce type de systèmes à  $3,3 \cdot 10^{-9} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ . L'écart est attribué au fait que le diamètre interne de 0,93  $\mu\text{m}$  utilisé dans cette expérience est trop éloigné du diamètre optimal de 0,6 mm, et que la profondeur de modulation de la longueur d'onde n'est pas optimale.

### Acquisition de spectres

On a réalisé un spectre d'absorption du gaz pour une longueur  $L_{mR} = 4,5 \text{ mm}$ . En faisant varier la température de la diode, on obtient le spectre en utilisant la démodulation à  $f_0$  à l'aide de la détection synchrone (schéma WM). Le résultat de la mesure est montré sur la figure 3.11.

Le signal simulé par notre modèle à l'aide de HITRAN2012 suppose une modulation du nombre d'onde d'amplitude  $\delta = 0,13 \text{ cm}^{-1}$ , et l'amplitude globale du spectre est ajustée par rapport au maximum expérimental obtenu (à  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$ ). L'accord est excellent et permet de confirmer le potentiel très intéressant de la technique QEPAS pour la spectroscopie.

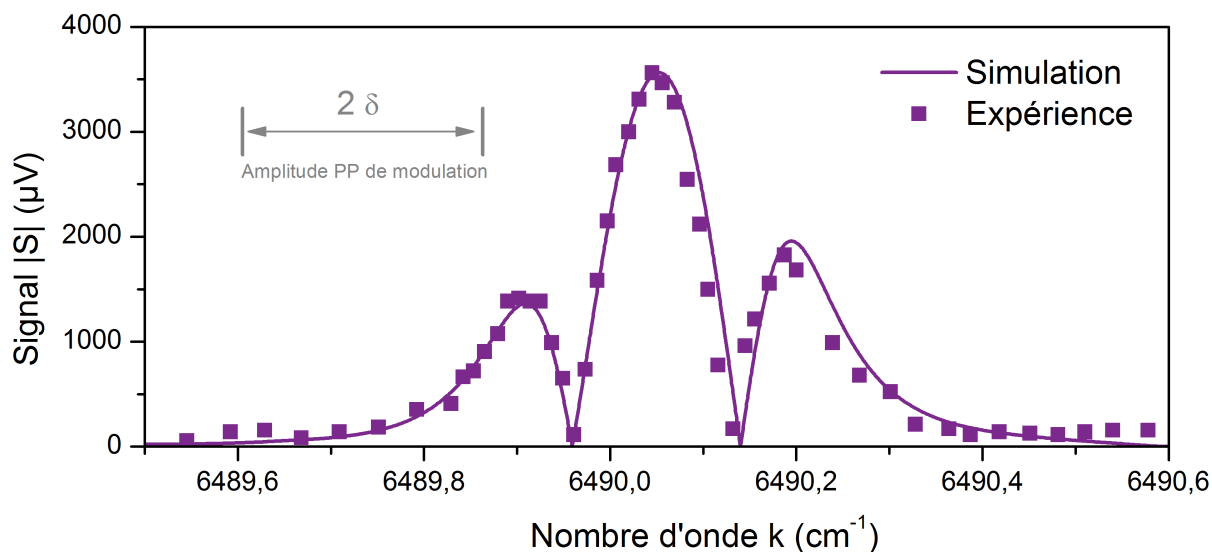


FIGURE 3.11 – Spectre expérimental pour un mélange de  $CO_2$  à 2.7%, d' $H_2O$  d'humidité relative 15 % et de  $N_2$ . Le mélange est à pression et température ambiantes, et le schéma de modulation est WM (modulation à  $f_0$  et détection à  $2f_0$ ). La simulation utilisant HITRAN2012 et notre coefficient  $\hat{c}$  (équation 3.2) est ajustée à l'expérience sur un point.

La forme caractéristique obtenue ci-dessus montre deux annulations du signal de part et d'autre du pic d'amplitude maximum. Elles interviennent à une distance proche de  $\delta$  (l'amplitude de la modulation en longueur d'onde) de ce pic. La modulation à  $f_0/2$  entraîne en effet à ces deux endroits un signal d'absorption à  $f_0/2$  également, il n'y a donc aucune composante spectrale à la fréquence de démodulation  $f_0$ . On mesure ici une distance de  $0,09 \text{ cm}^{-1}$ , légèrement inférieure à l'amplitude de modulation.

L'asymétrie entre les deux maximums locaux situés de part et d'autre du pic principal est due à la modulation d'amplitude de la puissance laser à la fréquence  $f_0/2$ . Nous avons déjà caractérisé cette modulation inhérente à la modulation du courant de la diode (figure 3.4).

### 3.2.1.3 Le diapason C2-A

Nous allons utiliser le diapason C2-A afin de caractériser l'influence de la géométrie des micro tubes sur les diapasons de type C2. Un dispositif de récupération de l'énergie acoustique est utilisé en plus des tubes, identique à celui présenté sur la figure 2.29. Ses dimensions intérieures sont  $R_{cr} = 16 \text{ mm}$  et  $L_{cr} = 8 \text{ mm}$ .

#### Influence de la géométrie des tubes

On a utilisé successivement les aiguilles BD de couleur rose, verte et noire, qui ont un rayon interne de  $R_I = 464 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $R_I = 250 \text{ }\mu\text{m}$  et  $R_I = 222 \text{ }\mu\text{m}$  respectivement. Les tubes obtenus sont positionnés en configuration on-beam, et sont disposés à une distance  $d_{mR} = 0 \text{ mm}$  du diapason. La hauteur  $h$  correspond à 75% de la hauteur des branches, le

point de fonctionnement optimal en l'absence de tubes, comme illustré sur la figure 2.29 du chapitre 2. Pour l'ensemble des mesures, les paramètres liés au schéma de modulation utilisé sont maintenus constants, ce qui assure que seule la géométrie des tubes est étudiée.

Comme pour le diapason Euro 1, une certaine variabilité qui peut aller jusqu'à 10% peut être observée sur les signaux mesurés si on répète la même mesure. Elle semble intervenir surtout d'un jour sur l'autre, ce qui nous fait penser que la variabilité de la température en est peut être responsable. L'objectif ici est toutefois de dégager les valeurs, mêmes approchées, de la géométrie optimale des tubes, et nous n'étudierons donc pas ces sources de variabilité.

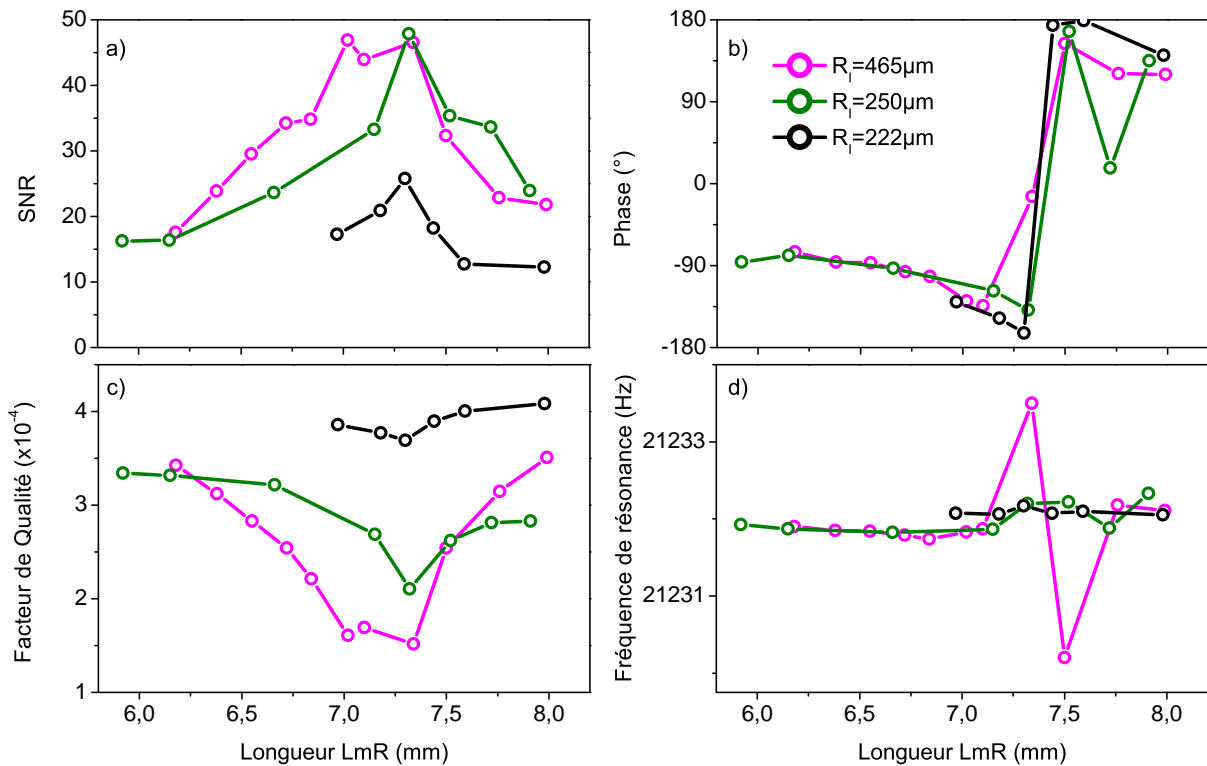


FIGURE 3.12 – Influence de la longueur des tubes  $L_{mR}$  en configuration on-beam, mesurée pour un enfoncement des tubes de  $d_{mR} = 0$ .

Le système suit la même tendance que le système QEPAS employant le diapason horloger en configuration on-beam, que l'on a étudié précédemment (figure 3.9). Quel que soit le diamètre interne des aiguilles utilisées, un maximum pour le rapport signal à bruit se situe à  $L_{mR} = 7,3$  mm. Ce résultat est conforme aux prédictions d'OOFELIE que l'on avait obtenues au chapitre 2 (figure 2.31).

Pour les aiguilles noires, le diamètre interne des tubes de  $445 \mu\text{m}$  est trop petit pour pouvoir transmettre la totalité de la puissance laser. Une partie de la puissance est donc perdue lors de la traversée des tubes et explique pourquoi ces tubes sont largement moins performants. On remarque que les aiguilles vertes ( $R_I = 250 \mu\text{m}$ ) ne sont pas bien meilleures que les aiguilles roses ( $R_I = 464 \mu\text{m}$ ). Le couplage vibro-acoustique semble plutôt limité dans ce cas puisque l'on passe d'un facteur de qualité de 35000 (hors couplage) à un peu



plus de 20000 (au minimum). Dans le cas du diapason horloger, le facteur de qualité était divisé par 3.

On note que la phase du signal représente un bon moyen d'identifier le minimum du facteur de qualité lorsque l'on fait varier la longueur des tubes. Elle subit un saut important à cet endroit, et il est pratique de se servir de cette propriété pour déterminer les tubes optimaux d'un résonateur inconnu. Ce saut apparaît également mais de manière moins évidente sur la fréquence de résonance du système. Les variations de fréquence sont moins marquées que celles du diapason horloger en raison de la structure plus massive de C2-A.

### Influence de l'enfoncement des tubes

Contrairement aux diapasons horlogers, nos nouveaux diapasons présentent un espacement entre branches suffisant pour permettre d'y insérer des tubes. Le diamètre externe des aiguilles est effectivement inférieur à 2 mm, et on peut donc utiliser des enfoncements  $d_{mR}$  négatifs. Pour étudier l'influence de  $d_{mR}$ , nous choisissons les aiguilles vertes, en conservant inchangée la force photoacoustique employée.

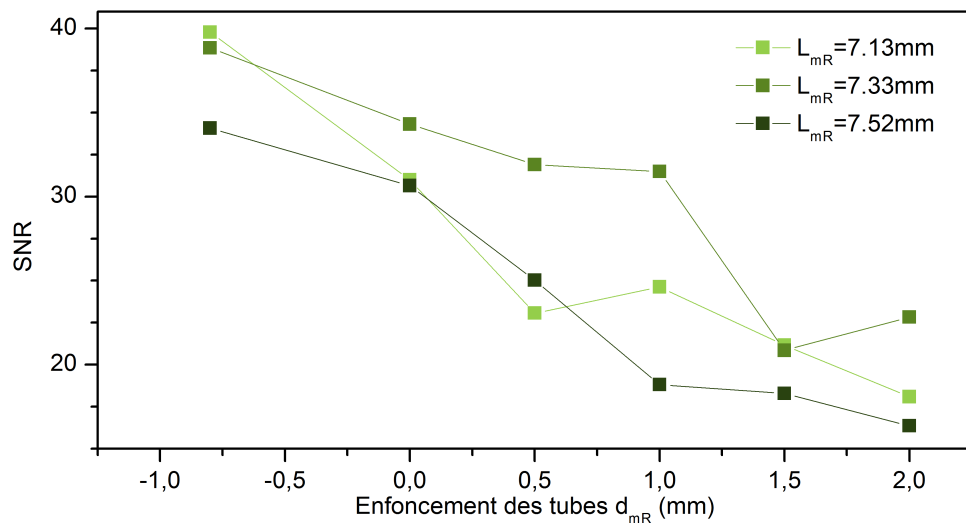


FIGURE 3.13 – Influence de l'enfoncement des tubes  $d_{mR}$  entre les branches du diapason, mesurée pour trois longueurs de tubes différentes.

D'après la figure 3.13, on constate que l'on a intérêt à rapprocher les tubes à l'intérieur même des branches ( $d_{mR}$  négatifs). Quelle que soit la longueur des tubes, la même tendance se dégage. Pour l'enfoncement minimal que nous avons essayé, les deux tubes sont distants de 400  $\mu\text{m}$  environ, et on enregistre alors le signal le plus important. Cette propriété nous permet de raccourcir la longueur totale du dispositif et relâche ainsi la contrainte sur le diamètre interne des tubes qui doit être minimal tout en permettant au laser de passer sans contact.

### Acquisition de spectres

Pour acquérir un spectre, on a utilisé le diapason C2-D, identique au C2-A excepté son facteur de qualité sous vide qui vaut  $4,5 \cdot 10^5$ . Son facteur de qualité est donc meilleur que celui de C2-A. Aussi, on a optimisé la profondeur de la modulation sinusoïdale du courant à  $400 \text{ mV}_{PP}$ , de manière à obtenir une force photoacoustique optimale. Un courant de  $I_{DC} = 300 \text{ mA}$  est employé pour cette acquisition du spectre, et on mesure  $P = 22,5 \text{ mW}$  qui entrent dans le dispositif. Les tubes de rayon interne  $R_I = 495 \text{ }\mu\text{m}$  et de longueur  $L_{mR} = 7,16 \text{ mm}$  ont été utilisés, et ils ont été positionnés à une distance  $d_{mR} = -0,8 \text{ mm}$ . On mesure un facteur de qualité de  $Q = 25500$ , et une densité spectrale de bruit  $S_b/\sqrt{\Delta f} = 120 \text{ }\mu\text{Vrms.Hz}^{-1/2}$ . On utilise toujours le même réglage de la détection synchrone, à savoir  $\tau_{PRE} = 3 \text{ s}$  et  $\tau_{POST} = 1 \text{ s}$  pour aboutir à une bande passante de  $\Delta f = 1/16 \text{ Hz}$ . On obtient le spectre montré sur la figure 3.14.

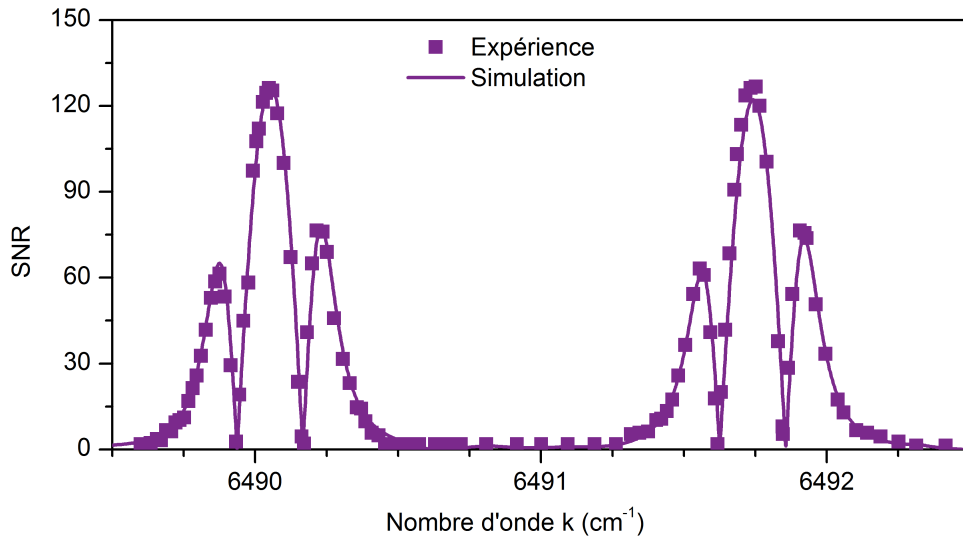


FIGURE 3.14 – Spectre d’absorption d’un mélange de  $CO_2$  à 2.7%, d’ $H_2O$  d’humidité relative et de  $N_2$  acquis à l’aide du diapason C2-D. Le mélange est à pression et température ambiante, et le schéma de modulation est WM (modulation à  $f_0$  et détection à  $2f_0$ ). La simulation utilise notre modèle analytique et HITRAN2012 pour calculer la forme, puis un ajustement expérimental sur un point pour l’amplitude globale.

Dans la figure 3.14, on a utilisé notre modèle présenté au chapitre 1 conjointement avec la base de données HITRAN2012 pour prédire la forme générale de la courbe. Un ajustement sur un point (le maximum de la raie à  $k = 6490,05 \text{ cm}^{-1}$ ) a été utilisé concernant l’amplitude. L’accord est excellent, ce qui démontre ici aussi le potentiel du résonateur C2 pour la spectroscopie de gaz.

On atteint un rapport signal à bruit au sommet de la raie de  $SNR = 127$ , on peut alors en déduire le NNEA lors de cette mesure :

$$NNEA = \frac{5 \cdot 10^{-6} \times 22,5 \cdot 10^{-3}}{127 \times \sqrt{1/16}} = 3,5 \cdot 10^{-9} \text{ W.cm}^{-1}.\text{Hz}^{-1/2} \quad (3.8)$$

Cette valeur est égale aux records du NNEA rapportés dans la littérature pour les diapasons horlogers employant les tubes optimaux (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010).

### 3.2.1.4 Le diapason U1X-B

Le diapason U1X-B possède une fréquence de résonance basse, les tubes d'amplification à adjoindre auront donc une longueur importante. Une simulation OOFELIE nous a permis d'identifier cette longueur, visible sur la figure 3.15.

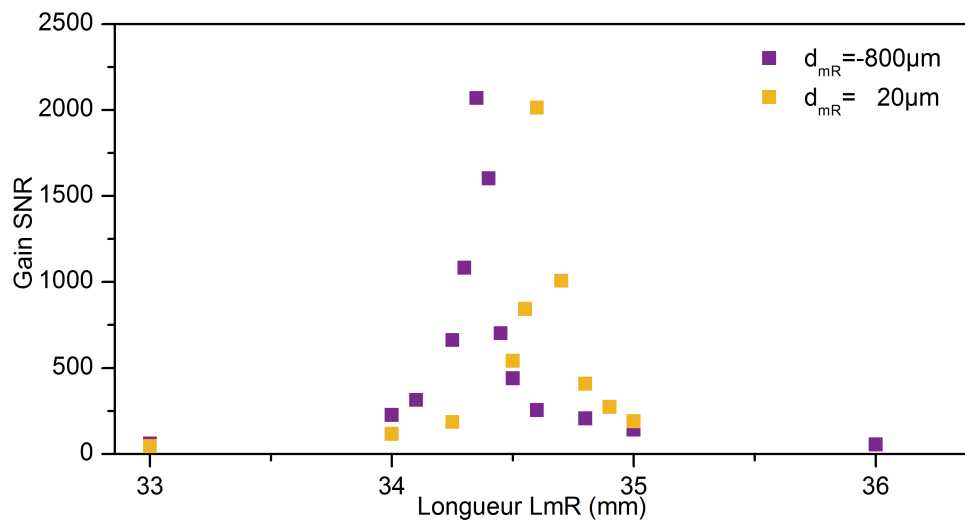


FIGURE 3.15 – Influence de la longueur des tubes  $L_{mR}$  en configuration on-beam pour U1, pour un enfoncement des tubes de  $d_{mR} = -0,8$  mm et  $d_{mR} = 20$  μm. Les résultats sont issus de la simulation numérique OOFELIE, avec un résonateur de fréquence de résonance  $f_0 = 4895$  Hz, et des tubes de diamètre interne  $R_I = 465$  μm.

L'alignement optique devra donc être réalisé avec soin, et le diamètre interne des tubes minimal sera limité par la divergence du laser. Le temps a manqué pour réaliser les expériences avec le résonateur U1X-B.

On remarque néanmoins que les gains prévus par OOFELIE sont largement supérieurs à ceux prévus pour le diapason commercial. Nous pouvons expliquer ce résultat par le fait que la fréquence de fonctionnement est bien plus basse, conformément à notre modèle analytique résonant développé au chapitre 1. Cependant, le gain est probablement surestimé en raison de la non prise en compte des pertes visco-thermiques par la modélisation, intrinsèques à l'utilisation de tubes de faible diamètre, et qui limitent en pratique le facteur de qualité acoustique.

## 3.2.2 Performance optimale des résonateurs optimisés

Dans la mesure où C2-D nous a jusqu'alors donné les meilleurs résultats à pression ambiante, nous allons utiliser ce résonateur dans le but d'obtenir le NNEA minimal.

Plusieurs paramètres peuvent en effet être optimisés pour diminuer encore le NNEA tel qu'il est calculé expérimentalement aujourd'hui. On considèrera la modulation WM.

### 3.2.2.1 Optimisation des conditions de fonctionnement

#### Forme de modulation

On a déjà vu que la forme de la modulation utilisée a une importance lors du calcul du NNEA expérimental. Pour cette raison, on va utiliser différentes formes de modulation afin de déterminer la plus performante.

On rappelle que la modulation théorique optimale est de forme quasi carré en WM (IGUCHI 1986). Du point de vue de son amplitude, on a théoriquement intérêt à le maximiser (pour un pic d'absorption distinct). En pratique, nous l'ajusterons expérimentalement car un optimum existe (SAARELA et al. 2009). Cet optimum est dû au temps nécessaire à la diode DFB pour ajuster sa longueur d'onde suite à un saut de courant. Comme il n'est pas instantané, les modulations carrées imposées n'entraînent pas une modulation carrée de la longueur d'onde.

#### Pression optimale de fonctionnement

On peut diminuer la pression du gaz à sonder dans le but d'augmenter encore le facteur de qualité. Le rapport signal à bruit devrait donc théoriquement être amélioré car il est fonction de  $\sqrt{Q}$ . Le NNEA va donc s'améliorer dans la mesure où l'absorption linéique est inchangée par une pression réduite (voir les formules du chapitre 1 pour s'en convaincre).

On va fixer la pression réduite à 10 Torr (ou 1300 Pa soit 0,013 atm). Au niveau de la géométrie des tubes, on va utiliser la géométrie optimale des tubes obtenue à pression atmosphérique :  $L_{mR} = 7,3$  mm et  $R_I = 0,25$  mm.

#### Gaz optimal

Au niveau du gaz, il nous faut une espèce qui relaxe très rapidement même à basse pression. Le  $CO_2$  présente un temps de relaxation de  $\tau_{V-T} = 0,1 \mu s \cdot atm^{-1}$  en présence d'eau, ce qui entraîne  $\tau_{VT} = 7,6 \mu s$  à 10 Torrs. Pour une fréquence autour de 20 kHz, on calcule donc une valeur de  $\sqrt{1 + (2\pi f_0 \tau_{VT})^2} = 1,5$ . La relaxation du  $CO_2$ , même en présence d'eau, est donc trop lente à cette pression et affaiblit légèrement le signal photoacoustique.

On ne dispose pas de gaz se relaxant plus rapidement, mais on préférera l'acétylène ( $C_2H_2$ ) pour cette expérience. Son temps de relaxation est de l'ordre de 0,1  $\mu s$  à pression atmosphérique, au moins autant que le  $CO_2$ , et la force de ses raies d'absorption autour de 1,54  $\mu m$  est importante et va nous permettre d'obtenir un bon rapport signal à bruit. Il va nous permettre également de caractériser notre système sur un autre gaz cible.

### 3.2.2.2 Détection de $C_2H_2$ avec la diode EM4

#### Présentation de l'expérience

Contrairement au  $CO_2$ , les raies d'absorption de l'acétylène ne sont pas isolées les unes des autres. Alors que l'absorption  $\alpha_G$  au sommet d'une raie unique ne dépend pas de la pression, ce n'est pas le cas pour un ensemble rapproché de raies. On montre sur la figure 3.16 une simulation HITRAN du spectre d'absorption de 1% d'acétylène dans un mélange de  $N_2$  et d' $H_2O$  (15% d'humidité relative), pour deux pressions distinctes. On voit nettement que la diminution de la pression s'accompagne à la fois d'une baisse de l'intensité de l'absorption linéïque et d'une réduction de la largeur des raies.

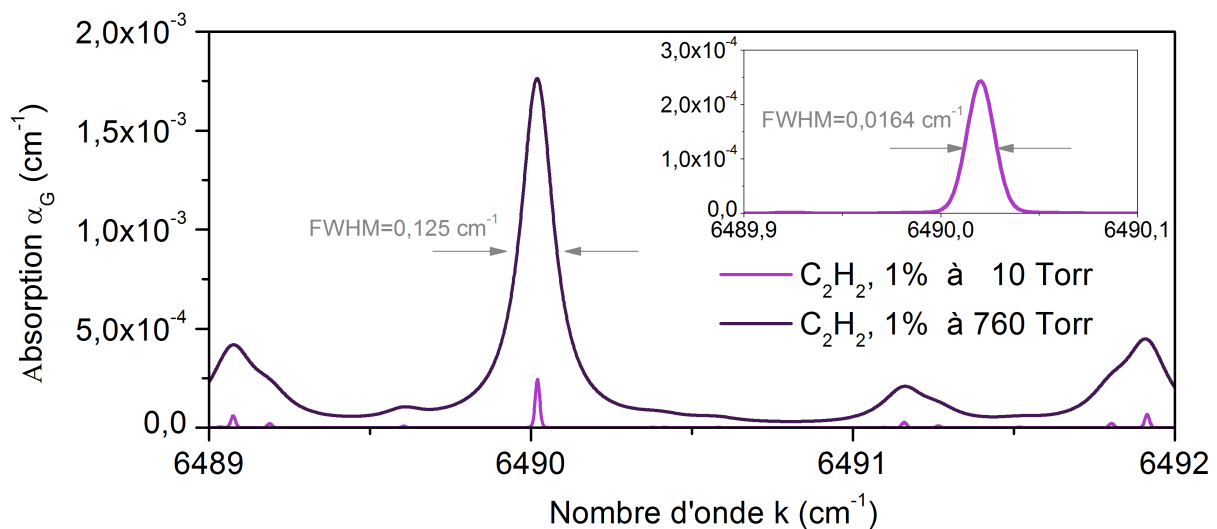


FIGURE 3.16 – Simulation HITRAN du spectre d'absorption d'un mélange de  $C_2H_2$  à 1%, d' $H_2O$  d'humidité relative 15% et de  $N_2$ , de  $k = 6489 \text{ cm}^{-1}$  à  $k = 6496 \text{ cm}^{-1}$ . Le mélange est à une pression de 10 Torrs et à température ambiante.

Nous ne disposons que d'une bouteille contenant 100% de  $C_2H_2$  à notre disposition. Pour créer le mélange contenant 1% d'acétylène, on procède donc à deux dilutions successives :

- On vide la cellule à l'aide de la pompe.
- On introduit de l'acétylène jusqu'à mesure une pression de 76 Torr.
- On ouvre une vanne de la cellule, de manière à faire entrer de l'air ambiant jusqu'à atteindre la pression atmosphérique. Le mélange contient alors 10% d'acétylène.
- On pompe l'enceinte jusqu'à atteindre une pression de 76 Torr.
- On ouvre à nouveau la vanne pour faire entrer de l'air ambiant, et ainsi rejoindre une pression de 760 Torr. Notre mélange contient alors 1% d'acétylène.

Tous les autres paramètres expérimentaux seront inchangés (laser utilisé, réglages de la détection synchrone, électronique de détection,...). On se concentrera sur le pic d'absorption qui se situe à environ  $k = 6490 \text{ cm}^{-1}$ . Dans un schéma de modulation WM, on a vu que l'amplitude de la modulation a une importance, et elle sera ajustée à chaque

expérience.

### Résultats expérimentaux

On a utilisé un générateur de fonction Agilent A81150 afin de générer les différentes formes, dont on montre un relevé à l'oscilloscope sur la figure 3.17. Ce générateur de fonction ne peut pas délivrer des amplitudes inférieures à 15 mV.

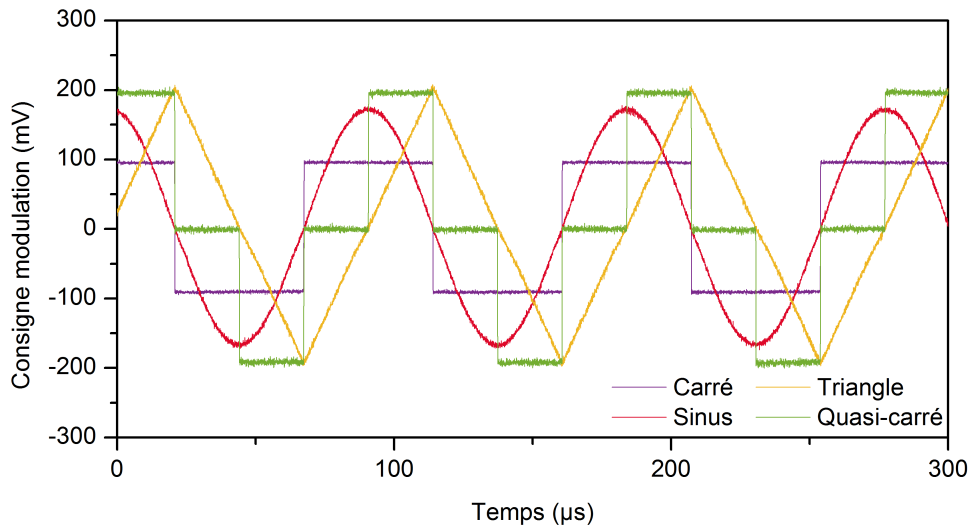


FIGURE 3.17 – Formes de modulations de la diode EM4 générés par notre Agilent A81150. La forme quasi-carrée est la forme théoriquement optimale, et les amplitudes ont été ajustées expérimentalement.

Les amplitudes de modulation optimales utilisées ont été mesurées et sont présentées dans le tableau 3.6.

TABLE 3.6 – Amplitudes optimales de la consigne de modulation imposées à la diode EM4.

| Forme de modulation | 10 Torr | 760 Torr |
|---------------------|---------|----------|
| Carrée              | 15 mV   | 100 mV   |
| Sinusoidale         | 24 mV   | 170 mV   |
| Triangulaire        | 25 mV   | 200 mV   |
| Quasi-carrée        | 25 mV   | 195 mV   |

Comme dans l'expérience sur le  $CO_2$ , la modulation sinusoidale optimale est bien en accord avec l'optimum théorique. Pour prendre le cas d'une pression à 760 Torrs, la largeur complète à mi hauteur simulée à l'aide de HITRAN est de  $HWHM=0,125 \text{ cm}^{-1}$ . Or si on prend 1,1 fois cette valeur on obtient une amplitude de modulation de  $\delta = 0,14 \text{ cm}^{-1}$ .

D'après la caractérisation de notre diode (voir figure 3.4), cette valeur correspond à une amplitude de modulation imposée de  $0,14 \times 300/0,26 = 160$  mV.

Lorsque la pression descend à 10 Torr, il est logique que l'amplitude optimale évolue avec la largeur à mi-hauteur de la raie d'absorption. Pour la forme quasi-carrée, une simple règle de trois nous donne la nouvelle amplitude comme étant  $195 \times 0.0164/0.125 = 26$  mV. C'est bien la valeur que l'on obtient expérimentalement. Seule la forme carrée n'a pas pu être optimisée complètement en raison de la limite imposée par notre générateur de fonction, qui ne peut pas descendre en dessous de 15 mV d'amplitude.

On observe également l'existence claire de l'optimum dans le cas du quasi-carré. En utilisant ces valeurs de profondeur de modulation, on obtient les résultats photoacoustiques du tableau 3.7.

TABLE 3.7 – Comparaison des performances QEPAS du diapason C2-D avec ses tubes d'amplification acoustiques et son dispositif de récupération de l'énergie acoustique, en fonction de la forme de modulation de la longueur d'onde et pour deux pressions différentes.

| Grandeur  | 10 Torr                               | 760 Torr             |
|---|---------------------------------------|----------------------|
|   | Caractéristiques du laser             |                      |
| Puissance moyenne (mW)  | 23                                    | 23                   |
|   | Caractéristiques du gaz               |                      |
| Position du pic $k_G$ ( $\text{cm}^{-1}$ )                                    | 6490,02                               | 6490,02              |
| Absorption $\alpha_G$ ( $\text{cm}^{-1}$ )                                    | $2,44 \cdot 10^{-4}$                  | $1,76 \cdot 10^{-3}$ |
|   | Caractéristiques du diapason          |                      |
| Fréquence de résonance (Hz)   | 21451,000                             | 21450,520            |
| Facteur de qualité $Q$  | 163000                                | 25000                |
|   | Caractéristiques du bruit (laser OFF) |                      |
| Densité $S_b/\sqrt{\Delta f}$ ( $\mu\text{V}_{\text{rms}}.\text{Hz}^{-1/2}$ ) | 170                                   | 120                  |
|   | Caractéristiques du signal (mV)       |                      |
| Modulation carrée   | 90                                    | 945                  |
| Modulation sinusoïdale  | 211                                   | 2030                 |
| Modulation triangulaire   | 233                                   | 2255                 |
| Modulation quasi-carrée   | 267                                   | 2670                 |
|   | Caractéristiques optimales du capteur |                      |
| Rapport signal à bruit  | 6293                                  | 87813                |
| NNEA ( $\text{cm}^{-1}.\text{W}.\text{Hz}^{-1/2}$ )                           | $3,4 \cdot 10^{-9}$                   | $1,8 \cdot 10^{-9}$  |

On constate que la diminution de la pression n'a pas eu l'effet escompté. On observe bien une élévation du facteur de qualité en raison du facteur de qualité amélioré, mais le NNEA est en revanche moins bon qu'à pression atmosphérique.

Plusieurs raisons peuvent expliquer ce résultat. D'abord, la relaxation de l'acétylène devient lente à pression réduite, ce qui est responsable d'un facteur estimé à 1,5 étant donné le temps de relaxation de ce gaz. Ensuite, les tubes optimaux peuvent dépendre de la pression. Cette propriété a déjà été étudiée lors de l'étude menant aux tubes optimaux pour le diapason horloger (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010).

Concernant la forme de la modulation, nous venons bien de vérifier que la forme sinusoïdale ne mène pas aux meilleurs résultats. Les formes triangulaires et quasi-carrées permettent de gagner un facteur 1,1 et 1,3 respectivement. On peut comparer ce résultat avec l'expérience de Saarela *et al.*, qui avait obtenu 1,12 et 1,57 respectivement. Un désaccord semble exister uniquement sur la forme quasi carrée, ce qui peut s'expliquer principalement par le fait que la fréquence de démodulation de notre expérience est 150 fois plus élevée. L'impact des sauts de longueur d'onde pourrait ainsi être plus important dans notre cas, en raison du temps caractéristique d'ajustement de la longueur d'onde de notre diode laser.

Grâce à l'emploi de la forme quasi-carrée, le NNEA optimal atteint de  $1,8 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  est environ deux fois meilleur que le record de NNEA que l'on peut trouver dans la littérature. Ce dernier a été obtenu à l'aide d'un diapason horloger commercial, en configuration on-beam avec des tubes optimaux, et pour lequel l'effet photoacoustique est obtenu à l'aide d'une modulation de forme sinusoïdale (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010).

### 3.2.3 Projections de performances et conclusion

Il est très utile de donner une idée des concentrations minimales détectables à partir du NNEA. Étant donné que ce chiffre est spécifique à la photoacoustique, il n'est pas directement accessible à ceux qui ne sont pas familiers avec cette technique.

#### Détections du QEPAS à court terme

Les puissances typiques des sources infrarouges sont de l'ordre de quelques dizaines de milliwatts en général. Nous prendrons une valeur de 50 mW de puissance moyenne par la suite. À condition de disposer d'une telle source laser, on peut donc espérer atteindre les limites de détection listées dans le tableau 3.8 pour une seconde de temps d'intégration, en utilisant le NNEA typique de  $3 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  à  $1\sigma$  que l'on a démontré avec le diapason C2-D à pression atmosphérique. On considère à chaque fois que l'espèce à détecter est diluée dans  $N_2$  pur, et que le temps de relaxation est infiniment court. La raie la plus favorable du moyen infrarouge est à chaque fois choisie.



TABLE 3.8 – Concentrations équivalentes au bruit (à  $1\sigma$ ) mesurables en 1 s (NEC) par notre système avec une source émettant  $P_{moy} = 50$  mW de puissance moyenne.

| Espèce | Centre raie ( $\text{cm}^{-1}$ ) | Centre raie ( $\mu\text{m}$ ) | Force $\text{cm}^{-1}/(\text{mol}.\text{cm}^2)$ | NEC      |
|--------|----------------------------------|-------------------------------|---|----------|
| $NH_3$ | 1046,4                           | 9,56                          | $3,64 \cdot 10^{-18}$                           | 0,82 ppb |
| $CO_2$ | 2362,8                           | 4,23                          | $3,5 \cdot 10^{-18}$                            | 0,16 ppb |
| $SF_6$ | 947,9                            | 10,6                          | $1,4 \cdot 10^{-20}$                            | 55 ppt   |
| $H_2O$ | 3744,6                           | 2,67                          | $1,8 \cdot 10^{-19}$                            | 3,7 ppb  |
| $N_2O$ | 2236,9                           | 4,47                          | $1,0 \cdot 10^{-19}$                            | 0,55 ppb |
| $NO$   | 1903,1                           | 5,25                          | $2,3 \cdot 10^{-20}$                            | 3,3 ppb  |
| $NO_2$ | 1602,7                           | 6,24                          | $1,2 \cdot 10^{-19}$                            | 0,85 ppb |
| $CH_4$ | 3057,7                           | 3,27                          | $2,11 \cdot 10^{-19}$                           | 1,2 ppb  |
| $SO_2$ | 1375,2                           | 7,27                          | $4,8 \cdot 10^{-20}$                            | 2,4 ppb  |

On illustre aussi à travers ce tableau l'importance de disposer de sources infrarouges qui couvrent l'ensemble du spectre du moyen infrarouge. Si les valeurs données semblent suffisamment faibles pour répondre à la majorité des applications pratiques, les raies en question ne sont pas toujours isolées des autres espèces du mélange. Les développements en termes de couverture spectrale et d'accordabilité du moyen infrarouge restent donc essentiels. La puissance disponible est elle aussi très importante, car elle permet d'utiliser des raies d'absorption plus faibles mais non interférées.

### Défectivité à long terme

Les performances ci dessus peuvent être obtenues en intégrant la mesure pendant une seconde. On peut donc diminuer encore la concentration équivalent au bruit en intégrant plus longtemps.

Pour les performances atteignables à long terme du QEPAS, on ne peut cependant pas intégrer indéfiniment. On effectue en général l'analyse de la variance d'Allan afin de savoir la durée maximale sur laquelle on peut espérer intégrer la mesure avant que les dérives de long terme du système ne prennent le dessus. Ces analyses menées sur les diapasons horlogers ont montré que la durée d'intégration peut dépasser les 1000 s (WU et al. 2015). Une telle analyse est requise pour nos diapasons originaux, afin de connaître la concentration minimale détectable en augmentant le temps d'intégration. Ce travail sera nécessaire pour poursuivre la caractérisation de nos diapasons originaux.

### Conclusion

Nous avons mis en place des expériences QEPAS en milieu résonant afin de les comparer à notre modèle analytique original. Appliqué au cas du diapason horloger commercial, le modèle prédit correctement toutes les tendances mesurées, qu'elles portent sur le facteur

de qualité  $Q$ , la fréquence de résonance exacte  $f_0$ , la phase du signal ou encore l'influence de la longueur des tubes.

Grâce à la mise en œuvre du diapason C2, nous avons obtenu des performances égales à l'état de l'art à la fois sur le dioxyde de carbone et sur l'acétylène à force photoacoustique équivalente. Nous avons démontré des performances améliorées par rapport à l'état de l'art grâce notamment à l'emploi de la forme quasi-carrée de modulation en amplitude, avec un gain proche de 2.

## Deuxième partie

# Sources optiques infrarouges pour la photoacoustique



# Chapitre 4

## Ingénierie spectrale des QCLs par synthèse pseudo-périodique de rétroactions réparties

### Objectifs :

L'objectif de ce quatrième chapitre est d'exposer les travaux et avancées obtenues au cours de la thèse sur les performances des Lasers à Cascade Quantique (QCLs), en tant que sources optiques pour la spectrométrie laser. Leurs caractéristiques seront notamment détaillées en termes d'accordabilité, permettant principalement d'améliorer leur compacité ainsi que leur compétitivité. On va étudier plus particulièrement un nouveau concept d'ingénierie spectrale par synthèse de rétroactions réparties pseudo-périodiques.

### 4.1 Présentation du QCL

Bien que l'idée à la base des lasers à cascade quantique (QCL) remonte à l'année 1971 (KAZARINOV et SURIS 1971), ces derniers ont connu un développement relativement récent puisque la première démonstration fut apportée en 1994 aux Bell Labs (FAIST et al. 1994). La possibilité de les réaliser repose sur la croissance de couches semi-conductrices dont l'épaisseur est de l'ordre de quelques nanomètres, et cet exploit technologique n'a été rendu possible que par le perfectionnement de l'épitaxie par jets moléculaire (MBE ou Molecular Beam Epitaxy).

Le QCL est un type de laser à semi conducteur fondamentalement différent des diodes lasers. Au lieu de mettre en œuvre la recombinaison radiative d'une paire électron-trou au sein du semi-conducteur, le QCL possède un fonctionnement unipolaire : seul un type de charge est responsable de l'émission radiative, en l'occurrence l'électron. Comme illustré

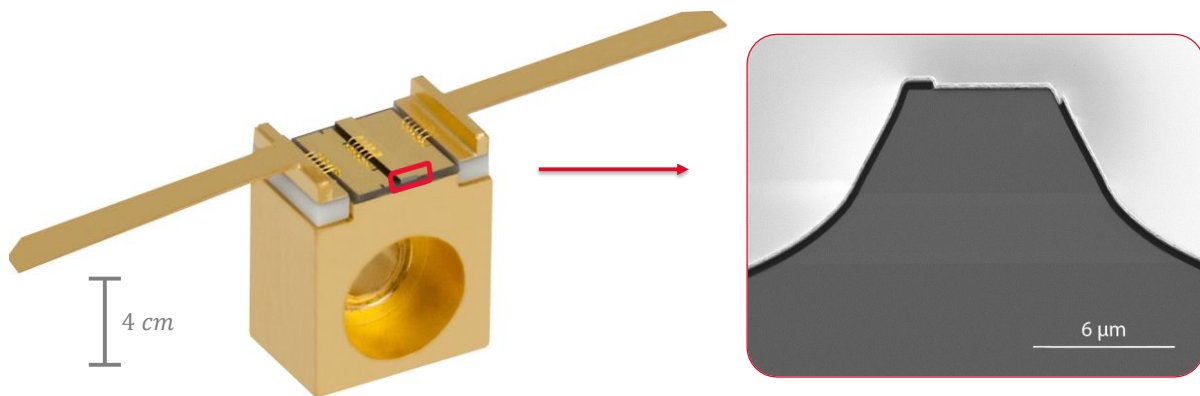


FIGURE 4.1 – A gauche un QCL commercial proposé par Thorlabs, relié électriquement à deux électrodes par de minces fils dorés, et déposé sur un cube évidé pour son refroidissement. A droite, image typique obtenue au microscope électronique à balayage d’une extrémité émettrice du QCL. Les électrons entrent au sommet de la structure par l’électrode dorée (dépôt blanc), et son contact avec le semi-conducteur (gris foncé) a lieu uniquement au sommet grâce à une couche isolante (dépôt en noir). La zone correspondant à la superposition de couches nanométriques apparaît par un niveau de gris horizontal plus clair au milieu de la structure.

sur la figure 4.1, ce type de laser est extrêmement compact, et un QCL typique mesure quelques millimètres de long pour une section de  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ . Les niveaux d’énergie sur lesquels les électrons utilisés pour réaliser l’émission stimulée se situent sont tous regroupés au sein de la bande de conduction de chaque matériau qui compose le QCL, c’est pourquoi les transitions entre ces niveaux sont alors qualifiées d’inter sous-bandes. L’empilement de nombreuses couches semi-conductrices de composition légèrement différentes permet de créer une hétérostructure à multi-puits quantiques, au sein de laquelle les électrons vont se déplacer par effet tunnel d’un puits à l’autre, effectuant des transitions inter sous bande au fur et à mesure qu’ils se déplacent. Le déplacement schématisé des électrons est représenté sur la figure 4.2b). La zone active du QCL ou zone de gain, c’est à dire la zone où ont lieu les transitions inter-sous-bandes radiatives, est elle même insérée au sein d’un guide d’onde optique qui permet de guider et confiner la lumière. Concrètement, il s’agit d’insérer l’hétérostructure entre deux couches présentant un indice optique plus élevé. Sur la figure 4.2a), ces deux couches sont composées de  $300\text{nm}$  d’InGaAs et représentées en vert.

La longueur d’onde centrale émise par les lasers à cascade quantique dépend principalement des épaisseurs successives composant l’hétérostructure, c’est à dire de la séquence d’épaisseur des puits quantiques. Elle peut donc être contrôlée lors de la phase d’épitaxie, ce qui explique pourquoi les QCL peuvent couvrir l’ensemble du moyen infrarouge sans modification des matériaux employés. Nous allons prendre un exemple très simple pour

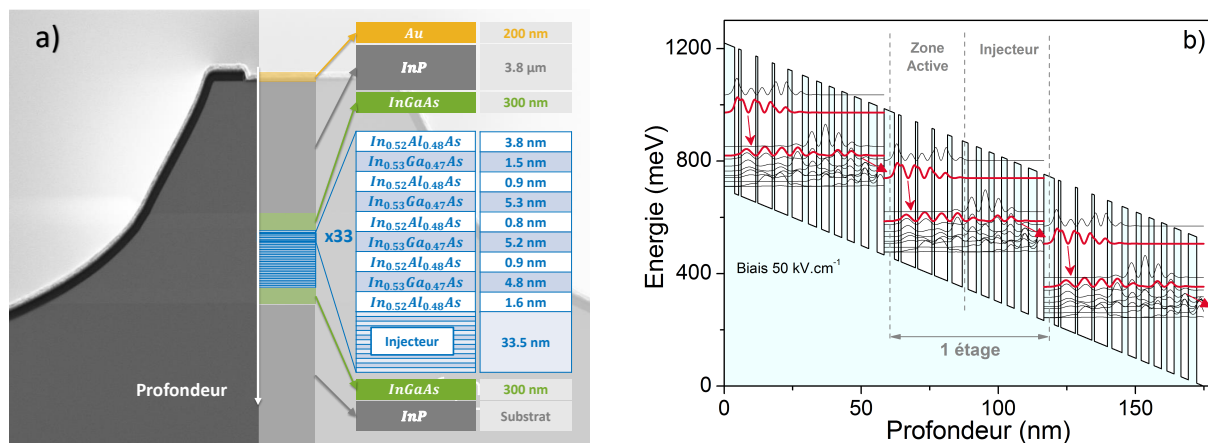


FIGURE 4.2 – a) Vue en coupe d'un QCL avec le détail de la structure rapportée par FUJITA et al. 2010. b) diagramme énergétique correspondant, faisant apparaître les probabilités de présence des électrons au sein de l'hétérostructure.

montrer la prédictibilité de la longueur d'onde de ces lasers  $\lambda_C$ . On considère la région active proposée par Fujita *et al.* (FUJITA et al. 2010), et représentée sur la figure 4.2a). On montre sur la figure 4.2b) un calcul des probabilités de présence des électrons au sein de la région active, c'est à dire une résolution de l'équation de Schrödinger dans l'hétérostructure. On a identifié en rouge les seules fonctions d'ondes qui se recouvrent suffisamment pour permettre une transition (coefficient d'Einstein élevé). Il s'agit de deux niveaux d'énergie bien particulier, et la probabilité de présence des électrons se répète à l'identique étage après étage. Ainsi, le cheminement des électrons se propage sur ces niveaux uniquement et fait penser à un déplacement "en cascade", d'où le nom donné à ces lasers. On mesure sur la figure un écart d'énergie de  $\Delta E = 153$  meV pour cette transition, ce qui correspond à une longueur d'onde de  $\lambda_C = 2\pi\hbar c/\Delta E = 8,1$  μm.

Pour les applications spectroscopiques comme le QEPAS, une émission fine spectrale-ment est requise (  $0,01$  cm<sup>-1</sup> idéalement). Le design de l'hétérostructure permet d'obtenir une bande de gain centrée autour de  $\lambda_C$ , mais la largeur de la bande de gain mesure plusieurs centaines de cm<sup>-1</sup> comme on peut le mesurer en effectuant le spectre d'électroluminescence de la zone active. Afin de réduire la largeur spectrale de l'émission, le milieu à gain est inséré au cœur d'une architecture laser.

## 4.2 La problématique du spectre d'émission

### La mise en forme spectrale du QCL pour la spectroscopie

Si on utilise l'architecture la plus simple possible pour un laser, c'est à dire que l'on insère le milieu à gain entre deux miroirs fournissant une rétroaction (architecture Fabry-Perot), le spectre des QCLs s'avère très compliqué à maîtriser (GORDON et al. 2008). Comme pour tous les lasers, la configuration Fabry-Perot n'autorise qu'un ensemble dis-

cret de modes longitudinaux (ou longueurs d'onde) à osciller au sein de la bande de gain, qui sont en première approximation régulièrement espacés. La monochromaticité d'une largeur compatible avec la spectroscopie est assurée lorsque le pompage est proche du seuil du laser, car seul un des modes longitudinaux oscille. En effet, les modes présentent tous des pertes légèrement différentes, celui qui en possède le moins sera donc un mode préférentiel du laser. Mais dès que l'on souhaite augmenter le pompage pour obtenir davantage de puissance en sortie de laser, une émission multimode s'étalant largement sur plusieurs  $\text{cm}^{-1}$  apparaît, couvrant ainsi de nombreux modes longitudinaux. Il faut donc employer d'autres types d'architectures pour contraindre et contrôler le spectre de ces lasers.

Parmi les méthodes utilisées aujourd'hui, l'une des plus populaires est issue des techniques déjà appliquées avec succès sur les lasers à semi-conducteurs de télécommunication : la rétroaction répartie ou DFB (Distributed FeedBack) (H. KOGELNIK 1972). L'idée est d'introduire un réseau de diffraction périodique qui se superpose au gain le long de la cavité laser. Parmi l'ensemble des modes longitudinaux Fabry-Perot a priori autorisés pour la cavité, seul celui dont la longueur d'onde est reliée à la périodicité va effectivement osciller. Cette technique garantit la monochromaticité jusqu'à des pompages élevés, ce qui permet donc d'obtenir une émission monochromatique fine spectralement et puissante.

La périodicité spatiale est apportée généralement lors du processus lithographique de fabrication des lasers. On montre sur la figure 4.3 une illustration de principe. En pratique, un réseau périodique de profil rectangulaire est gravé à la surface du guide d'onde laser, et la période  $\Lambda_B$  de ce réseau est choisie de sorte à satisfaire la condition de Bragg,

$$\Lambda_B = \frac{\lambda_L}{2n_{eff}} \quad (4.1)$$

avec  $n_{eff}$  l'indice optique effectif du guide d'onde du QCL et  $\lambda_L$  la longueur d'onde cible du laser.

Lors des allers-retours de la lumière au sein du guide d'onde, cette dernière voit périodiquement une forme d'interface à chaque rencontre d'un front montant ou descendant du réseau. Elle va donc subir à chaque front une faible réflexion, et le réseau peut ainsi être vu comme une succession de miroirs de faible réflectivité. On peut également le voir comme un miroir de Bragg qui posséderait du gain optique. Les deux miroirs utilisés en configuration Fabry-Perot ne sont donc pas nécessaires avec cette technique, car la rétroaction est directement présente dans le guide d'onde.

## Bilan et démarche

### Les avantages et inconvénients du DFB

Ce contrôle monolithique de la longueur d'onde d'émission finale  $\lambda_L$  permet d'obtenir des lasers monochromatiques qui restent compacts contrairement à d'autres techniques



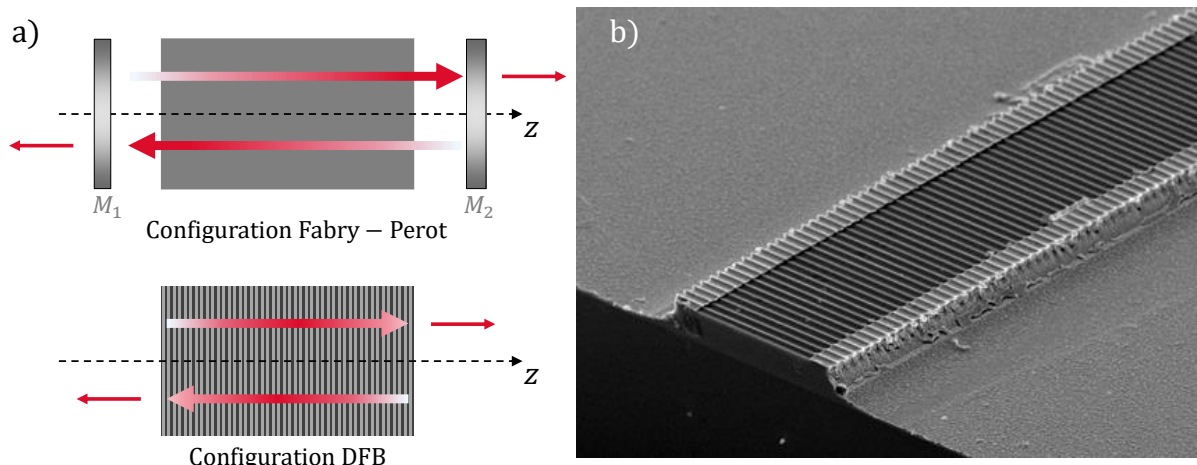


FIGURE 4.3 – a) Schéma de principe de la configuration laser Fabry-Perot et de la configuration à rétroaction répartie (DFB). b) Image SEM d'un réseau DFB gravé à la surface d'un QCL.

d'affinement spectral comme par exemple l'usage de cavités externes. Le système reste également robuste et ne comporte aucune partie mobile.

Les principaux inconvénients du DFB sont les suivants :

- La fabrication est plus complexe, surtout pour opérer le QCL en régime continu puisqu'un deuxième processus d'épitaxie (ou recroissance) est nécessaire.
- La couverture spectrale finale est très réduite par rapport la taille de la bande de gain initialement disponible. En effet, on peut toujours utiliser la température du QCL pour modifier  $\lambda_L$ , mais la modification ainsi possible ne dépasse pas quelques  $\text{cm}^{-1}$ . On a pourtant expliqué en introduction que l'accordabilité spectrale est pourtant très intéressante dans l'optique de réaliser un capteur multi-gaz. Par conséquent, cette solution n'est pas tout à fait satisfaisante pour la spectroscopie multi-gaz.
- La réalisation d'une longueur d'onde précise n'est pas chose aisée car la condition de Bragg du réseau est difficile à prévoir (dépendance de l'indice optique effectif au dopage des couches semi-conductrices, à la largeur exacte des guides d'onde, à la forme exacte du réseau, ...). En conséquence, un processus de fabrication visant à adresser une raie particulière d'un gaz cible peut très bien échouer en vertu de la faible accordabilité que nous avons expliquée au point précédent, car l'incertitude du processus de fabrication ne peut pas forcément être corrigée en changeant la température.

### Accordabilité des lasers DFB

Les efforts récents pour contourner ces problèmes visent par exemple à fabriquer une matrice de QCL placés côte à côte et dont la périodicité du réseau est graduellement augmentée d'un QCL à l'autre. La compacité du système est conservée grâce à la faible

largeur des QCL, permettant d'en disposer un grand nombre côte à côte. De plus, ils assurent une couverture spectrale sans discontinuité car si un laser n'adresse pas exactement la bonne longueur d'onde comme voulue initialement, son voisin en sera capable (B. G. LEE et al. 2009).

Une autre voie est néanmoins possible même si elle est moins développée aujourd'hui, et vise à généraliser l'utilisation des réseaux DFB au cas pseudo-périodique. L'idée consiste à introduire plusieurs périodicités au sein du réseau DFB, et ainsi autoriser plusieurs longueurs d'onde à exister au sein d'un même laser.

Cette idée a été employée avec succès pour les réseaux échantillonnés (Sampled Gratings ou SG), introduits précisément pour obtenir une meilleure accordabilité dans les lasers à semi-conducteur de télécommunication (JAYARAMAN et al. 1993). Il ne s'agit pas exactement d'un réseau DFB placé le long de la cavité laser mais plutôt de deux miroirs de Bragg (DBR1 et DBR2) utilisés en configuration Fabry-Perot. Chacun d'entre eux est un DFB périodique auquel est appliquée une fonction d'échantillonnage. Ainsi, chaque miroir de Bragg présente une transmission qui prend la forme d'un peigne de fréquence, dont l'espace entre chaque dent est déterminé par la fonction d'échantillonnage. En choisissant une fonction d'échantillonnage légèrement différente pour DBR1 et DBR2, la mise en place d'un effet Vernier est possible. Leur utilisation avec des QCL a été récemment démontrée et a permis une accordabilité sur  $63 \text{ cm}^{-1}$  (MANSURIPUR et al. 2012).

Cette idée a aussi été employée dans le cadre de l'optique passive pour les réseaux de Bragg fibrés. Il est en effet très utile de pouvoir fabriquer des fibres optiques sur lesquelles est imprimé un motif particulier, afin de produire des filtres optiques variés. Ces travaux ont été l'occasion de développer de nombreuses techniques pour la synthèse de miroirs de Bragg, c'est à dire l'obtention d'un réseau pseudo-périodique à graver à partir d'une fonction optique voulue pour la fibre. On peut citer entre autres des techniques par transformation de Fourier inverse ou encore l'implémentation d'algorithmes génétiques (SKAAR et RISVIK 1998).

Plus récemment, Mahler *et al.* (MAHLER et al. 2010) ont montré à l'aide d'un QCL Térahertz une émission bicolore à l'aide d'un DFB quasi-périodique calculé à l'aide d'une séquence de Fibonacci. Dans leur expérience, le réseau DFB est directement déposé sur le guide d'onde contrairement aux réseaux échantillonnés. Il appartient donc à cette nouvelle classe étendue de réseaux qui ont été baptisés GAB (Gratings with an aperiodic basis) (BLANCHARD et al. 2011).

## Problématique

Le problème majeur des GAB de manière générale est le contrôle de leur spectre d'émission. Autoriser plusieurs mode à exister est une chose, mais contrôler leur amplitude relative s'avère rapidement complexe. Pourtant, le contrôle est essentiel si on souhaite obtenir une émission monomode accordable pour la spectroscopie. On a vu qu'il est effectué à l'aide de l'effet Vernier dans le cadre des SG, et cette solution est tout à fait sa-

tisfaisante. Il est intéressant cependant de rechercher d'autres degrés de contrôle, comme l'ont par exemple proposé Sidler *et al.* avec l'emploi d'un miroir externe de rétroaction en plus du GAB (SIDLER *et al.* 2014). Grâce à lui, leur QCL peut assurer un fonctionnement monochromatique, choisi parmi 4 modes discrets autorisés par le GAB et sélectionnés à l'aide de la seule position du miroir externe.

On propose d'étudier plus en détail ce type de contrôle par la suite, en améliorant le concept par la suppression du miroir qui constitue une pièce mobile externe à la cavité, ainsi qu'en travaillant sur la prédictibilité de cette architecture. A partir des seules informations géométriques de design du laser et du GAB, est-il possible de prévoir le comportement spectral de ces lasers ?

### 4.3 Observations spectrales de lasers avec section de phase à rétroactions réparties

Les travaux qui suivent ont été réalisés en collaboration avec le groupe Capasso, au sein de l'université de Harvard SEAS (School of Engineering and Applied Sciences). A la place du miroir externe utilisé par Sidler *et al.*, ce groupe propose d'amener le contrôle de manière monolithique par l'ajout d'une section de phase juxtaposée à la section comportant le DFB. Reliée à une source de courant continu  $I_{ps}$ , elle est électriquement indépendante de celle réalisant le pompage du milieu à gain alimentée par un courant  $I_{DFB}$ . Ainsi, on peut se reposer sur l'effet Joule ayant lieu dans cette section de phase pour modifier sa longueur géométrique et son indice optique. On notera  $L_{ps}$  la longueur initiale de la section de phase, et  $\Delta L_{ps}$  l'augmentation de longueur liée à l'effet Joule. Un schéma de la situation est montré sur la figure 4.4. La longueur totale du laser sera donc  $L_{QCL} = L_{DFB} + L_{ps} + \Delta L_{ps}$ .

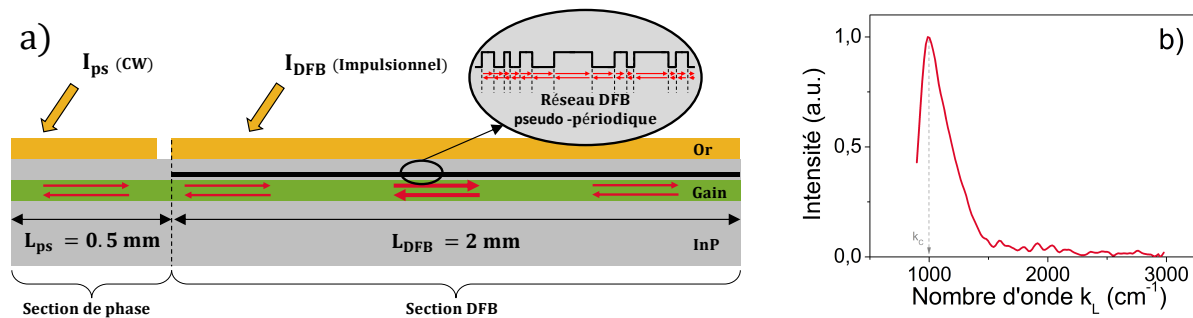


FIGURE 4.4 – a) Schéma en coupe longitudinale du QCL utilisé au cours de l'étude. Une section de phase est utilisée pour modifier la longueur optique du laser par effet Joule. Un réseau DFB pseudo-périodique autorisant plusieurs longueurs d'onde est utilisé sur la partie principale du guide d'onde. b) Spectre d'électroluminescence mesuré du milieu à gain utilisé.

Le milieu à gain utilisé, fourni par la société EOS Photonics, est centré autour de

$k_C = 1000 \text{ cm}^{-1}$  (soit  $\lambda_C = 10 \text{ }\mu\text{m}$ ), et son spectre d'électroluminescence expérimental est donné sur la figure 4.4b). On remarque ici que l'on a retenu la définition spectroscopique pour le nombre d'onde, ainsi  $k = 1/\lambda$ .

### Le GAB multi-périodique

La méthode des matrices de transfert (ou TMM pour Transfert Matrix Method) est très utilisée afin de modéliser la propagation des champs électriques dans des milieux faisant intervenir des réflexions multiples. Comme on l'a expliqué en introduction, le réseau DFB peut être lui aussi vu comme un milieu stratifié, et donc comme l'alternance de deux milieux d'indices légèrement différents  $n_1$  et  $n_2$ , responsable d'une faible réflexion à chaque interface. On peut distinguer deux types de TMM : la TMM en cavité froide qui ne prend pas en compte la présence possible de gain lors de la propagation, et la TMM en cavité chaude qui le prend en compte. Dans les deux cas, les deux indices optiques retenus lors des modélisations à venir seront de  $n_1 = 3,16$  et  $n_2 = 3,18$ .

Afin de synthétiser le GAB original illustré sur la figure 4.4a), on a maximisé sa réflectivité effective pour 10 longueurs d'onde choisies uniformément réparties entre  $960 \text{ cm}^{-1}$  et  $1050 \text{ cm}^{-1}$ . Cette réflectivité effective du DFB est calculée à l'aide d'une TMM en cavité froide, qui est aisée à mettre en œuvre et permet un calcul plus rapide. En maximisant la réflectivité effective pour ces 10 longueurs d'onde, on souhaite minimiser leurs pertes dans la cavité laser, ainsi ils constitueront des modes préférentiels lors de l'oscillation laser. On montre sur la figure 4.5 la réflectivité effective du réseau une fois synthétisé, faisant apparaître nettement dix zones préférentielles de réflectivité effective élevée, que l'on appellera par la suite fenêtres de transmission.

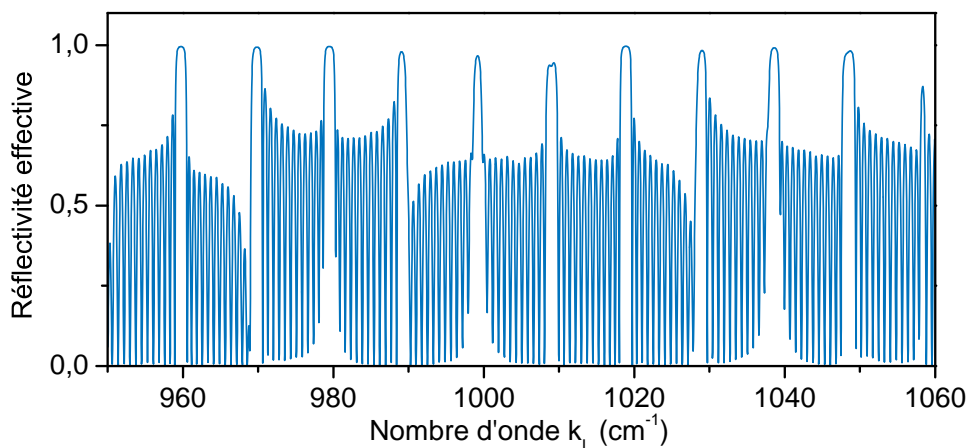


FIGURE 4.5 – Calcul de la réflectivité effective de notre GAB à l'aide de la méthode des matrices de transfert (TMM), qui fait apparaître une dizaine de zones spectrales de haute réflectivité effective et que l'on appelle fenêtres de transmission.

L'existence des fenêtres de transmission n'implique rien d'immédiat sur le spectre du laser, puisque les 10 longueurs d'ondes autorisées ne seront pas indépendantes dans la

cavité a priori . Nous reviendrons sur ces questions de compétition de modes.

### Comportement spectral du QCL

Le laser décrit précédemment a été réalisé en pratique par G.M. De Naurois dans les salles blanches de Harvard SEAS, et des spectres ont été acquis en collimatant la face de sortie du QCL en direction d'un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR Bruker Vertex 80v, détecteur en DTGS). Pour ces mesures, le courant dans la section de phase  $I_{ps}$  est continu et délivre donc une puissance électrique continue  $P_{ps}$ . Le courant de pompage délivré à la section principale du laser  $I_{DFB}$  est quant à lui impulsionnel, avec une largeur caractéristique des impulsions de 40 ns pour une fréquence de répétition de 100 kHz. Ce régime de fonctionnement impulsionnel est préféré par rapport au fonctionnement en continu de manière à éviter l'échauffement trop important de la région active, pouvant aboutir à la destruction du laser. Le spectre mesuré par le FTIR représente donc une intégration du signal émis par le QCL sur de nombreuses impulsions. Une mesure typique de l'influence de  $P_{ps}$  est présentée sur la figure 4.6. Sur cette figure, il est important de noter que la nature discrète du nombre d'onde en fonction de la puissance  $P_{ps}$  est simplement liée à la résolution du FTIR lors des mesures, et ne reflète donc pas un fonctionnement du laser par sauts de mode.

Il se trouve que le résultat obtenu peut varier sensiblement d'un laser à l'autre. En effet, l'allure des courbes montrées sur la figure 4.6 n'est pas strictement identique d'un échantillon à l'autre, sur les quelques lasers étudiés. Un certain nombre de caractéristiques communes se dégagent nettement cependant.

D'abord, on retrouve toujours une séparation entre les modes observés qui est un multiple de  $10 \text{ cm}^{-1}$  environ, conformément à l'espacement voulu dans le design du GAB et montré sur la figure 4.5. Il semble qu'un décalage important des dix longueurs d'ondes autorisées existe en pratique, puisque l'on observe un mode émettant à  $940 \text{ cm}^{-1}$  alors que la longueur d'onde minimale du réseau attendue est de  $960 \text{ cm}^{-1}$  (voir figure 4.5). La raison exacte de cet écart d'au moins  $20 \text{ cm}^{-1}$  n'est pas connue avec certitude, même si la méconnaissance de l'indice optique effectif  $n_{eff}$  réel induit généralement un écart de ce type entre la prédiction théorique et la réalisation.

Ensuite, toutes les longueurs d'onde a priori autorisées par le réseau ne sont pas nécessairement observées. Dans l'exemple illustré sur la figure 4.6a), on en dénombre 3 majoritaires et une quatrième plus faible (en jaune). Ce nombre est fonction croissante de l'intensité de pompage de la section laser  $I_{DFB}$ . Parmi ces modes existants, le laser présente également un fonctionnement monochromatique pour certaines valeurs de  $P_{ps}$ . En effet, on voit que l'on est monochromatique à  $k = 961 \text{ cm}^{-1}$  pour  $P_{ps} \approx 350 \text{ mW}$ , à  $k = 978 \text{ cm}^{-1}$  pour  $P_{ps} = 145 \text{ mW}$  ou encore à  $k = 942 \text{ cm}^{-1}$  pour  $P_{ps} = 460 \text{ mW}$ . On a donc bien ici la preuve d'une forme de contrôle sur trois longueurs d'onde, grâce à la seule modification du courant traversant la section de phase. Un autre aspect très intéressant de cette courbe réside dans la coexistence possible de plusieurs modes. En effet, la transition

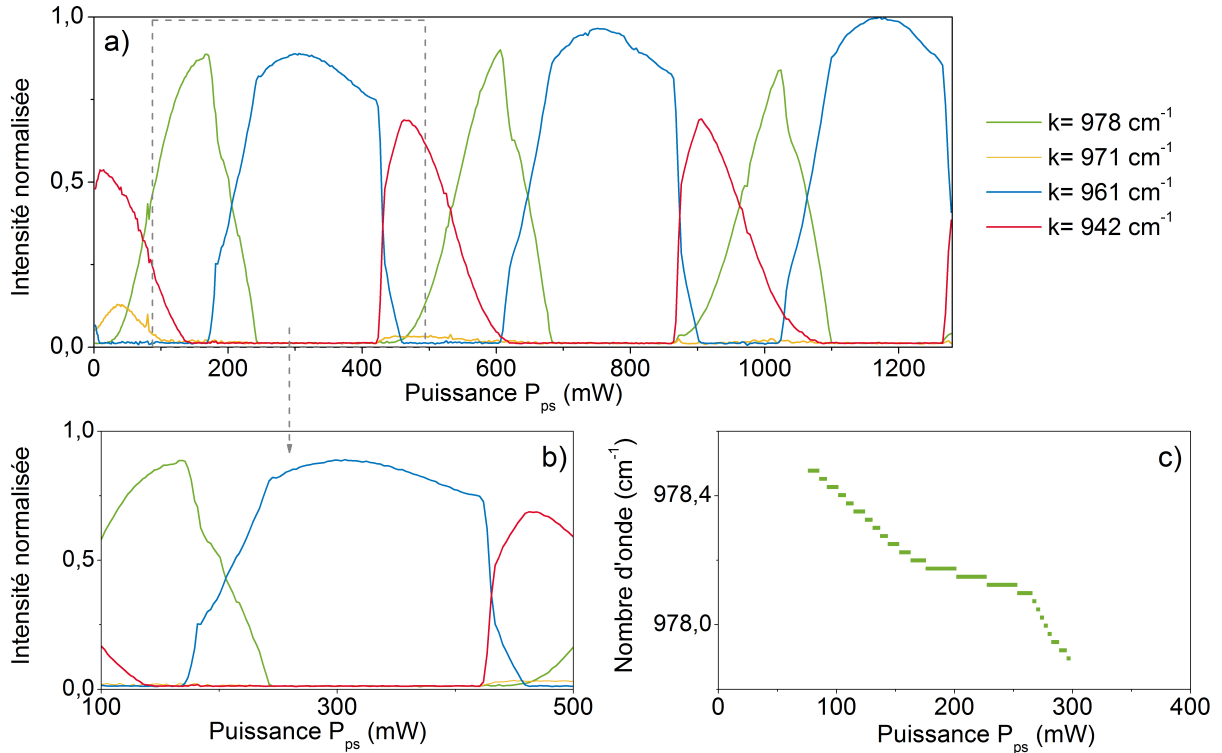


FIGURE 4.6 – a) Influence de la puissance électrique fournie à la section de phase sur le spectre du QCL, pour un pompage impulsionnel de la section DFB de  $I_{DFB} = 1,62 \text{ A}$ . b) Zoom sur les valeurs montrant une transition contrôlée d'un mode à l'autre. c) Nombre d'onde exact du mode centré à  $k = 978 \text{ cm}^{-1}$  en fonction de la longueur de la puissance électrique fournie  $P_{ps}$ .

d'une zone monochromatique à l'autre se fait de manière contrôlée et répétable, comme par exemple autour de  $P_{ps} = 200 \text{ mW}$  (détail sur la figure 4.6b). L'amplitude relative de deux modes peut être ajustée, et on a bien sur cette zone un QCL bicolore dont l'intensité relative des couleurs est réglable à souhait. Enfin, on illustre sur la figure 4.6c) le fait que chaque mode présente de légères variations de son nombre d'onde en fonction de la puissance électrique qui traverse la section de phase.

Cette démonstration de principe du contrôle spectral nous invite à essayer de mieux comprendre pourquoi le fait de modifier la longueur du laser entraîne ces conséquences spectrales, avec l'observation de quelques zones monochromatiques et d'autres zones multicolores.

## 4.4 Caractéristiques spectrales en régime stationnaire

La compréhension du phénomène a été améliorée au cours de cette thèse, et constitue un apport détaillé dans la suite de ce chapitre. La présence sur les observations précédentes



de plusieurs modes suggère d'introduire un formalisme basé sur la compétition de modes, mais il est nécessaire d'obtenir au préalable des informations sur les modes en présence.

#### 4.4.1 Détails de la simulation

On notera  $\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_N$  le gain associé au seuil (c'est à dire le gain qui compense les pertes) des modes de nombre d'onde  $k_1, k_2, \dots, k_N$  et  $u_1(z), u_2(z), \dots, u_N(z)$  l'allure spatiale de leur intensité en régime stationnaire (modèle 1D spatial). On supposera que l'augmentation de la puissance électrique dissipée  $P_{ps}$  revient uniquement à modifier la longueur de la section de phase.

Pour chaque longueur additionnelle de la section de phase  $\Delta L_{ps}$ , on a utilisé la TMM en cavité chaude afin de déterminer les positions  $k_i$ , les gains au seuil associé  $\alpha_i$  et les formes spatiales  $u_i(z)$  (voir les informations complémentaires de SIDLER et al. 2014). Cela représente plusieurs centaines de modes à déterminer pour chaque valeur de  $\Delta L_{ps}$ , et une optimisation est nécessaire pour obtenir les données de chaque mode. Les calculs de TMM sont généralement rapides quand le DFB est périodique, mais ce n'est pas le cas dans notre cas aperiodique (plusieurs semaines de calculs pour une machine de bureau). Le gain pris en compte dans la TMM en cavité chaude est seulement ajouté dans la section DFB et non dans la section de phase.

On a également introduit une perte typique dans le guide d'onde de  $12 \text{ cm}^{-1}$ , que l'on supposera indépendante de la longueur d'onde (ce terme regroupe l'absorption dans le guide d'onde, l'absorption résonante, ...).

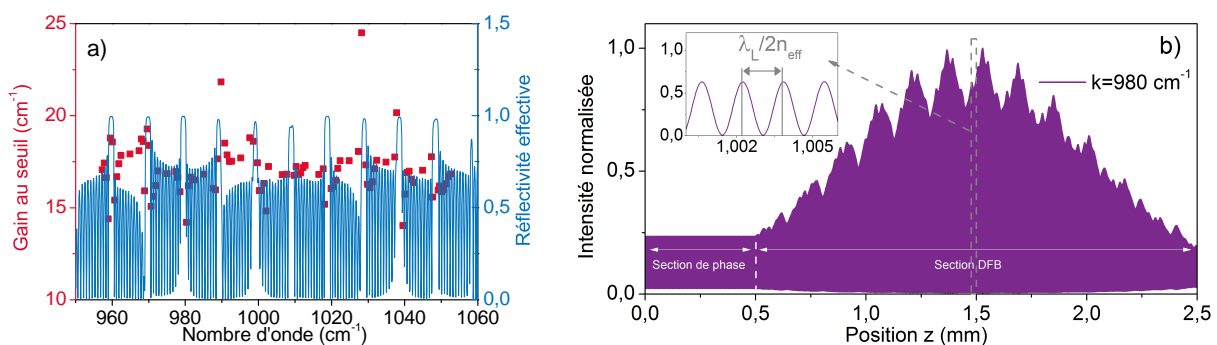


FIGURE 4.7 – a) Positions  $k_i$  et gains associés au seuil  $\alpha_i$  des modes du QCL simulé à l'aide du TMM en cavité chaude (points rouges), obtenus pour  $\Delta L_{ps} = 150 \text{ nm}$ . La réflectivité effective obtenue en cavité froide est représentée par la courbe bleu continue. b) Allure spatiale de la distribution d'intensité du mode stationnaire existant vers  $k = 980 \text{ cm}^{-1}$ .

On présente sur la figure 4.7a) par les points rouges le résultat d'une simulation pour une longueur de la section de la phase de  $\Delta L_{ps} = 150 \text{ nm}$ . Alors que les positions  $k_i$  semblent uniformément réparties, les valeurs du gain au seuil semblent suivre un comportement beaucoup plus désordonné. Parmi tous les modes calculés, on sait déjà que seuls ceux qui présentent le seuil d'oscillation le plus bas seront susceptibles d'osciller, en vertu

de la saturation qui existe dans tout milieu à gain laser. En l'occurrence, on voit nettement se détacher un mode particulier pour certaines des fenêtres de transmission que l'on a aménagées lors du design du GAB. Par exemple, le mode situé autour de  $k = 980 \text{ cm}^{-1}$  présente l'un des seuils d'oscillation le plus bas, et il y a de fortes chances que ce mode se retrouve dans l'émission laser finale à cette longueur de section de phase particulière. On a également représenté sur la figure 4.7b) l'allure spatiale du mode stationnaire associé. L'enveloppe présente bien un maximum vers le milieu du laser, signe que le couplage avec le réseau est important et que la rétroaction répartie est efficace. Aussi, on retrouve l'absence du GAB sur la section de phase située entre les abscisse  $z = 0$  et  $z = L_{ps} + \Delta L_{ps}$ , raison pour laquelle l'enveloppe  $y$  est uniforme. Enfin, tous les modes autorisés présentés sur la figure 4.7a) n'ont pas tous cette allure spatiale, qui ne concerne que les modes qui ont un seuil très bas.

#### 4.4.2 Interprétation qualitative

En regroupant l'ensemble des valeurs calculées pour des longueurs de section de phase variables, on obtient le résultat montré sur la figure 4.8.

Si la simulation pour une longueur additionnelle  $\Delta L_{ps}$  donnée donne l'impression d'une répartition désordonnée des seuils, le regroupement de l'ensemble des simulations donne un tout autre résultat. La courbe ainsi décrite, que l'on appellera "courbe de seuil" (en violet sur la figure 4.8) est quasi-continue, malgré la présence de certains points isolés qui se détachent. Il n'est pas clair de savoir si la raison de ces détachements est physique ou simplement un artefact numérique de nos simulations.

#### Positionnement des modes $k_i$

On se rend compte que l'existence d'un mode de nombre d'onde  $k_i$  n'est possible que pour une valeur précise de  $\Delta L_{ps}$  (à une périodicité près que nous verrons plus loin). On propose de s'appuyer sur la figure 4.8b) pour interpréter le mécanisme de sélection. On a identifié par des triangles rouges les modes laser possibles pour une longueur additionnelle  $\Delta L_{ps} = 150 \text{ nm}$ . Si on augmente  $\Delta L_{ps}$ , il faut imaginer que les triangles rouges se déplacent sur la courbe de seuil vers la gauche. Leurs positions  $k_i$  diminuent donc à mesure que la longueur du laser augmente. Dès que  $\Delta L_{ps}$  atteint 950 nm, les triangles rouges se retrouvent donc confondus avec les triangles verts.

Du point de vue de leur positionnement, les modes laser  $k_i$  se comportent donc de manière très similaire à une cavité Fabry-Perot froide standard (sans gain), et dont les modes sont donnés comme suit :

$$k_i = \frac{i}{2n_{eff}(L_{DFB} + L_{ps} + \Delta L_{ps})} \quad (4.2)$$

L'application numérique pour l'intervalle spectral libre  $k_{i+1} - k_i$  donne une valeur de  $0,63 \text{ cm}^{-1}$ , qui correspond bien en première approximation à l'espacement observé sur la



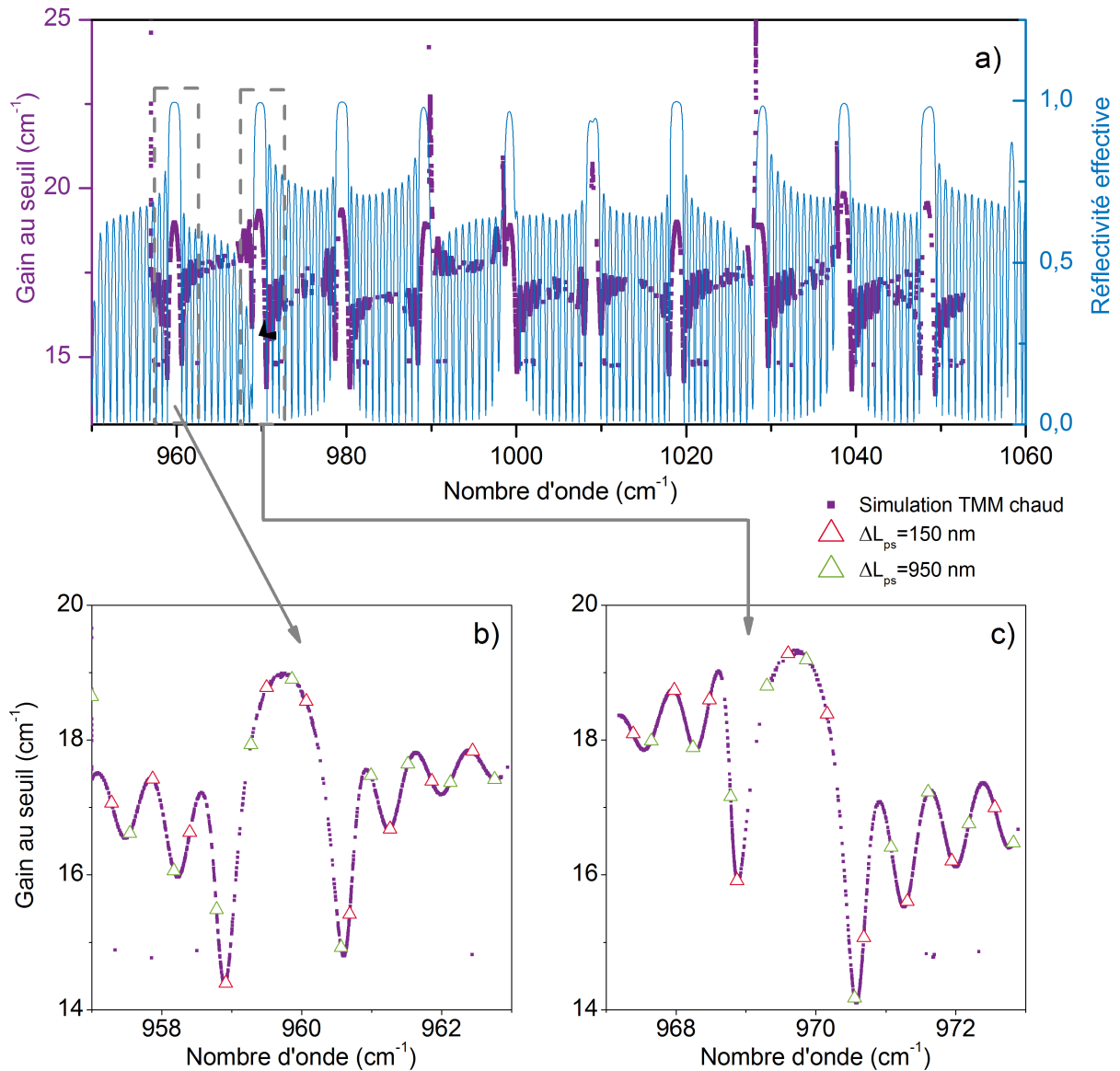


FIGURE 4.8 – a) Réflectivité effective du GAB calculée à l’aide du TM en cavité froide (courbe bleu) et ensemble des modes lasers possibles en faisant varier  $\Delta L_{ps}$  (points violets). b) Zoom autour de la fenêtre de transmission centrée à  $k = 960 \text{ cm}^{-1}$ , avec mise en évidence des modes lasers pour deux valeurs particulières de  $\Delta L_{ps}$ . c) Zoom autour de la fenêtre de transmission centrée à  $k = 970 \text{ cm}^{-1}$ , avec mise en évidence des modes lasers pour deux valeurs particulières de  $\Delta L_{ps}$ .

figure 4.8. Ensuite, l’évolution de la position d’un mode particulier avec l’augmentation de la longueur de section de phase est également en accord avec la formule 4.2, que l’on peut réécrire ( $\Delta L_{ps} \ll L_{ps}$ ) :

$$k_i = \frac{i}{2n_{eff}(L_{DFB} + L_{ps})} \left[ 1 - \frac{\Delta L_{ps}}{L_{DFB} + L_{ps}} \right] \quad (4.3)$$

A nouveau, l’application numérique entre les valeurs de  $\Delta L_{ps} = 150 \text{ nm}$  et  $\Delta L_{ps} = 950 \text{ nm}$  donne une réduction relative de la position des modes de  $3,2 \cdot 10^{-4}$ , à nouveau

en accord avec l'espacement numérique constaté entre les triangles rouges et les triangles verts.

### Définition des "mode de fenêtre"

Parmi tous les modes autorisés, on sait déjà que seuls ceux présentant un seuil d'oscillation minimal seront susceptibles de laser. Maintenant que l'on a interprété le mécanisme de circulation des modes sur la courbe de seuil, on peut effectuer une série de remarques :

- Un mode n'est pas toujours présent au niveau du minimum de chaque fenêtre de transmission, cela dépend de la valeur de  $\Delta L_{ps}$ . Le seuil d'un mode donné varie donc avec la longueur totale du laser.
- La présence d'un mode au seuil minimum d'une des fenêtres de transmission ne garantit pas que d'autres modes soient présents au minimum des autres fenêtres de transmission simultanément. Ainsi, le mode de seuil minimum sur tout le spectre n'est pas toujours situé dans la même fenêtre, cela dépend également de  $\Delta L_{ps}$ .
- Le mode de seuil minimal au sein de chaque fenêtre aura toujours lieu au niveau de deux zones très particulières. Par exemple sur la figure 4.8b), il s'agit des deux cuvettes centrées en  $k = 958,9 \text{ cm}^{-1}$  et  $k = 960,6 \text{ cm}^{-1}$ .

Avec ces remarques, on définit désormais "un mode de fenêtre" par le fait d'être le mode laser possédant le seuil minimal au sein d'une fenêtre donnée. Alors que les modes lasers sont repérés par leur indice  $i$  (voir équation 4.2), les modes de fenêtre sont a priori au nombre de 10, et on pourra utiliser  $k_{f1}, k_{f2}, \dots, k_{f10}$  pour les désigner. On peut maintenant tracer le seuil de ces modes de fenêtre en fonction de  $\Delta L_{ps}$ , ainsi que montrer leur nombre d'onde exact tel que calculé par la simulation numérique. Les résultats sont montrés sur la figure 4.9, sur laquelle seules 6 fenêtres de transmission possèdent des seuils bas.

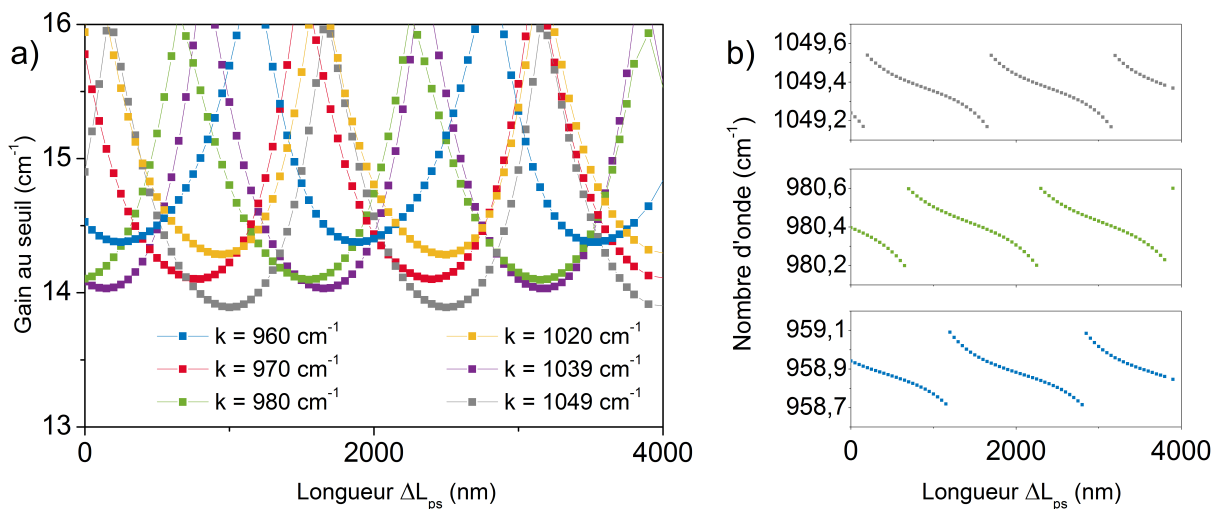


FIGURE 4.9 – a) Seuil des modes de fenêtre en fonction de la longueur de la section de phase  $\Delta L_{ps}$ . b) Nombre d'onde exact du mode correspondant.

Une périodicité apparaît sur la courbe 4.9, ce qui montre que le seuil d'un mode de

fenêtre donné est une fonction périodique de  $\Delta L_{ps}$ . Cette périodicité dépend du nombre d'onde central de la fenêtre. Dans le cadre de notre interprétation de la courbe de seuil, la période associée à une fenêtre donnée correspond en réalité à deux modes physiques différents qui passent par la cuvette de seuil minimal. Par exemple, on voit sur la courbe de la fenêtre  $k_{f10} = 1049 \text{ cm}^{-1}$  qu'un minimum du seuil est atteint pour  $\Delta L_{ps} = 1000 \text{ nm}$ , ce qui signifie qu'il existe un mode indicé par  $j$  tel que  $k_j$  atteint ce minimum. Ensuite, à mesure que  $\Delta L_{ps}$  augmente,  $k_j$  suis la courbe de seuil (figure 4.8) et sort de la cuvette, ce qui explique pourquoi le seuil de ce mode de fenêtre augmente également. Une fois sorti de la cuvette, le mode suivant  $k_{j+1}$  entre à son tour dans la cuvette et se dirige vers le minimum. C'est pour cette raison que l'on atteint un nouveau minimum à  $\Delta L_{ps} = 2500 \text{ nm}$ . La périodicité, que l'on notera  $\Delta L_{fj}$  pour la fenêtre indicée par  $j$ , est donc donnée par la relation suivante :

$$2k_{fj}\Delta L_{fj} = 1 \quad (4.4)$$

La période dépend effectivement du nombre d'onde. Une application numérique pour la fenêtre  $k_{f10} = 1049 \text{ cm}^{-1}$  nous donne la période de  $\Delta L_{f10} = 1,5 \text{ }\mu\text{m}$ , ce qui est bien conforme à notre simulation numérique. On peut aussi interpréter physiquement cette périodicité par le fait que les ondes circulant dans la section de phase auront acquis un déphasage supplémentaire de  $2\pi$  après que sa taille ait augmenté de  $\Delta L_{f10}$ . Contrairement au résultat valable pour les cavités Fabry-Perot en cavité froide (équation 4.3), la variation du nombre d'onde d'un mode donné n'est pas linéaire lorsqu'il traverse la cuvette de seuil minimal. Le mode semble "attiré" au fond de la cuvette, comme en témoigne les formes de "S" observées sur la figure 4.9b). On parle alors de "Frequency pulling", un résultat déjà connu pour les DFB périodiques (H. KOGELNIK 1972). On avait observé cette même tendance sur les résultats expérimentaux rapportés sur la figure 4.6c).

### Une première interprétation

On peut maintenant interpréter une première fois les données expérimentales que nous avons précédemment exposées.

Du point de vue de la position précise du nombre d'onde observé (figure 4.6c) ), on devine bien une forme de "S" qui serait cohérente avec la modélisation que l'on vient de proposer (figure 4.9b) ). La valeur d'attraction de la fréquence semble être située vers  $k = 978,2 \text{ cm}^{-1}$ , et l'intensité maximale atteinte à cet instant est en accord avec le passage par un seuil minimal.

Ensuite, on explique la présence d'un retour périodique des motifs d'émissions par la périodicité calculée pour les seuils de ces modes. On peut aussi vérifier que la puissance électrique dissipée dans la section de phase est compatible avec les augmentations de longueur optique du dispositif nécessaires pour parcourir de telles périodes, c'est à dire environ  $1,5 \text{ }\mu\text{m}$ . En écrivant la différentielle de la longueur optique de la section de phase  $L_{opt} = n_{eff}L_{ps}$  par rapport à la température  $T$ , on obtient :

$$\Delta L_{ps} = \left[ \frac{1}{n_{eff}} \frac{dn_{eff}}{dT} + \frac{1}{L_{ps}} \frac{dL_{ps}}{dT} \right] dT \quad (4.5)$$

La température exacte du dispositif (qui dépend du système de refroidissement utilisé en pratique) n'a pas été mesurée expérimentalement, mais une application numérique de la formule 4.5 peut être réalisée en utilisant les coefficients de dilatation thermique  $\frac{1}{n_{eff}} \frac{dn_{eff}}{dT} = 6 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$  et  $\alpha = \frac{1}{L_{ps}} \frac{dL_{ps}}{dT} = 4,8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  donnés par Caulley *et al.* pour l'*InP* (MC CAULLEY *et al.* 1994). On obtient une valeur de  $dT = 53 \text{ K}$ , une valeur tout à fait plausible. Cette identification nous permet même d'établir une première correspondance entre la puissance électrique dissipée dans section de phase  $P_{ps}$  et la température associée :  $dT/dP_{ps} = 110 \text{ K.W}^{-1}$ .

Si on peut expliquer qualitativement la présence de certaines caractéristiques, on ne peut pas expliquer la forme des courbes sans considérer la compétition qui existe entre ces modes.

### 4.4.3 Compétition de modes dans les QCLs

Notre premier modèle pour décrire la compétition de mode a consisté à supposer que le QCL atteint rapidement un état stationnaire, même si les courbes expérimentales précédentes ont été obtenues en régime impulsionnel. Cela revient à négliger les effets qui peuvent avoir lieu au début de chaque impulsion, et de considérer que le laser atteint rapidement un état stationnaire identique à chaque impulsion. On néglige également tout phénomène de battement entre les modes laser.

#### L'image du laser monochromatique

Dans le cadre de la plus simple des descriptions pour le laser, on peut montrer que son émission est monochromatique. Le gain est supposé identique à toute position  $z$  dans le laser, si bien que tous les modes qui y circulent voient la même amplification. Le mode qui présente les pertes minimales verra donc son intensité croître plus rapidement que celle des autres, et son seuil sera minimal. Dès que son intensité se rapproche de l'intensité de saturation, le gain se réduit jusqu'à égaler les pertes de ce mode préférentiel, et le gain net vu par les autres modes devient négatif. On dit que le gain est clampé, et les autres modes voient leur intensité diminuer pour revenir au niveau du bruit. Le résultat de la compétition de mode est très simple dans ce cas : seul le mode de seuil minimum oscille.

En réalité, le gain n'est pas nécessairement uniforme. En effet, la formation d'une onde stationnaire dans la cavité fait apparaître des nœuds et des ventres pour l'intensité, ainsi le gain n'est pas uniformément saturé. Si on note  $P(z)$  la puissance présente dans l'onde stationnaire en fonction de la position  $z$  le long de l'axe laser, on rappelle que les équations de Maxwell-Bloch du laser donnent le gain linéique à l'état stationnaire :

$$g(z) = \frac{g_0}{1 + P(z)/P_{sat}} \quad (4.6)$$

Dans l'équation précédente,  $g_0$  est le gain initial apporté par le pompage électrique du milieu à gain (il est donc proportionnel à  $I_{DFB}$ ), et  $P_{sat}$  est l'intensité de saturation supposée constante et caractéristique du milieu à gain. D'après l'équation 4.6, il est clair que le gain n'est pas affecté par la présence d'une onde stationnaire au niveau de ses nœuds ( $P(z) = 0$  à ces endroits). Par conséquent, un autre mode stationnaire qui aurait un ventre à cet endroit précis pourrait donc croître. Ce phénomène de modulation du gain le long de l'axe laser par la présence de champs électriques intenses est parfois appelé "Spatial Hole Burning" (SHB), et il peut être responsable de l'existence simultanée de plusieurs modes dans une cavité laser. Le SHB n'est cependant pas toujours un effet important dans un laser, principalement en raison de la diffusion du gain qui peut avoir lieu : du gain présent au niveau des nœuds peut diffuser au niveau des ventres. Cette diffusion a donc tendance à atténuer la modulation du gain le long de l'axe laser.

Dans les QCLs, plusieurs observations ont été attribuées au SHB (GORDON et al. 2008; C. Y. WANG et al. 2009). Aussi, le temps de vie du niveau excité est exceptionnellement court dans ce milieu à gain puisqu'il est typique de  $T_1 = 1$  ps (GORDON et al. 2008). Ce temps est bien plus court que le temps caractéristique de diffusion du gain, si bien que cette diffusion n'a pas le temps de se faire et l'atténuation du SHB peut être considérée négligeable. On peut donc tenter d'expliquer la compétition de modes en s'appuyant largement sur l'hypothèse que le SHB est responsable de la forme des courbes expérimentales que l'on a observée.

### Un premier modèle de compétition de mode en régime permanent

Dans le cadre de ces hypothèses, les  $N$  modes lasers autorisés de nombre d'onde  $k_1, \dots, k_N$  et de seuil  $\alpha_1, \dots, \alpha_N$  sont ordonnés de sorte que  $\alpha_1 < \alpha_2 < \dots < \alpha_N$ . On supposera que tous les phénomènes de perte sont lissés le long de la cavité, ainsi la dépendance spatiale de l'intensité de chaque mode  $u_1(z), \dots, u_N(z)$  sera stationnaire dans le temps (ce sont des modes propres de la cavité laser chaude). On supposera que ces modes propres sont normalisés :  $\int u_i^2(z) dz = 1$ . Dans la mesure où chaque mode du laser présente une longueur d'onde unique, les  $u_i(z)$  vont différer d'un mode à l'autre et leur recouvrement ne sera pas total. Une compétition pour le gain aura donc lieu uniquement dans les zones où au moins deux modes propres se recouvrent.

La puissance optique totale présente dans la cavité s'écrit donc  $P(z) = \sum_i P_i u_i(z)$ , avec  $P_i$  désignant la puissance présente dans le mode  $i$ . Pour conserver une description simple, on négligera la diffusion des porteurs, mais cet effet pourrait être aisément pris en compte (TANG et al. 1963). À l'état stationnaire, tous les modes présentent un gain net nul à chaque aller retour, on peut donc écrire une équation pour chacun d'entre eux :

$$\int_0^{L_{QCL}} \left[ \frac{g_0}{1 + \sum_j \frac{P_j}{P_{sat}} u_j(z)} - \alpha_i \right] P_i u_i(z) dz = 0 \quad \forall i = 1..N \quad (4.7)$$

Le problème précédent est un système de  $N$  équations à  $N$  inconnues, mais de nombreuses solutions sont possibles. Physiquement, il est connu qu'un laser possède de nombreux états stationnaires, cependant il ne sont pas tous stables. Il a été prouvé que seul l'un d'entre eux possède un caractère stable global (KHANIN 1995), il nous faut donc l'identifier.

Afin de simplifier le modèle, on va supposer que la saturation est faible, si bien que  $P(z) \ll P_{sat}$  nous permet d'effectuer un développement limité au premier ordre de l'équation 4.7. En introduisant la quantité  $L_i = (1 - g_0/\alpha_i) \int u_i P_{sat}$ , l'équation 4.7 se réécrit comme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_j K_{i,j} P_j = L_i, \\ \text{or} \\ P_i = 0, \end{array} \right. \quad (4.8a) \quad (4.8b)$$

Dans l'équation précédente, la matrice de couplage croisée  $K = \left( \int u_j u_i \right)_{i,j}$  peut être interprétée comme la force du couplage entre les modes  $i$  et  $j$  à travers le gain, et mesure leur recouvrement spatial. On propose d'utiliser à ce point un argument physique pour résoudre le système 4.8. Puisque les lasers visent empiriquement à extraire le maximum d'énergie du milieu à gain, on supposera que la solution stable est celle qui maximise le nombre de modes oscillants (SIEGMAN 1986). On résout donc le système 4.8 de manière séquentielle :

- On suppose que tous les modes ont une amplitude  $P_i > 0$ .
- On calcul la solution de l'équation 4.8a en inversant la matrice  $K$ .
- Si on obtient une solution physiquement possible (i.e.  $P_i > 0 \forall i$ ), alors on considère que l'on a trouvé notre solution. Sinon, on en déduit que le dernier mode  $k_N$ , qui présente le seuil le plus élevé, était en réalité d'amplitude nulle :  $P_N = 0$ . On recommence ensuite la procédure en excluant ce mode du système 4.8a.

### Comparaison expérimentale

On va maintenant appliquer le modèle de compétition de modes que l'on vient de détailler en utilisant les valeurs  $k_i$ ,  $\alpha_i$  et  $u_i(z)$  obtenues à l'aide du TMM en cavité chaude. On montre sur la figure 4.10 les résultats obtenus.

L'application directe du formalisme (4.10a) et b) nous confirme que seule la prise en compte des modes de seuil minimal est pertinente dans la compétition de modes, justifiant a posteriori notre choix de ne s'intéresser qu'aux modes de seuil minimal. Le formalisme pourrait néanmoins être utilisé en considérant tous les modes autorisés par le laser, ainsi

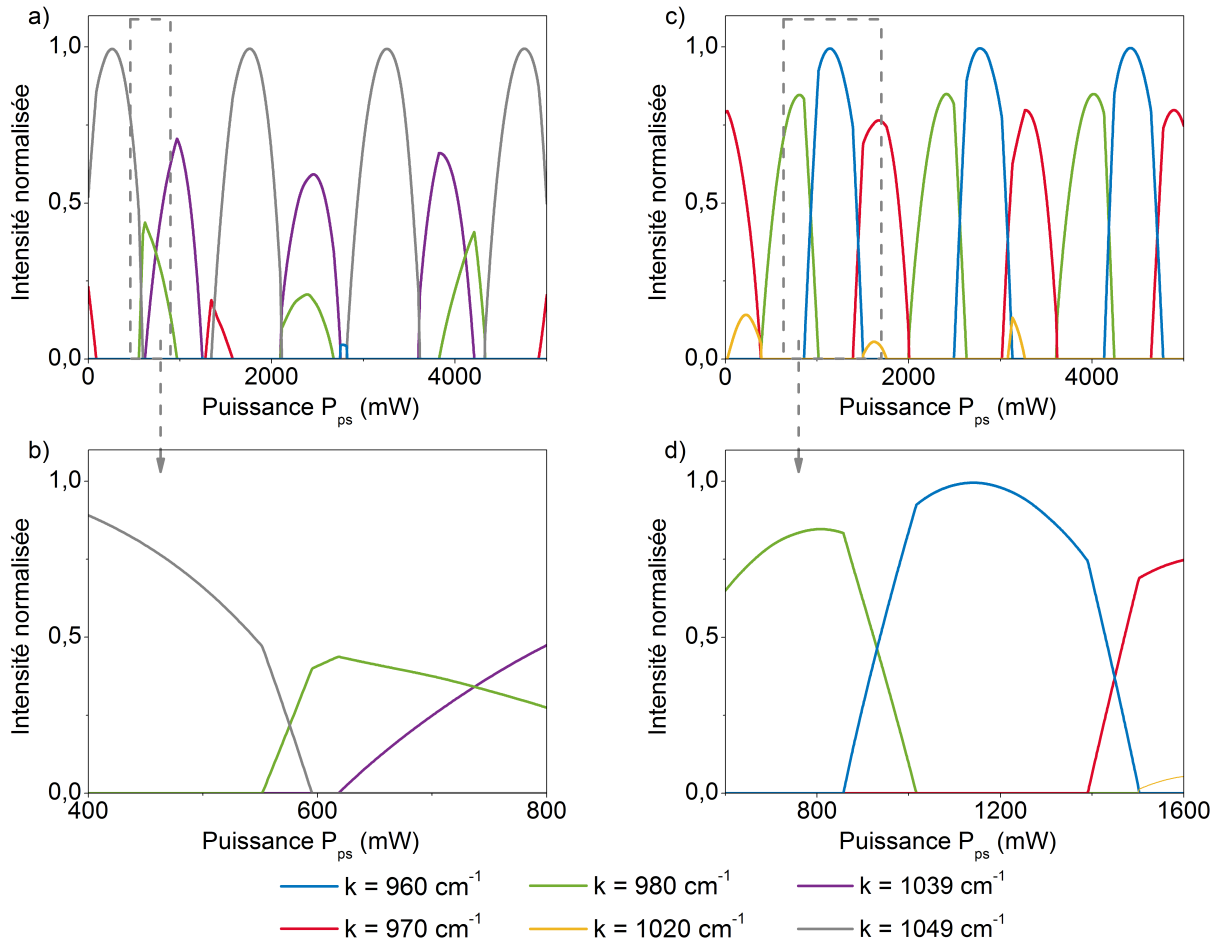


FIGURE 4.10 – Compétition des modes de fenêtre en régime permanent pour un taux de pompage  $g_0 = 14,4 \text{ cm}^{-1}$ , avec a) et b) le résultat obtenu avec les seuils calculés et caractérisés sur la figure 4.9. c) et d) est le résultat obtenu après un réajustement expérimental des seuils pour une valeur de la longueur de la section de phase  $L_{ps}$ .

les modes de seuil élevé seraient rapidement éliminés par la procédure séquentielle et le résultat obtenu serait identique.

On voit que la coexistence de deux ou plusieurs modes n'est possible qu'à condition que leur seuil soit proche. Autrement, le mode de seuil minimal sature le gain fortement, et seul un pompage  $g_0$  élevé peut contrebalancer la saturation imposée par ce mode. C'est la raison pour laquelle on observe sur la figure 4.10a) une coexistence des modes  $k = 980 \text{ cm}^{-1}$  et  $k = 1039 \text{ cm}^{-1}$  (autour de  $P_{ps} = 2,3 \text{ W}$ ) : le pompage de  $g_0 = 14,4 \text{ cm}^{-1}$  est suffisant pour garantir au mode  $k = 980 \text{ cm}^{-1}$  son existence. Si l'on diminue le pompage, ce mode va progressivement disparaître alors que  $k = 1039 \text{ cm}^{-1}$  continuera d'exister.

Si deux modes coexistent et que l'un voit son seuil augmenter avec  $L_{ps}$  tandis que l'autre a le comportement inverse, alors on récupère bien un croisement linéaire caractéristique que l'on a observé sur les courbes expérimentales. La capacité de coexistence et donc la pente du croisement comme montré sur la figure 4.10b) est contenu dans la



matrice de couplage  $(K)_{i,j}$ .

Dans les expériences, de nombreux paramètres peuvent jouer sur le gain net effectivement vu par les modes. La largeur finie de la bande de gain, les incertitudes de fabrication sur la forme exacte du GAB, les pertes liées à l'absorption fonction du nombre d'onde sont autant de paramètres qui peuvent modifier la valeur des seuils par rapport à nos calculs. Puisque l'on voit que la compétition de mode dépend de manière cruciale de cette valeur, il n'est pas impossible que notre formalisme ne soit pas précisément en accord avec le seuil expérimental de chaque mode. On a appliqué un décalage global (identique quel que soit  $\Delta L_{ps}$ ) de  $[-0.45, +0.08, -0.1, -0.15, +0.35, +0.45]$   $\text{cm}^{-1}$  aux modes  $k = [960, 970, 980, 1020, 1039, 1049]$   $\text{cm}^{-1}$  respectivement, afin d'obtenir le meilleur accord possible avec les résultats expérimentaux de la figure 4.6. Les résultats sont alors présentés sur la figure 4.10c) et d). On voit donc que l'on peut obtenir un résultat très proche, et que l'influence de la longueur de la section de phase est potentiellement bien reproduite par ce modèle.

### Expériences dynamiques spectrales

Aussi séduisant que soit le modèle précédent, il est sujet à l'hypothèse cruciale du régime stationnaire. Des expériences ont été menées au sein du groupe Capasso afin de s'assurer de sa véracité et ainsi valider notre approche de la compétition de modes par la présence de SHB.

Un de ces QCL a été opéré en régime impulsif avec des impulsions de 30 ns. Un courant continu est appliqué à la section de phase. Le faisceau à la sortie du QCL est collimaté à l'aide d'une lentille de focale  $f = 38$  mm et dirigé vers un réseau de diffraction (Thorlabs blazed grating GR2550-10106). La réflexion issue du réseau de diffraction est ensuite focalisée sur un détecteur MCT d'un diamètre de 250  $\mu\text{m}$  à l'aide d'une lentille de focale  $f = 127$  mm. Ainsi, deux modes distincts émis par le laser seront diffractés à un angle légèrement différent, et le détecteur MCT n'en verra qu'un seul. On est donc en mesure de discriminer le contenu spectral de chaque impulsion.

Les résultats sont sans appel : chaque impulsion ne comporte qu'une longueur d'onde unique. Par contre, les impulsions qui se succèdent n'ont pas nécessairement la même longueur d'onde, et la prédictibilité de la longueur d'onde d'une impulsion à l'autre semble suivre un processus davantage stochastique que déterministe. Le spectre résolu temporellement (impulsion par impulsion) n'est donc pas identique. Par contre, le spectre effectué sur de longues durées et mesuré par le FTIR dans l'expérience initiale (figure 4.6) intègre des milliers d'impulsions, et on retrouve bien le comportement déterministe que l'on vient d'étudier.

On en conclut donc que notre hypothèse du régime continu atteint au cours des impulsions est erroné, ainsi la compétition de modes ne peut pas s'expliquer simplement par le SHB en régime continu. Parmi les étapes de modélisation que l'on a proposées jusque là, seule la dernière étape de compétition de modes prédisant l'allure quantitative doit être repensée en régime dynamique. La cohérence des observations avec les modèles, indépen-



damment de l'allure quantitative, permet néanmoins d'accorder une confiance raisonnable en nos courbes de seuils par mode de fenêtre comme base de l'explication réelle. Un modèle en régime transitoire les utilisant, couplé au caractère stochastique du bruit quantique de démarrage de chacun des modes pourrait ainsi être approfondi.

Les QCLs peuvent-ils néanmoins accueillir simultanément plusieurs modes en régime continu ? Il est en effet possible que le modèle développé soit correct. Les plus récentes expériences ont consisté à refroidir les QCL dans un cryostat à flux continu, afin de porter leur fonctionnement en régime continu sans risque de les détruire. Les premiers résultats montrent qu'une émission multimode stable est effectivement possible, mais nous n'avons pas été en mesure d'utiliser le réglage de la longueur de la section de phase en raison des contraintes du montage.

## 4.5 Conclusions et perspectives

On a présenté une étude d'une nouvelle configuration QCL très particulière : la configuration à rétroaction répartie pseudo-périodique, assortie d'une méthode de contrôle du spectre monolithique par une section de phase.

Grâce à un courant électrique indépendant, la longueur de la section de phase peut être ajustée finement, induisant alors des conséquences sur le spectre d'émission continu. En particulier, certaines plages de courant permettent d'obtenir une émission monochromatique. Ainsi, un QCL unique est capable d'émettre plusieurs longueurs d'onde, sélectionnées par l'opérateur par le biais d'un contrôle électrique indépendant du pompage. Ces longueurs d'onde possibles sont choisies lors de la fabrication du laser, au travers de la séquence de la rétroaction répartie imprimée sur le guide d'onde. L'ingénierie spectrale totale pour le QCL semble donc possible en principe : la longueur d'onde centrale est d'abord choisie lors de l'épitaxie du milieu à gain, ensuite la réalisation du laser permet d'apposer une rétroaction n'autorisant qu'un spectre prédéfini à osciller.

On a montré que la modélisation de la rétroaction répartie par la méthode du TMM en cavité chaude permet d'obtenir de précieuses informations sur les modes du laser, qui sont ensuite la clef de voute de tout formalisme de compétition de modes. On propose donc désormais de synthétiser de nouveaux réseaux GAB en utilisant la TMM en cavité chaude pour obtenir la courbe de seuil. Cette dernière est ensuite à coupler à un algorithme génétique pour venir modifier le GAB et converger vers le résultat souhaité.

La maîtrise de la compétition de modes reste néanmoins le principal défi à relever. Il n'est pas encore clair si le QCL peut justement permettre un tel contrôle, ou si les processus de fabrication permettent d'atteindre une précision suffisante sur la prédictibilité des seuils modaux. Dans tous les cas, de nouvelles expériences mettant en œuvre un QCL en régime continu sont souhaitables pour étudier la validité de l'approche utilisant le SHB.



# Chapitre 5

## Développement des Oscillateurs Paramétriques Optiques

### Objectifs :

L'objectif de ce cinquième chapitre est d'exposer les travaux et avancées obtenues au cours de la thèse sur les performances des Oscillateurs Paramétriques Optiques (OPOs), en tant que sources optiques pour la spectrométrie laser. Nous nous concentrerons sur la question du pompage optimal des OPOs, ainsi que de l'étude de la génération d'impulsions longues en vue de fournir une importante puissance moyenne.

### 5.1 L'utilisation des Oscillateurs Paramétriques Optiques pour la spectrométrie

#### 5.1.1 Introduction

Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) sont des sources cohérentes radicalement différentes des lasers puisqu'elles ne reposent pas sur l'émission stimulée. Grâce à la première démonstration du laser (MAIMAN 1960), des champs électriques extrêmement intenses ont pu être utilisés pour effectuer les premières générations d'harmoniques de la lumière, par leur interaction avec certains matériaux présentant un indice optique fortement non-linéaire (FRANKEN et al. 1961). Dès 1962, l'un des papiers fondateurs de l'optique non linéaire a permis de poser un cadre théorique extrêmement solide pour expliquer ce phénomène alors correctement modélisé comme une conversion paramétrique de la lumière (ARMSTRONG et al. 1962). En particulier, la susceptibilité diélectrique de la matière au deuxième ordre, généralement notée  $\chi^{(2)}$ , est responsable de la conversion du champ électrique intense incident dit "pompe" en deux faisceaux dits "signal" et "complémentaire". Ce processus illustré sur la figure 5.1 satisfait le principe de conservation

de l'énergie, si bien que chaque conversion élémentaire vérifie  $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ ; si  $\hbar\omega_p$  (resp.  $\hbar\omega_s$ ,  $\hbar\omega_c$ ) désigne l'énergie d'un photon de pompe (resp. l'énergie d'un photon signal et complémentaire). Par convention, le signal désigne l'onde convertie dont les photons sont les plus énergétiques ( $\omega_s > \omega_c$ ). Les modélisations de l'amplification paramétrique au sein des cristaux ont ensuite été largement utilisées pour développer l'effet de conversion non linéaire, et définit le domaine d'étude de l'Amplification Paramétrique Optique (OPA).

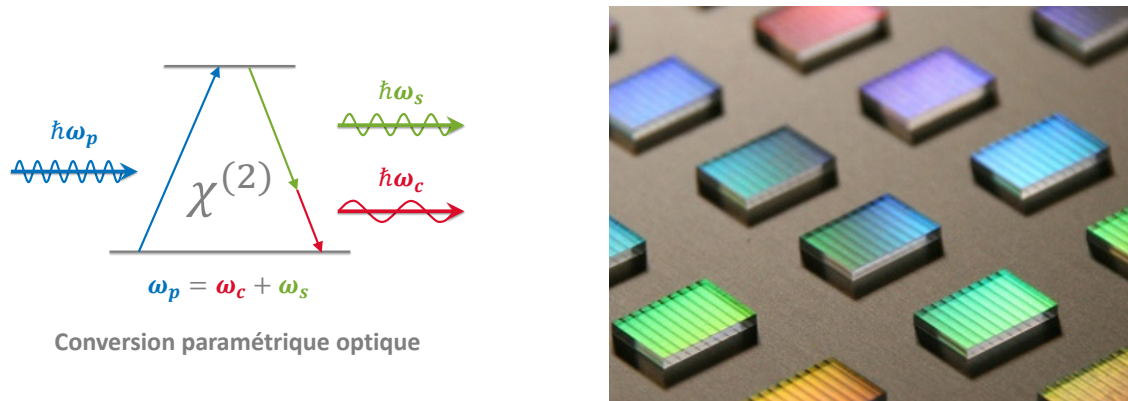


FIGURE 5.1 – A gauche, diagramme de niveaux d'énergie illustrant le processus de conversion de fréquences à la base de l'Amplification Paramétrique Optique (OPA). A droite, cristaux non linéaires de Niobate de Lithium  $\text{LiNbO}_3$  périodiquement retournés (PPLN) dopés à l'oxyde de Manganèse  $\text{MgO}$ , fabriqués par la société Covesion.

Ce nouveau type d'amplificateur non linéaire a ensuite été naturellement employé en tant que milieu à gain (GIORDMAINE et MILLER 1965), à une époque où de nouvelles architectures d'oscillateurs optiques voient le jour. De manière quasi simultanée, le développement d'outils théoriques pour l'étude des milieux à gain au cœur d'oscillateurs optiques a permis de modéliser les grandes lignes de leur comportement (YARIV 1966). Plusieurs configurations "types" ont été nommées par convention en fonction de la méthode utilisée pour apporter la rétroaction sur le milieu à gain, comme par exemple les cavités "linéaires" ou "en anneau" illustrées sur la figure 5.2. Dépendant des valeurs des réflectivités pour chacune des trois ondes de l'interaction paramétrique, l'OPO est décliné en plusieurs versions :

- Le SRO ou OPO simplement résonant, lorsqu'une seule des deux ondes signal ou complémentaire est résonante. Profitant d'un gain identique lors de la conversion non linéaire, ce sont surtout les miroirs (ou autre optique additionnelle) qui agissent de manière sélective sur les deux fréquences signal et complémentaire. La pompe n'est pas résonante.
- Le BDRO ou OPO doublement résonant équilibré, c'est à dire pour lequel la réflectivité effective de la cavité signal est égale à celle de la cavité complémentaire. La pompe n'est pas résonante.
- Le DRO ou OPO doublement résonant, lorsque les deux ondes signal et complémentaire sont résonantes. Un BDRO est donc un DRO particulier. La pompe n'est

pas résonante.

- Le TRO ou OPO triplement résonant, au sein duquel les trois ondes sont résonantes.

Le SRO, DRO et BDRO peuvent être utilisés en configuration dite "double passage" pour les dispositions "linéaires", qui consiste à rendre l'un des miroirs hautement réfléchissant pour la pompe de manière à ce qu'elle passe une seconde fois dans le cristal non linéaire et ainsi poursuivre l'interaction paramétrique. Pour tous les OPO, on définit également le seuil d'oscillation comme étant l'énergie de pompe nécessaire pour pouvoir générer une onde signal ou complémentaire observable. Ce critère est donc avant tout une notion expérimentale qui dépendra de la méthode de détection utilisée, c'est pourquoi il doit être correctement défini à chaque utilisation.

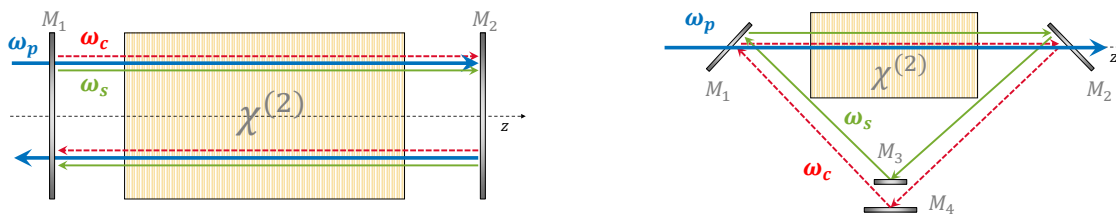


FIGURE 5.2 – Schéma d'un oscillateur paramétrique optique, avec une cavité linéaire avec un double passage de pompe (à gauche) et une configuration en anneau avec simple passage de pompe (à droite).

Leur développement repose néanmoins toujours sur deux éléments essentiels : d'une part les cristaux non linéaires et d'autre part les sources de pompe disponibles. L'évolution conjointe de ces deux éléments permet d'améliorer régulièrement les performances des OPOs, et bénéficient en conséquence directement aux applications spectroscopiques.

### 5.1.2 Un outil adapté à la spectrométrie optique

Les OPOs possèdent des caractéristiques uniques par rapport aux lasers, ce qui en fait des outils précieux pour la spectroscopie. Ils permettent d'accéder au domaine du proche et du moyen infrarouge tout en conservant une accordabilité extrêmement large ne dépendant que du cristal non linéaire utilisé. Leur finesse spectrale peut être maîtrisée pour être compatible avec la sélectivité requise pour la spectrométrie, et leur puissance moyenne peut aisément dépasser plusieurs centaines de milliwatts et ainsi permettre la détection à des sensibilités extrêmes.

#### Mises en œuvre pour la photoacoustique

Les OPOs ont été utilisés assez tardivement pour la spectrométrie photoacoustique (HAUB et al. 1991). Lors de leur mise en œuvre pour la spectroscopie photoacoustique sur des composés organiques volatils (COV), Bohren et Sigrist (BOHREN et SIGRIST 1997) ont utilisé un cristal non linéaire de Niobate de Lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ) pour réaliser une

conversion paramétrique par différence de fréquences (Difference Frequency Generation ou DFG) entre le faisceau principal d'un laser Nd :YAG à 1,064  $\mu\text{m}$  et le complémentaire d'un OPO commercial basé sur un cristal non linéaire  $\text{B}_a\text{B}_2\text{O}_4$  accordable entre 1,4  $\mu\text{m}$  et 1,85  $\mu\text{m}$ . La DFG permet alors d'émettre un faisceau complémentaire de longueur d'onde contrôlée entre 2,5  $\mu\text{m}$  et 4,5  $\mu\text{m}$ . Même si ce montage est assez complexe et fait intervenir plusieurs étages de conversion, il démontre bien la pertinence de l'utilisation des sources paramétriques optiques pour la spectroscopie photoacoustique. Il permet de sonder avec un seul et même instrument une largeur spectrale gigantesque de 2  $\mu\text{m}$ . Les puissances élevées des faisceaux permettent d'effectuer des détections sub-ppm notamment pour le méthane et l'isopentane.

La configuration SRO est utilisée dans la plupart des expériences de spectrométrie optique à ce jour. Leur seuil est assez élevé et requiert des lasers de pompe assez puissants par rapport aux DRO, ce qui en fait des systèmes relativement encombrants.

### **Des lacunes en termes de compacité et de robustesse**

Bien que les OPO aient démontré leur capacité à satisfaire les spécificités techniques pour la détection de gaz dans les années 2000, les questions de compacité et de robustesse ne sont pas toujours garanties. Ces deux paramètres sont pourtant essentiels pour que la technologie puisse être déployée plus largement hors des laboratoires.

La concurrence est rude entre les différentes sources pour la spectroscopie optique infrarouge. L'arrivée du laser à cascade quantique (FAIST et al. 1994) a marqué un tournant pour plusieurs raisons. Une fois qu'ils ont été amenés à fonctionner à température ambiante, leur application à la spectroscopie optique a été immédiate (NAMJOU et al. 1998). Nettement plus compacts que les systèmes OPO commerciaux, ils sont également en général plus robustes lors d'une utilisation sur le terrain et plus facile à mettre en œuvre. Bien que ses caractéristiques techniques ne soient pas forcément meilleures, avec notamment une accordabilité plutôt réduite et une puissance crête limitée généralement à quelques dizaines de milliwatts, il est souvent préféré par la communauté de la détection de gaz à l'état de traces. Pour prendre un exemple révélateur, la variante QEPAS de la photoacoustique est utilisée depuis les années 2000 en large majorité en combinaison avec un laser à semi-conducteur, que ce soit un laser à cascade quantique ou une diode laser. Les innovations des travaux de recherches rapportées portent en général sur un aspect sans rapport avec la source laser, et les auteurs semblent choisir leur source en fonction de leur disponibilité commerciale, leur compacité, leur simplicité d'utilisation et la possibilité d'accorder ou de moduler la longueur d'onde simplement.

### **Un potentiel de développement encore important pour les OPOs**

Pourtant, certaines configurations OPO combinées à des avancées récentes pourraient permettre de combler certaines lacunes et rééquilibrer la course à l'optimisation des sources

optiques pour la spectrométrie.

- L'utilisation d'architectures doublement résonantes (DRO) permet d'abaisser fortement les seuils d'oscillation en comparaison des SRO. Pour faire fonctionner les DRO, des lasers de pompe moins puissants et donc de taille réduite peuvent être mis en œuvre. Ces seuils réduits sont compatibles avec un pompage par diode laser comme cela a été démontré à de nombreuses reprises (LINDSAY et al. 1998; SCHEIDT et al. 1995). Ces architectures ont par contre longtemps été limitées par leur accordabilité difficile par rapport au SRO (ECKARDT et al. 1991), principalement due au fait que la cavité des deux ondes converties était commune. A partir des années 2000, de nouvelles solutions sont apparues pour lever cette limite, comme par exemple par l'asservissement en continu de la longueur d'onde de pompe (HENDERSON et al. 2000), ou encore grâce à la dissociation des cavités signal et complémentaire menant à des instruments compacts, monomodes et accordables comme par exemple le NesCOPO (Nested Cavities OPO) breveté à l'ONERA (HARDY et al. 2011; HARDY-BARANSKI 2011; RAYBAUT et al. 2011) et illustré sur la figure 5.3.

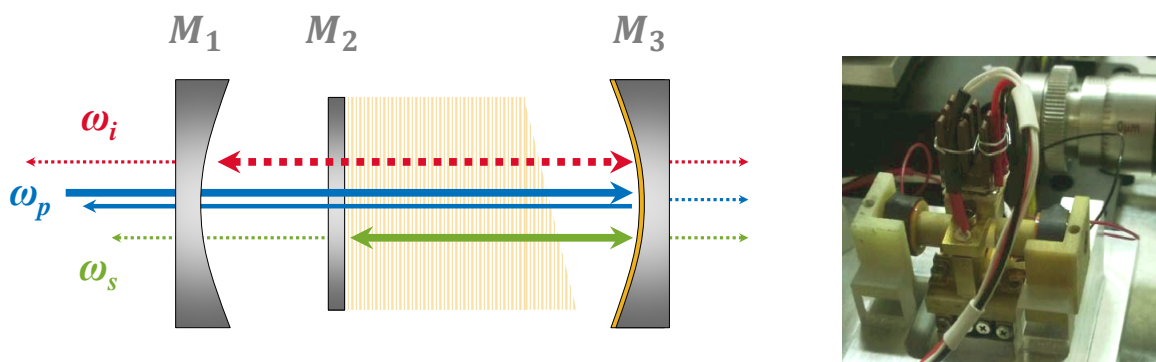


FIGURE 5.3 – Schéma d'un NesCOPO (gauche) et photo d'un OPO démontrant la compacité accrue de l'OPO.

- Des études visent actuellement à porter tout le développement effectué concernant les OPO sur des support intégrés et ainsi atteindre des compacités comparables à celles des lasers à semi-conducteur (voir par exemple (SAVANIER et al. 2013)).
- Bien souvent, la façon dont l'énergie de pompe disponible est distribuée dans le temps est imposée par la physique du système. C'est par exemple le cas lors de l'utilisation de lasers déclenchés, qui entraîne la génération d'impulsions quasi-gaussiennes dont la durée typique est de l'ordre de la nanoseconde. Les dernières avancées dans le domaine des lasers solides, et plus particulièrement l'essor des architectures de type Master Oscillator Fiber Power Amplifier (MOFPA (RICHARDSON et al. 2010)), permettent désormais de contrôler cet aspect pour les OPOs fonctionnant en régime impulsionnel aussi bien qu'en régime continu (BARRIENTOS BARRIA et al. 2013; KLEIN et al. 2003; SHEN et al. 2009). Ce nouveau paramètre de contrôle qui se libère entraîne avec lui de nombreuses

questions fondamentales. Quelle est l'influence de la durée des impulsions sur l'efficacité des OPOs ? Quelle est l'influence de leur forme en terme de variation dans le temps ? Si l'on utilise de nouvelles formes, le comportement spectral en est-il modifié ? Quel choix est le plus judicieux pour une application telle que la spectroscopie photoacoustique ?

Pour la spectroscopie photoacoustique en particulier, on sait que le signal généré est proportionnel à la puissance moyenne de la source optique utilisée, résultat que nous avons démontré dans le chapitre 1. Les sources électromagnétiques présentant une puissance moyenne importante seront donc naturellement privilégiées. Les OPOs sont capables de délivrer de la puissance en continu (CW) à l'aide de lasers de pompe eux aussi continus, et leur efficacité de conversion peut atteindre des valeurs importantes dépassant 90% grâce à des architectures spécifiques (BOSENBERG et al. 1996). A condition que la puissance crête du laser de pompe soit finement ajustée en régime permanent, il est possible d'atteindre un rendement théorique de 100% de conversion vers les ondes signal et complémentaire, et toute perte d'énergie de pompe provient alors uniquement de la phase de construction. Le problème de l'intensité optimale du pompage en régime stationnaire est donc connu depuis longtemps (J. BJORKHOLM 1971 ; HARRIS 1969 ; ROSENCHER et FABRE 2002). En régime impulsionnel, comme illustré sur la figure 5.4, le problème reste entier.

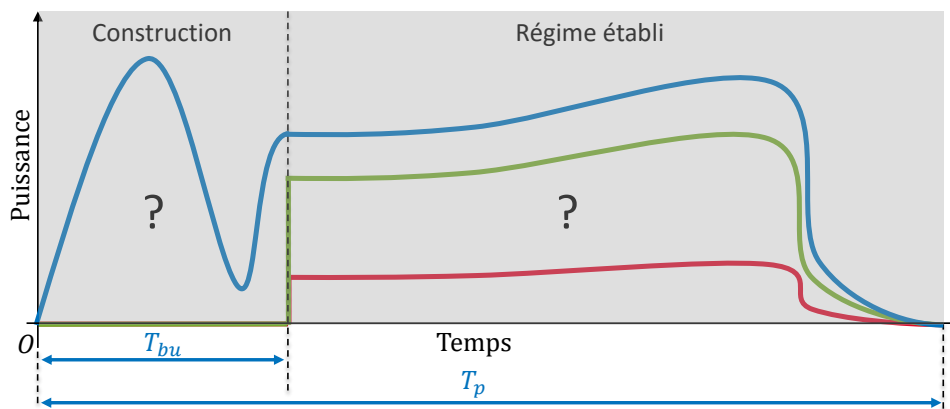


FIGURE 5.4 – Schéma illustrant le problème de la forme optimale des impulsions de pompe au cours des deux étapes temporelles successives intervenant en régime impulsionnel.

Au delà de la curiosité scientifique, l'optimisation de la forme temporelle du pompage des OPO en régime impulsionnel entraîne des conséquences pratiques directes, soit en permettant de réduire la taille du système tout en conservant une puissance moyenne inchangée, soit en conservant la taille du système tout en augmentant la puissance moyenne produite. Malheureusement, modifier ce paramètre de fonctionnement n'est pas sans conséquence quant au contenu spectral, en particulier pour le NesCOPO qui tire profit du régime impulsionnel bref pour brider la compétition de modes, et ainsi "forcer" une longueur d'onde précise à émettre. Lorsqu'on rallonge les impulsions, le comportement spectral est encore mal connu et pourrait rendre le NesCOPO inutilisable pour la spectroscopie.



Dans le cadre de l'utilisation de MOFPA pour modéliser les impulsions dans le temps, l'optimisation est d'autant plus importante que l'énergie totale disponible est relativement limitée. La puissance instantanée maximale est limitée par des non-linéarités du milieu, par exemple par la diffusion Brillouin stimulée lors d'un fonctionnement mono fréquence (KULCSAR et al. 2003). L'énergie totale extraite est quant à elle bornée par un multiple de l'énergie de saturation du milieu à gain, qui dépend lui de la configuration du laser. Il est généralement admis qu'il n'est pas possible d'extraire plus de 10 fois l'énergie de saturation, ce qui correspond à une limite de l'ordre de quelques centaines de microjoules pour un laser fibré typique (RENAUD et al. 2001).

## 5.2 Optimisation théorique de la forme et de la durée de l'impulsion de pompe

### 5.2.1 Position du problème en régime transitoire

Il est bien connu que l'efficacité de conversion est limitée au cours du régime impulsionnel car l'énergie délivrée au tout début du processus de conversion pour construire l'impulsion est perdue. Il est possible de réduire le temps de construction par un pompage largement au dessus du seuil ou bien en choisissant des miroirs de réflectivités élevées, mais ce choix ne fait qu'accroître la saturation qui a lieu après la construction de l'impulsion et une forte proportion des ondes qui avaient été générées par le processus paramétrique sont rétro-converties vers l'onde de pompe (SHAW 1997 ; SUTHERLAND 1996). A contrario, si l'énergie est délivrée sur un temps trop long, la puissance instantanée de la pompe est faible et le temps de construction est long, par conséquent le rendement de conversion paramétrique sera limité. Le temps de construction peut même croître jusqu'à dépasser la durée de l'impulsion ; aucune fréquence utile n'est alors émise. Le régime de fonctionnement optimal va donc devoir prendre en compte ces deux étapes de la dynamique de l'OPO, représentées sur la figure 5.4, à savoir :

- La période de construction qui intervient du début de l'impulsion jusqu'à l'instant où la pompe est fortement dépeuplée et que au moins une des deux ondes converties est observable sur un détecteur.
- La période courant de la fin de la période précédente jusqu'à la fin de l'impulsion, et qui représente un régime établi pour lequel au moins deux des ondes ont une amplitude comparable.

Le cas de la seconde période peut être résolu car le régime permanent est atteint rapidement. On peut alors utiliser le résultat stationnaire bien connu (ROSENCHER et FABRE 2002), qui montre que la forme optimale de pompage est une constante bien précise. Le problème se concentre donc autour de la forme optimale lors de la construction de l'OPO, comme illustré sur la figure 5.5.

Très peu de publications traitent de l'optimisation de la forme temporelle des im-

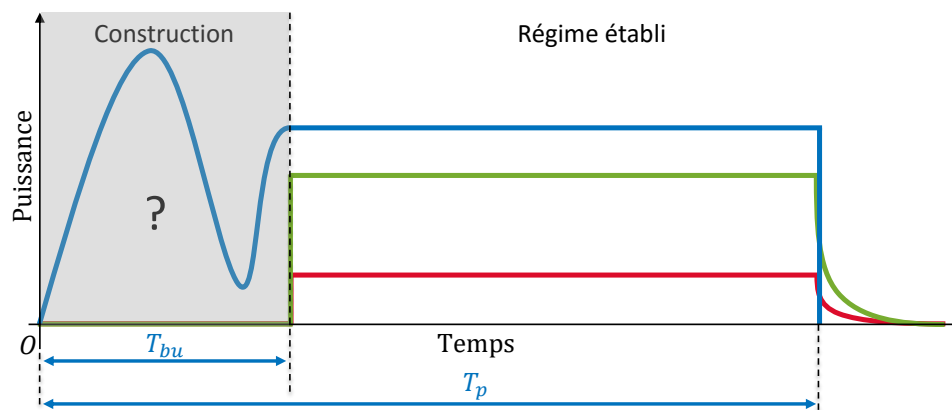


FIGURE 5.5 – Schéma illustrant le problème de la forme optimale des impulsions de pompe au cours de la construction de l'OPO.

pulsions de pompe pour les OPOs. De nombreux auteurs ont travaillé sur le temps de construction et les questions d'énergie de seuil dans les cas particulier du SRO et du BDRO (R L BYER 1977; GODARD et ROSENCHER 2004; PEARSON et al. 1972). Brosnan et Byer ont également traité en détail de l'énergie minimale pour construire l'impulsion d'un SRO, avec notamment la preuve que plus le pompage est bref, plus le seuil énergétique est bas. En revanche, ni la question de l'impulsion ni l'extension de leur travaux au cas du DRO quelconque ne sont traitées (BROSNAN et Robert L. BYER 1979).

Plaessmann *et al.* ont conduit une première étude qui utilisait un modulateur acousto-optique afin de modeler les impulsions issues d'un Laser Nd :YAG, puis un amplificateur a été utilisé avant introduction dans l'OPO (PLAESSMANN et al. 1996). Leur montage est très similaire au fonctionnement d'un MOFPA, mais ils étudient plus la capacité de modeler temporellement l'impulsion de pompe que le comportement qui peut être induit par de telles impulsions sur le fonctionnement de l'OPO. Plus récemment, Sacks *et al.* ont utilisé un MOFPA pour pomper un SRO, avec pour objectif explicite d'optimiser la forme de l'impulsion pour maximiser le rendement de conversion (SACKS et al. 2010). Ils comparent deux formes particulières, à savoir une gaussienne de 100 ns de largeur à mi-hauteur et une impulsion rectangulaire de 300 ns; et ils obtiennent une amélioration de 20 % de l'efficacité par l'utilisation d'un rectangle à la place d'une gaussienne.

Le problème de l'impulsion optimale a été résolu au cours de cette thèse. Le formalisme des équations dynamiques des OPOs a été étendu et résolu dans le cas général pour la première fois. La résolution de ce problème a permis de résoudre le problème de contrôle optimal qui vise à connaître la forme optimale du pompage lors de l'étape de construction de l'impulsion. Précédemment développé dans (GODARD et ROSENCHER 2004), ce formalisme avait permis de calculer le temps de construction des OPOs dans le cas particulier des SRO et des BDRO.

## 5.2.2 Les équations dynamiques : hypothèses, formulation et résolution

### Hypothèses, notations et rappels de l'amplification paramétrique

Nous allons rétablir dans un premier temps le système d'équations dynamiques couplées valable dans tout OPO linéaire avec retour de pompe. Son extension au cas des cavités en anneau, ou encore à l'absence de retour de pompe est néanmoins aisé. La géométrie générique considérée est présentée sur la figure 5.6. Elle couvre à la fois le cas du SRO (par exemple avec  $R_s = 0$ ), le cas du BDRO ( $R_s = R_c$ ) ainsi que le cas général du DRO ( $R_s \neq R_c$ ).  $L$  désigne la longueur totale de l'interaction non linéaire au cours d'un aller-retour des ondes en cavité.

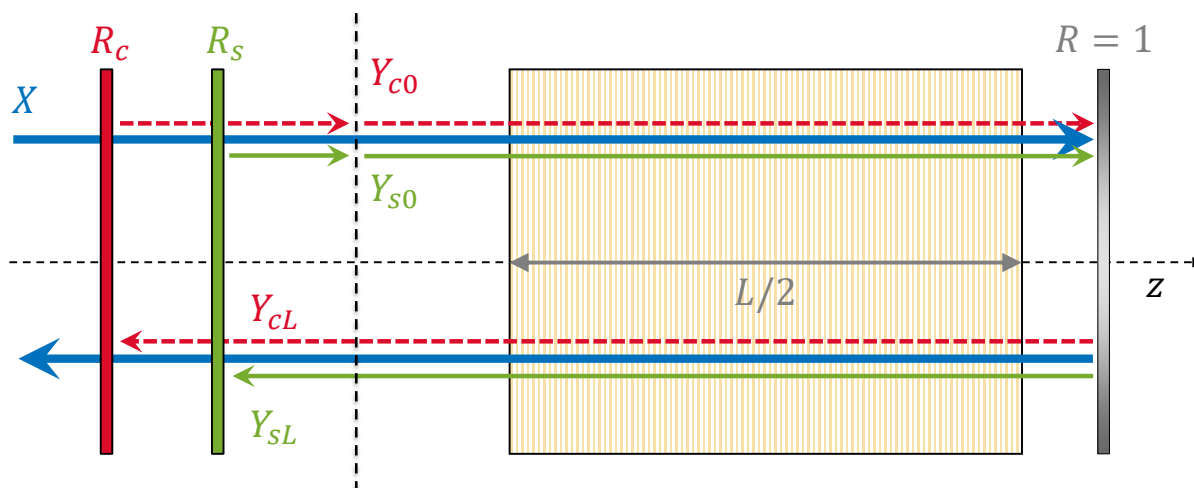


FIGURE 5.6 – Schéma d'un OPO générique avec retour de pompe.

On définit le champ électrique circulant à l'intérieur de la cavité par l'équation 5.1, avec  $m = s$  pour l'onde signal,  $m = c$  pour l'onde complémentaire, et  $m = p$  pour la pompe.

$$E_m(z) = \sqrt{\frac{\omega_m}{n_m}} a_{mz} e^{j\varphi_{mz}} e^{j(\omega_m t - k_m z)} \quad (5.1)$$

On utilisera également la notation contractée  $E_{mz} = E_m(z)$  avec  $z$  l'axe de propagation des faisceaux.  $n_m$  représente l'indice de réfraction du cristal pour l'onde  $m$ ,  $\omega_m$  sa fréquence angulaire et  $k_m = n_m \omega_m / c$  son vecteur d'onde. Le facteur de normalisation est choisi tel que  $p_m = a_m^2$  soit proportionnel au flux de photons  $\phi_m = p_m / (2\hbar Z_0)$ , avec  $\hbar$  la constante de Planck et  $Z_0$  l'impédance du vide ( $377 \Omega$ ).

Afin de simplifier notre démarche et mieux cerner la physique sous-jacente, nous nous placerons dans le cadre simplifié suivant :

- Nous utilisons le cadre des ondes planes collinéaires et nous supposons qu'elles ne subissent pas de walk-off lié à la biréfringence éventuelle du matériau non linéaire. Une extension au cas plus réaliste de modes gaussiens  $TEM_{00}$  serait néanmoins

aisée, d'une manière très similaire au travail décrit dans (BROSNAN et Robert L. BYER 1979; SCHWOB et al. 1998).

- Nous supposons un fonctionnement mono-fréquence à l'accord de phase parfait, c'est à dire tel que  $\Delta k = k_p - k_s - k_i = 0$ . Notre raisonnement pourrait également être étendu au cas d'un désaccord de phase imparfait, dans la mesure où une solution exacte aux équations de propagation existe (ARMSTRONG et al. 1962).
- Nous négligeons l'absorption et la dispersion des vitesses de groupe, bien que ces paramètres soient à prendre en compte dans le cas des OPO large bande. Ces effets ne peuvent être pris en compte que grâce à l'emploi de simulations numériques qui sont détaillées dans le chapitre 6.

En suivant le papier fondateur d'Armstrong *et al.* (ARMSTRONG et al. 1962), on peut donc obtenir l'amplitude des trois ondes après interaction paramétrique, prenant en compte tout effet éventuel de reconversion. Le système décrivant l'amplification paramétrique peut s'écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dz} a_{pz} = \kappa a_{cz} a_{sz} \sin \Delta\varphi(z), \\ \frac{d}{dz} a_{sz} = -\kappa a_{cz} a_{pz} \sin \Delta\varphi(z), \\ \frac{d}{dz} a_{cz} = -\kappa a_{sz} a_{pz} \sin \Delta\varphi(z), \\ \frac{d}{dz} \varphi_p(z) = -\kappa \frac{a_{cz} a_{sz}}{a_{pz}} \cos \Delta\varphi(z), \\ \frac{d}{dz} \varphi_s(z) = \kappa \frac{a_{cz} a_{pz}}{a_{sz}} \cos \Delta\varphi(z), \\ \frac{d}{dz} \varphi_c(z) = \kappa \frac{a_{sz} a_{pz}}{a_{cz}} \cos \Delta\varphi(z). \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (5.2a) \\ (5.2b) \\ (5.2c) \\ (5.2d) \\ (5.2e) \\ (5.2f) \end{array}$$

avec  $\kappa$  le coefficient de couplage non-linéaire  $\kappa = \chi^{(2)} / (2c) \sqrt{\omega_p \omega_s \omega_c / (n_p n_s n_c)}$ ,  $\chi^{(2)}$  la susceptibilité diélectrique du deuxième ordre et  $\Delta\varphi(z) = \varphi_p(z) - \varphi_s(z) - \varphi_c(z)$  le désaccord de phase. Les équations (5.2b)–(5.2a) décrivent l'évolution des amplitudes des trois ondes tandis que les équations (5.2e)–(5.2d) concernent l'évolution de leurs phases hormis le déphasage propagatif  $k_m z$  traité séparément. On peut déduire des équations (5.2) quatre invariants de la propagation au sein du cristal (dont seulement trois sont indépendants) :

$$\left\{ \begin{array}{l} m_1 = a_{sz}^2 + a_{pz}^2, \\ m_2 = a_{cz}^2 + a_{pz}^2, \\ m_3 = a_{sz}^2 - a_{cz}^2, \\ \Gamma = a_{pz} a_{sz} a_{cz} \cos \Delta\varphi(z). \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (5.3a) \\ (5.3b) \\ (5.3c) \\ (5.3d) \end{array}$$

Intégrant la propagation sur les équations (5.2) et en utilisant les constantes de la propagation (5.3), on obtient les solutions explicites bien connues qui s'expriment en termes de fonctions elliptiques de Jacobi :

$$a_{pz} = \sqrt{a_{p0}^2 + a_{s0}^2} \operatorname{sn} \left( -\kappa z \sqrt{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} + \operatorname{sn}^{-1} \left( \sqrt{\frac{a_{p0}^2}{a_{p0}^2 + a_{s0}^2}} \middle| \frac{a_{p0}^2 + a_{s0}^2}{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} \right) \middle| \frac{a_{p0}^2 + a_{s0}^2}{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} \right), \quad (5.4a)$$

$$a_{sz} = \sqrt{a_{s0}^2 - a_{c0}^2} \operatorname{sn} \left( j\kappa z \sqrt{a_{p0}^2 + a_{s0}^2} + \operatorname{sn}^{-1} \left( \sqrt{\frac{a_{s0}^2}{a_{s0}^2 - a_{c0}^2}} \middle| \frac{a_{s0}^2 - a_{c0}^2}{a_{p0}^2 + a_{s0}^2} \right) \middle| \frac{a_{s0}^2 - a_{c0}^2}{a_{p0}^2 + a_{s0}^2} \right), \quad (5.4b)$$

$$a_{cz} = -\sqrt{a_{c0}^2 - a_{s0}^2} \operatorname{sn} \left( j\kappa z \sqrt{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} + \operatorname{sn}^{-1} \left( \sqrt{\frac{a_{c0}^2}{a_{c0}^2 - a_{s0}^2}} \middle| \frac{a_{c0}^2 - a_{s0}^2}{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} \right) \middle| \frac{a_{c0}^2 - a_{s0}^2}{a_{p0}^2 + a_{c0}^2} \right). \quad (5.4c)$$

La fonction elliptique de Jacobi  $\operatorname{sn}$  est définie par son inverse comme suit :

$$\operatorname{sn}^{-1}(z | \alpha) = \int_0^z \frac{du}{\sqrt{(1-u^2)(1-\alpha u^2)}}. \quad (5.5)$$

Nous avons donc établi le lien entre l'état des ondes avant et après la traversée du cristal.

### Obtention du système dynamique

En utilisant les équations (5.4) valides pour un aller-retour, on peut en déduire les équations dynamiques de l'OPO gouvernant l'évolution dans le temps des ondes en cavité. Pour ce faire, nous allons étendre le formalisme introduit par Godard *et al.* (GODARD et ROSENCHER 2004) au cas général de l'OPO générique représenté sur la figure 5.6. Le point de départ demeure identique : il nous faut relier l'état des ondes d'un tour de cavité  $n$  à leur état au tour  $(n + 1)$ .

Poursuivant notre idée de simplification, nous supposons que la pulsation  $\omega_s$  (respectivement  $\omega_c$ ) correspond à un mode de cavité froide pour la cavité signal (resp. complémentaire), de telle sorte que la phase totale acquise au cours d'un aller-retour par les ondes signal et complémentaire soit un multiple de  $2\pi$ . Un désaccord pourrait néanmoins être considéré (ROSENCHER et FABRE 2002). Nous supposons également que la phase relative non linéaire converge instantanément vers sa valeur garantissant un rendement de conversion optimal  $\Delta\varphi = -\pi/2$  à l'entrée  $z = 0$  du cristal. En pratique, le temps requis pour une telle convergence est négligeable (de l'ordre du temps d'aller-retour  $\tau_m$ ) par rapport au temps caractéristique de la dynamique qui nous intéresse ici. D'après les équations (5.2), cela implique que les déphasages  $\varphi_m(z)$  sont constants le long de la propagation dans le cristal. Dans le cas du double passage de pompe, on suppose également que la phase relative reste constante entre deux passages successifs dans le cristal. Avec

ces hypothèses, les phases de chaque champ électrique circulant dans la cavité satisfont la relation d'entrée-sortie suivante :

$$\varphi_{m0}^{(n+1)} = \varphi_{m0}^{(n)} + k_m L + \Theta_m + \frac{\omega_m}{c} L'_m, \quad (5.6)$$

avec  $\Theta_m$  et  $L'_m$  représentant respectivement le déphasage des miroirs et la longueur optique à l'extérieur du cristal. Puisque  $k_m L + \Theta_m + \omega_m L'_m/c = 2\pi q_m$  avec  $q_m$  un entier ( $\omega_m$  est une fréquence angulaire propre de la cavité froide), on peut en conclure que les phases  $\varphi_{mz}$  restent constantes au cours des allers-retours. En conséquence,  $\Delta\varphi$  reste lui aussi constant et égal à  $-\pi/2$  au cours des allers-retours.

Établissons maintenant les relations entre la puissance entrant dans le cristal au cours de l'aller-retour numéro  $n$  et notée  $p_{m0}^{(n)} = (a_{m0})^2$  avec la quantité correspondante  $p_{m0}^{(n+1)}$  au tour numéro  $(n+1)$ . La relation entre  $p_{m0}^{(n)}$  et  $p_{mL}^{(n)}$  peut être obtenue directement à l'aide de l'équation (5.4). En notant  $R_s$  (respectivement  $R_c$ ) la réflectivité totale des miroirs acquise au cours d'un aller-retour par l'onde signal (respectivement complémentaire), on peut également écrire la condition aux limites  $R_s p_{sL}^{(n)} = p_{s0}^{(n+1)}$  (respectivement  $R_c p_{cL}^{(n)} = p_{c0}^{(n+1)}$ ). Aucune équation portant sur la pompe n'est nécessaire dans la mesure où elle est supposée non résonante. A l'aide de l'approximation  $p_{m0}^{(n+1)} - p_{m0}^{(n)} \approx \tau_m dp_{m0}/dt$ , deux équations différentielles couplées décrivant l'évolution temporelle des intensité signal et complémentaire peuvent être écrites, en supposant que toute injection éventuelle est éteinte à  $t = 0$  :

$$\begin{cases} \tau_s \frac{d}{dt} Y_s = R_s (Y_s - Y_c) F[X, Y_s, Y_c] - Y_s, & (5.7a) \\ \tau_c \frac{d}{dt} Y_c = R_c (Y_c - Y_s) F[X, Y_c, Y_s] - Y_c, & (5.7b) \end{cases}$$

avec la fonction  $F$  définie comme suit :

$$F[X, Y_1, Y_2] \equiv \operatorname{sn}^2 \left( j\theta \sqrt{X + Y_1} + \operatorname{sn}^{-1} \left( \sqrt{\frac{Y_1}{Y_1 - Y_2}} \left| \frac{Y_1 - Y_2}{X + Y_1} \right| \right) \left| \frac{Y_1 - Y_2}{X + Y_1} \right. \right) \quad (5.8)$$

Dans la définition précédente, on a utilisé le sinus elliptique de Jacobi  $\operatorname{sn}$  défini par l'équation (5.5) et  $\tau_m$  le temps d'aller-retour de l'onde  $m$ ,  $Y_s = p_{s0}/p_{p,\text{th}}$ ,  $Y_c = p_{c0}/p_{p,\text{th}}$  et  $X = p_{p0}/p_{p,\text{th}}$  les variables réduites, normalisées par rapport au seuil continu de puissance de pompe (ROSENCHER et FABRE 2002) :

$$p_{p,\text{th}} = \left[ \frac{1}{\kappa L} \ln \left( \frac{\sqrt{1 - R_s} + \sqrt{1 - R_c}}{\sqrt{(1 - R_s)R_c} + \sqrt{(1 - R_c)R_s}} \right) \right]^2. \quad (5.9)$$

On a également introduit le paramètre  $\theta$  pour la suite des calculs :

$$\theta = \ln \left( \frac{\sqrt{1-R_s} + \sqrt{1-R_c}}{\sqrt{(1-R_s)R_c} + \sqrt{(1-R_c)R_s}} \right). \quad (5.10)$$

Il est cependant possible de réécrire le système 5.7 sous une forme découplée, ce qui n'a pas encore été proposé dans la littérature. La clef de ce découplage consiste à remarquer que l'on peut introduire une nouvelle variable  $Z = \sqrt{Y_s/Y_c}$ , qui suit alors une nouvelle équation différentielle ne faisant intervenir que  $Z$  et  $X$  :

$$2\tau_s\tau_c Z \frac{d}{dt} Z = \tau_c \left( R_s \left[ Z \cosh(\theta\sqrt{X}) + \sinh(\theta\sqrt{X}) \right]^2 - Z^2 \right) - \tau_s Z^2 \left( R_c \left[ Z \sinh(\theta\sqrt{X}) + \cosh(\theta\sqrt{X}) \right]^2 - 1 \right). \quad (5.11)$$

Le terme de droite de l'équation (5.11) est un polynôme réel d'ordre 4 par rapport à la variable  $Z$  et sa factorisation ne semble pas aisée. Supposons maintenant que le temps d'aller-retour des ondes signal et complémentaire est identique ( $\tau_s = \tau_c = \tau$ ).

On introduit  $r = \sqrt{R_s/R_c}$ , la fonction  $G(X,Z) = \left[ Z(X) \sinh(\theta\sqrt{X}) + \cosh(\theta\sqrt{X}) \right]^2$  que l'on appellera le gain ainsi que deux polynômes  $P_1$  et  $P_2$  tels que :

$$P_1(Z) = Z^2 + Z(1-r) \coth(\theta\sqrt{X}) - r, \quad (5.12a)$$

$$P_2(Z) = Z^2 + Z(1+r) \coth(\theta\sqrt{X}) + r, \quad (5.12b)$$

Le nouveau système découplé équivalent à 5.7 est donc :

$$\begin{cases} 2\tau_s\tau_c Z \frac{d}{dt} Z = -\tau R_c \sinh^2(\theta\sqrt{X}) P_1(Z)P_2(Z), & (5.13a) \\ Y_c(t) = Y_c(0) \exp\left(\frac{1}{\tau} \int_0^t [R_c G(X,Z) - 1] dt\right). & (5.13b) \end{cases}$$

### 5.2.3 Résultats et discussion

#### Solution formelle

On peut reconnaître dans l'équation (5.11) une équation à variables séparables puisqu'elle ne dépend pas explicitement du temps. Le polynôme du second degré  $P_1(Z)$  possède toujours deux racines réelles :

$$Z_{a,b} = \frac{1}{2} \left[ (r-1) \coth(\theta\sqrt{X}) \pm \sqrt{4r + (r-1)^2 \coth^2(\theta\sqrt{X})} \right]. \quad (5.14)$$

Le polynôme du second ordre  $P_2(Z)$  possède également toujours deux racines réelles :

$$Z_{c,d} = \frac{1}{2} \left[ -(r+1) \coth(\theta\sqrt{X}) \pm \sqrt{-4r + (r+1)^2 \coth^2(\theta\sqrt{X})} \right]. \quad (5.15)$$

Il est évident que  $Z_a$  est toujours positive alors que  $Z_b$ ,  $Z_c$ , et  $Z_d$  seront toujours négatives. Par une décomposition en éléments simples, du terme

$$\frac{-2\tau Z}{R_c \sinh^2(\theta\sqrt{X}) P_1(Z)P_2(Z)} \equiv Q(Z) = \frac{a}{Z - Z_a} + \frac{b}{Z - Z_b} + \frac{c}{Z - Z_c} + \frac{d}{Z - Z_d}, \quad (5.16)$$

avec  $a, b, c, d$  des fonctions ne dépendant que de  $R_s, R_c$ , et de  $X$ . La solution de l'équation (5.11) vérifie donc :

$$\prod_{k=a,b,c,d} |Z(t) - Z_k|^k = e^t \prod_{k=a,b,c,d} |Z(0) - Z_k|^k. \quad (5.17)$$

On trouve :

$$\left\{ \begin{array}{l} a = \frac{-\tau Z_a}{\sqrt{R_s R_c} \sinh^2(\theta\sqrt{X}) [Z_a - Z_b] [1 + Z_a \coth(\theta\sqrt{X})]}, \\ b = \frac{-\tau Z_b}{\sqrt{R_s R_c} \sinh^2(\theta\sqrt{X}) [Z_b - Z_a] [1 + Z_b \coth(\theta\sqrt{X})]}, \\ c = \frac{\tau Z_c}{\sqrt{R_s R_c} \sinh^2(\theta\sqrt{X}) [Z_c - Z_d] [1 + Z_c \coth(\theta\sqrt{X})]}, \\ d = \frac{\tau Z_d}{\sqrt{R_s R_c} \sinh^2(\theta\sqrt{X}) [Z_d - Z_c] [1 + Z_d \coth(\theta\sqrt{X})]}. \end{array} \right.$$

### Convergence et solutions

$Z$  ne peut tendre vers l'infini car on peut vérifier que  $a + b + c + d = 0$ . Il reste donc deux possibilités pour la variable  $Z$  :

- Si  $Z(0)$  est égale à l'une des racines  $Z_i$ , alors  $Z(t) = Z(0)$  à tout instant en vertu du théorème de Cauchy–Lipschitz. Physiquement, cela signifie que si le ratio de puissance entre l'onde signal et complémentaire prend à un instant  $t_e$  une valeur égale à la racine de l'un des deux polynômes  $P_1$  ou  $P_2$ , alors ce ratio ne changera plus de valeur ultérieurement (pour  $t > t_e$ ).
- Si  $Z(0)$  n'est pas égale à l'une des racines des deux polynômes, on montre en prenant la limite  $t \rightarrow +\infty$  dans l'équation (5.17) que  $Z$  tend nécessairement vers l'une des deux racines de  $P_1$  ou  $P_2$ .

$Z(t)$  converge donc vers la racine de l'un des deux polynômes  $P_1$  ou  $P_2$  dans tous les cas, c'est à dire quelle que soit la condition initiale.

Si  $Z_a > Z(0) > 0$ ,  $Z(t)$  va croître de manière monotone vers  $Z_a$  (la dérivée de  $Z(t)$  est toujours positive dans cet intervalle d'après l'équation (5.11)). Si  $Z_a < Z(0)$ ,  $Z(t)$  va décroître de manière monotone vers  $Z_a$  (la dérivée de  $Z(t)$  est toujours négative sur cet intervalle).  $Z_a$  constitue donc la seule limite possible pour  $Z(t)$  pour toute condition initiale positive, et il l'approche de manière monotone.



En rapportant la variable de découplage dans le système différentiel initial (5.13), on obtient l'équation gouvernant le comportement du complémentaire au cours de la construction de l'OPO :

$$\tau \frac{d}{dt} Y_c = \left( R_c \left[ Z(t) \sinh(\theta\sqrt{X}) + \cosh(\theta\sqrt{X}) \right]^2 - 1 \right) Y_c. \quad (5.19)$$

L'expression précédente suppose que  $R_c$  est non nul. Si c'est pourtant le cas, il suffit de considérer  $Z = \sqrt{Y_c/Y_s}$  comme variable de découplage.

Dans le cadre de l'application au cas particulier du BDRO rapporté par Godard *et al.* (GODARD et ROSENCHER 2004), la racine  $Z_a$  se réduit simplement à  $Z_a = 1$ . Dans ce cas, et si l'oscillation démarre du bruit quantique pour les ondes signal et complémentaire, leurs amplitudes initiales sont très proches l'une de l'autre et on peut écrire  $Z(0) \approx \sqrt{1/1} = 1$ . D'après notre analyse, cela implique l'égalité  $Y_s(t) = Y_c(t)$  à tout instant. Le découplage est alors trivial et les deux ondes ont une croissance exponentielle avec un temps caractéristique  $\tau_{\text{DRO}} = \tau_s / \left[ R_s \exp(2\theta\sqrt{X}) - 1 \right]$ , avec  $\theta = \ln(1/\sqrt{R_s})$ . Même si l'argument utilisé par Godard *et al.* (GODARD et ROSENCHER 2004) est erroné (L'égalité y est justifiée par l'état stationnaire pourtant jamais atteint), le résultat demeure correct à condition que les conditions initiales aient une amplitude proche du bruit quantique.

On peut également vérifier que la racine  $Z_a$  n'est jamais trop éloignée de l'unité pour des DRO typiques. Ceci est dû au fait que les réflectivités des cavités signal et complémentaire sont souvent proches l'une de l'autre, et on se rapproche donc du cas du BDRO.

On peut enfin étudier la rapidité de la convergence, ce qui nous sera utile par la suite. Supposons que l'OPO se situe dans un état stationnaire au temps  $t = t_0^-$ , sous un pompage constant  $X = X_0$ . On peut alors écrire que  $Z = Z_{a0}$  à cet instant d'après ce qui précède. On impose à partir de  $t = t_0$  un nouveau pompage légèrement différent  $X$ . En écrivant  $Z(t) = Z_a + \delta Z(t)$ , on obtient à l'aide de l'équation 5.17 :

$$\delta Z(t) = e^{t/a} (Z_{a0} - Z_a) \prod_{k=a,b,c,d} \left| \frac{Z_{a0} - Z_k}{\delta Z(t) + Z_a - Z_k} \right|^{k/a}. \quad (5.20)$$

Dans la mesure où  $Z_a$  est la seule racine positive, le produit de l'équation 5.20 tendra toujours vers une constante à mesure que  $\delta Z \rightarrow 0$ , ce qui montre que la convergence est contrôlée par le paramètre  $a$  donné par l'équation 5.18. On peut montrer que sa valeur, qui correspond donc à l'inverse du nombre d'aller-retour requis pour atteindre le nouvel état stationnaire  $Z_a$ , est élevée pour tout couple de réflectivités  $(R_s, R_c)$ . Si le temps caractéristique des variations du laser de pompe est supérieur à quelques temps d'aller-retours des ondes en cavité, on peut donc éliminer adiabatiquement la variable  $Z$  dans le système 5.13 et supposer qu'elle est toujours égale à  $Z_a$  (équation 5.14).

### 5.2.4 Impulsion optimale et temps de construction

On suppose que le temps pour passer de la zone de construction à la zone établie est négligeable, ce qui est vérifié en pratique pour des impulsions de temps caractéristique supérieur à la nanoseconde. On a posé dans la partie précédente tous les outils et résultats qui vont nous permettre de déterminer la forme optimale.

#### Le problème de contrôle optimal

On rappelle que le temps de construction d'un OPO est défini comme la durée  $T_{bu}$  nécessaire pour que le signal ou le complémentaire atteigne une valeur observable  $Y_\infty$  à partir de  $Y(0) = Y_0$ . Ce temps va entre autre dépendre de la distribution de l'énergie de pompe dans le temps, comme on peut le voir sur l'équation 5.13b. La "trajectoire" suivie par le nombre de photons au cours du temps  $Y(t)$  est donc potentiellement toute courbe liant  $Y_0$  et  $Y_\infty$ . Le taux de pompage  $X$  au cours du temps constitue alors un paramètre de contrôle qui va nous permettre de fixer une trajectoire particulière parmi l'infini des possibles.

On définit la fonction d'objectif  $K(X,Z,T)$  et la fonction de coût  $E(X,T)$  de la manière suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} K(X,Z,T) = \int_0^T [R_c G(X,Z,t) - 1] dt \\ E(X,T) = \int_0^T X(t) dt. \end{array} \right. \quad (5.21a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} K(X,Z,T) = \int_0^T [R_c G(X,Z,t) - 1] dt \\ E(X,T) = \int_0^T X(t) dt. \end{array} \right. \quad (5.21b)$$

La construction est terminée dès l'instant  $T_{bu}$  où la condition  $K(X,Z,T_{bu}) = \tau \ln(Y_\infty/Y_0)$  est vérifiée. L'énergie (normalisée à la puissance de pompe seuil en régime permanent) dépensée au cours du processus est alors donnée par  $E(X,T_{bu})$ . On introduit parfois le paramètre  $\alpha = \ln(Y_\infty/Y_0)$  pour représenter le nombre d'ordres de grandeur séparant les valeurs de départ et d'arrivée de la trajectoire. On impose également des limitations sur l'ensemble des formes possibles pour le pompage :

- On suppose  $0 \leq X(t) \leq M$ , avec  $M$  désignant le taux de pompage maximal du laser, et qui est défini en pratique par les spécifications techniques du laser.
- $X(t) \in C_{pw}^1$ , avec  $C_{pw}^1$  l'ensemble des fonctions continues par morceau et continûment différentiables. Nous chercherons notre optimum parmi ces fonctions, dans la mesure où il couvre l'ensemble des formes réalisables en pratique.

Le problème de contrôle optimal consiste à minimiser l'énergie  $E(X,T[X])$  sur l'ensemble des fonctions capables de construire l'OPO, c'est à dire telles que  $K(X,Z,T[X]) \geq \alpha\tau$ . On introduit dès à présent une nouvelle fonction  $f(X,Z) = (R_c G[X,Z] - 1)/X$  et qui va s'avérer être d'une importance significative. D'après le système 5.13, on peut dire que  $Xf(X,Z)$  représente le taux de croissance du nombre de photons par aller-retour dans la cavité. Contenant la non-linéarité du processus de conversion, la fonction  $f$  peut être interprétée comme étant une correction de l'efficacité du taux de pompage  $X$  sur la

rapidité de la croissance du nombre de photons convertis par rapport au cas linéaire. La recherche de son maximum va naturellement constituer la clef pour résoudre le problème. La stratégie va consister à montrer que pour toute trajectoire possible, il serait plus efficace de dépenser son énergie sous la forme d'une nouvelle trajectoire rectangulaire bien particulière.

### Une solution exacte : le cas du SRO

On va d'abord se placer dans le cas simplifié du SRO pour lequel on a par exemple  $R_s = 0$ . Le rapport des amplitudes du champ électrique  $Z$  étant constant et égal à 0, une solution analytique exacte peut être obtenue. La fonction de gain se réduit à  $G(X, Z) = \cosh^2 \theta \sqrt{X}$  avec  $\theta = \cosh^{-1} \left( 1/\sqrt{R_c} \right)$ .

Prenons une trajectoire quelconque  $X_p(t)$  dans  $C_{pw}^1$ . On lui associe une forme rectangulaire  $O_p(t) = M \mathbb{1}(t \leq E(X_p, T[X_p])/M)$  ayant la même énergie que  $X_p(t)$  ( $\mathbb{1}$  représente la fonction de Heaviside). Cette forme associée possède la puissance crête maximale autorisée pour ce laser, et sa durée est une conséquence de l'énergie disponible dans la trajectoire  $X_p(t)$ . La fonction  $f$  dans le cas du SRO se réduit à  $f(X) = (R_c \cosh^2 \theta \sqrt{X} - 1)/X$ , et on peut en donner une représentation graphique sur la figure 5.7 pour trois valeurs particulières de la réflectivité effective du SRO. L'étude de ses variations montre qu'elle est toujours croissante quelle que soit cette réflectivité.

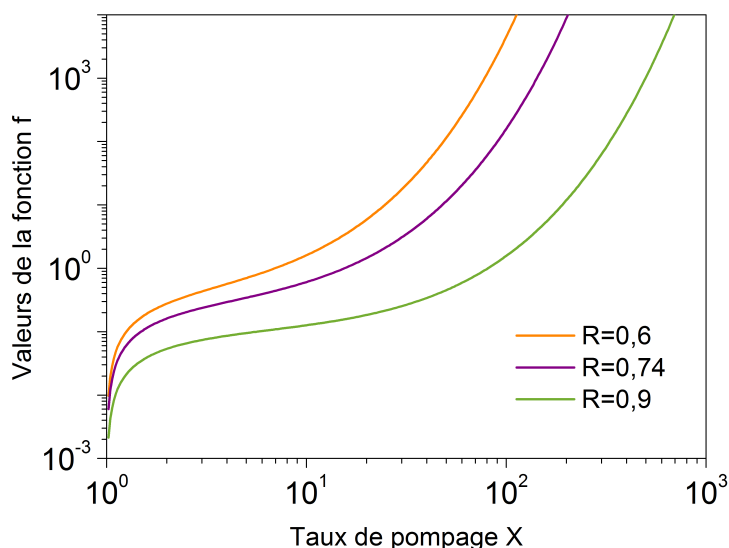


FIGURE 5.7 – Représentation de la fonction  $f$  pour un SRO, pour trois valeurs différentes de sa réflectivité effective.

On peut donc écrire l'équation 5.22 ci dessous :

$$\forall t \in [0, T[X_p]], \frac{(R_c \cosh^2 \theta \sqrt{M} - 1)}{M} \geq \frac{(R_c \cosh^2 \theta \sqrt{X_p(t)} - 1)}{X_p(t)} \quad (5.22)$$

En intégrant cette dernière relation, on obtient :

$$\frac{\int_0^{T[X_p]} X_p dt}{M} (R_c \cosh^2 \theta \sqrt{M} - 1) \leq \int_0^{T[X_p]} (R_c \cosh^2 \theta \sqrt{X_p(t)} - 1) dt \quad (5.23)$$

On reconnaît dans l'équation 5.23 la relation  $K(O_p, E[X_p]/M) \geq K(X_p, T[X_p])$ , ce qui signifie que  $O_p$  est déjà parvenu à construire l'OPO avant l'instant  $t = E[X_p]/M$ . Puisque  $K(O_p, 0) = 0$ , il est donc possible de trouver un instant antérieur  $T^* \leq E[X_p]/M$  tel que  $K(O_p, T^*) = K(X_p, T[X_p])$ . Le rectangle  $O_p^*(t) = M \cdot \mathbf{1}(t \leq T^*)$  satisfait alors  $E[O_p^*] = MT^* \leq E[X_p]$ , et nécessite donc moins d'énergie que  $X_p$  pour construire l'OPO. Ce rectangle est donc au moins aussi bon que  $X_p$ .

On en conclut donc que la forme optimale pour construire un SRO est un rectangle dont le taux de pompage est  $M$  et satisfaisant  $K(M, T_{bu}) = \alpha\tau$ . Cette dernière expression nous permet de retrouver l'expression déjà connue du temps de construction d'un SRO lors d'un pompage constant :

$$T_{bu} = \frac{\alpha\tau}{(R_c \cosh^2 \theta \sqrt{M} - 1)} \quad (5.24)$$

On rappelle également que l'on obtient la valeur du taux de pompage optimal en régime permanent en utilisant l'équation 5.2a qui doit satisfaire  $u_{pL} = 0$  (toute la pompe est convertie), qui donne après calculs (ROSENCHER et FABRE 2002) :

$$X_{opt,cw} = (R_c^{-1} - 1) I [R_c^{-1} - 1] / \theta^2 \quad (5.25)$$

avec  $I$  l'intégrale définie par  $I(m) = \int_0^1 \frac{dt}{\sqrt{(1-t^2)(1-mt^2)}}$ . Il est connu que  $X_{opt,cw}$  est

faiblement dépendant de  $R_c$  (pour des valeurs allant de 0.5 à 0.99) et vaut  $X_{opt,cw} \sim \frac{\pi^2}{4}$ .

Étant donnée une énergie  $E$  (normalisée à la puissance de pompe seuil en régime permanent), la durée totale de l'impulsion est donnée par  $T_p = T_{bu} + (E - MT_{bu}) / X_{opt,cw}$ , et l'impulsion optimale du SRO est donnée par l'équation 5.26 et représentée sur la figure 5.8.

$$X_{opt,SRO}(t) = \begin{cases} M & \text{si } 0 \leq t \leq T_{bu} \\ X_{opt,cw} & \text{si } T_{bu} \leq t \leq T_p \end{cases} \quad (5.26)$$

Notre formalisme n'est valide que si le temps de construction est au moins égal au temps d'aller-retour des ondes en cavité. Pourtant, il se peut que le taux de pompage maximal  $M$  soit suffisant pour construire l'OPO en moins d'un aller-retour. Dans ce cas, une reconversion intervient au cours du premier aller-retour, ce qui n'est à l'évidence pas optimal du point de vue de la conversion. L'impulsion optimale lors de la construction devient alors celle qui construit l'OPO en exactement un aller-retour, et satisfait donc :

$$X_{opt,bu} = \left( \frac{\cosh^{-1} \left[ \sqrt{\frac{1+\alpha}{R_c}} \right]}{\cosh^{-1} \left[ \frac{1}{\sqrt{R_c}} \right]} \right)^2 \quad (5.27)$$

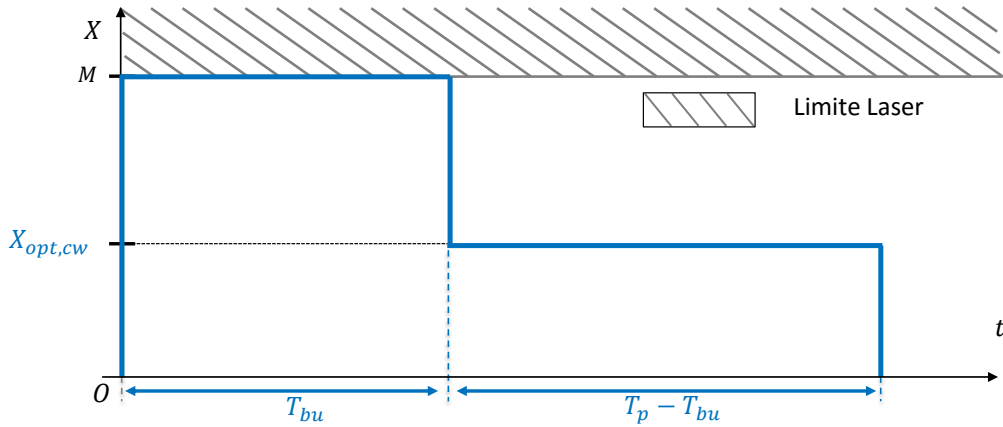
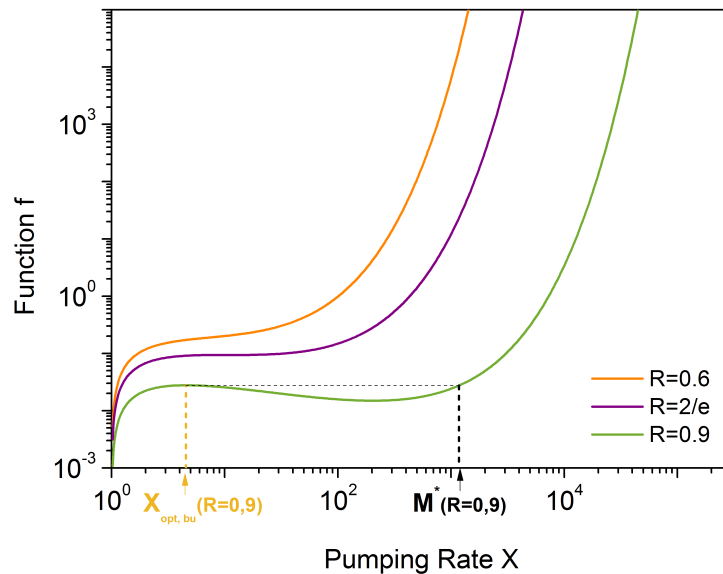


FIGURE 5.8 – Impulsion de pompe optimale pour un SRO.

$$X_{opt,SRO}(t) = \begin{cases} X_{opt,bu} & \text{if } 0 \leq t \leq T_{bu} \\ X_{opt,cw} & \text{if } T_{bu} \leq t \leq T_p \end{cases} \quad (5.28)$$

### Une autre solution exacte : le cas du BDRO

Le BDRO est caractérisé par  $R_c = R_s = R$  et donc  $\theta = \ln(1/\sqrt{R})$ . En supposant que les ondes signal et complémentaire démarrent du bruit quantique, la variable de découplage  $Z$  est constante et égale à 1 à tout instant. La fonction de gain s'écrit alors  $G(X,Z) = e^{2\theta\sqrt{X}}$  et la fonction  $f$  devient  $f(X) = (Re^{2\theta\sqrt{X}} - 1)/X$ . L'étude des variations de la fonction  $f$  fait désormais apparaître un maximum local pour des réflectivités suffisantes, comme le montre la figure 5.9.


 FIGURE 5.9 – Représentation de la fonction  $f$  pour un BDRO en fonction du taux de pompage, pour trois valeurs différentes de sa réflectivité effective.

Dans le cas où  $R \in [0, 2/e \approx 0,74]$ , on peut montrer que la fonction  $f$  est toujours

croissante. En reprenant le raisonnement détaillé dans le cas du SRO, on peut conclure que la forme optimale est un rectangle et que la puissance crête doit être égale au maximum autorisé pour le laser utilisé  $X_{opt, bu} = M$ . Le temps de construction est toujours défini par  $K(M, T_{bu}) = \alpha\tau$ , et on retrouve également l'expression déjà connue du temps de construction d'un BDRO quand celui-ci est pompé à une valeur constante  $T_{bu} = \alpha\tau / (R^{1-\sqrt{M}} - 1)$ .

Dans le cas où  $R \in [2/e, 1]$ , la fonction  $f$  augmente jusqu'à un maximum local que l'on notera  $X^*$ , puis décroît avant de finalement croître à nouveau vers l'infini. Ce maximum local vérifie la relation  $f'(X^*) = 0$ , c'est à dire :

$$1 = R^{1-\sqrt{X^*}} \left[ 1 - \frac{1}{2} \ln(R) \sqrt{X^*} \right] \quad (5.29)$$

En notant  $W$  la fonction  $W$  de Lambert (définie par  $x = W(x)e^{W(x)}$ ), ce maximum local peut être exprimé explicitement :

$$X^* = \left[ \frac{1}{\ln(R)} \left( 2 + W\left(\frac{-2}{Re^2}\right) \right) \right]^2 \quad (5.30)$$

Si  $f(X^*) \leq f(M)$ , l'équation 5.22 adaptée au cas du BDRO est toujours valide et on revient à la même solution que dans le cas où  $R \in [0, 2/e]$  : un pompage maximal est optimal. Sinon,  $f(X^*) \geq f(M)$  et on peut écrire une nouvelle inégalité toujours valide quelle que soit la trajectoire  $X_p(t)$  :

$$\forall t \in [0, T[X_p]], \frac{R^{1-\sqrt{X^*}} - 1}{X^*} \geq \frac{R^{1-\sqrt{X_p(t)}} - 1}{X_p(t)} \quad (5.31)$$

A partir de cet instant, le même raisonnement que dans le cas du SRO en remplaçant  $M$  par  $X^*$  est valide. Par conséquent, le rectangle est la forme optimale et sa puissance crête normalisée doit être égale à  $X_{opt, bu} = X^*$ . Le temps de construction est alors donné par l'équation suivante :

$$T_{bu} = \frac{\alpha\tau}{R^{1-\sqrt{X_{opt, bu}}} - 1} \quad (5.32)$$

On rappelle que dans le cas du BDRO, le taux de pompage optimal en régime permanent est donné par (ROSENCHER et FABRE 2002) :

$$X_{opt, cw} = (1 - R) \left( 1 - 2 \frac{\ln(1 + \sqrt{1 - R})}{\ln R} \right)^2 \quad (5.33)$$

Pour des hautes réflectivités ( $R > 0,9$ ), on a  $X_{opt, cw} \simeq 4$ . Étant donné une énergie  $E$  (normalisée à la puissance de pompe seuil en régime permanent), la durée totale de l'impulsion est donnée par  $T_p = T_{bu} + (E - MT_{bu}) / X_{opt, cw}$ , et l'impulsion optimale du BDRO est donnée par l'équation 5.34 et représentée sur la figure 5.10.

$$X_{opt, BDRO}(t) = \begin{cases} X_{opt, bu} & \text{if } 0 \leq t \leq T_{bu} \\ X_{opt, cw} & \text{if } T_{bu} \leq t \leq T_p \end{cases} \quad (5.34)$$

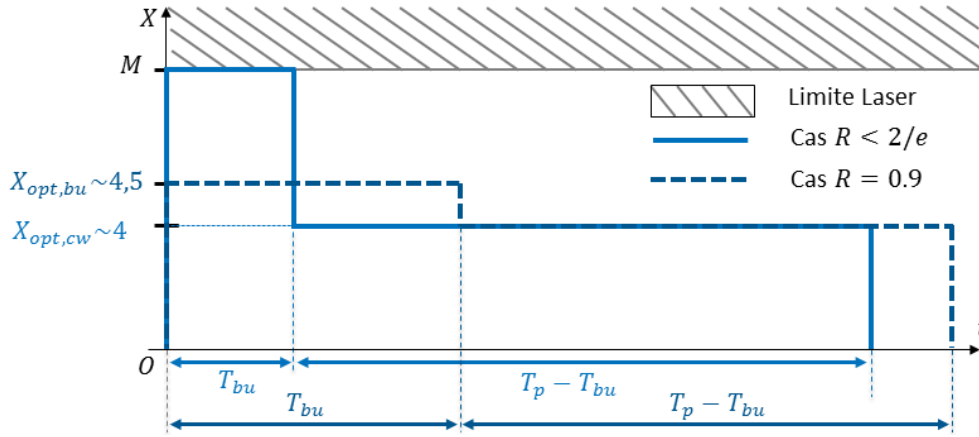


FIGURE 5.10 – Impulsion de pompe optimale pour un BDRO, pour deux valeurs de sa réflectivité.

Si la réflectivité du BDRO est suffisante, il existe un taux de pompage optimal strictement inférieur à la limite maximale du laser. Sur la figure 5.9, on remarque que la fonction  $f$  est relativement plate autour du pompage optimal  $X_{opt,bu}$  lorsque la réflectivité du BDRO approche  $2/e \approx 0,74$ . Une forme quelconque prenant des valeurs sur ce plat sera donc sensiblement aussi performante que le rectangle optimal en vertu de l'équation 5.31. Cela signifie également que l'énergie de seuil autour de ces valeurs de la réflectivité ne sera guère sensible à la forme de l'impulsion de pompe utilisée. Cette remarque s'étend en réalité à toute réflectivité du BDRO : toute forme  $X_p(t)$  peut être considérée optimale tant qu'elle vérifie  $f(X_p(t)) \approx f(X_{opt,bu})$  à tout moment.

On montre sur la figure 5.11 les valeurs du taux de pompage optimal  $X_{opt,bu}$  en fonction de la réflectivité commune des cavités. Sur cette figure, on a introduit  $M^*$  comme la valeur du taux de pompage satisfaisant  $f(X_{opt,bu}) = f(M^*)$ , aussi illustré sur la figure 5.10. La zone A correspond à  $M > M^*$  et  $T_{bu} \geq 1$ , la zone B correspond à  $M \leq M^*$  et  $T_{bu} \geq 1$ , et la zone C correspond à  $T_{bu} < 1$ . On a montré précédemment que le pompage optimal sur la zone A est constant et égal à  $X_{optA,bu} = M$ , alors que l'équation 5.30 nous donne le taux de pompage optimal sur la zone B  $X_{optB,bu}$ . La remarque que nous avons faite au sujet du SRO à propos des lasers permettant un taux de pompage capable de construire plus rapidement que le temps d'aller-retour est ici aussi valable. Dans le cas présent qui correspond à la zone C sur la figure 5.11, le taux de pompage optimal est celui qui construit l'OPO en exactement un tour de cavité, et peut s'écrire comme suit :

$$X_{optC,bu} = \left(1 - \frac{\ln(1 + \alpha)}{\ln R}\right)^2 \quad (5.35)$$

### Le cas général du DRO quelconque

Dans le cas du DRO générique, le gain s'écrit de la manière suivante

$$G(X,Z) = \left[Z(X) \sinh(\theta\sqrt{X}) + \cosh(\theta\sqrt{X})\right]^2 \quad (5.36)$$

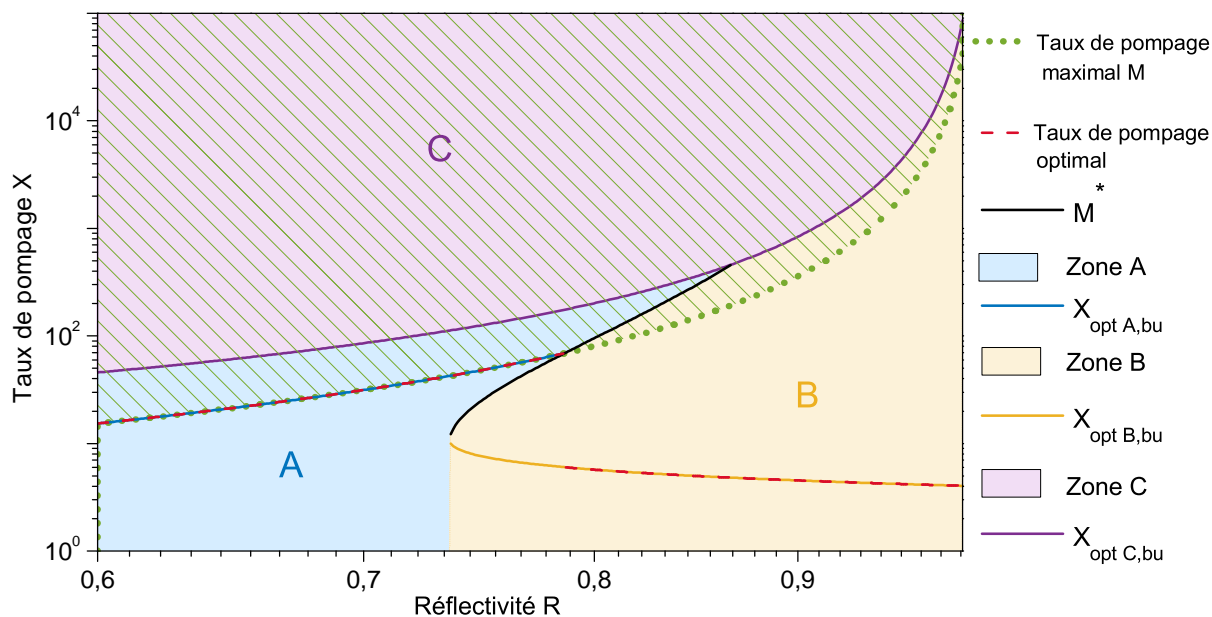


FIGURE 5.11 – Zones de taux de pompage optimal pour le BDRO. La forme optimale est rectangulaire, et sa hauteur dépend de la puissance crête maximale du laser  $M$  et de la réflectivité du BDRO  $R$ . Cette hauteur optimale apparaît par les traits continus dont la couleur est identique à celle de la zone contenant le point  $(M, R)$ . La largeur du rectangle correspondante est donnée par l'équation 5.32.

Ce cas est plus complexe car il n'existe pas a priori de relation directe entre  $Z$  et  $X$ . Il nous faut faire une hypothèse supplémentaire pour obtenir une relation entre ces deux variables et ainsi appliquer un raisonnement similaire à celui conduit dans les cas particuliers du SRO et du BDRO. On suppose que le temps caractéristique de variation de la pompe est bien plus lent que le temps d'aller-retour des ondes en cavité. En vertu de l'étude de la rapidité de convergence de la variable  $Z$  détaillé dans le paragraphe précédent 5.2.3, on peut effectuer une élimination adiabatique de  $Z$  en le remplaçant par sa limite asymptotique  $Z_a$  (donné par l'équation 5.14). La fonction de gain peut alors s'écrire :

$$G(X) = \frac{1}{4} \left[ (r + 1) \cosh \theta \sqrt{X} + \sqrt{4r \sinh^2 \theta \sqrt{X} + (r - 1)^2 \cosh^2 \theta \sqrt{X}} \right]^2 \quad (5.37)$$

L'expression 5.37 est cohérente avec les cas particuliers du SRO et du BDRO que nous venons de traiter, que l'on retrouve respectivement avec  $r = 0$  et  $r = 1$ . La méthode de résolution pour trouver l'impulsion optimale reste identique, et on obtient dans le cas général la même disjonction de cas que pour le cas du BDRO, dépendante du taux de pompage maximal disponible  $M$  et représenté sur la figure 5.10. Les expressions des taux de pompage optimaux et des temps de construction correspondant sont en revanche différents. Le taux de pompage optimal est donné par  $X_{opt, bu}$  si  $f(M) < f(X_{opt, bu})$  et égal à  $M$  dans le cas contraire, avec  $X_{opt, bu}$  le maximum de la fonction  $f$  sur l'intervalle  $[0, M]$ . La solution implique désormais les deux réflectivités effectives  $R_c$  and  $R_s$ . Il semble



difficile d'obtenir une expression analytique de  $X_{opt, bu}$  dans le cas général car l'équation  $f'(X_{opt, bu}) = 0$  qui le définit est implicite et ne semble pouvoir être inversée. On peut par contre en extraire les valeurs à l'aide d'une résolution numérique (figure 5.13). Une solution explicite est par contre disponible pour le temps de construction  $T_{bu}$  :

$$T_{bu}^{-1} = \frac{1}{4\alpha\tau} \left[ -4 + \left[ \left( \sqrt{R_s} + \sqrt{R_c} \right) \cosh \left( \kappa L \sqrt{p_p} \right) + \sqrt{4\sqrt{R_s R_c} \sinh^2 \left( \kappa L \sqrt{p_p} \right) + \left( \sqrt{R_s} - \sqrt{R_c} \right)^2 \cosh^2 \left( \kappa L \sqrt{p_p} \right)} \right]^2 \right], \quad (5.38)$$

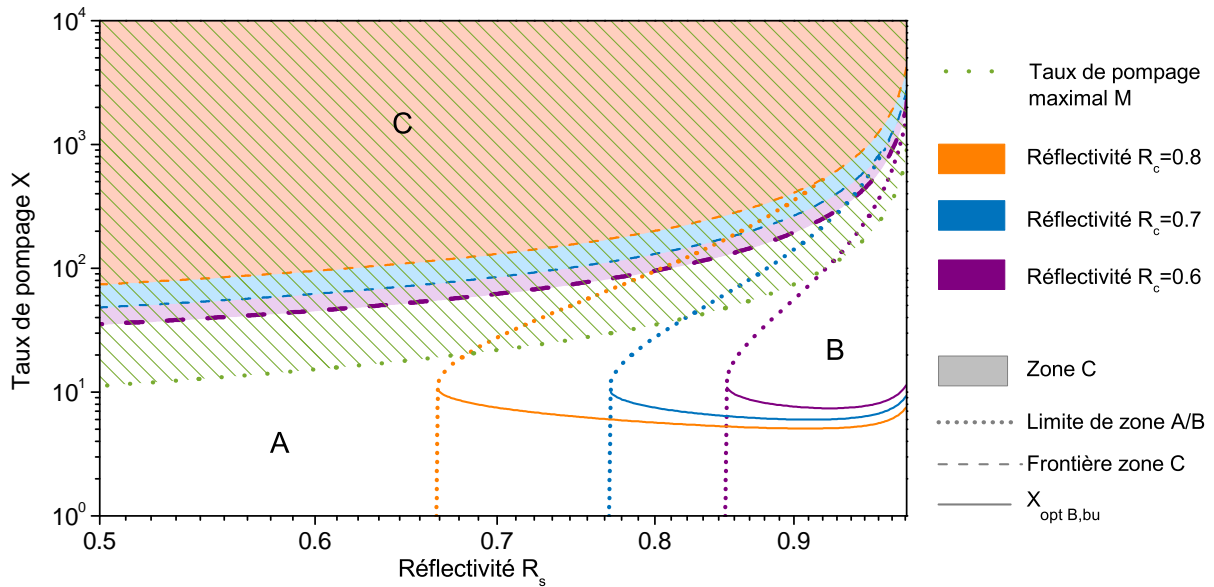


FIGURE 5.12 – a) Zones d'optimalité pour le DRO général. La zone C correspond aux régions où le temps de construction est inférieur au temps d'aller-retour dans la cavité. Un exemple de limite de puissance crête maximale d'un laser est tracé en pointillés verts.

Sur la figure 5.12, on remarque que les courbes sont très similaires au cas du BDRO, et confirment dans le cas général le fait que le taux de pompage le plus intense possible n'est pas nécessairement la meilleure solution. Un rectangle optimal de hauteur  $X_{opt, bu}$  est possible quel que soit le couple de réflectivité choisi  $(R_c, R_s)$ . Si l'une des deux réflectivités est suffisamment élevée, l'optimum existe même pour des valeurs très faibles de l'autre réflectivité. Le résultat asymptotique du SRO est maintenu car l'existence de  $X_{opt, bu}$  disparaît toujours avant que la réflectivité la plus faible n'atteigne 0. La valeur du délimitant les zones A et B  $M^*$  est toujours défini par l'équation implicite  $f(M^*) = f(X_{opt, bu})$  avec  $M^* \geq X_{opt, bu}$ . Le résultat dans le cas de temps de construction de l'ordre du temps d'aller-retour est à prendre ici avec précaution car on a utilisé l'hypothèse de l'élimination adiabatique. Dans le cas d'une construction plus rapide que le temps d'aller-retour, l'argument de la reconversion possible nous permet néanmoins de conclure également que l'impulsion optimale reste celle qui construit l'OPO en exactement un tour de cavité, et correspond à la zone C sur la figure 5.12.

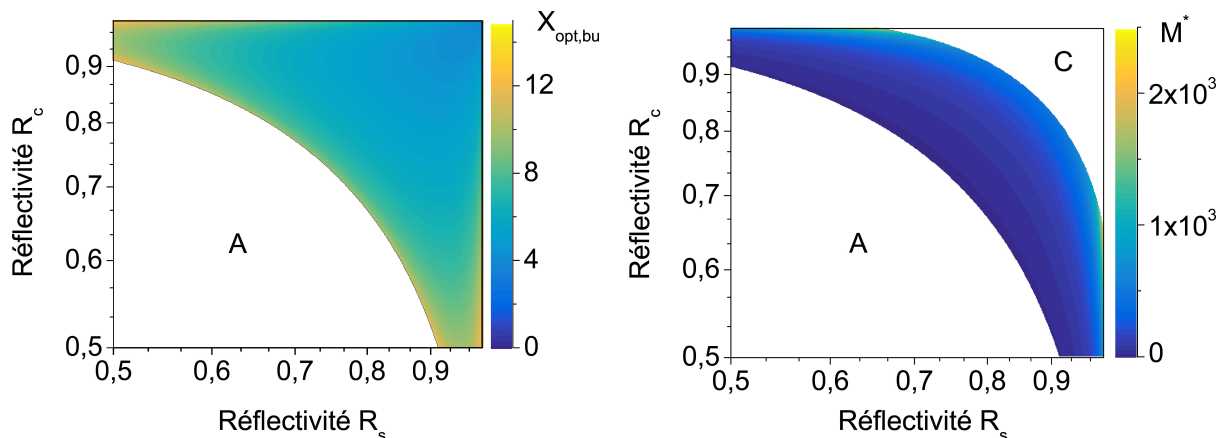


FIGURE 5.13 – A gauche, valeurs du taux de pompage optimal  $X_{opt,bu}$  pour toute valeur de la zone B de la figure 5.12. A droite, valeurs de  $M^*$  marquant la frontière entre les zones A et B en fonction des réflectivités du DRO. Les zones blanches correspondent aux zones où  $M^*$  n'est pas défini (zones où la fonction  $f$  est monotone).

Les résultats montrés sur la figure 5.12 ont été obtenus en supposant que le complémentaire est le premier à atteindre une valeur observable, c'est à dire que  $R_c > R_s$ . Si ce n'est pas le cas et que  $R_s > R_c$ , les résultats montrés restent valide. En effet, le signal est le premier à atteindre l'objectif de construction dans ce cas, et les résultats s'obtiennent en intervertissant  $R_c$  et  $R_s$  dans toutes les expressions ( $f$  est symétrique par rapport à  $R_c$  and  $R_s$ ). Cette symétrie apparait de manière évidente sur la figure 5.13. La valeur minimale du taux de pompage optimal est obtenue pour un couple de réflectivité élevé et similaire, alors que la valeur maximale est associée à une dissymétrie maximale.

La puissance continue optimale possède une expression analytique donnée par la formule suivante (ROSENCHER et FABRE 2002) :

$$X_{opt,cw} = \frac{1 - R_c}{\theta^2} \left[ \operatorname{sn}^{-1} \left( j \sqrt{\frac{1 - R_s}{R_s - R_c}} \middle| \frac{R_c - R_s}{1 - R_s} \right) - \operatorname{sn}^{-1} \left( j \sqrt{R_c} \sqrt{\frac{1 - R_s}{R_s - R_c}} \middle| \frac{R_c - R_s}{1 - R_s} \right) \right]^2 \quad (5.39)$$

### 5.2.5 Rendement de conversion

En pratique, le double rectangle théorique optimal que nous venons de décrire précédemment n'est pas toujours réalisable. On montrera dans la partie expérimentale à suivre que les systèmes MOFPA sont capables de générer des formes quasi rectangulaires. Si elles sont suffisamment énergétiques, ces formes ne sont jamais en dessous de la puissance de pompe seuil en continu d'un OPO donné, ainsi toute énergie de pompe dépensée résulte en un gain net de signal et de complémentaire. Bien que non optimale, il s'agit donc bien de formes optimisées qu'il est intéressant d'utiliser.

Le formalisme que nous avons introduit permet d'étudier aisément le cas d'une impulsion rectangulaire. Les temps de construction sont en particulier valables, à condition de remplacer le taux de pompage optimal  $X_{opt,bu}$  par le taux de pompage réel. En conservant notre hypothèse des deux régimes temporels disjoints qui composent une impulsion type d'OPO, on peut définir l'efficacité quantique de conversion  $\eta$  par la formule :

$$\eta = \frac{\tau_p - \tau_{bu}}{\tau_p} \frac{Y_{out}^{CW}}{X} \quad (5.40)$$

Il s'agit donc du ratio entre l'énergie normalisée générée dans les ondes signal ou complémentaire divisée par celle contenue dans la pompe. Il s'agit donc du nombre total de photons signal ou complémentaire qui sont sortis de l'OPO divisé par le nombre total de photons de pompe qui y sont entrés.

En régime stationnaire, le signal hors de la cavité vérifie :

$$Y_{out}^{CW} \equiv \frac{1 - R_s}{R_s} Y_s^{CW}. \quad (5.41)$$

Comme le nombre de photons créés en régime permanent pour le signal et le complémentaire est identique, on a la relation :

$$(1 - R_s) R_c Y_s^{CW} = (1 - R_c) R_s Y_c^{CW}, \quad (5.42)$$

En rapportant cette égalité dans l'équation 5.7 et en imposant  $dY_s^{CW}/dt = 0$ , on obtient l'équation implicite portant sur  $Y_s^{CW}$  :

$$\frac{1 - R_c}{R_s - R_c} = \operatorname{sn}^2 \left( j\theta \sqrt{X + Y_s^{CW}} + \operatorname{sn}^{-1} \left( \sqrt{\frac{(1 - R_c) R_s}{R_s - R_c}} \left| \frac{Y_s^{CW}}{X + Y_s^{CW}} \frac{R_s - R_c}{(1 - R_c) R_s} \right| \right) \left| \frac{Y_s^{CW}}{X + Y_s^{CW}} \frac{R_s - R_c}{(1 - R_c) R_s} \right. \right) \quad (5.43)$$

En combinant ces résultats en régime permanent et ceux obtenus en régime transitoire, il est possible d'effectuer une optimisation de l'efficacité de l'OPO ou encore une maximisation de la puissance signal ou complémentaire produite par l'OPO. Ces deux résultats sont confondus pour l'impulsion optimale en double rectangle, mais bien disjoints dans le cas d'une impulsion rectangulaire simple.

## 5.3 Étude expérimentale de l'influence de la forme et de la durée des impulsions de pompe

### 5.3.1 Le MOFPA : caractérisation et performances

Le MOFPA que nous avons utilisé est un système commercial de Keopsys basé sur une diode laser mono fréquence émettant en continu à 1,064  $\mu\text{m}$ . Un modulateur acousto

optique (MAO) est utilisé pour moduler son intensité dans le temps et lui donner ainsi une forme définie. Le rayonnement est ensuite injecté dans une fibre amplificatrice dopée aux ions Ytterbium, qui va amplifier le profil temporel de manière non linéaire. En effet, le gain dans la fibre sature conformément aux équations de Frantz-Nodvick (CANAT et al. 2005; FRANTZ et NODVIK 1963; Y. WANG et PO 2003), ce qui implique que les formes temporelles de la pompe avant et après amplification sont différentes. Nous avons cherché la forme d'entrée qui permettait d'approcher au plus près une sortie constante, et donc à produire une forme d'impulsion la plus rectangulaire possible sur diverses durées. Nous avons également cherché celle qui permettait d'obtenir une sortie gaussienne. Deux exemples d'impulsions générées sont présentées sur la figure 5.14 :

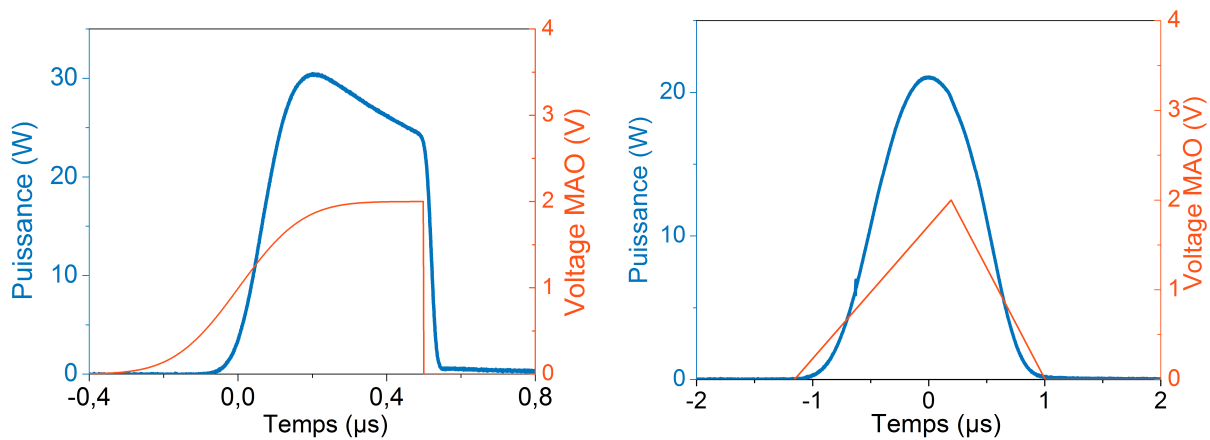


FIGURE 5.14 – Exemple de consignes envoyées au Modulateur acousto optique (MAO), ainsi que l'impulsion de pompe observée en sortie de fibre.

Le MOFPA admet plusieurs limites au cours de son fonctionnement.

- Afin d'éviter l'effet Brillouin stimulé qui pourrait endommager le laser, il n'est pas possible de dépasser 60 W de puissance crête dans la fibre.
- La puissance moyenne du laser est limitée à 1,2 W.
- Le constructeur a imposé une sécurité à l'entrée de l'amplificateur fibré, si bien qu'il n'est pas possible de démarrer le laser si la puissance moyenne de la diode injectée est insuffisante.
- La fréquence de répétition ne doit pas descendre en dessous de 10 kHz, afin d'éviter l'émission spontanée stimulée (ASE) qui pourrait elle aussi endommager le laser.

Compte tenu de ces limitations, il nous est possible de générer des impulsions de durée largement variable comme le montre la figure 5.15. Des impulsions de durée allant de 20 ns à 15 μs ont pu être générées. Pour atteindre 20 ns, il est nécessaire de cadencer le laser à au moins 1,2 MHz en raison de la sécurité imposée par le constructeur. Les durées les plus longues auront nécessairement une puissance crête réduite en raison de la limitation conjointe de la puissance moyenne disponible et de la cadence minimale à respecter. Nous verrons que certaines sont inutilisables car leur puissance crête est inférieure à la puissance de seuil continu de notre OPO. On remarque que les impulsions ont davantage une forme

gaussienne que rectangulaire pour les impulsions les plus courtes en dessous de 50 ns. Les impulsions les plus longues, à partir de 1  $\mu$ s, présentent également un écart important par rapport aux impulsions rectangulaires voulues, en raison de la forme de la consigne utilisée pour le modulateur acousto-optique. Leur puissance n'est pas constante mais décroît continûment dans le temps. Une étude plus approfondie pourrait certainement cerner une consigne meilleure, cependant celle dont nous disposons est compatible avec le degré de précision relatif de nos expériences.

Une fois la consigne appliquée au modulateur acousto-optique, il nous est toujours possible d'ajuster l'énergie de chaque impulsion en réglant l'amplitude de la diode laser maître. Le courant sur le laser dont nous disposons peut être ajusté de 0 à 2600 mA, ce qui a pour effet de modifier la puissance sans modifier significativement sa forme et donc sa durée (figure 5.15).

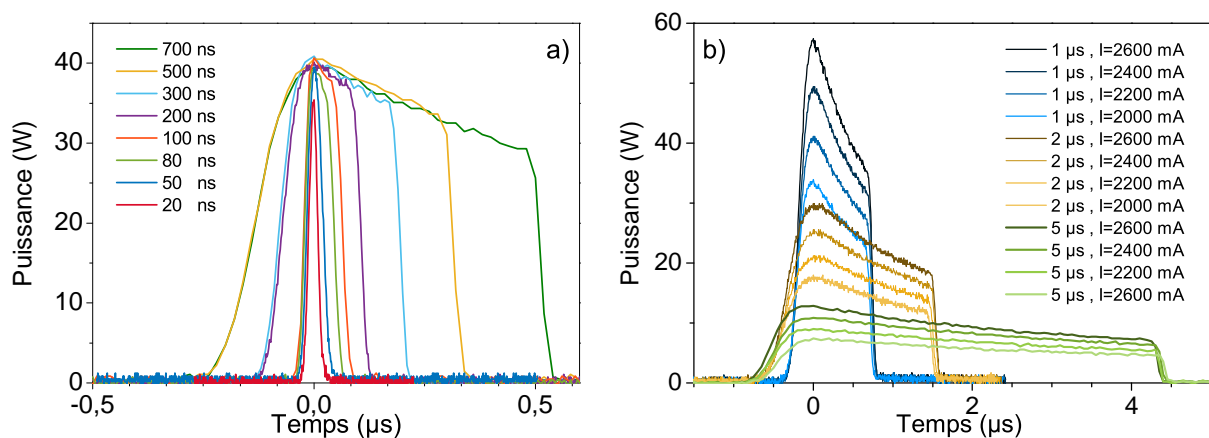


FIGURE 5.15 – a) On montre la capacité de notre MOFPA de générer des impulsions de forme relativement rectangulaires sur des durées extrêmement variables. b) On voit que la modification du courant dans la diode laser permet de jouer sur l'énergie de chaque impulsion sans modifier significativement sa forme.

Il est à noter que ces fréquences de répétition sont compatibles avec des expériences de QEPAS impulsives employant un diapason du commerce. En effet, ces derniers oscillent typiquement aux alentours de 32 kHz et notre laser peut être opéré à leur fréquence de résonance précise.

### 5.3.2 Dispositif expérimental d'un DRO pompé par un MOFPA

Le MOFPA que nous avons présenté au paragraphe précédent a été utilisé pour pomper un NesCOPO que nous allons détailler maintenant. Il s'agit d'une architecture OPO doublement résonante DRO à double passage de pompe, ne nécessitant que trois miroirs et qui est illustrée sur le schéma de notre dispositif expérimental sur la figure 5.16. L'un de ces miroirs,  $M_2$ , est déposé directement sur l'une des faces du cristal non linéaire, avec un revêtement hautement réfléchissant pour l'onde signal, transparent pour la pompe et

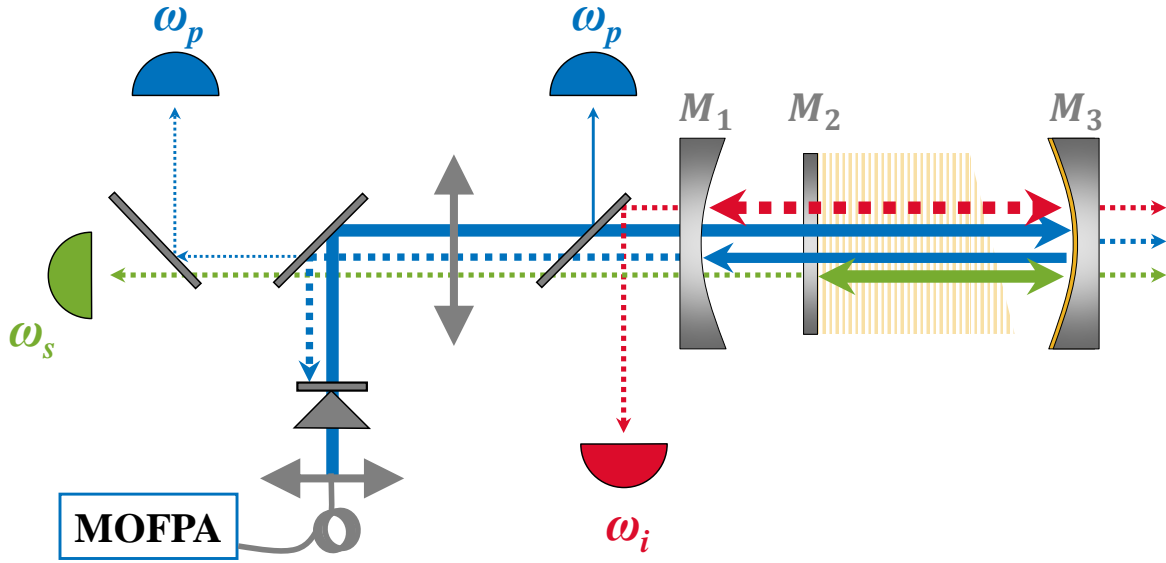


FIGURE 5.16 – Dispositif expérimental pour vérifier l'influence de la forme des impulsions de pompe sur l'efficacité de l'OPO et sur le temps de construction.

le complémentaire. Le miroir d'entrée  $M_1$  est très réfléchissant pour le complémentaire et traité anti-réfléctif pour la pompe et le signal. Enfin, le miroir de fond  $M_3$  possède un traitement doré, qui assure une réflectivité de l'ordre de 98% pour les trois ondes tout en maintenant leur déphasage relatif inchangé lors de la réflexion (OPO avec retour de pompe à maintien de phase achromatique). Le cristal non linéaire est composé de Niobate de lithium dopé aux ions MgO ; il est périodiquement retourné et mesure 18 mm de long. Ce cristal comporte plusieurs pistes parallèles aux faisceaux, chacune avec un pas de retournement périodique légèrement différent, assurant ainsi un accord de phase possible de  $3,0 \mu\text{m}$  à  $3,8 \mu\text{m}$  pour le complémentaire. Les cristaux sont coupés en biais à l'extrémité opposée à  $M_2$ , ce qui permet de varier légèrement sa longueur en le déplaçant perpendiculairement aux faisceaux. Ainsi, il est possible d'assurer le maintien du déphasage relatif des ondes à  $\pi/2$  entre les deux séquences d'interaction paramétrique à l'aller et au retour. L'ensemble des résultats qui suivent ont été mesurés autour de  $3,3 \mu\text{m}$ . La distance typique entre le cristal et les miroirs  $M_1$  et  $M_3$  est de l'ordre du millimètre, si bien que le temps d'aller-retour dans la cavité est de l'ordre de  $2n_c L/c \approx 0,25 \text{ ns}$ . L'objectif de construction (voir équation 5.21a) dans notre cas est donc donné par  $K = \alpha\tau = 4,56 \text{ ns}$ .

Deux jeux de miroirs ont été utilisés pour le miroir d'entrée  $M_1$ , un de réflectivité  $R_1 = 0.8$  et de rayon de courbure 50 mm, et l'autre de réflectivité  $R_1 = 0.98$  et de rayon de courbure 100 mm. On prend également en compte l'imperfection des traitements des miroirs, qui induisent une perte de l'ordre de 0.75% à chaque passage. Le miroir doré  $M_3$  a une réflectivité  $R_3 = 0.98$  pour les trois ondes, et le miroir  $M_2$  a une réflectivité  $R_2 = 0.995$ . On en déduit la réflectivité effective de chaque cavité :  $(R_s, R_c) = (0.96, 0.93)$  pour le "set 1" correspondant à  $R_1 = 0.98$ , et  $(R_s, R_c) = (0.96, 0.76)$  pour le "set 2" correspondant à  $R_1 = 0.80$ . On remarque que le set 1 est très proche d'une configuration de type BDRO.

Un exemple de profils temporels typiques est montré sur la figure 5.17.

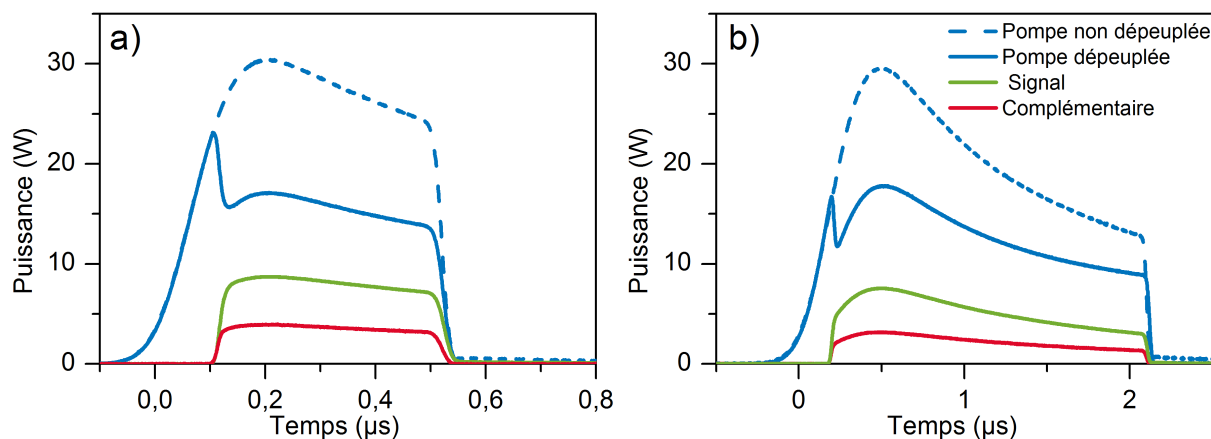


FIGURE 5.17 – Deux exemples expérimentaux de profils temporels signal, complémentaire et pompe pour a) une impulsion rectangulaire de largeur 500 ns et b) une impulsion rectangulaire de largeur 2 µs.

Les détecteurs utilisés nous permettent de mesurer des puissances de l'ordre de  $P_c = 10^{-9}$  W. La puissance correspondante au bruit quantique a été déterminée à l'aide de simulations numériques, qui seront présentées plus en détail dans la partie suivante. En l'ajustant par rapport au temps de construction, on peut dire qu'il est de l'ordre de  $P_c \simeq 10^{-17}$  W. La valeur exacte de ce paramètre n'impacte pas significativement les résultats à plus d'un facteur 10 près. On peut donc en déduire que, dans notre cas, le nombre d'ordres de grandeur à franchir pour les ondes avant d'atteindre une intensité observable est donné par  $\alpha = \ln(10^{-9}/10^{-17}) = 18$ .

### 5.3.3 Influence de la forme de l'impulsion

Dans un premier temps, on a vérifié le fait que l'impulsion rectangulaire est bien une forme optimisée par rapport à une impulsion de type gaussienne autorisant à dépenser de l'énergie sous le seuil de l'OPO.

Les résultats expérimentaux de la figure 5.18 ont été obtenus avec une durée d'impulsion de largeur complète à mi hauteur égale à 1 µs (FWHM) pour les deux formes. On observe une augmentation de 13% en terme d'efficacité de conversion dans le cas des impulsions rectangulaires par rapport aux impulsions gaussiennes. La différence entre les deux impulsions a tendance à augmenter à mesure que l'énergie contenue augmente. Ces observations préliminaires sont cohérentes avec les travaux de Sacks qui a rapporté un gain de l'ordre de 20% en régime impulsif (SACKS et al. 2010). Si la forme rectangulaire de durée 1 µs est indubitablement meilleure, cette durée ne l'est pas nécessairement, et nous étudierons cette question dans le paragraphe 5.3.5.



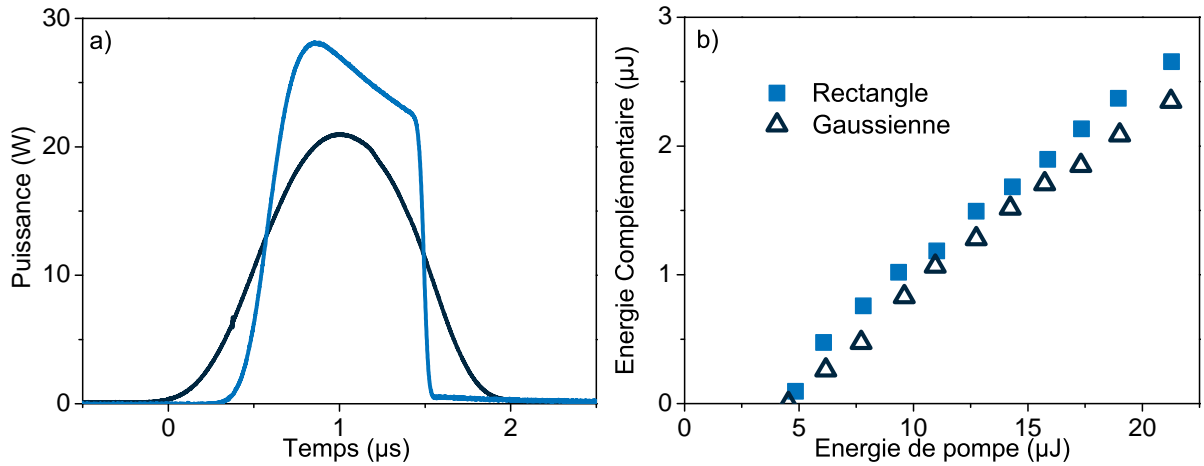


FIGURE 5.18 – a) Impulsions de pompe rectangulaires et gaussiennes utilisées pour la comparaison de forme, b) Énergie complémentaire et puissance moyenne observées en sortie de NesCOPO pour les deux formes d'impulsion différentes cadencées à 27 kHz.

### 5.3.4 Investigation de la forme optimale

Nous nous sommes ensuite concentrés sur la période de construction afin de vérifier notre modèle théorique prévoyant une puissance crête optimale si les réflectivités sont suffisantes. Pour les deux jeux de réflectivités que nous avons utilisés, cet optimum existe théoriquement et nous l'avons sondé expérimentalement en imposant le temps de construction  $T_{bu}$ , qui à son tour va imposer une puissance crête de pompage particulier en vertu de la relation qui existe entre ces deux grandeurs (voir équation 5.38). Dans la mesure où les impulsions expérimentales utilisées sont proches de rectangles, on définit le démarrage de l'impulsion comme l'instant où l'intensité dépasse la moitié de la valeur maximale atteinte sur tout l'historique. Les résultats sont montrés sur la figure 5.19.

L'expression analytique obtenue pour le temps de construction 5.38 reproduit bien les résultats expérimentaux. Son évolution par rapport à la durée de l'impulsion est correctement décrite sur plus d'une décade pour les deux jeux de réflectivité.

Pour les impulsions les plus longues, on remarque que nos points expérimentaux sont en dessous des calculs théoriques. Cet effet est attribué aux formes expérimentales qui s'écartent de notre hypothèse du rectangle idéal pour les longues durées, comme on avait déjà pu le constater lors de la caractérisation du MOFPA (figure 5.18). En effet, leur puissance crête décroît sur la fin de l'impulsion, ce qui implique une valeur moyenne du "rectangle effectif" inférieure à la puissance crête présente en début d'impulsion. On utilise pourtant bien cette valeur moyenne pour nos simulations. La valeur moyenne du seuil que l'on observe peut, dans ces circonstances, être inférieure à la puissance seuil en régime continu. La même limitation s'applique aux impulsions les plus courtes, puisque leur forme tend davantage vers une gaussienne que vers un rectangle.

Pour comparer notre théorie et notre expérience sur la figure 5.19, un ajustement de la théorie a été réalisé quand au gain en onde plane associé aux deux jeux de réflectivité.



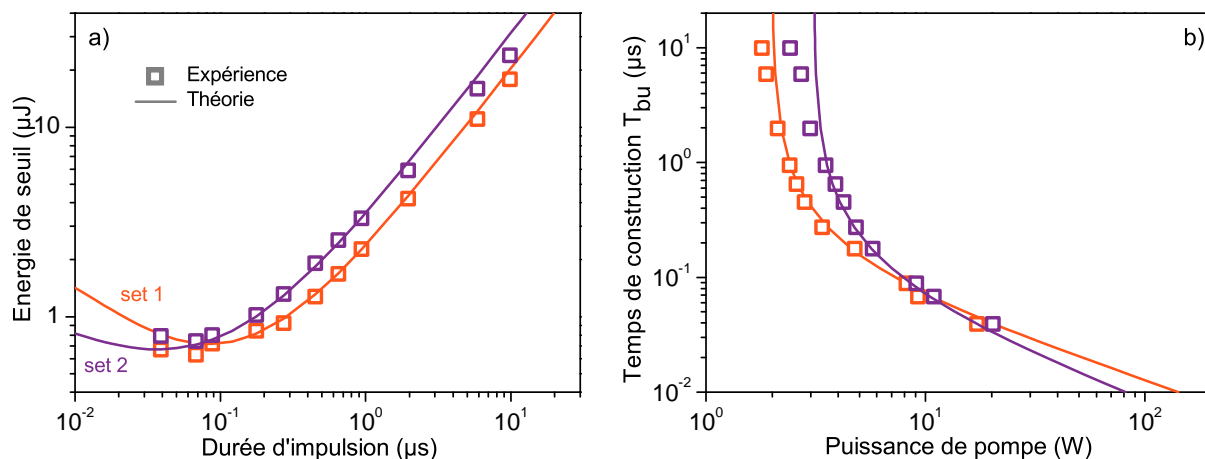


FIGURE 5.19 – Expérience (symboles) et théorie (lignes) comparées pour évaluer le seuil (a) et le temps de construction (b) pour les deux set. Le set 1 ( $(R_s, R_c) = (0.96, 0.93)$ ) et le set 2 ( $(R_s, R_c) = (0.96, 0.76)$ ) se croisent en raison du rayon de courbure du miroir  $M_1$ , abaissant le gain du set 1 par une concentration des champs moins élevée. Pour un gain identique, les courbes théoriques ne se croiseraient pas et le set 1 serait toujours à gauche du set 2.

En effet, la différence de rayon de courbure entre les set 1 et 2 introduit une modification de la constante de couplage  $\kappa$ . Ce dernier coefficient est plus complexe que l'expression obtenue dans le cadre des ondes planes utilisées dans notre modèle, et implique en particulier le recouvrement spatial des trois ondes en interaction (SCHWOB et al. 1998). Si le rayon de courbure de l'un des miroirs change, la taille du mode de cavité associé est lui aussi modifié et affecte la distribution du gain non linéaire le long du cristal. Des erreurs d'alignement peuvent également expliquer une différence de gain entre les deux jeux. Les courbes théoriques calculées dans les deux cas avec un gain identique conduisent à des courbes qui ne se croisent pas, et le temps de construction est bien d'autant plus réduit que la réflectivité est élevée.

L'approximation en onde plane donne cependant bien une idée de la valeur du seuil en continu. Dans notre expérience, le rayon approximatif des ondes en cavité est de  $w \simeq 120$   $\mu\text{m}$ , conduisant à une valeur théorique de  $P_{p,\text{th}} \simeq 0,8$   $\text{W}$  pour le set 1 et  $P_{p,\text{th}} \simeq 2,8$   $\text{W}$  pour le set 2. On voit sur le comportement asymptotique des courbes de la figure 5.19 que les valeurs réelles sont de  $P_{p,\text{exp}} \simeq 2,0$   $\text{W}$  pour le set 1 et  $P_{p,\text{exp}} \simeq 3,1$   $\text{W}$  pour le set 2. Notre laser est donc borné en pratique par le taux de pompage  $M \simeq 20$ , ce qui est bien compatible avec l'observation de l'optimum prévu par la théorie.

Une vérification rapide pour le set 1 peut être obtenue en remarquant que ce cas est très similaire à un BDRO de réflectivité  $R \approx 0.94$ . A l'aide de la formule analytique 5.30, on obtient un taux de pompage optimal de  $X_{\text{opt},bu} \approx 4,3$ . Étant donné que l'on a  $K \approx 4,6$  ns, on peut alors utiliser la formule donnant le temps de construction d'un BDRO (équation 5.32) pour obtenir la position attendue du minimum  $T_{bu,\text{opt}} = 68$  ns à l'optimum. Ce résultat est donc cohérent avec les résultats obtenus pour l'énergie de seuil

car un minimum  $E_{min}$  se dessine pour une durée d'impulsion de cet ordre. D'un point de vue théorique, on rappelle que cette durée n'est que le reflet de la puissance crête optimale utilisée, à savoir  $P_p = E_{min}/T_{bu,opt}$ .

### 5.3.5 Puissance et rendement d'impulsions rectangulaires

Si on a pu montrer qu'il est possible de minimiser l'énergie nécessaire pour la construction par un taux de pompage adapté, il n'est pas nécessairement possible de l'ajuster ensuite une fois le régime stationnaire atteint. Ayant démontré que les impulsions rectangulaire de notre MOFPA sont déjà des formes optimisées, on va les utiliser pour produire efficacement le rayonnement complémentaire utile. On trace sur la figure 5.20 l'efficacité de conversion de notre NesCOPO définie par la formule 5.40, pour différentes énergies de pompe par impulsion. On montre bien qu'il existe un point optimal d'opération quelle que soit l'énergie utilisée, reflet une fois encore de la présence d'un taux de pompage optimal. Contrairement au cas du double rectangle, cette valeur optimale dans le cas d'un simple rectangle provient également du compromis entre énergie dépensée pendant la construction et taux de pompage optimal en régime permanent

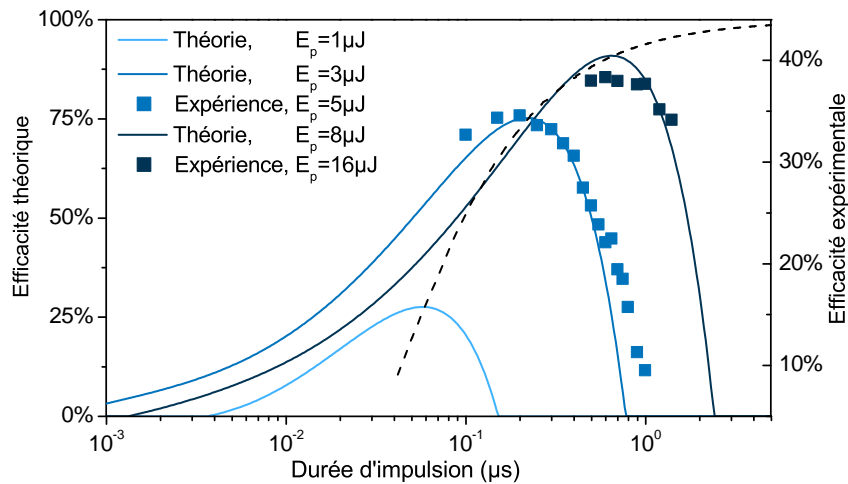


FIGURE 5.20 – Rendements théorique et expérimental comparés pour notre NesCOPO avec  $(R_s, R_i) = (0.96, 0.76)$  (set 2), avec l'utilisation d'impulsions de pompe rectangulaires. Les pointillés représentent l'efficacité optimale atteignable pour chaque durée de pompe.

Si l'on souhaite une efficacité optimale du système, on a donc intérêt à utiliser des impulsions longues dans notre cas. On retrouve ici tout l'intérêt des architectures MOFPA, capables de délivrer d'importantes puissances moyennes de l'ordre de 1 W. Dans le cadre de l'application photoacoustique utilisant des résonateurs commerciaux, 30 µJ peuvent donc être délivrés par impulsion à une fréquence de 32 kHz. Pour notre NesCOPO, cette énergie peut ensuite être distribuée sur une durée de 2,5 µs correspondant à la durée théorique optimale pour cette énergie pour le set 2 de notre NesCOPO (pointillés sur la figure 5.20). Le taux de pompage équivalent  $P_p = 12\text{ W}$ , soit 4 fois le seuil continu estimé

sur la figure 5.19, est conforme au tau optimal théorique de conversion en régime continu (de l'ordre de 4 également (ROSENCHER et FABRE 2002)).

Les efficacités théoriques que l'on obtient ici sont très élevées, comparées au cas du pompage en régime nanoseconde, dont l'efficacité ne peut jamais excéder 30% pour le présent NesCOPO. Les écarts entre théorie et expérience qui apparaissent sur la figure 5.20 peuvent s'expliquer par la nature gaussienne des profils spatiaux des faisceaux. Aussi, seulement une partie du complémentaire produit est extraite par le miroir  $M_1$  en raison des traitements imparfaits sur les différentes optiques dans la cavité. En effet, les efficacités précédemment reportées pour le cas nanoseconde sont typiquement de l'ordre de 15%, et on retrouve le même facteur 2 par rapport à la théorie en onde plane ici utilisée (HARDY et al. 2011). Les lasers MOFPA sont en conclusion très bien adaptés à la génération efficace de rayonnement sur de longues durées.

En fonction de l'application souhaitée, l'objectif n'est pas toujours de maximiser l'efficacité mais parfois de maximiser l'énergie extraite. Pour obtenir une vue générale sur le problème, il est pratique de tracer une carte des performances de l'OPO utilisé en fonction des paramètres du MOFPA utilisé. La carte présentée sur la figure 5.21 a été réalisée en supposant que la pompe délivre des impulsions parfaitement rectangulaires. Les performances de notre NesCOPO avec le set 2 de réflectivité sont représentées, mais cette figure peut être tracée pour tout laser de pompe couplé à un OPO quelconque.

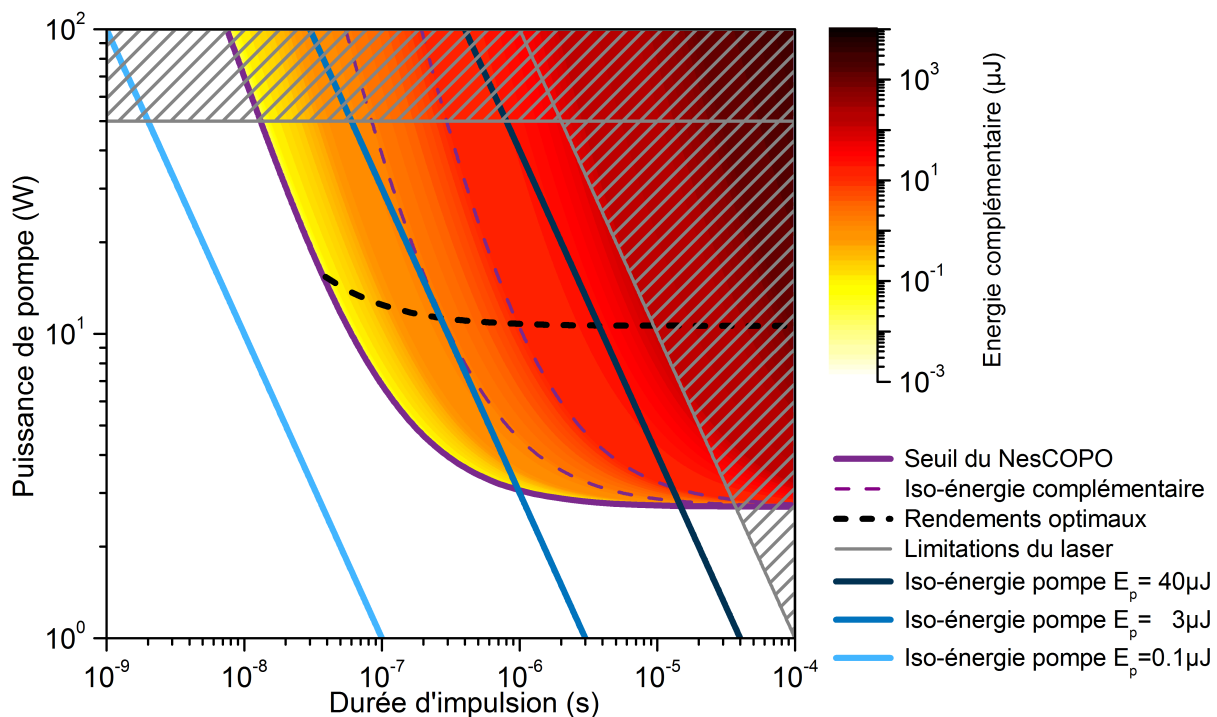


FIGURE 5.21 – Carte des performances énergétiques calculées du complémentaire émis par notre NesCOPO avec  $(R_s, R_i) = (0.96, 0.76)$ , en supposant un pompage par des impulsions rectangulaires générées par notre MOFPA.

La courbe de seuil que nous avons obtenue au paragraphe 5.3.4 correspond à la bordure

de la carte (ligne violette continue). Les lignes iso-énergétiques pour les impulsions de pompe sont les lignes obliques en trait bleu continu. Les limitations techniques de notre laser MOFPA ont été reportées sur la figure sous la forme de zones hachurées grisées. La limitation supérieure est due à la diffusion Brillouin stimulée, limitant la puissance crête à 60 W. La saturation due à l'émission spontanée amplifiée, qui impose un fonctionnement impulsionnel à au moins 10 kHz, limite l'énergie disponible par impulsion à environ 10  $\mu\text{J}$ . Graphiquement, on voit que l'énergie de construction minimale est définie par la tangence entre les lignes de pompe iso-énergétique obliques et la courbe de seuil. La tangence entre les courbes iso-énergie du complémentaire (lignes violettes en pointillés) et les lignes obliques définit les optimums d'efficacité. Cette représentation rassemble donc l'ensemble des résultats que nous avons précédemment obtenus. On remarque que, en raison des effets de reconversion, l'efficacité optimale n'intervient pas nécessairement à la même puissance crête que celle conduisant à optimiser la construction. L'impulsion rectangulaire simple ne permet pas d'avoir simultanément l'efficacité optimale et l'énergie totale convertie. En revanche, cette différence est négligeable pour des impulsions dépassant la micro seconde, car l'énergie dépensée pour la construction reste très faible en comparaison de l'énergie totale disponible.

### 5.3.6 Conséquences spectrales des impulsions longues

Nous avons montré que les MOFPA sont très bien adaptés au pompage des OPO en régime impulsionnel. Ils permettent d'atteindre d'excellents rendements grâce à l'allongement de la durée des impulsions. Ainsi, la puissance moyenne disponible sera importante et va permettre d'optimiser l'application photoacoustique. On rappelle en effet qu'il est nécessaire de maximiser l'énergie déposée dans le gaz (voir équation 1.12).

Si l'efficacité s'améliore pour les impulsions longues, il est pourtant possible de perdre les propriétés d'accordabilité. La transition vers des impulsions continues est généralement favorable en ce qui concerne la finesse spectrale (requis pour la sélectivité), par contre l'accordabilité du NesCOPO qui est effectué en jouant sur la géométrie de la cavité ne va pas nécessairement fonctionner. Une étude du spectre plus approfondie, en régime impulsionnel avec des impulsions de durées supérieures à la micro seconde, est donc nécessaire pour évaluer à quel point il est possible d'allonger les impulsions sans détériorer le spectre souhaité.

D'autres dérives peuvent également intervenir sur de longues impulsions, comme on le montre sur la figure 5.22 avec le pompage libre d'un NesCOPO par une diode laser continue. On y voit notamment que, en régime permanent, la longueur d'onde d'émission évolue sans cesse au gré des dérives de paramètres tels que la température, la longueur d'onde de la pompe, etc.

Un asservissement est en général utilisé pour stabiliser l'émission. C'est une approche par exemple utilisée par Henderson *et al.* (HENDERSON *et al.* 2000), qui consiste à mettre en place une boucle d'asservissement entre l'amplitude du signal généré par leur OPO

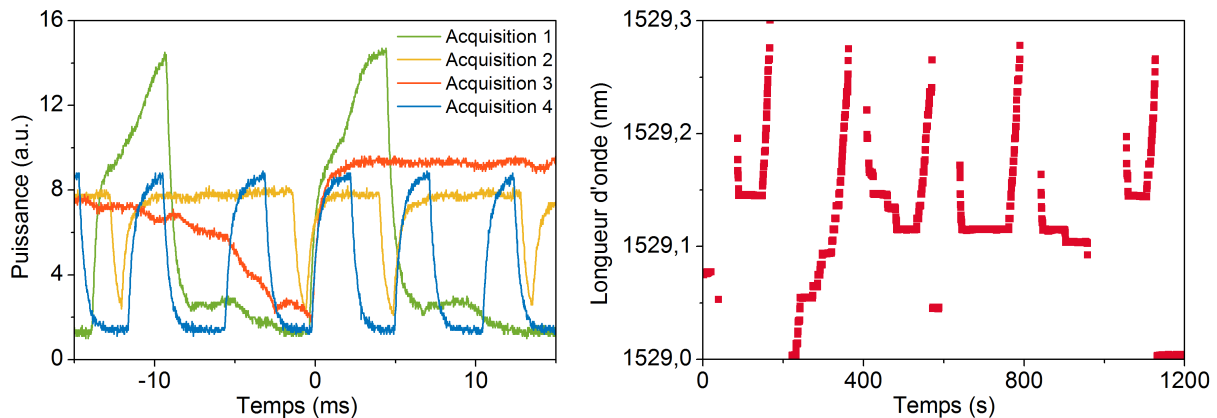


FIGURE 5.22 – Fonctionnement libre d'un NesCOPO pompé par une diode laser. A gauche, 4 exemples types d'acquisitions de la puissance du signal en fonction du temps. A droite, on présente le spectre du signal en fonction du temps.

et le miroir de fond de la cavité, ou plus récemment avec le NesCOPO par Hardy *et al.* (HARDY *et al.* 2011). Ces dérives n'ont pas encore été étudiées dans le détail, et il serait pourtant intéressant de mieux les comprendre puisque des effets spectraux apparaissent dès que les impulsions dépassent la micro-seconde, d'après nos expériences sur le MOFPA précédemment exposées.

Parallèlement à toute étude expérimentale, le développement d'un outil de simulation semble également d'une grande importance si on souhaite isoler et identifier la contribution de chaque paramètre. On a vu lors de l'étude des lasers à cascades quantiques que la chaleur générée par le passage des faisceaux laser est responsable d'un échauffement et par conséquent de la modification des indices de réfraction. Ces modifications entraînent inévitablement des modifications spectrales. De tels effets thermiques se produisent également au sein des OPOs, et une étude précise de l'influence de la température sur le spectre du NesCOPO peut détenir les clefs de l'explication des courbes présentées sur la figure 5.22.



# Chapitre 6

## Modélisation numérique universelle des OPOs

### Objectifs :

L'objectif de ce sixième chapitre est d'exposer le nouveau code de simulation des Oscillateurs Paramétriques Optiques qui a été développé au cours de la thèse. Il permet de modéliser rapidement le spectre d'émission des OPOs, tout en prenant en compte certains paramètres clefs comme la température, la géométrie exacte ou encore le profil temporel exact de la pompe. Le code sera également mis en œuvre pour valider numériquement nos résultats analytiques obtenus au chapitre 5 concernant la forme optimale des impulsions de pompe.

### 6.1 État de l'art sur la modélisation numérique des OPO

#### Introduction

Un modèle analytique a permis dans le chapitre 5 de déterminer l'impulsion optimale de pompage d'un OPO, dans l'hypothèse des ondes planes et en supposant chaque rayonnement monochromatique. Leur spectre exact est en réalité beaucoup plus compliqué, et il est par ailleurs étroitement lié à des propriétés spatiales ne pouvant se réduire au cas simple des ondes planes. Dès lors que l'on souhaite obtenir ces deux propriétés que sont le profil spatial et le spectre, l'utilisation de modèles analytiques ne suffit plus et des simulations numériques sont nécessaires.

Une classification de l'ensemble des techniques numériques de simulation des OPOs est possible en fonction de la manière dont les variables d'espace et de temps sont traitées. Dans tous les cas, l'équation de Maxwell portant sur le champ électrique est suffisante

pour modéliser l'optique non linéaire (ARMSTRONG et al. 1962), et nous l'écrivons sous la forme suivante :

$$\Delta \mathbf{E} - \mu_0 \sigma \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} - \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \epsilon_0 \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} \quad (6.1)$$

Dans l'équation précédente,  $\mathbf{P}$  désigne la polarisation du matériau,  $\sigma$  représente l'absorption du milieu, et  $\mu_0$  et  $\epsilon_0$  sont respectivement la perméabilité et la permittivité du vide. Numériquement, il est possible d'utiliser directement l'équation (6.1) afin d'en obtenir une solution. C'est ce que font des logiciels de simulation par éléments finis tels que COMSOL Multiphysics ou encore Lumerical Solutions, et dont la robustesse est maintenant largement démontrée. Ce type de résolution numérique est très précis et extrêmement puissant puisque adaptable à n'importe quelle géométrie, à condition que le système simulé soit d'une taille raisonnable par rapport à la longueur d'onde de la lumière. Ce dernier critère est malheureusement loin d'être vérifié pour la majorité des systèmes OPOs, il est donc nécessaire de développer des approches originales à partir de l'équation de Maxwell 6.1. Les méthodes numériques que nous allons voir présentent toutes des hypothèses supplémentaires par rapport aux logiciels commerciaux, ce qui leur permet d'effectuer les calculs plus rapidement.

Tous les modèles rencontrés ont un point commun, à savoir que les variables de temps et d'espace sont séparables, si bien que l'on peut décomposer tout champ électrique sous la forme suivante :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{E}_n(t) u_n(\mathbf{r}) \quad (6.2)$$

On a  $\mathbf{r} = (x, y, z)$  lorsque l'on utilise les coordonnées cartésiennes, et  $\mathbf{r} = (r, \theta, \varphi)$  pour des coordonnées cylindriques. Cette décomposition du champ électrique réel est d'ailleurs immédiate dans le cas où la famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  est une base de l'espace des fonctions de  $\mathbb{R}^3 \rightarrow \mathbb{C}$ . Les différents modèles que l'on trouve dans la littérature divergent quant au choix de la partie spatiale  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$ .

### Les modes de Slater

Une base spatiale  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  particulièrement commode est celle initialement introduite par Slater pour traiter le cas spécifique des résonateurs optiques (SLATER et FRANK 1947). Ce dernier a démontré que, pour toute cavité fermée et sans pertes, on peut trouver une telle base de fonctions qui vérifie en plus l'équation de Laplace  $\Delta u_n(\mathbf{r}) + k_n^2 u_n(\mathbf{r}) = 0$  et une relation d'orthogonalité. Pour une cavité rectangulaire fermée, il s'agit par exemple de  $u_n(\mathbf{r}) = u_{p,l,q}(\mathbf{r}) = \cos(p\pi x/a) \cos(l\pi y/b) \cos(q\pi z/c)$ . Pour des développements analytiques, ces fonctions sont particulièrement adaptées de par la simplicité de leur écriture, bien que leur emploi pour modéliser des cavités optiques réelles constitue une approximation (SIEGMAN 1986, p. 924). En effet, ces cavités ne sont pas sans pertes, et peuvent être ouvertes sur l'extérieur dans certaines directions. En pratique, il a pourtant été observé



que l'approximation reste excellente et permet la compréhension de nombreux phénomènes dans le cadre de l'étude des OPOs.

Bien que très utiles pour des approches analytiques (CASSEDY et JAIN 1979; YARIV 1966), les modes de Slater ne sont donc pas recommandés pour réaliser des simulations numériques car les discrétisations requises s'approchent de celles des logiciels commerciaux. Les cavités optiques OPOs sont en général bien plus grandes que la longueur d'onde étudiée, et la représentation informatique de la base spatiale devient impossible en temps fini. Lors de calculs numériques, on souhaite limiter au maximum les pas de discrétisation utilisés, par exemple en isolant les termes qui évoluent rapidement par rapport aux autres. Un choix intéressant est donc de chercher une nouvelle base de l'espace, différente de celle de Slater. Les études faisant appel à une base complète de l'espace permettant de séparer la partie spatiale de la partie temporelle seront qualifiées de « modales » par la suite.

### Les modes paraxiaux

Nous allons maintenant présenter une autre approche de type modale bien connue et plus adaptée aux systèmes de taille plus importante. Supposons que l'on s'intéresse à une propagation le long de l'axe  $z$ , et cherchons des fonctions  $u_n(\mathbf{r})$  telles que  $u_n(\mathbf{r})e^{-jk_n z}$  soit une base de l'espace, avec  $k_n$  un complexe non déterminé pour l'instant. On choisit cette fois la décomposition ci-dessous, qui n'est rien d'autre qu'une réécriture de 6.2 mathématiquement équivalente :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{E}_n(t) u_n(\mathbf{r}) e^{j[\omega_n t - k_n z]} \quad (6.3)$$

Les enveloppes  $u_n(\mathbf{r})$  ainsi définies n'ont pas de raison particulière de vérifier l'équation de Laplace comme c'était le cas pour les modes de Slater. En remplaçant formellement cette décomposition dans l'équation de Maxwell et en intégrant la polarisation linéaire du matériau au sein d'un indice optique noté  $n_n$ , on obtient :

$$e^{j[\omega_n t - k_n z]} \left[ \left[ \Delta u_n(\mathbf{r}) - k_n^2 u_n(\mathbf{r}) - 2jk_n \frac{\partial}{\partial z} u_n(\mathbf{r}) \right] \mathbf{E}_n(t) - \mu_0 \epsilon_0 n_n^2 u_n(\mathbf{r}) \left[ \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}_n(t) + 2j\omega_n \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_n(t) - \omega_n^2 \mathbf{E}_n(t) \right] \right] = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL} \quad (6.4)$$

Pour définir notre base on va donc chercher une famille de fonctions vérifiant les propriétés suivantes :

- La famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  satisfait l'équation de Helmholtz paraxiale :

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] u_n(x, y, z) - 2jk_n \frac{\partial}{\partial z} u_n(x, y, z) = 0 \quad (6.5)$$

- La famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  satisfait l'approximation de l'enveloppe lentement variable sur l'espace  $\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} u_n \right| \ll k_n \left| \frac{\partial}{\partial z} u_n \right|, \left| \frac{\partial}{\partial z} u_n \right| \ll k_n |u_n|$

- La famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  satisfait l'approximation de l'enveloppe lentement variable dans le temps  $\left| \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_n \right| \ll \omega_n |\mathbf{E}_n|$ ,  $\left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}_n \right| \ll \omega_n \left| \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_n \right|$
- On fixe  $k_n$  tel que  $k_n^2 = \mu_0 \epsilon_0 n_n^2 \omega_n^2$ , de manière à simplifier l'équation (6.4).

La solution d'un tel problème est connue (SIEGMAN 1986). Dans le système de coordonnées cartésiennes, les fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  s'expriment à l'aide de polynômes de Hermite Gauss (et de polynôme de Laguerre Gauss en coordonnées cylindriques). Il est connu que cette famille de fonctions est une base de l'espace transverse  $(x, y)$  et qu'elle vérifie en plus une relation de biorthogonalité. Par contre, rien ne prouve que la famille  $(u_n e^{-jk_n z})_{n \in \mathbb{N}}$  est une base de l'espace complet  $(x, y, z)$ . L'équation sur le champ électrique devient alors, en ne conservant que les termes d'ordre 1 après l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$\left[ j\omega_n \mu_0 \sigma \mathbf{E}_n(t) + \left( \mu_0 \sigma + \frac{2j\omega_n}{c^2} \right) \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_n(t) \right] u_n(x, y, z) e^{j[\omega_n t - k_n z]} = -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL} \quad (6.6)$$

Cette équation est beaucoup plus simple car elle ne porte que sur la seule variable temporelle, et la discrétisation à adopter sera donnée par la vitesse de variation de l'enveloppe  $\mathbf{E}_n(t)$ . En effet, le terme d'oscillation rapide  $e^{j[\omega_n t - k_n z]}$  va se simplifier après identification avec le terme oscillant à la même fréquence dans le terme non linéaire  $P_{NL}$ .

Cette famille de fonction est en réalité bien connue pour son application au cas particulier des cavités résonantes. Dans ce cadre, on les appelle alors les "modes spatiaux transverses" de la cavité, car on peut trouver une famille dont le profil d'intensité se reproduit identique à lui même après un aller retour (détaillé en Annexe B). Les utiliser en temps que base de l'espace complet est une approximation fréquemment utilisée, surtout pour des études en optique linéaire où ils permettent de simplifier grandement les problèmes (SIEGMAN 1986). A ce titre, il s'agit d'une approche tout à fait similaire à l'utilisation des modes de Slater, et constitue donc bien un second exemple de méthode modale.

### L'approche spatiale discrète

A l'opposé des approches modales se situent les approches que l'on qualifiera de "discrètes" : il s'agit de mailler l'espace et de calculer l'évolution des champs en chaque point après avoir utilisé l'approximation de l'enveloppe lentement variable. Par rapport à la décomposition universelle donnée par l'équation 6.2, chaque élément de la somme indexé par  $n$  correspond donc à une fonction de Dirac en un point donné de l'espace  $\mathbf{r}_n$  :  $u_n(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_n)$ . Ce type d'approche est uniquement pertinent pour un traitement numérique des équations avec l'utilisation de différences finies ou d'éléments finis. L'avantage de ce type de méthode repose sur leur précision : en adoptant un maillage suffisamment fin, on est capable de résoudre n'importe quel phénomène avec une bonne précision. Leur

principal inconvénient est le temps de calcul requis pour y parvenir, et on comprend qu'un compromis sera à trouver entre précision et temps de calcul.

Deux méthodes numériques populaires pour le traitement de l'interaction paramétrique font partie de cette catégorie.

La première, d'abord proposée par Smith (A V SMITH et al. 1995) puis étendue ensuite par Arisholm (ARISHOLM 1997), consiste à discrétiser l'espace complet  $(x,y,z)$  puis à propager les ondes le long de l'axe  $z$  en traitant les coordonnées transverses  $(x,y)$  à l'aide de transformations de Fourier à chaque pas. Cette transformation aller-retour dans l'espace de Fourier à chaque pas le long de l'axe  $z$  est la clef de ce modèle, et permet de ramener l'équation 6.1 à seulement deux inconnues ( $z$  et  $t$ ) pour ensuite utiliser des schémas numériques classiques. C'est la méthode la plus populaire par exemple pour simuler la dépendance transverse du champ et le spectre en présence de phénomènes multiples tels que la diffraction, le walk-off, des effets thermiques,... Le coût en temps de calcul réside principalement dans l'utilisation de la transformation de Fourier, et peut s'avérer rapidement limitant, tout particulièrement pour les durées de simulations dépassant quelques dizaines de nanosecondes. De plus, cette méthode est destinée à des largeurs spectrales fines car la simulation est effectuée pour chaque composante du vecteur d'onde dans la direction  $z$ . Le cas de pompes multimodes ou d'OPO large bande n'est donc pas efficacement traité.

Pour ces raisons, Smith a proposé une deuxième méthode (déclinée en trois variantes équivalentes) simplifiée faisant l'hypothèse des ondes planes (A. SMITH et al. 1999), mais adaptable aux OPO large bande. L'absence de plan transverse permet d'éviter d'effectuer les étapes de transformation de Fourier, et la méthode est bien plus rapide. Elle ne permet pas de modéliser l'évolution spatiale des faisceaux, mais est suffisante pour étudier le spectre dans les cas où les profils spatiaux se rapprochent de l'hypothèse des ondes planes. De plus, Smith propose une gestion intelligente de la mémoire permettant de simuler efficacement des impulsions relativement longues. Nous reprendrons plus en détail cette méthode par la suite, car elle a constitué un point de départ pour développer une méthode originale de résolution pour inclure la simulation des profils spatiaux transverses pour les OPOs large bande.

Actuellement, le logiciel libre SNLO développé par Smith permet d'effectuer des simulations employant les deux techniques discrètes que nous venons d'introduire (Arlee V SMITH 2003). Majoritairement orienté autour de l'amplification paramétrique optique, il contient une base importante de matériaux non linéaires pour étudier les accords de phase, et permet également d'effectuer des simulations au sein de cavité OPO résonantes simples. De son côté, Arisholm a développé un outil complet nommé SISYFOS (Simulation System for Optical Science) mettant en oeuvre la première technique, couplé éventuellement à des effets thermiques, des turbulences atmosphériques, un milieu à gain laser, ...ce logiciel n'est pas en libre distribution (ARISHOLM et FONNUM 2012).

## L'approche pseudo modale

On peut refuser de supposer que les modes spatiaux transverses que nous avons présentés soient une base de l'espace entier. Mathématiquement, ils forment toujours une base de l'espace transverse, et il est donc correct d'écrire la décomposition suivante :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{E}_n(z, t) u_n(x, y, z) e^{j[\omega_n t - k_n z]} \quad (6.7)$$

C'est cette même écriture qui a été utilisée par exemple par Schwob (SCHWOB et al. 1998), et qui permet ensuite d'adopter l'approche très visuelle baptisée par Siegman comme le "modèle de l'impulsion circulante" quand elle s'applique à un résonateur optique (SIEGMAN 1986). Il s'agit de voir un champ électrique résonant comme une "tranche" d'impulsion, qui se propage au sein de la cavité, effectuant de multiples aller retour et étant modifiée en amplitude et en phase par les éléments rencontrés. Cette vision n'est pas possible dans le cadre de l'approche modale complète, puisque les équations sont intégrées sur toutes les dimensions spatiales pour ne laisser que la variable temporelle à résoudre. Dans le cadre de cette approche, on fait donc le choix de conserver une approche modale sur la dimension transverse et une approche discrète pour la dimension longitudinale. Pour cette raison, nous qualifierons cette approche comme pseudo-modale, et nous présenterons dans la partie suivante un nouveau type de simulation pseudo-modale pour les OPOs.

## La variable temporelle

Indépendamment de la manière dont les variables d'espace sont traitées, deux méthodes de résolution existent pour traiter la variable temporelle. L'équation 6.1 peut être utilisée directement et résolue dans le domaine temporel, soit après l'application d'une transformation de Fourier pour résoudre un système d'équations dans l'espace des fréquences temporelles. Dans le cadre de l'optique linéaire, la transformation de Fourier est très utile car le système d'équations est indépendant : chaque équation peut être résolue sans se soucier des autres. Si seules quelques fréquences ont un réel intérêt, la résolution est alors beaucoup plus rapide, car c'est équivalent à retirer une dimension au modèle. Dans le cadre de l'optique non linéaire, on ne peut justement pas se reposer sur cette propriété de linéarité de la transformation de Fourier, et les équations du système dans l'espace de Fourier sont inter-dépendantes.

La méthode n'est pas inutile pour autant, car on peut toujours se restreindre sur certaines fréquences d'intérêt. Le meilleur exemple est le traitement monochromatique de l'amplification paramétrique, comme nous l'avons fait pour obtenir la forme optimale de pompage dans la partie précédente, et qui suppose les trois ondes en interaction comme étant monochromatiques. Cette hypothèse faite dans le domaine spectral est utilisée dans le domaine temporel pour déterminer l'enveloppe temporelle avec une résolution très faible, et cette méthode a été utilisée dans plusieurs études auparavant car elle permet

d'obtenir de nombreux résultats intéressants (DRAG et al. 2001 ; SCHWOB et al. 1998 ; URSCHER et al. 2000).

Lorsque l'on ne souhaite pas faire l'approximation des ondes monochromatiques, l'étude dans l'espace des fréquences n'est pas pertinente a priori. Démarrant la plupart du temps à partir du bruit quantique, le régime transitoire fera apparaître des fréquences variées qui n'interviendront peut être pas en régime stationnaire : un spectre continu est donc à prévoir et le domaine de Fourier sera moins bien adapté que le domaine temporel. En régime permanent, il est possible que seules quelques composantes de Fourier interviennent et le domaine de Fourier serait tout de même adapté dans ce cas. On peut même penser à un système hybride pour résoudre les problèmes faisant intervenir de longues durées d'impulsion ou des phénomènes physiques évoluant lentement, par la répétition des étapes suivantes :

- Modification du système physique, d'un paramètre qui varie sur des échelles de temps beaucoup plus longues que celle nécessaire à l'OPO pour atteindre le régime permanent (température, longueur de cavité,...)
- Calcul du régime transitoire dans le domaine temporel, puis transformation de Fourier pour identifier les fréquences dominantes du fonctionnement en continu.
- Calcul exact du régime permanent, restreint aux fréquences pertinentes trouvées à l'étape précédente.
- Nouvelle modification du système physique

Ce dernier processus représente donc l'élimination adiabatique numérique du régime transitoire de l'OPO.

### Résumé des modèles et expression du besoin

Les diverses méthodes utilisées dans les publications se répartissent de la manière suivante, sachant que toutes emploient à un moment ou à un autre l'approximation de l'enveloppe lentement variable.

Il semble qu'aucune tentative de code pseudo-modal dans le domaine temporel n'ai été proposée jusqu'à maintenant. Il présenterait pourtant des atouts intéressants. Il permettrait d'abord de simuler le spectre des OPO large bande d'une manière aussi performante que celle de A. SMITH et al. 1999, en prenant en compte des effets tels que la dispersion, le désaccord de phase et l'impact de la géométrie de la cavité sur le spectre. Mais il pourrait surtout être généralisé en simulant également les profils spatiaux transverses, prenant ainsi en compte des phénomènes d'importance comme la diffraction ou encore la possible biréfringence. Le frein à ce développement réside dans les temps de calcul que l'on peut attendre de l'ordre de ceux des méthodes discrétisées. Nous allons pourtant montrer qu'un compromis est possible à l'aide de la base pseudo modale des modes transverses de cavité,

TABLE 6.1 – Classification des différents modèles numériques de la littérature en fonction du traitement des variables d’espace et de temps.

|                 | Domaine temporel   | Domaine fréquentiel   |
|-----------------|--|---|
| Modal           | YARIV 1966<br>BOLLER et SCHRÖDER 1993<br>CASSEDY et JAIN 1979  | YARIV 1966  |
| Pseudo<br>Modal |  | SCHWOB et al. 1998  |
| Discretisé      | A V SMITH et al. 1995<br>A. SMITH et al. 1999<br>ARISHOLM 1997 | FIX et WALLENSTEIN 1996<br>DRAG et al. 2001 (Code ONERA)<br>URSCHEL et al. 2000 |

qui permet de conserver des temps de calculs raisonnables à condition de ne retenir dans notre calcul qu’un nombre restreint de ces modes.

Cette hypothèse supplémentaire sera peut être limitée dans le cas de l’OPA pour laquelle les profils spatiaux peuvent prendre des formes dépendant fortement du profil de pompage, et pour lesquels un nombre important de modes serait nécessaire pour correctement simuler le comportement. En revanche, elle semble très pertinente pour les oscillateurs paramétriques optiques, pour lesquels on observe justement ces profils transverses en pratique (Herwig KOGELNIK et T. LI 1966). La prise en compte de la diffraction serait directement incluse dans la dépendance spatiale de ces modes, et il ne serait donc pas nécessaire de la recalculer à chaque étape. Ce choix de base possède également une autre vertu : les calculs de propagation de ces modes le long de l’axe optique sont extrêmement rapides car ils sont pris en charge par le formalisme ABCD (voir Annexe B). Il nous sera donc possible de déplacer les ondes à peu de frais au sein d’une géométrie de type ABCD a priori quelconque.

## 6.2 Un nouveau modèle pseudo-modal

Un logiciel complet de simulation nommé GOSS (Gaussian Optics Simulation Software) a été développé au cours de cette thèse, comportant entre autre une première version d’un modèle pseudo modal. Il se présente sous la forme d’une librairie externe développée dans le langage orienté objet de haut niveau python. Ce langage est en plein essor au sein de la communauté scientifique de manière générale, et l’architecture orientée objet est très intéressante dans le cadre du développement de logiciels destinés à évoluer et à recueillir diverses contributions. L’idée est aussi de pouvoir réunir au sein d’une plateforme commune différents modèles numériques dans le but de les comparer. Cette nouvelle plateforme est désormais identifiable par l’icône présentée sur la figure 6.1.

La librairie GOSS vise à écrire un code général de simulation faisant intervenir des



FIGURE 6.1 – Icône du logiciel GOSS développé au cours de la thèse.

milieux complexes en interaction non linéaire avec le champ électromagnétique et qui pourra évoluer en fonction des enjeux. L'un des avantages majeurs du traitement de l'interaction paramétrique par ce type de code orienté objet est de pouvoir gérer plus facilement les nombreux paramètres mis en jeu tels que les fréquences de résonance, les désaccords de phase, les miroirs sélectifs, ... Une automatisation est importante de ce point de vue car elle réduit le risque d'erreur. La représentation des champs au sein de la librairie est également choisie de manière à être adaptable à l'ensemble des techniques qui sont apparues dans la littérature et que l'on a introduites dans la section précédente.

### 6.2.1 Amplification paramétrique pseudo-modale

Nous allons dans cette section utiliser pour la première fois une décomposition de type pseudo modale pour traiter le processus d'interaction paramétrique dans le domaine temporel entre une onde de pompe indiquée 1, une onde signal indiquée 2 et une onde complémentaire indiquée 3.

#### Décomposition du champ électrique

Dans la décomposition du champ électrique pseudo-modale donnée par l'équation 6.7, il est nécessaire d'identifier les termes oscillants rapidement comme  $\exp(j[\omega_n t - k_n z])$  afin de pouvoir à terme utiliser l'approximation de l'enveloppe lentement variable pour accélérer les simulations numériques. Dans le cadre de l'optique non linéaire, trois ondes sont en interaction, et chacune possède un terme en oscillation rapide qui lui est propre, appelé porteuse. On fait le choix d'utiliser une porteuse différente pour chaque onde, bien que certains auteurs ont développé des codes avec une seule porteuse au prix de la perte de l'approximation de l'enveloppe lentement variable. On se restreint donc au cas où les trois ondes présentent des spectres bien disjointes, ce qui recouvre la grande majorité des situations pratiques. Pour les cas dégénérés ou si les spectres des ondes signal et complémentaire se recouvrent, le même formalisme peut être adapté en omettant la troisième onde. En introduisant les coefficients  $\mathbf{A}_n(z, t) = \sqrt{\frac{n_n}{\omega_n}} \mathbf{E}_n(z, t)$  dans l'équation 6.7, d'une manière similaire au modèle analytique en onde plane de la partie 5.2.2, on obtient la décomposition du champ électrique dans le cadre de notre étude :



$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_t(r,t) = & \exp(j[\omega_1 t - k_1 z]) \sqrt{\frac{\omega_1}{n_1}} \sum_{pl} \mathbf{A}_{pl1}(z,t) u_{pl1}(\mathbf{r}) \\
& + \exp(j[\omega_2 t - k_2 z]) \sqrt{\frac{\omega_2}{n_2}} \sum_{qm} \mathbf{A}_{qm2}(z,t) u_{qm2}(\mathbf{r}) \\
& + \exp(j[\omega_3 t - k_3 z]) \sqrt{\frac{\omega_3}{n_3}} \sum_{rn} \mathbf{A}_{rn3}(z,t) u_{rn3}(\mathbf{r}) \quad (6.8)
\end{aligned}$$

Avec  $(u_{ij})_{i,j \in \mathbb{N}}$  une des familles de fonctions présentées dans l'annexe B, et qui correspond à une expression identique à celle des modes paraxiaux déjà présentés.

Il est à noter que la décomposition discrète que l'on vient d'effectuer s'apparente à une décomposition de Fourier en raison de l'apparition des porteuses à des fréquences choisies arbitrairement. Cependant, les coefficients (ou enveloppes) de la décomposition dépendent toujours du temps, et cette dépendance portera alors le spectre correct. On procédera néanmoins plus tard à une identification des termes oscillants avec la même porteuse dans l'équation de Maxwell s'apparentant alors fortement à une projection sur les composantes de Fourier. La validité de cette opération sera alors garantie par notre hypothèse de non recouvrement des spectres entre les porteuses choisies pour la décomposition.

On suppose pour la suite que l'ensemble de nos ondes se propagent selon l'axe  $z$ , et que leur polarisation est linéaire pour simplifier notre exposé.

### Polarisation électronique du milieu

Les cristaux seront orientés afin de faire correspondre l'axe dit "extraordinaire" avec la verticale  $y$ . L'axe "ordinaire" sera supposé confondu avec la direction horizontale  $x$ . Avant d'utiliser l'équation de Maxwell 6.1, il nous faut expliciter le terme de polarisation  $\mathbf{P}$ . En se limitant aux termes quadratiques, l'expression générale de la polarisation électronique dans le domaine de Fourier s'écrit comme suit :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega) = \underbrace{\epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^1(\omega) \cdot \mathbf{E}_t(\mathbf{r},\omega)}_{\mathbf{P}_L} + \underbrace{\epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}_t(\mathbf{r},\omega_1) \cdot \mathbf{E}_t(\mathbf{r},\omega_2)}_{\mathbf{P}_{NL}} \quad (6.9)$$

Dans l'équation 6.9, on a introduit les tenseurs caractéristiques de tout matériau lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique intense, à savoir  $\underline{\underline{\chi}}^1$  pour la susceptibilité diélectrique linéaire, et  $\underline{\underline{\chi}}^{(2)}$  la susceptibilité diélectrique non linéaire du deuxième ordre. On appellera la partie linéaire  $P_L$  et la partie non linéaire  $P_{NL}$  par la suite. De par notre hypothèse de linéarité des polarisations des champs électriques, on peut réduire l'expression à un scalaire. Afin de pouvoir identifier les termes par fréquence angulaire une fois insérés dans l'équation de Maxwell 6.1, on cherche à écrire la partie non linéaire de la polarisation sous la forme  $P_{NL}(\mathbf{r},t) \approx P_1(\mathbf{r},t)e^{j\omega_1 t} + P_2(\mathbf{r},t)e^{j\omega_2 t} + P_3(\mathbf{r},t)e^{j\omega_3 t}$ , ne retenant que les composantes d'intérêt. On peut les exprimer comme suit :



$$\left\{ \begin{array}{l} P_1(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_2 z} \sum_{qm} E_{qm2}(z,t) u_{qm2} \right] \left[ e^{-jk_3 z} \sum_{rn} E_{rn3}(z,t) u_{rn3} \right] \\ P_2(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_1 z} \sum_{pl} E_{pl1}(z,t) u_{pl1} \right] \left[ e^{-jk_3 z} \sum_{rn} E_{rn3}(z,t) u_{rn3} \right]^* \\ P_3(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_1 z} \sum_{pl} E_{pl1}(z,t) u_{pl1} \right] \left[ e^{-jk_2 z} \sum_{qm} E_{qm2}(z,t) u_{qm2} \right]^* \end{array} \right. \quad (6.10a)$$

$$\left. \begin{array}{l} P_2(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_1 z} \sum_{pl} E_{pl1}(z,t) u_{pl1} \right] \left[ e^{-jk_3 z} \sum_{rn} E_{rn3}(z,t) u_{rn3} \right]^* \\ P_3(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_1 z} \sum_{pl} E_{pl1}(z,t) u_{pl1} \right] \left[ e^{-jk_2 z} \sum_{qm} E_{qm2}(z,t) u_{qm2} \right]^* \end{array} \right. \quad (6.10b)$$

$$\left. \begin{array}{l} P_3(x,y,z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ e^{-jk_1 z} \sum_{pl} E_{pl1}(z,t) u_{pl1} \right] \left[ e^{-jk_2 z} \sum_{qm} E_{qm2}(z,t) u_{qm2} \right]^* \end{array} \right. \quad (6.10c)$$

### Équation paramétriques du modèle pseudo-modal

Supposons l'absorption négligeable ( $\sigma = 0$ ) afin de simplifier notre exposé, même si sa prise en compte ne comprend pas de difficulté. En combinant l'équation 6.1 et l'expression de la polarisation que nous venons d'explicitier au système 6.10, puis en projetant l'équation sur les trois porteuses en présence, on obtient les trois équations portant respectivement sur la pompe, le signal et le complémentaire. La partie linéaire de la polarisation a été déplacée dans le membre de droite et incorporée classiquement au sein de l'indice optique  $n_i$  pour l'onde numéro  $i$ . Nous l'écrivons ci dessous par exemple pour le signal :

$$\begin{aligned} \exp(j[\omega_2 t - k_2 z]) \sqrt{\frac{\omega_2}{n_2}} \sum_{qm2} \left[ \left[ \Delta u_{qm2} - k_2^2 u_{qm2} - 2jk_2 \frac{\partial}{\partial z} u_{qm2} \right] A_{qm2}(z,t) \right. \\ \left. + \left[ -2jk_2 u_{qm2} + 2 \frac{\partial}{\partial z} u_{qm2} \right] \frac{\partial}{\partial z} A_{qm2}(z,t) + \left[ \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_{qm2}(z,t) \right] u_{qm2} \right. \\ \left. - \mu_0 \epsilon_0 n_2^2 \left[ \frac{\partial^2}{\partial t^2} A_{qm2}(z,t) + 2j\omega_2 \frac{\partial}{\partial t} A_{qm2}(z,t) - \omega_2^2 A_{qm2}(z,t) \right] \right] \\ = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} [\exp(j\omega_2 t) P_2] \quad (6.11) \end{aligned}$$

C'est à cette étape que l'on constate la pertinence des choix effectués pour simplifier l'équation 6.11. Les mêmes arguments que ceux utilisés pour obtenir les équations modales paraxiales sont désormais utilisés, à savoir les propriétés des fonctions  $u_{ij}$ , l'approximation de l'enveloppe lentement variable et le choix du vecteur d'onde  $k$ . Ne gardant que les termes d'ordre inférieur ou égaux à 1 et utilisant la propriété d'orthonormalisation des fonctions  $u_{ij}$ , on obtient donc le système d'amplification paramétrique pseudo modal :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{pl1}(z,t) = -j\kappa(z) e^{j\Delta kz} \sum_{q,m,r,n} (\Lambda_{lmn}^{pqr}(z))^* A_{qm2}(z,t) A_{rn3}(z,t) \end{array} \right. \quad (6.12a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_2}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{qm2}(z,t) = -j\kappa(z) e^{-j\Delta kz} \sum_{p,l,r,n} \Lambda_{lmn}^{pqr}(z) A_{pl1}(z,t) A_{rn3}^*(z,t) \end{array} \right. \quad (6.12b)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_3}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{rn3}(z,t) = -j\kappa(z) e^{-j\Delta kz} \sum_{p,l,q,m} \Lambda_{lmn}^{pqr}(z) A_{pl1}(z,t) A_{qm2}^*(z,t) \end{array} \right. \quad (6.12c)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta k = k_1 - k_2 - k_3 \\ \kappa(z) = \frac{\chi^{(2)}(z)}{2c} \sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3}{n_1 n_2 n_3}} \\ \Lambda_{lmn}^{pqr}(z) = \iint u_{pl1} u_{qm2}^* u_{rn3}^* dx dy \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (6.13a) \\ (6.13b) \\ (6.13c) \end{array}$$

Le système d'équations 6.13 obtenu ci-dessus est un ensemble d'équations d'advections, dont le terme de source est non linéaire, et dont les inconnues sont les enveloppes  $A_{ijk}$ . On dispose d'une équation pour chaque porteuse et pour chaque fonction de la base pseudo modale. Chaque équation fait donc intervenir seulement deux variables : le temps et la position sur l'axe optique. Dans la mesure où la base de fonctions est orthonormée, elle adopte l'unité de  $m^{-1}$ , les composantes du champ électrique  $E_{ijk}$  s'expriment donc en volts  $V$  et les enveloppes  $A_{ijk}$  en  $V.s^{1/2}$ .

Le cas des ondes planes se retrouve aisément, puisque dans ce cas tout se passe comme s'il n'y avait qu'une seule fonction dans la famille pseudo modale  $(u_{ij})_{i,j \in \mathbb{N}}$ , et que cette fonction vaut 1. On retrouve bien une forme identique à celle donnée par A. SMITH et al. 1999, à un signe négatif près devant le terme non linéaire dû à notre convention de propagation  $\exp(j[+\omega t - kz])$  opposée à celle des auteurs de ce papier.

Dans le cas d'un cristal périodiquement retourné,  $\chi^{(2)}$  vaut alternativement  $|\chi^{(2)}|$  et  $-|\chi^{(2)}|$ . Il est toujours possible de recentrer le désaccord de phase  $\Delta k$  autour de zéro par l'opération  $\Delta k_{eff} = \Delta k - 2\pi/\tilde{l}$ , avec  $\tilde{l}$  la période du réseau utilisé, au prix de l'utilisation d'un effet non linéaire effectif constant :  $\chi_{eff}^{(2)} = 2/\pi |\chi^{(2)}|$ . On rencontre parfois la notation  $d = |\chi^{(2)}|/2$ , bien que sur des papiers plus anciens on rencontre plutôt  $d = |\chi^{(2)}|/(8\pi)$  (par exemple J.E. BJORKHOLM 1969).

La fonction  $\Lambda_{lmn}^{pqr}(z)$  évalue une forme de recouvrement entre les bases de fonctions choisies pour chaque onde. Sa dépendance vis-à-vis de  $z$  dans les fonctions représente la prise en compte de la diffraction. Nous les appellerons désormais "Coefficients de couplage modaux".

## 6.2.2 Principe de la simulation numérique

### Propagation pseudo modale dans une séquence d'éléments d'optique

Une gestion de la géométrie originale est proposée dans le cadre de notre modèle pseudo modal. La majorité des codes reportés dans la littérature supposent une séquence d'interaction paramétrique unique, avec la mise en place d'une boucle de rétro action pour traiter le cas des résonateurs. Bien que cette approche soit suffisante pour recréer la physique des phénomènes, il n'est pas toujours possible de simuler convenablement des systèmes plus complexes tels qu'ils sont utilisés en laboratoire, comme par exemple le NesCOPO faisant intervenir deux cavités imbriquées différentes.

Notre approche pseudo modale peut bénéficier du formalisme ABCD de propagation

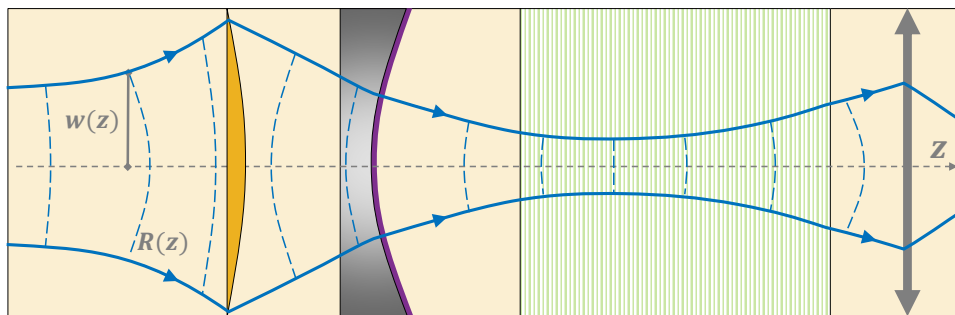


FIGURE 6.2 – Principe de la propagation des faisceaux gaussiens dans un exemple de séquence, mettant en œuvre la loi ABCD. Toute modification de la géométrie du faisceau est portée sur la base  $u_{ij}(r)$ , et toute modification d’amplitude (par exemple par l’action d’un coating représenté ici en violet) est reportée sur l’enveloppe  $A_{ij}(z,t)$ .

des ondes paraxiales gaussiennes détaillé dans l’annexe B. Si on a déjà mis en lumière son intérêt concernant la propagation au sein d’un milieu donné qui permet d’éviter de calculer la diffraction, on peut également bénéficier de la facilité de sa propagation au sein d’une séquence quelconque d’éléments d’optiques mis en cascade. Grâce à cette possibilité, notre code va ainsi pouvoir simuler la propagation au sein de n’importe quelle séquence d’éléments d’optiques représentables par une matrice ABCD. Toutes les modifications d’amplitudes rencontrées le long du trajet au sein de ces séquences quelconques seront reportées sur les enveloppes  $A_{ijk}$ , que ce soit des absorptions par unité de longueur, des traitements de miroirs, des déphasages éventuels à certaines interfaces, des gains lasers,... Toutes les modifications de géométrie des faisceaux, entraînées par exemple par la diffraction, la réfraction, des lentilles, des miroirs courbés ou autres optiques seront quand à elles absorbées par la famille de fonction pseudo modale. On note d’après le système 6.12 que dans tout milieu propagatif linéaire, le système se résume à une équation d’advection. L’amplitude des enveloppes n’est donc pas modifiée par une propagation au sein d’un milieu linéaire non absorbant, dont la traversée sera donc instantanée pour notre code. Seules les séquences d’interaction paramétrique demanderont donc des ressources importantes.

On rappelle également depuis l’annexe B que la famille de fonctions pseudo-modales est définie par rapport à un plan de référence quel que soit le système de coordonnées choisi. Au niveau de ce plan que l’on peut choisir arbitrairement au sein de la séquence, trois paramètres sont encore libres : le paramètre gaussien  $q$ , le paramètre  $w$  et la phase globale. Les lois ABCD déterminent ensuite la manière dont ces paramètres se transforment à mesure que l’onde avance au sein de la séquence. En général, le choix naturel pour le paramètre  $w$  est de prendre la taille physique du faisceau, ce qui permet d’utiliser uniquement la première fonction de la famille  $(u_{ij})_{i,j \in \mathbb{N}}$ , mais ce n’est pas une obligation.

### Méthode numérique de résolution

Nous allons désormais détailler une méthode de type FDTD (Finite Difference Time Domain) d'abord proposée par Smith (A. SMITH et al. 1999) afin de résoudre numériquement le système d'équations 6.12c pour l'amplification paramétrique.

L'axe de propagation est discrétisé en une série de  $N_z$  points discrets  $z_0, z_1, \dots, z_{N_z-1}$ , tout comme la durée totale de la simulation divisée en une série de  $N_t - 1$  instants  $t_0, t_1, \dots, t_{N_t-1}$ . Pour faciliter l'exposé de la méthode, on supposera néanmoins que le pas est constant et égal à  $dz$ . La méthode pourrait cependant être améliorée par l'emploi d'un pas adaptatif. Pour des questions de mémoire informatique, les champs électriques ne peuvent pas être discrétisés sur l'espace  $(z, t)$  complet. On fait le choix de stocker l'enveloppe temporelle complète sur l'historique complet (sur l'ensemble du vecteur  $t$ ), mais à une position unique  $z_l$ . Les champs sont ensuite propagés sur l'axe  $z$  de proche en proche, à mesure que la simulation numérique progresse. A chaque propagation, les champs sont mis à jour et les états aux abscisses antérieures sont donc perdus. Cette approche nous permet d'enregistrer les résultats aux points d'intérêt sur  $z$  uniquement.

La gestion de la propagation consiste à utiliser un schéma dit de "Split-Step" lorsque des séquences d'interaction non linéaire interviennent. A chaque position sur l'axe  $z$ , on résout d'abord le système en supposant que les ondes sont immobiles, c'est à dire en négligeant le terme temporel (Step 1). C'est donc équivalent à évaluer le couplage non linéaire à chaque position :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial}{\partial z} A_{pl1}(z, t) = -j\kappa(z) e^{j\Delta kz} \sum_{q, m, r, n} (\Lambda_{lmn}^{pqr}(z))^* A_{qm2}(z, t) A_{rn3}(z, t) \\ \frac{\partial}{\partial z} A_{qm2}(z, t) = -j\kappa(z) e^{-j\Delta kz} \sum_{p, l, r, n} \Lambda_{lmn}^{pqr}(z) A_{pl1}(z, t) A_{rn3}^*(z, t) \\ \frac{\partial}{\partial z} A_{rn3}(z, t) = -j\kappa(z) e^{-j\Delta kz} \sum_{p, l, q, m} \Lambda_{lmn}^{pqr}(z) A_{pl1}(z, t) A_{qm2}^*(z, t) \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (6.14a) \\ (6.14b) \\ (6.14c) \end{array}$$

Ce type de système fait intervenir uniquement des équations différentielles du premier ordre avec une unique variable de dérivation. Il est donc très bien adapté à une résolution de type Runge-Kutta très populaire pour permettre des résultats précis et un schéma robuste numériquement pour des ordres supérieurs ou égaux à 4.

Une fois que les enveloppes  $A_{ijk}$  ont été mises à jour de cette manière, on suppose alors qu'il n'y a plus d'interactions non linéaires, et qu'il ne reste donc plus que le terme d'advection (Step 2) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{pl1}(z, t) = 0 \\ \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_2}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{qm2}(z, t) = 0 \\ \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_3}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{rn3}(z, t) = 0 \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} (6.15a) \\ (6.15b) \\ (6.15c) \end{array}$$

Le système d'équation 6.15 est plus difficile à résoudre de manière stable malgré les apparences. Il est très pratique d'introduire à ce stade une échelle de temps recentrée par rapport à la vitesse de propagation d'une onde de référence, par exemple la plus rapide. On note  $f$  l'indice de l'onde dont l'indice optique  $n_f$  est le plus faible parmi les ondes 1, 2, et 3. Le nouveau jeu de variables considéré est alors le suivant :

$$\begin{cases} z' = z & (6.16a) \\ t' = t - n_f z/c & (6.16b) \end{cases}$$

Le nouveau référentiel est donc équivalent à celui qui se déplacerait à la même vitesse que l'onde la plus rapide. L'enveloppe de cette onde la plus rapide est donc stationnaire dans ce référentiel en l'absence de toute interaction, permettant ainsi d'éviter tout calcul dans ce cas. On utilise ensuite une transformation de Fourier pour les autres ondes, que l'on écrit par exemple pour la pompe :

$$\left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_1 - n_f}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] A_{pl1}(z, t) = 0 \quad (6.17)$$

Les enveloppes des ondes les moins rapides vont donc évoluer plus lentement sur la grille mouvante que si on utilisait la variable temporelle initiale  $t$ , comme on peut le constater dans le nouveau coefficient d'advection réduit  $(n_1 - n_f)/c$ . Dans l'espace de Fourier utilisant la convention  $\hat{A}_{pl1}(z, \Delta\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_{pl1}(z, t') e^{-j\Delta\omega t'} dt'$ , l'équation devient :

$$\left[ \frac{\partial}{\partial z} + j\Delta\omega \frac{n_1 - n_f}{c} \right] \tilde{A}_{pl1}(z, \Delta\omega) = 0 \quad (6.18)$$

Une solution de cette équation après la propagation sur un pas  $dz$  est classique, et une transformation de Fourier inverse nous permet de récupérer le champ propagé par l'advection.

$$\tilde{A}_{pl1}(z + dz, t') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}_{pl1}(z, \Delta\omega) \exp\left(-j\Delta\omega \frac{n_1 - n_f}{c} dz\right) \exp(j\Delta\omega t') d\Delta\omega \quad (6.19)$$

L'opération précédente retarde dans le temps les enveloppes relativement à l'onde la plus rapide, car elles prennent un peu de retard du fait de leur vitesse de groupe moins élevée. La variable de Fourier  $\Delta\omega$  représente en pratique l'écart à la porteuse puisque l'on a éliminé le terme d'oscillation rapide lors de la décomposition. L'indice optique peut ici dépendre de la fréquence : on peut donc prendre en compte la dispersion dans ce modèle.

L'utilisation de cette méthode de propagation, même en l'absence de couplage non linéaire, peut produire une explosion du schéma numérique à long terme. C'est un phénomène connu pour l'équation d'advection traitée numériquement par transformation de Fourier (voir "analyse de Von Neuman" pour plus de détails). Une méthode classique pour atténuer ce problème est le filtrage spectral. On peut penser également à ajouter une diffusion numérique, ce qui revient à multiplier chaque composante de Fourier par la

fonction  $\exp(-D\omega^2)$ . On voit que toutes les composantes sont affectées, et le spectre est donc altéré par ce filtre. On peut préférer une fonction « plateau », qui vaut 1 sur les fréquences d'intérêt et qui rejoint progressivement zéro aux extrémités, comme par exemple la fonction  $\exp(-36x^{36})$ . Nous avons retenu cette dernière solution, dans la mesure où elle modifie peu les basses fréquences qui seront d'importance dans notre modélisation.

### 6.2.3 Simulations en cavité résonantes

#### Auto-reproductibilité des paramètres

La méthode de propagation "Split-Step" que nous avons vu permet de se déplacer au sein d'une séquence quelconque d'éléments optiques représentables par une matrice ABCD. Le cas des cavités optiques résonantes peut se ramener à cette situation. Il est connu en effet qu'une impulsion résonante au sein d'une cavité peut être aussi représentée comme une simple propagation au sein d'une séquence périodique. L'analogie est présentée pour le cas très simple d'une cavité Fabry-Perot symétrique de longueur  $L_c$  et de réflectivité  $R$  sur la figure 6.3.

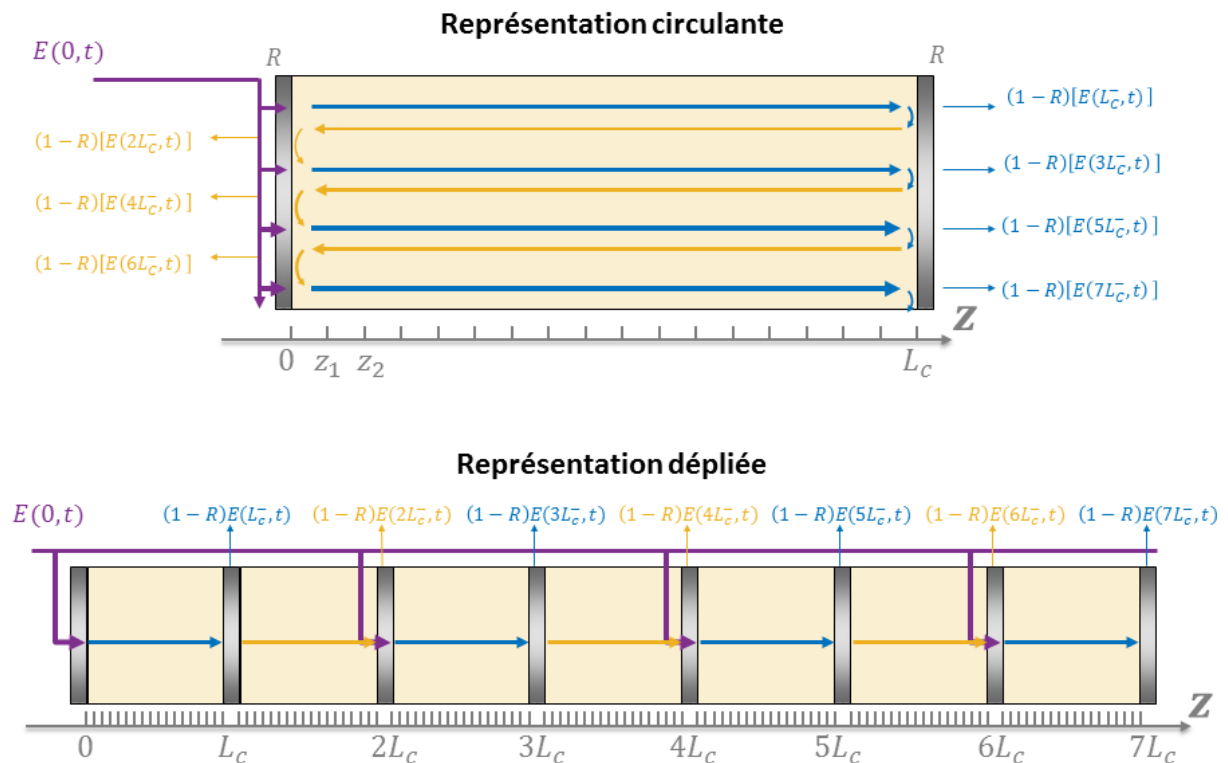


FIGURE 6.3 – Schéma d'une cavité Fabry-Perot, dans sa représentation "circulante" et "dépliée". L'onde extérieure incidente sur le Fabry-Perot est représentée en violet. Les ondes voyageant vers la droite sont représentées en bleu, et celles vers la gauche en jaune.

Une base pseudo modale particulière exploitant cette périodicité va nous permettre d'accélérer considérablement les calculs. Pour des résonateurs optiques stables, un jeu de paramètres gaussiens  $q$  et  $w$  existent tels que la base de fonctions pseudo-modales soit

auto-reproduite en intensité après chaque aller retour. La démonstration est disponible dans l'annexe B, et l'expression de la base pseudo modale rejoint alors celle des modes transverses gaussiens bien connu des cavités résonantes. Cela signifie que le calcul de la propagation de la base n'est alors nécessaire que sur un seul aller retour. Concrètement, on choisira donc un plan de référence quelconque au sein de chaque cavité résonante, à partir duquel on calculera les valeurs de  $q$  et  $w$  telles que la base soit auto reproduite en intensité. On rappelle que l'expression de la base au retour de la cavité n'a aucune raison d'avoir la même expression à l'aller et au retour, ce cas de figure apparait uniquement dans le cas d'une cavité symétrique par rapport à son milieu sur l'axe  $z$ . D'après nos rappels dans l'annexe B dans le cas où la base de fonction auto reproduite des ondes résonantes a pour expression  $u_{pl}(x,y,z)$  en  $z = z_i$  au tour  $N$ , alors elle aura l'expression  $\exp [j(p + l + 1)\varphi_{G00}] u_{pl}(x,y,z)$  au tour  $N + 1$  (les coordonnées utilisées sont cartésiennes ici).  $\varphi_{G00}$  représente la phase de Gouy acquise par le mode fondamental après un aller retour dans la cavité, et il ne dépend que de la géométrie de la cavité. L'auto reproduction n'est donc valable qu'à une phase globale près, il sera donc possible de réutiliser l'expression de la base d'un tour sur l'autre à condition de multiplier en contrepartie les enveloppes par ce terme de phase à chaque fois.

Cette auto reproductibilité des bases de fonctions entraine également l'auto reproductibilité des constantes de couplage  $\Lambda_{lmn}^{pqr}$ , toujours à une constante près. D'une manière générale, le calcul de l'intégrale de recouvrement sera donc nécessaire à chaque séquence d'amplification paramétrique au cours du premier aller-retour dans la cavité considérée. Si de plus les matrices ABCD sont identiques dans le plan tangentiel et sagittal, alors le système présente une symétrie de révolution et le temps de calcul de la constante de couplage en coordonnées cartésiennes est divisé par deux.

### Gestion efficace de la mémoire

La méthode consistant à propager sur l'axe  $z$  l'historique entier des enveloppes  $A_{ijk}(t)$  est possible en cavité résonante puisque c'est un cas particulier de propagation. On reprend le cas du résonateur de Fabry-Perot présenté sur la figure 6.3 pour illustrer sur un exemple cette possibilité. On suppose que l'on injecte un champ électrique dont la porteuse est un mode longitudinal, permettant d'obtenir une interférence constructive à chaque aller retour. Cette cavité ne présente pas de séquences d'amplification paramétrique, et l'aller retour ne nécessite que les étapes de propagation et d'atténuation de l'enveloppe par les miroirs. Le processus permettant de construire l'impulsion est présenté sur la figure 6.4 ci dessous.

Après chaque aller retour, la prise en compte du champ électrique injecté dans le résonateur (en violet sur la figure 6.4) vient s'additionner à l'onde qui vient d'effectuer un aller retour. Dans la représentation non dépliée, on a égalité entre les abscisses  $z = 0$ ,  $z = 2L_c$ ,  $z = 4L_c$ , ... Si la simulation est suffisamment longue, l'enveloppe finale contient bien la solution correcte.

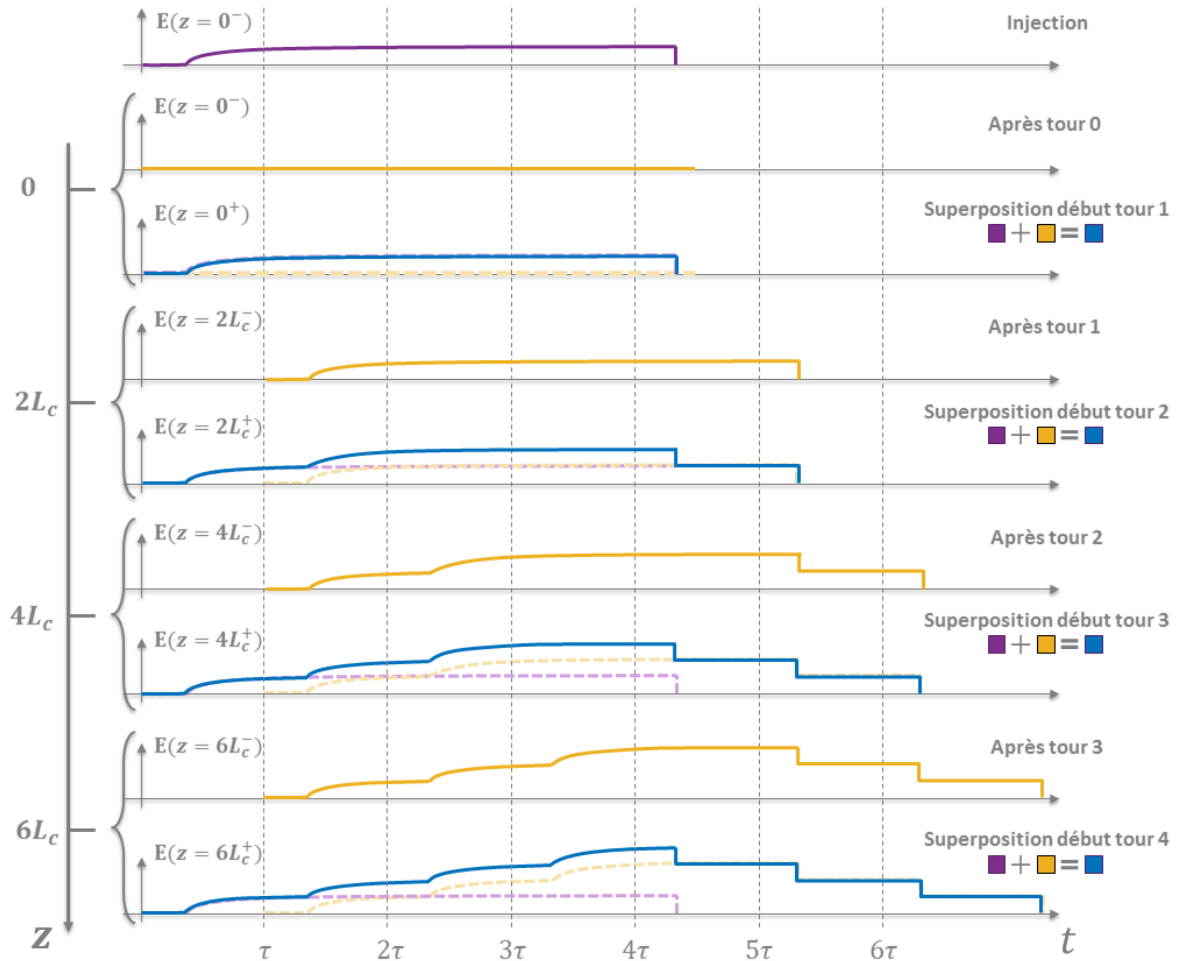


FIGURE 6.4 – Schéma illustrant les étapes pour construire la réponse de la cavité Fabry-Perot de la figure 6.3, dans le cas d’une gestion des enveloppes par historique complet.

Cette méthode est cependant relativement naïve, car on remarque que seule une partie très restreinte de l’historique est inchangée d’un tour sur l’autre. En effet, seule une tranche temporelle d’épaisseur  $\tau = 2L_c/c$  est ajoutée au résultat final après chaque aller retour, et le reste est écrasé par les tours ultérieurs. Pour les résonateurs faisant intervenir une interaction paramétrique, le fait de calculer le couplage à chaque point de la grille temporelle (voir équation 6.14) entraîne donc des calculs inutiles puisqu’ils sont écrasés ultérieurement. Un moyen d’exploiter la périodicité de la structure est de ne représenter qu’une tranche temporelle de largeur  $\tau$ . A chaque tour, on enregistre cette tranche lorsqu’elle passe par une extrémité du résonateur. A la fin de la simulation, toutes ces tranches sauvegardées et juxtaposées donnent également la solution correcte. Ce principe bien plus efficace est présenté sur la figure 6.5 ci dessous.

Cette méthode est à adapter dans le cas où on gère deux ondes ou plus à l’aide de la même base de temps, comme c’est le cas par exemple pour l’interaction paramétrique. D’abord, l’épaisseur de la tranche peut être plus petite que le temps d’aller retour. L’écart temporel entre les deux peut être compensé par un décalage sur les enveloppes sous la forme d’une advection, conformément à l’équation 6.15. Par convention, on prendra l’onde



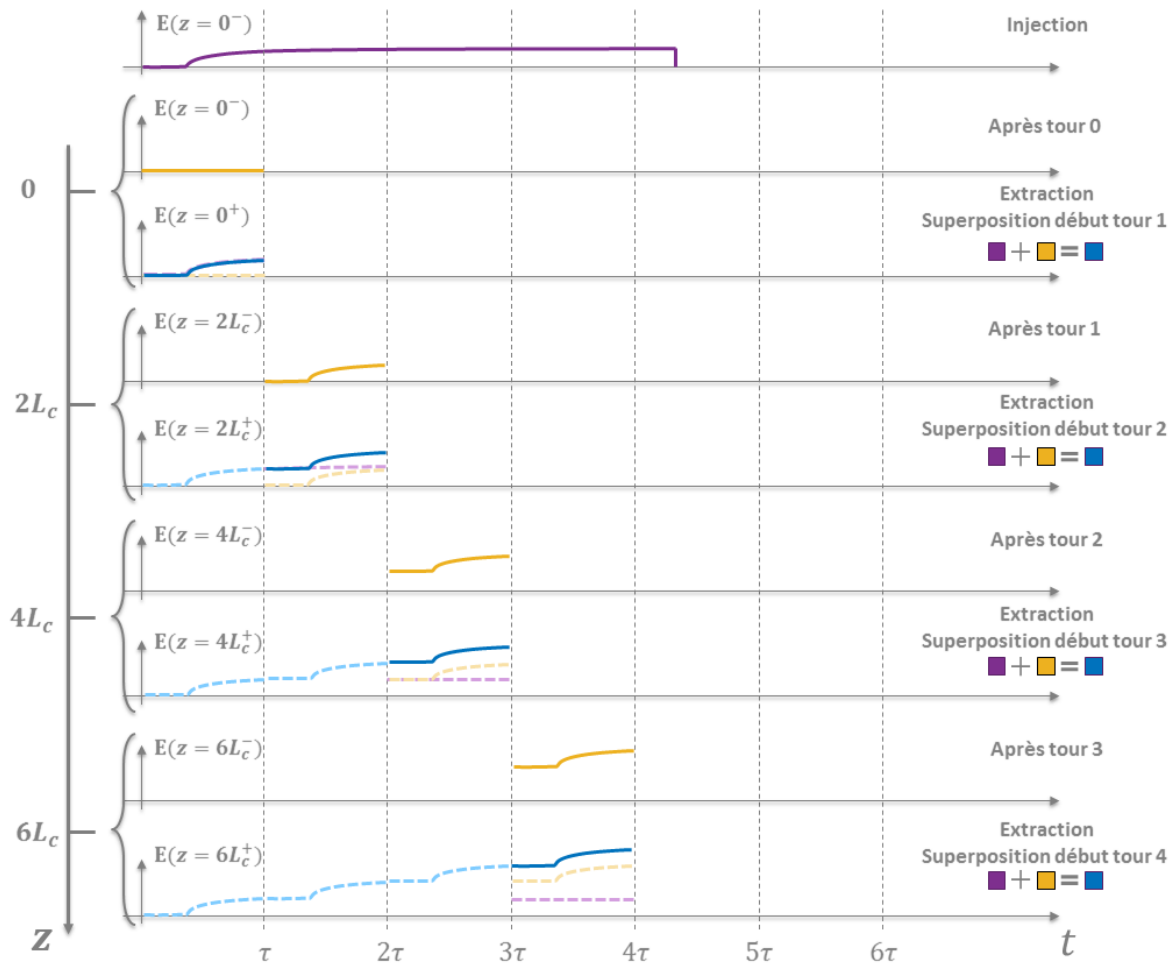


FIGURE 6.5 – Schéma illustrant les étapes pour construire la réponse de la cavité Fabry-Perot de la figure 6.3, dans le cas d’une gestion des enveloppes par tranches.

la plus rapide pour définir l’épaisseur des tranches  $\tau_f$  dans ces cas. La différence de leur vitesse de groupe va entraîner des décalages relatifs de leurs enveloppes sur la grille de temps commune  $t$  à mesure qu’elles se propagent. Puisqu’il nous faut conserver un recouvrement parfait sur une épaisseur de  $\tau_f$  pour pouvoir calculer les couplages non linéaires, on considèrera des tranches légèrement plus larges : on prendra plutôt les intervalles du type  $[(N - 1)\tau - \Delta t, N\tau + \Delta t]$ . La quantité  $\Delta t$  et le nombre de points  $N_d$  qu’elle contient est à ajuster en fonction du retard relatif maximal acquis au cours d’un aller retour. La détermination de la réponse du Fabry-Perot de la figure 6.3 suite au choix d’une épaisseur de tranche  $\tau_f$  est illustrée sur la figure 6.6.

Enfin, dans la mesure où l’on utilise la transformation de Fourier pour décaler les tranches d’enveloppes les unes par rapport aux autres, le phénomène d’aliasing peut apparaître. Concrètement, la partie de l’enveloppe qui disparaît d’un côté de la fenêtre suite à son glissement réapparaît artificiellement de l’autre côté. Pour cette raison, on crée des zones tampon additionnelles de part et d’autre de l’enveloppe pour absorber cet effet et ainsi éviter que les réapparitions viennent "polluer" la partie centrale de la tranche. En pratique, ces points additionnels forment un raccord continu de l’enveloppe jusqu’à zéro

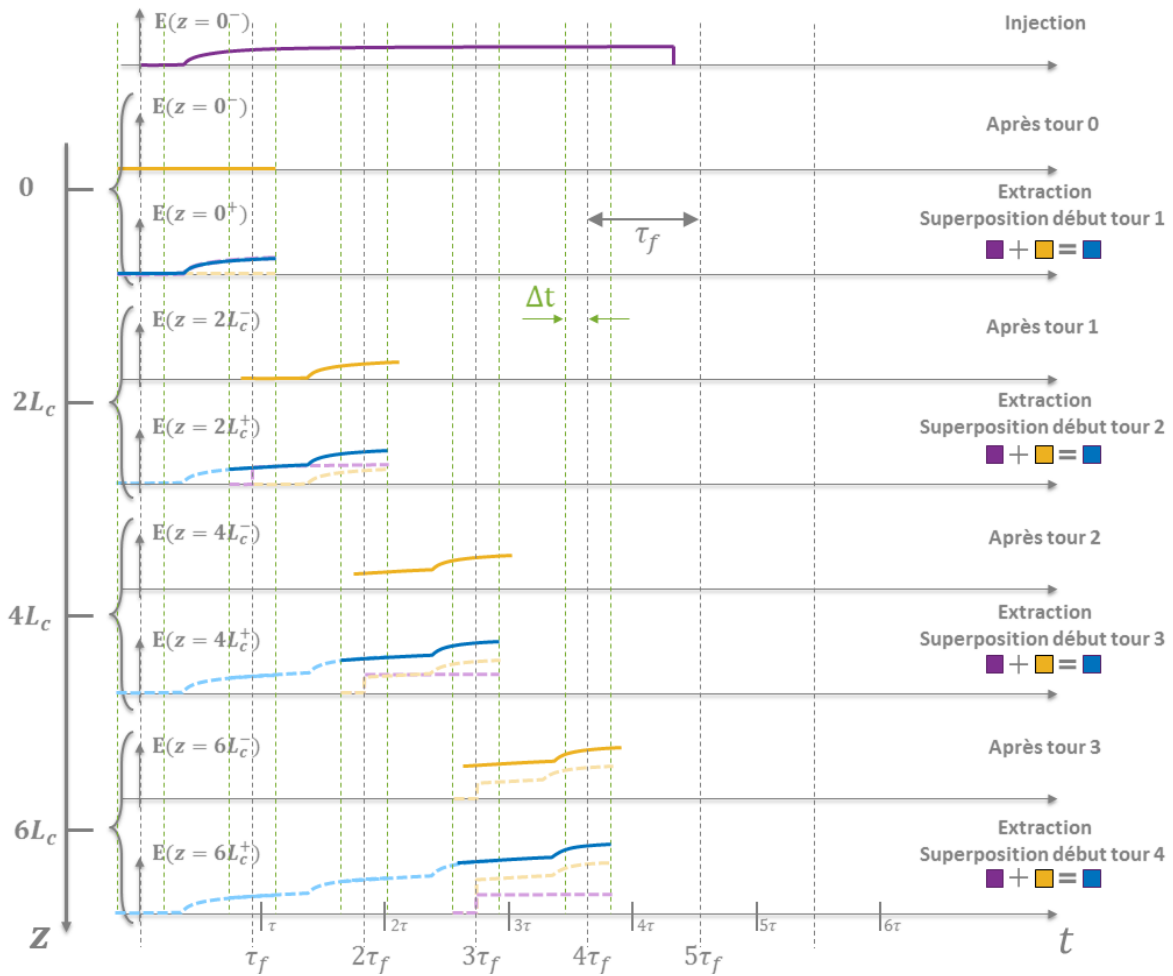


FIGURE 6.6 – Schéma illustrant les étapes pour construire la réponse de la cavité Fabry-Perot de la figure 6.3, dans le cas d’une gestion des enveloppes par tranches d’épaisseur quelconque.

et permettent d’assurer que la valeur à gauche et à droite de l’enveloppe est identique. On évite ainsi l’apparition du phénomène de Gibbs, qui pourrait introduire des artéfacts numériques. Le nombre de points  $N_b$  de ces zones tampons doit être suffisant pour absorber l’aliasing sur un aller retour. Ils sont ensuite supprimés puis remplacés à chaque tour, assurant ainsi que ces zones n’entrent jamais dans la partie centrale utile. Les enveloppes utilisées pour les simulations au sein de résonateurs sont illustrées sur la figure 6.7.

### Initialisation

Le bruit quantique aux fréquences du signal et/ou du complémentaire est nécessaire pour démarrer l’interaction paramétrique. Il s’agit d’un phénomène d’origine quantique qu’il nous faut traduire dans notre modèle classique. Une approche similaire à celle de Arisholm a été employée (ARISHOLM 1999). Il s’agit de créer une source blanche dans l’espace des fréquences, sur une bande spectrale couvrant la bande spectrale d’intérêt du modèle. En pratique, on fixe cette largeur à celle de l’acceptante spectrale du cristal non

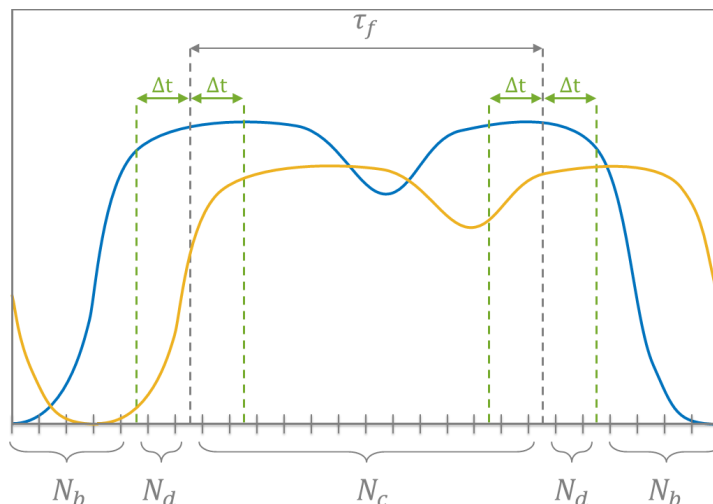


FIGURE 6.7 – Représentation choisie pour les enveloppes en milieu résonant. En Bleu, enveloppe typique en début de résonateur. En jaune, cette même enveloppe après propagation et atténuation, montrant le phénomène d'aliasing par une apparition à gauche de l'enveloppe disparaissant à droite.

linéaire utilisé.

## 6.3 Application au cas du NesCOPO

### 6.3.1 Présentation détaillée du NesCOPO

Dans le cadre d'une première utilisation de GOSS, considérons l'un des NesCOPO qui a été mis en oeuvre au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski (HARDY-BARANSKI 2011). De nombreuses données expérimentales avaient été acquises et elles vont nous permettre d'effectuer une comparaison avec nos simulations.

#### Géométrie du NesCOPO

On rappelle son architecture sur la figure 6.8, ainsi que sa représentation en matrices de propagation ABCD correspondante. On a fait le choix dans GOSS de décomposer les miroirs en un milieu de propagation (correspondant au substrat) et deux interfaces courbées (correspondant aux deux faces du miroir). Les traitements des miroirs sont associés aux interfaces courbées. Si une face n'a ni courbure ni traitement, elle peut être omise car elle ne transforme pas les champs électriques, conformément à la convention retenue pour les matrices ABCD et rappelée dans l'annexe B.

On montre dans les tableaux 6.2 les différents paramètres géométriques de chaque élément optique, et les matrices ABCD peuvent être obtenues en appliquant les formules données dans l'annexe B.

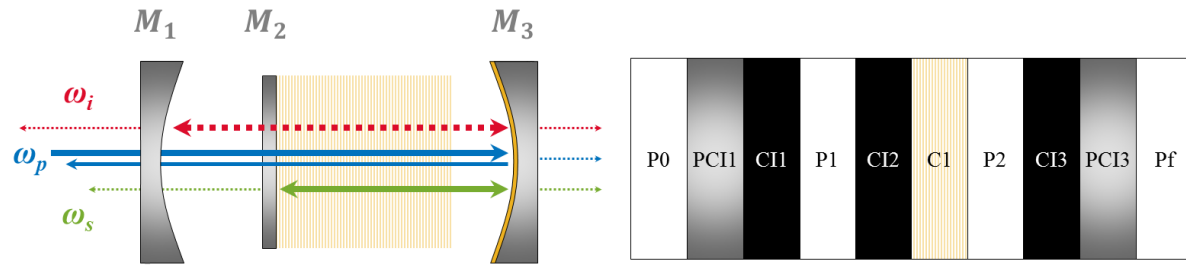


FIGURE 6.8 – Schéma d'un NesCOPO développé au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski, ainsi que sa représentation en matrice ABCD. Les éléments optiques sont détaillés dans le tableau 6.2.

| Nom  | Position (mm) | Matériau                         | Longueur (mm) | Période de retournement périodique ( $\mu\text{m}$ ) |
|------|---------------|----------------------------------|---------------|--|
| P0   | 0,5           | Air                              | 1             | -  |
| PCI1 | 1,5           | Infrasil                         | 1             | -  |
| P1   | 2,5           | Air                              | 1             | -  |
| C1   | 5,25          | LiNbO <sub>3</sub> dopé MgO (5%) | 4,5           | 29,2   |
| P2   | 8             | Air                              | 1             | -  |
| PCI2 | 9             | Infrasil                         | 1             | -  |
| Pf   | 10            | Air                              | 1             | -  |

(a) Éléments de propagation

| Nom | Position (mm) | Courbure (mm) | Réfectivité Pompe | Réfectivité Signal | Réfectivité Complémentaire | Déphasage |
|-----|---------------|---------------|-------------------|--------------------|----------------------------|-----------|
| CI1 | 2             | -20           | 0,7               | 0,7                | 72                         | 0         |
| CI2 | 3             | $\infty$      | 0,05              | 99,5               | 0,5                        | 0         |
| CI3 | 7,5           | 20            | 99                | 99                 | 99                         | $\pi$     |

(b) Interfaces courbées

TABLE 6.2 – Caractéristiques des différents éléments d'optiques mis en œuvre au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski, et représentés sur la figure 6.8. Les réflectivités sont données en pourcentage de la puissance incidente.

Le miroir M3 de fond de cavité est un miroir doré fortement réfléchissant pour les trois ondes. Il induit aussi un déphasage achromatique de  $\pi$  pour toutes les ondes, et le désaccord de phase relatif entre les trois ondes est donc de  $\Delta k = -\pi$  lors d'une réflexion.

### Les trois ondes du NesCOPO

Le NesCOPO est réalisé dans le but d'assurer un accord de phase de type 0 (les trois ondes en interaction présentent une polarisation colinéaire à l'axe extraordinaire du cristal non linéaire utilisé), avec une onde de pompe choisie à la longueur d'onde  $\lambda_p = 1064$  nm.

On notera  $(\omega_s, \omega_i)$  le couple de fréquences angulaires à l'accord de phase pour le cristal C1 en type 0. Leur valeur va dépendre du modèle retenu pour les indices optiques du  $LiNbO_3$ , ainsi que du pas de retournement périodique. Dans le cas présent, on utilisera les coefficients de Sellmeier mesurés par Gayer *et al.* (GAYER *et al.* 2008).

Dans le cadre du formalisme ABCD, il nous faut choisir la valeur des paramètres  $\hat{q}$  et  $w$  que l'on va utiliser pour mettre en œuvre la base de fonctions paraxiales  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$ . On choisira le système de coordonnées cartésiennes, si bien que l'on va utiliser la base de Hermite-Gauss présentée dans l'annexe B. L'onde de pompe étant non résonante, on choisira naturellement pour  $w$  le rayon du faisceau réel à  $e^{-2}$  en puissance. Ainsi, la première fonction de la base (une distribution transverse gaussienne, rappelée par l'équation B.1) sera une excellente approximation pour décrire le faisceau physique, et les ordres supérieurs seront supposés nuls initialement. On supposera que la pompe est focalisée à l'aide d'une lentille extérieure au niveau du miroir M2 et qu'elle permet d'y obtenir  $w_p = 65 \mu\text{m}$ . On en déduit donc  $\hat{q} = j\pi w_p^2 / \lambda_p$  à cet endroit.

Les ondes signal et complémentaire sont résonantes, et on a vu qu'un choix judicieux pour la simulation au sein de résonateurs optique consiste à prendre des modes auto-reproduits d'un aller retour sur l'autre. A l'aide du formalisme ABCD en cavité résonante, également rappelé dans l'annexe B, on obtient les valeurs présentées dans le tableau 6.3.

| Nom            | Longueur<br>d'onde $\lambda$ (nm) | Fréquence<br>angulaire $\omega$ ( $\text{s}^{-1}$ ) | Position<br>(mm) | w<br>( $\mu\text{m}$ ) |
|----------------|-----------------------------------|---|------------------|------------------------|
| Pompe          | 1064                              | $1,770 \cdot 10^{15}$                               | 3                | 65                     |
| Signal         | 1458                              | $1,292 \cdot 10^{15}$                               | 3                | 58                     |
| Complémentaire | 3937                              | $4,785 \cdot 10^{14}$                               | 5,25             | 88                     |

TABLE 6.3 – Caractéristiques des différents éléments d'optiques mis en œuvre au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski, et représentés sur la figure 6.8. Les réflectivités sont données en pourcentage de la puissance incidente.

On représente sur la figure 6.9 la propagation des faisceaux dans la séquence NesCOPO que l'on vient de construire, ainsi que leur retour après réflexion sur M3 jusqu'à l'entrée du résonateur en  $z = 2 \text{ mm}$ .

Dans GOSS, chaque onde présente dans le résonateur se voit attribuer une cavité. Il s'agit des éléments optiques dans lesquels chaque onde va effectuer des aller retours. La cavité signal se situe entre les éléments d'optiques CI2 et CI3, alors que la cavité complémentaire se situe entre les éléments d'optiques CI1 et CI3. Bien que la pompe soit techniquement non résonante, on lui attribue tout de même une cavité entre CI1 et CI3 pour gérer plus facilement sa propagation.

On peut également déterminer des informations concernant les cavités imbriquées, présentées dans le tableau 6.4 :

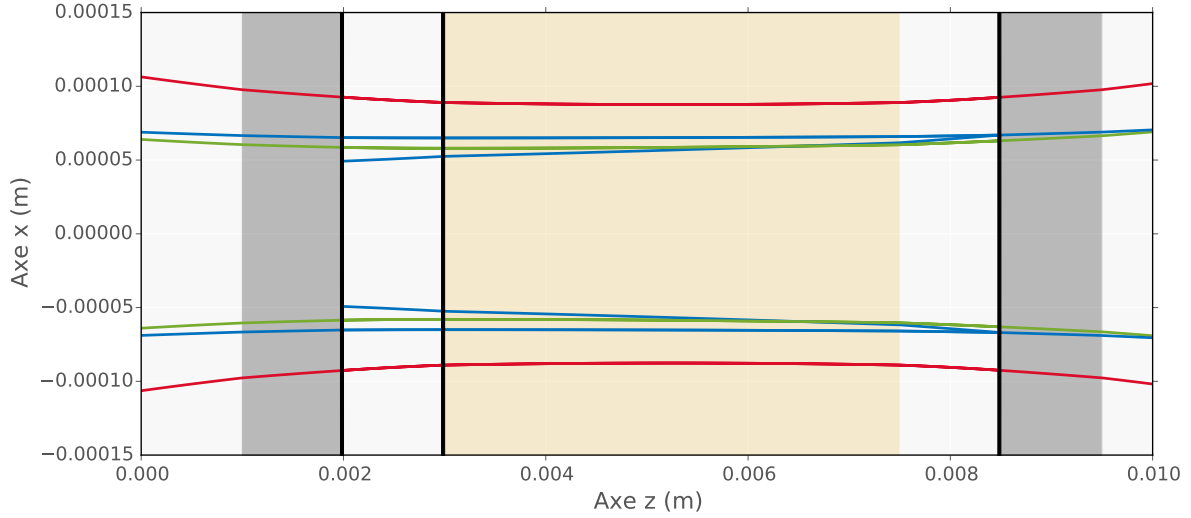


FIGURE 6.9 – Schéma d'un NesCOPO utilisé au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski et représenté par GOSS. On a également tracé le paramètre  $w(z)$  pour les trois ondes, ainsi que la propagation des ondes après la réflexion sur le miroir M3.

| Nom            | Temps aller retour (ps) | Intervalle Spectral Libre (GHz) | Réflectivité effective(%) |
|----------------|-------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| Pompe          | 77,9                    | 12,85                           | 0,7                       |
| Signal         | 70,7                    | 14,14                           | 98,5                      |
| Complémentaire | 75,0                    | 13,33                           | 70,6                      |

TABLE 6.4 – Caractéristiques des différentes cavités mises en œuvre au cours de la thèse de Bertrand Hardy-Baranski.

### Seuil continu analytique du NesCOPO

Une première évaluation du seuil de ce NesCOPO peut être donnée en utilisant la formule théorique analytique de Bjorkholm (J.E. BJORKHOLM et al. 1970), valable en onde plane et en double passage de pompe et qui s'écrit comme suit :

$$P_{th,Bjor} = \frac{\pi\epsilon_0}{8} \frac{(1 - R_s)(1 - R_c)}{L^2 d^2} \frac{n_s n_c c^3}{\omega_s \omega_c} w_p^2 \left[ \frac{\text{sinc}^{-2}(\Delta k l_c / 2)}{1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi + \Delta k l_c)} \right] \quad (6.20)$$

Dans l'équation précédente,  $R_p$  désigne la réflectivité du miroir de renvoi M3 à la longueur d'onde de la pompe (en puissance),  $l_c$  la longueur du cristal C1, et  $\Delta\varphi$  le déphasage relatif non propagatif acquis entre la sortie du cristal à l'aller et la ré-entrée au retour. Puisque notre miroir M3 induit un déphasage relatif de  $\Delta\varphi_{M3} = -\pi$ , le seuil minimal est donc réalisé lorsque le cristal mesure exactement un nombre demi entier de période

du PPLN, et on récupère dans ce cas un déphasage relatif supplémentaire de  $\pi$  en fin de propagation à l'aller dans le cristal. Ainsi,  $\Delta\varphi = 0$  entre les deux séquences d'interaction paramétrique à l'aller et au retour (voir (HARDY-BARANSKI 2011) pour plus de détails). Ayant sélectionné les porteuses de manière à assurer l'accord de phase parfait, on a  $\Delta k = 0$  et l'application numérique nous donne le seuil minimal prévu par le calcul analytique :  $P_{th,Bjor} = 484$  mW.

On rappelle l'expression que l'on a déjà obtenue en onde plane pour une longueur  $L$  d'interaction non linéaire, avec  $\theta$  donné à l'équation 5.10 :

$$P_{th,PW} = \frac{\pi\epsilon_0}{2} \frac{\theta^2}{L^2 d^2} \frac{n_s n_c c^3}{\omega_s \omega_c} w_p^2 \quad (6.21)$$

L'application numérique, en considérant une longueur d'interaction de  $L = 2l_c$ , nous donne  $P_{th,PW} = 573$  mW. La différence avec l'expression de Bjorkholm provient uniquement de la manière dont sont estimées les pertes de la cavité, avec  $(1 - R_s)(1 - R_c)/4$  dans le premier cas et  $\theta$  dans le second. Les pertes estimées par le formalisme en ondes planes sont néanmoins plus proches de la réalité, puisque Bjorkholm se place dans le cas des fortes réflectivités. En revanche, seule l'expression de Bjorkholm permet de prendre en compte la variation de déphasage relatif ou encore un renvoi imparfait de la pompe.

Des formules analytiques existent également en supposant les ondes gaussiennes TEM00. On peut par exemple utiliser l'expression donnée par Lindsay *et al.* (LINDSAY et al. 1998) pour une pompe en simple passage, qui suppose que les trois ondes sont confocales et de rayon identique :

$$P_{th,L} = \frac{\pi\epsilon_0}{4(1 - \delta^2)} \frac{(1 - R_s)(1 - R_c)}{hLd^2} \frac{n_s n_c c^4}{n_p \omega_p \omega_s \omega_c} \quad (6.22)$$

Dans l'expression précédente,  $\delta = (2\omega_s - \omega_p)/\omega_p$  désigne le facteur de dégénérescence et  $h$  le paramètre de Boyd et Kleinman (BOYD et KLEINMAN 1968). Ce paramètre  $h = h(\xi, \sigma)$  est fonction de  $\xi = l_c/b$ , avec  $b = 2z_R$  le paramètre confocal et  $\sigma = b\Delta k/2$ . L'application numérique en simple passage donne ici  $P_{th,L} = 1,930$  W. Ensuite, on peut utiliser le résultat de LASTZKA et SCHNABEL 2008 en cas de re-focalisation de la pompe identique au retour et pour des faisceaux faiblement focalisés, dans le but d'étendre la formule précédente au cas du double passage :

$$P_{th,L} = \frac{\pi\epsilon_0}{4(1 - \delta^2)} \frac{(1 - R_s)(1 - R_c)}{hLd^2} \frac{n_s n_c c^4}{n_p \omega_p \omega_s \omega_c} \left[ \frac{\text{sinc}^{-2}(\Delta k' l_c/2)}{1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi' + \Delta k' l_c)} \right] \quad (6.23)$$

Dans l'équation précédente, on a introduit  $\Delta k' = \Delta k - 1/z_R$  et  $\Delta\varphi' = \Delta\varphi + 2(L - z_0)/z_R$ , avec  $z_0 = l_c$  le point de focalisation des ondes à l'aller. Le terme à ajouter pour prendre en compte le retour de la pompe est donc similaire au cas des ondes planes pour des ondes gaussiennes faiblement focalisées. L'application numérique donne  $P_{th} = 486$  mW, un résultat très proche du cas des ondes planes qui confirme notre hypothèse de faible

focalisation. Une nouvelle formule plus proche de la réalité peut être proposée en utilisant  $\theta$  dans le cas du DRO, prenant mieux en compte les pertes :

$$P_{th} = \frac{\pi\epsilon_0}{(1-\delta^2)} \frac{\theta^2}{hLd^2} \frac{n_s n_c c^4}{n_p \omega_p \omega_s \omega_c} \left[ \frac{\text{sinc}^{-2}(\Delta k' l_c / 2)}{1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi' + \Delta k' l_c)} \right] \quad (6.24)$$

L'application numérique donne naturellement un résultat proche du résultat en onde plane, à savoir  $P_{th} = 578$  mW.

### 6.3.2 Étude de l'impulsion optimale du NesCOPO

Il est possible d'effectuer des simulations numériques pour retrouver notre résultat analytique de la partie 5.1 concernant l'impulsion optimale de pompe pour le rendement des OPOs. Afin de se placer dans le cadre des hypothèses du modèle, il nous faut néanmoins utiliser un autre type de résolution que la méthode FDTD pseudo modale transverse présentée au paragraphe 6.2.

En effet, il nous faut supposer que les trois ondes en interaction sont monochromatiques. On doit donc choisir une autre méthode de résolution de type pseudo modale (les modes en question seront désormais des modes longitudinaux au lieu d'être des modes transverses). Afin d'accélérer les calculs, et dans la mesure où le spectre est déjà déterminé, on supposera que la vitesse de groupe des trois ondes est identique. De plus et conformément au modèle analytique, on supposera que les temps d'aller retour au sein des cavités signal et complémentaire sont identiques et égale à celui de la pompe (77,9 ps). Enfin, et quitte à légèrement ajuster le pas du cristal de PPLN et la longueur d'onde de la pompe, on se placera dans le cas optimal où les fréquences des ondes signal et complémentaire sont confondues avec des modes longitudinaux de leurs cavités respectives, et qu'elles sont à l'accord de phase  $\Delta k = 0$ .

La grille temporelle utilisée à une abscisse  $z$  donnée peut se réduire à un point unique puisque le spectre n'est plus à calculer. Après chaque propagation aller retour, on enregistrera la valeur des champs électriques à leur sortie du NesCOPO. Cette première résolution numérique nous permettra d'obtenir rapidement des premiers résultats sur le NesCOPO, ainsi que de contrôler notre résultat analytique concernant les impulsions optimales.

#### Seuil continu numérique du NesCOPO

On trouve le seuil numérique continu du NesCOPO lorsque la puissance de pompe initiale injectée à travers M1 est suffisante pour garantir que la puissance du signal circulant dans sa cavité ne décroît pas sur un aller retour. La simulation numérique dans le cadre des hypothèses précédentes nous donne alors  $P_{th} = 1,85$  W en ondes planes. Ce seuil n'est pas en accord avec celui prédit par les formules analytiques précédentes, et ce pour trois raisons :



- le cristal n'a aucune raison de mesurer exactement un nombre demi-entier de fois la période du PPLN, et ce bien que l'on soit à l'accord de phase. Lors de mises en œuvre expérimentales, ce problème est connu et le NesCOPO comporte une coupe oblique appelée "wedge" permettant, en translatant le cristal latéralement, d'ajuster sa longueur à la marge.
- Du fait de la dissociation des cavités signal et complémentaire, la longueur de l'élément P1 a une influence sur le déphasage relatif acquis par les trois ondes entre les deux séquences d'interaction paramétrique fin d'aller-retour/nouveau tour. C'est donc le même problème que celui énoncé au point précédent, seule l'origine physique du déphasage relatif est différente. Un ajustement de la longueur de P1 permet de trouver une condition de désaccord de phase nul, dans la mesure où seul le complémentaire est affecté.
- Le formalisme des ondes planes suppose un recouvrement parfait entre les trois ondes, et le rayon des faisceaux est pris égal à celui de la pompe. Dans le cas présent, le recouvrement est imparfait et la taille effective du recouvrement est clairement supérieure au rayon du faisceau de pompe.
- Toute réflexion parasite de la pompe au niveau de chaque miroir rencontré sur un aller retour peut induire des effets d'interférence avec elle même. Une forme de résonance faible se produit donc pour la pompe, de manière très similaire à l'injection d'une cavité Fabry-Perot. L'amplitude de la pompe circulant dans la cavité ainsi que sa phase peut donc légèrement différer de celle injectée à travers le miroir M1.

Si on se place dans les conditions optimales associées aux deux premiers points précédents, et que l'on néglige les réflexions parasites de pompe (quatrième point précédent), la simulation numérique donne un seuil de  $P_{th} = 720$  mW en ondes planes (en retenant pour rayon commun le rayon de la pompe). Cette valeur est davantage en accord avec les expressions analytiques prévues précédemment par les formules analytiques. Si on prend en compte le quatrième point précédent, l'ajustement de la longueur de P1 permet d'abaisser le seuil à  $P_{th} = 606$  mW, ce qui montre que des réflexions parasites de pompe même faibles en apparence peuvent affecter de manière importante le seuil. Cette propriété a été démontrée expérimentalement dans les thèses précédentes (BERROU 2009; DESORMAUX 2005). Si on suppose une dépendance spatiale du type TEM00 uniquement, les déphasages relatifs doivent également être ajustés en prenant en compte les quatre points énoncés ci dessus. D'après la formule 6.23, il est plus difficile de trouver l'optimum numérique puisqu'il ne se situe pas à l'accord de phase parfait dans le cristal, et l'existence de la phase de Gouy rend plus difficile l'optimisation des phases relatives entre chaque séquence d'interaction paramétrique. On a réussi à obtenir numériquement un seuil optimisé de  $P_{th} = 975$  mW à l'accord de phase parfait, plus élevé que la prédiction analytique ( $P_{th} = 578$  mW) en raison du recouvrement imparfait des faisceaux non pris en compte en ondes planes.

Ces conditions d'oscillation optimales démontrent à quel point le nombre de paramètres intervenant dans la modélisation d'un NesCOPO est important, et que chacun peut modifier le seuil numérique significativement.

Au cours de sa thèse, B. Hardy a utilisé des impulsions gaussiennes d'une durée de 9,5 ns pour pomper le NesCOPO. Ce dernier semble avoir détecté le seuil d'oscillation lorsque le complémentaire contient de l'ordre de  $E = 10$  nJ. Avec cette définition expérimentale du seuil, la simulation numérique nous donne un seuil de  $E = 0,13$   $\mu$ J en ondes planes, à comparer avec les  $E = 1,3$   $\mu$ J obtenus expérimentalement. Cet écart important d'un facteur 10 peut avoir diverses origines. Les plus évidentes sont une surestimation du facteur d'amplification non linéaire, la sous-estimation des pertes réelles, le non recouvrement parfait entre les trois ondes,... La seconde origine possible est le bruit quantique utilisé dans la simulation numérique. En utilisant la valeur classique d'un demi photon par mode valable pour les cavités sans pertes, la puissance mesurable après transmission des miroirs est de l'ordre du nano watt, probablement surestimée puisqu'on l'avait plutôt estimée autour de  $P = 10^{-16}$  W dans nos expériences de la partie 5.1.

### Temps de construction du NesCOPO

On montre sur la figure 6.10 un exemple de simulation temporelle du NesCOPO suite à l'injection d'une impulsion de pompe de forme rectangulaire et de puissance  $P = 4,36$  W.

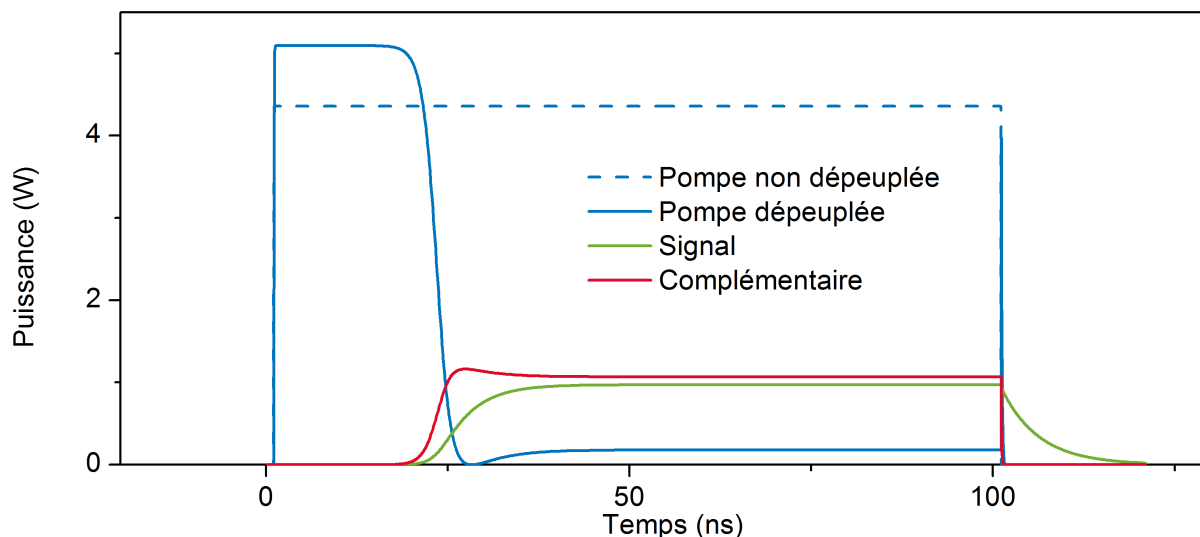


FIGURE 6.10 – Exemple de profils temporels obtenus par la simulation numérique, obtenus en sortie de cavité.

Sur la figure précédente, la pompe dépeuplée (mesuré juste avant M1, en sortie) est plus intense que l'impulsion de pompe initiale ! Cette caractéristique est due à la réflexion parasite de la pompe sur M1, et la pompe est donc partiellement résonante. On voit donc que l'intensité de pompe circulant dans la cavité est environ 17% plus élevée que l'intensité de pompe réellement injectée. Cependant, cet effet ne modifie pas les taux de

pompage puisque la puissance de seuil bénéficie elle aussi de cet effet d'amplification, et les résultats de la partie 5.1 seront donc applicables directement.

On présente sur la figure 6.11 les temps de construction obtenus en utilisant des profils de pompe de puissance constante en ondes planes.

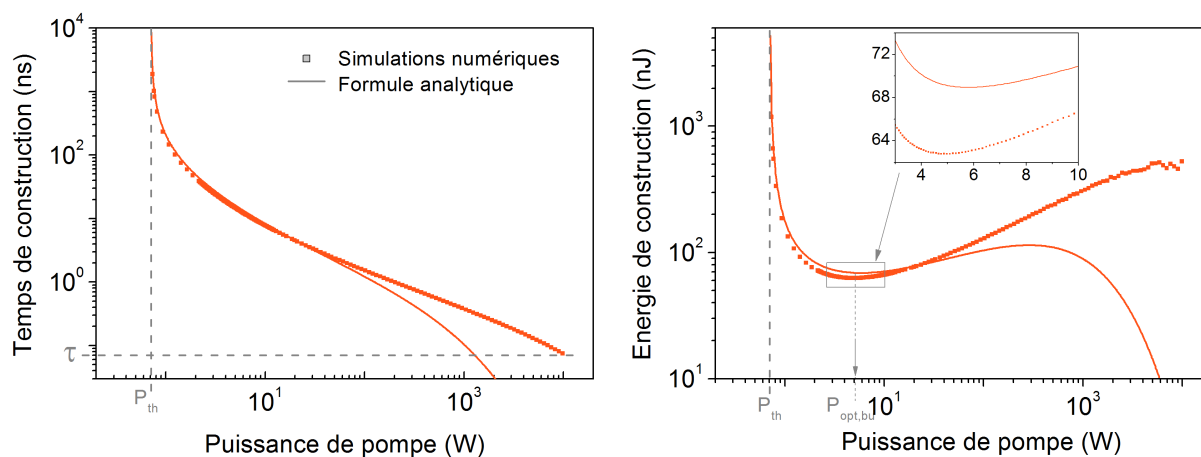


FIGURE 6.11 – Comparaison entre la simulation numérique GOSS et le résultat analytique a) du temps de construction  $T_{bu}$  (équation 5.38) et b) de l'énergie de seuil  $E_{th} = T_{bu}P$  en fonction de la puissance crête d'un rectangle de pompe de puissance intra-cavité  $P$ . Le couple de réflectivité effectif utilisé est  $(R_s, R_c) = (0.985, 0.706)$ .

Le coefficient  $\alpha$  qui apparaît dans l'expression analytique 5.38 est de  $\alpha = 11,5$ , car le critère de construction choisi est d'atteindre  $P = 0,1$  mW en démarrant d'un bruit quantique dont la puissance est de l'ordre de  $P = 1$  nW (correspondant à un demi photon par mode présent initialement par cavité). On remarque sur la figure 6.11 un très bon accord entre les simulations numériques et la formule obtenue à l'aide du formalisme des équations de taux. On note cependant que, au delà de  $P = 100$  W de puissance de pompe, la formule analytique s'écarte fortement de la simulation numérique. Pour ces puissances importantes largement au delà du seuil continu, le temps caractéristique d'évolution de la puissance devient comparable au temps d'aller retour des ondes dans la cavité. Si  $P^n$  désigne la puissance des ondes au tour  $n$  à l'entrée du cristal, l'approximation qui nous a permis d'obtenir un problème continu  $P^{(n+1)} - P^{(n)} \approx \tau dP/dt$  n'est plus valable. Pour des expériences de spectroscopie, cette limitation n'a pas d'impact puisque le NesCOPO n'est jamais pompé au delà de quelques fois le seuil afin de maintenir sa pureté spectrale.

On peut voir sur la figure 6.11b) que l'énergie minimale est atteinte pour un temps de construction  $T_{bu} = 14,43$  ns (185 aller retours) et une puissance crête de pompe intra-cavité de  $P_{opt,bu} = 5,1$  W. Ce pompage optimal de construction équivaut à un taux de pompage de  $X_{opt,bu} = 7,2$ , proche de la valeur  $X_{opt,bu} = 8,2$  prévue par notre formalisme analytique. L'écart provient des approximations du formalisme des équations de taux lui-même, comme nous venons de l'expliquer au paragraphe précédent. La présence de la réflexion parasite ne modifie que très légèrement ce dernier résultat numérique, puisqu'on obtient  $X_{opt,bu} = 7,0$  en son absence.

### Pompage continu optimal du NesCOPO

Afin d'obtenir la puissance optimale en régime continu, il nous faut connaître le plus fort ratio de dépeuplement de la pompe en continu, c'est à dire le maximum du rapport  $(P_{in} - P_{out})/P_{in}$  avec  $P_{out}$  la puissance de pompe dépeuplée intra-cavité et  $P_{in}$  la puissance de pompe non dépeuplée intra-cavité après un aller retour. On présente les résultats de la simulation numérique sur la figure 6.12.

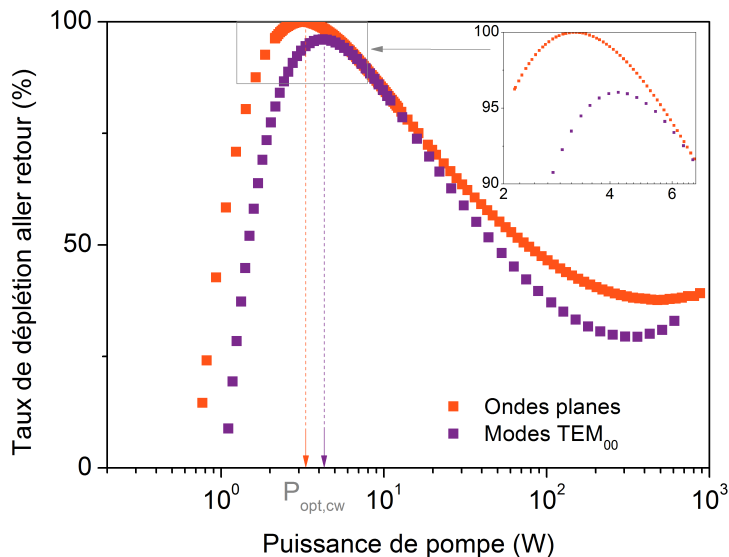


FIGURE 6.12 – Simulation numérique du taux de déplétion de la pompe en fonction de la puissance de pompage constante intra-cavité. Les résultats sont présentés pour deux hypothèses spatiales différentes : le cas des ondes planes et le cas des ondes gaussiennes TEM00.

Dans l'hypothèse des ondes planes, on retrouve bien une puissance de pompe garantissant un dépeuplement total de la pompe, garantissant une efficacité théorique de 100% et conforme aux prédictions (ROSENCHER et FABRE 2002). On relève  $P_{opt,cw} = 3,2$  W soit  $X_{opt,cw} = 4,5$ , ce qui est cohérent avec la valeur prévue par l'équation 5.39 donnant  $X_{opt,cw} = 3,8$ . La réflexion parasite perturbe le résultat analytique puisque la même simulation la négligeant donne bien  $P_{opt,cw} = 2,72$  W soit  $X_{opt,cw} = 3,8$ .

### Impulsion optimale du NesCOPO

Pour construire l'impulsion optimale, on voit d'après la figure 6.10 qu'il faut maintenir une puissance de  $P_{opt,bu} = 4,36$  W jusqu'à ce que la pompe soit dépeuplée, c'est à dire pendant  $T = 21,8$  ns. Ensuite, on passe à une puissance de pompe de  $P_{opt,cw} = 2,74$  W, et dont la durée sera ajustée en fonction de l'énergie disponible. La durée de la phase de construction est plus élevée que le temps de construction établi sur la figure 6.11, puisque ce dernier a été défini comme l'instant où la puissance du signal dépasse  $10^{-4}$  W, et la pompe n'est pas encore dépeuplée à cet instant.

Afin de vérifier que cette impulsion est bien optimale pour le rendement de l'OPO, on va comparer son efficacité avec une impulsion gaussienne et quelques impulsions rectangulaires. Comme on l'a vu dans la partie 5.3.4, le simple rectangle optimal est le résultat d'un compromis entre la puissance optimale de construction et la puissance optimale en régime continu. Sa puissance crête se trouve donc quelque part entre  $P_{opt,bu}$  et  $P_{opt,cw}$ , et va dépendre de l'énergie à mettre dans l'impulsion. Pour les impulsions gaussiennes, on considèrera des impulsions de largeur à mi-hauteur de 9,5 ns. On montre sur la figure 6.13 une comparaison des impulsions en utilisant une énergie de 0,2  $\mu\text{J}$ .

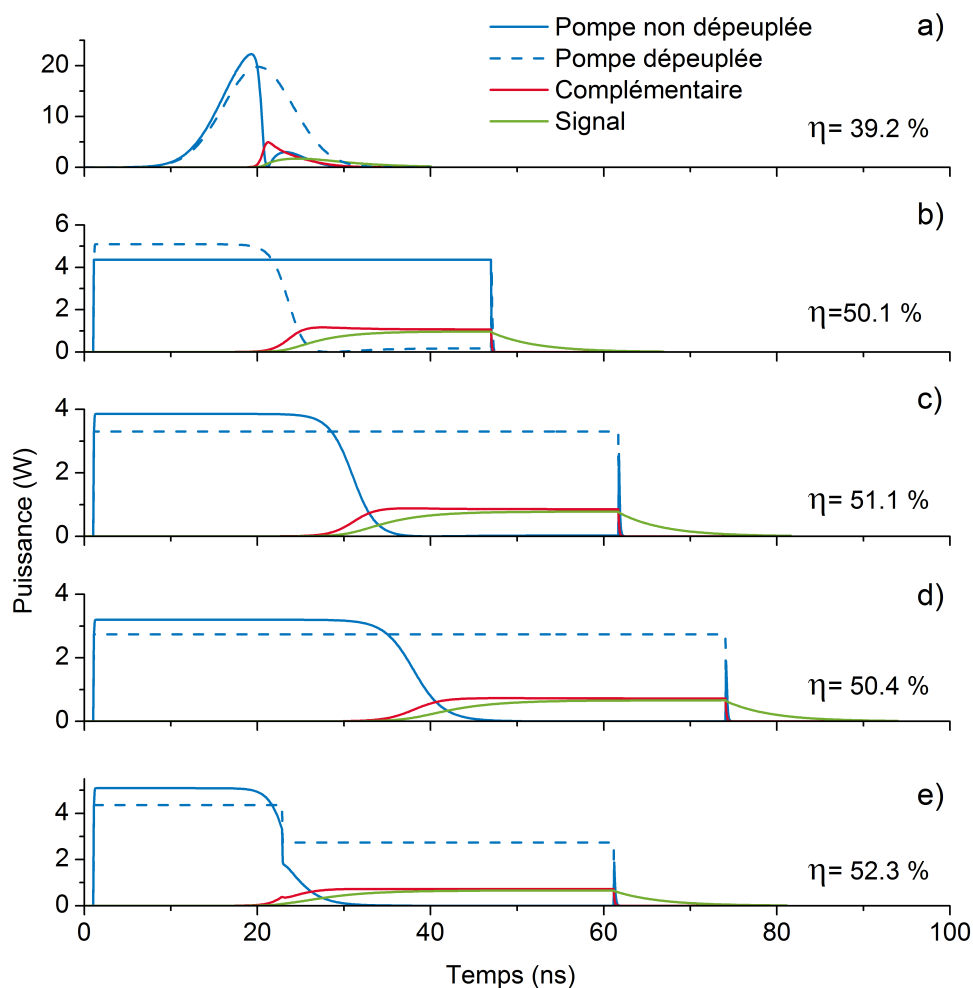


FIGURE 6.13 – Simulation numérique en ondes planes de plusieurs profils de pompages de l'OPO. Le simple rectangle optimal présente une puissance crête injectée de  $P = 3,3 \text{ W}$ .

Pour cette énergie divisée environ à moitié sur la construction et à moitié sur la production, on se rend compte que l'impulsion optimale apporte un gain de l'ordre de 1%. De même, les simples rectangles n'ont que peu de différence entre eux. On en conclut que l'utilisation de rectangles simples de puissance crête située entre l'optimum continu et l'optimum de construction garantit l'optimum à 2% près. Son avantage par rapport à la forme gaussienne est par contre plus net, avec un gain supérieur à 10%. Ce gain est cohérent avec nos résultats expérimentaux de la partie précédente, où l'on a observé une

augmentation de 13% de l'efficacité en utilisant des impulsions rectangulaires.

On peut ensuite comparer les rendements à différentes énergies. Les résultats sont montrés sur la figure 6.14.

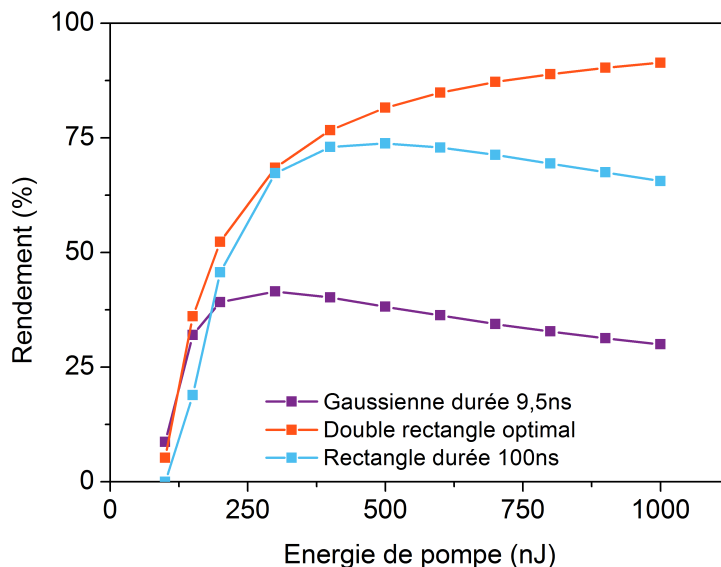


FIGURE 6.14 – Simulation numérique du rendement de plusieurs formes d'impulsion de pompe, en fonction de l'énergie disponible.

Sur la figure 6.14, le double rectangle optimal voit bien son efficacité tendre vers 100%, à mesure que l'énergie dépensée pendant la construction devient négligeable devant celle dépensée en régime permanent. On voit également que toute impulsion de durée imposée va présenter un optimum, correspondant au meilleur compromis entre construction et rendement permanent. Si l'énergie devient trop importante, une reconversion a lieu au sein du cristal et le rendement se détériore en suivant le taux de reconversion. On remarque qu'à très faible énergie proche du seuil, le rendement de la gaussienne est légèrement meilleure que le double rectangle optimal. Ceci est dû au temps requis par le double rectangle pour s'adapter à la nouvelle puissance de pompage en continu, qui n'est pas négligeable devant sa durée. Cette phase de transition, que l'on a négligé dans notre formalisme analytique, met ici en défaut notre résultat.

### 6.3.3 Utilisation du nouveau solveur FDTD

Si on souhaite obtenir le spectre détaillé du NesCOPO, la méthode de résolution FDTD modale longitudinale que l'on a utilisé jusqu'à maintenant n'est pas suffisante. Nous allons maintenant utiliser la méthode FDTD complète pour les modes longitudinaux et pseudo modale pour les modes transverses, comme présentée au paragraphe 6.2. On rappelle que, pour cette méthode, tous les déphasages relatifs induits au cours de la propagation sont automatiquement pris en compte, et les porteuses ne sont pas forcément des modes longitudinaux comme c'était le cas pour la méthode FDTD modale.

### Une simulation typique du NesCOPO

Il nous faut maintenant configurer les paramètres numériques pour mettre en œuvre notre résolution FDTD originale. On prendra une méthode Runge Kutta d'ordre 4 pour résoudre l'étape de mixing non linéaire, avec un pas du cristal constant de  $dz = 0,5 \mu\text{m}$ . La dispersion sera traitée de manière approchée dans l'étape de propagation : on supposera que l'indice optique de toutes les composantes spectrales des ondes est identique à celui de leur porteuse. Pour ce premier exemple, on considèrera les 4 premiers modes transverses 00, 01, 10 et 11, représentés dans l'annexe B.

Le dernier paramètre d'importance à choisir est le pas de discrétisation temporel  $dt$ . Il est important à double titre, puisqu'il influence à la fois l'exactitude du spectre final et la validité du schéma numérique de la propagation des ondes. Il faut qu'il soit suffisamment fin pour permettre de simuler les fréquences susceptibles d'apparaître au cours de la résolution, et suffisamment lâche pour ne pas ralentir trop les calculs.

On trace sur la figure 6.15 l'allure typique des profils de puissance en fonction du temps, pour une énergie de  $E_p = 1 \mu\text{J}$  correspondante à environ 7 fois l'énergie de seuil :

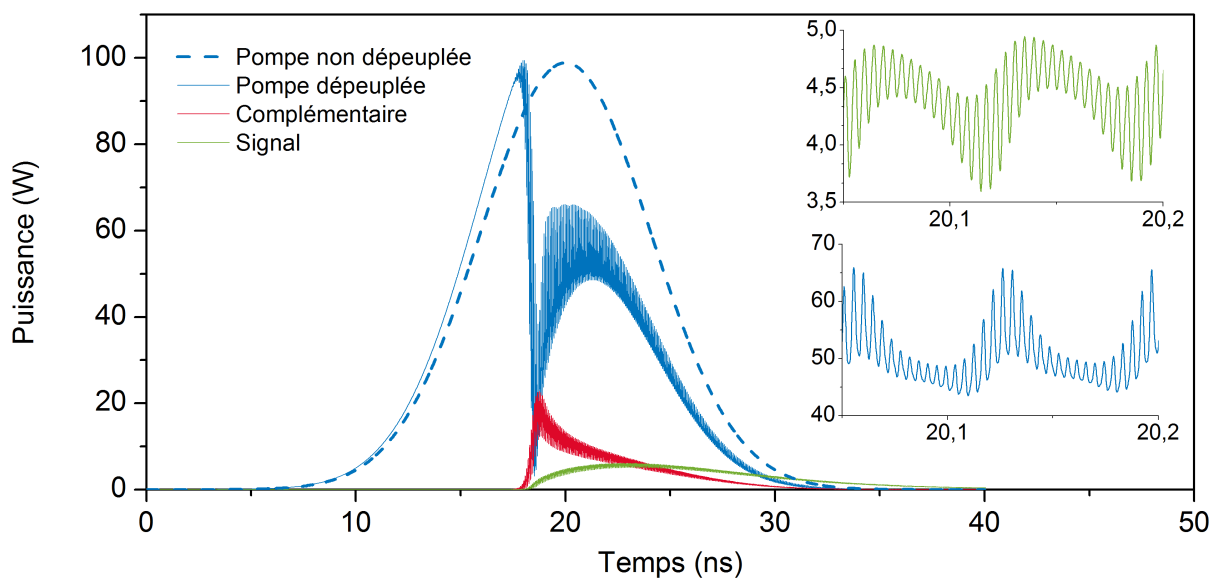


FIGURE 6.15 – Simulation numérique de l'enveloppe de la puissance, mesurée après la sortie par le miroir M1, pour une énergie de pompe incidente de  $E_p = 1 \mu\text{J}$ .

Le spectre correspondant à l'allure temporelle du signal est donné sur la figure 6.16.

On remarque que les formes temporelles sont proches des formes expérimentales montrées dans la thèse de B. Hardy, et conformes aux simulations précédentes supposant que chaque onde est monochromatique. Sur la figure 6.15, on constate qu'il apparaît cependant des oscillations plus rapides que le temps d'aller retour des ondes dans leurs cavités respectives, et qui donnent l'impression de venir épaissir les profils déjà obtenus. Ce type d'effets temporels a déjà été observé par Smith dans le cadre de la simulation numérique d'un SRO (A. SMITH et al. 1999), et on rappelle qu'ils dépendent du choix arbitraire de la porteuse qui a été effectué, dans la mesure où l'on trace l'enveloppe de la puissance et non

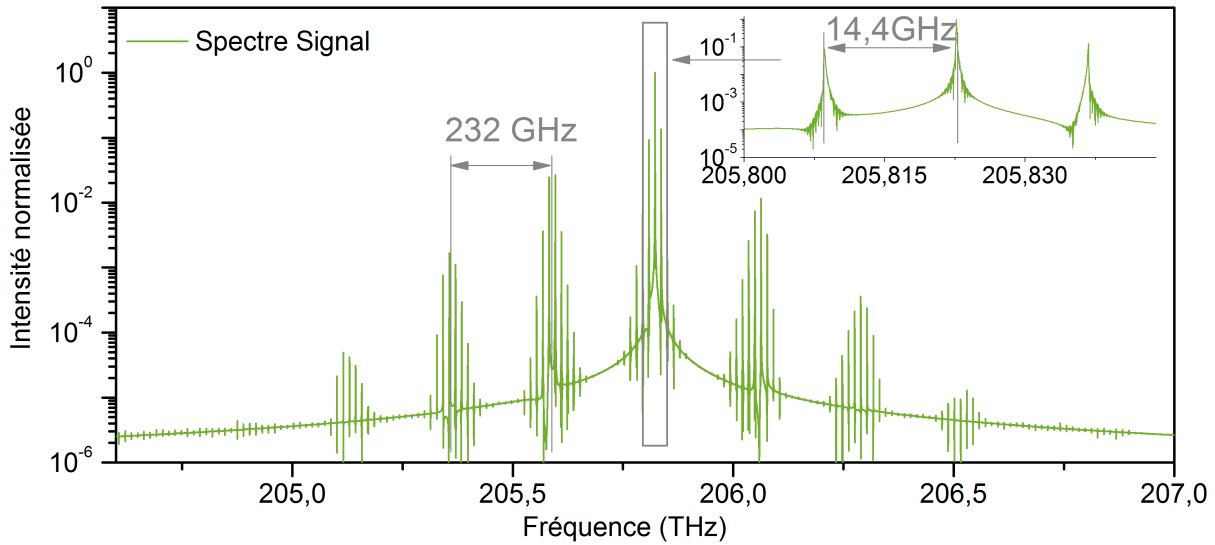


FIGURE 6.16 – Spectre normalisé de l'onde signal, dont l'enveloppe de la puissance est donné sur la figure 6.15.

la puissance optique directement (qui oscille beaucoup plus rapidement). La puissance optique réelle, tout comme le spectre du champ électrique, ne dépendent évidemment pas du choix de la porteuse.

Le fait que les oscillations soient modérées montre que la porteuse a été relativement bien choisie. En effet, le fait que les oscillations soient résolues montre que la fréquence maximale simulée est proche de la porteuse choisie, si bien que notre choix de discrétisation temporelle est suffisant et respecte le critère de Shannon. On remarque également sur la figure 6.15 un battement lent de période 71 ps, et un battement plus rapide de période  $\sim 4,3$  ps sur l'onde signal. Le battement lent correspond au temps d'aller retour de l'onde signal dans sa cavité, et cette périodicité se retranscrit sur son spectre par un aspect de peigne, dont les dents sont séparés de l'intervalle spectral libre de 14,14 GHz. La simulation fait donc bien apparaître les modes longitudinaux de la cavité.

L'origine du battement plus rapide est propre aux OPO doublement résonants. En régime permanent, il a été montré qu'ils oscillent au niveau de leurs doubles coïncidences. Il s'agit des couples de fréquences qui sont un mode longitudinal à la fois pour la cavité signal et pour la cavité complémentaire (ECKARDT et al. 1991). Puisque les intervalles spectraux libres des deux cavités de notre NesCOPO ne sont pas identique, la double coïncidence ne se reproduit qu'à intervalle régulier, et les zones correspondantes sont appelées "clusters de modes". L'intervalle spectral entre deux clusters peut être rapidement estimé à partir de la différence des intervalles spectraux libres de chaque cavité ( 810 MHz), par la formule  $\Delta f_{clus} \approx 14,14^2/0,81$ . On obtient la valeur de 247 GHz, ce qui est bien cohérent avec la valeur de 232 GHz mesurée à partir de la simulation numérique.

Le spectre du signal que l'on montre sur la figure 6.16 est cohérent avec les observations expérimentales, puisqu'il fait nettement apparaître une structure de modes longitudinaux pondérés par leur appartenance à un cluster. Les clusters apparaissent nettement sur cette



représentation, et on voit qu'ils sont nombreux à être excités même si le spectre donné en échelle linéaire semble monochromatique.

Il est à noter que le spectre dépend aussi du bruit quantique de départ, aléatoire par nature. Le spectre présente néanmoins toujours la même allure, même si la puissance relative des clusters peut légèrement varier. Le cluster prédominant sur la figure 6.18 est cependant toujours présent de manière significative.

### Pompage intense et modes transverses

On peut tracer les mêmes courbes que précédemment, mais pour une énergie bien plus importante, par exemple  $E_p = 10 \mu\text{J}$  soit 70 fois l'énergie de seuil (on n'arrive pas à ces niveaux en pratique, en raison du seuil de dommage des matériaux). On obtient alors les courbes 6.17 et 6.18.

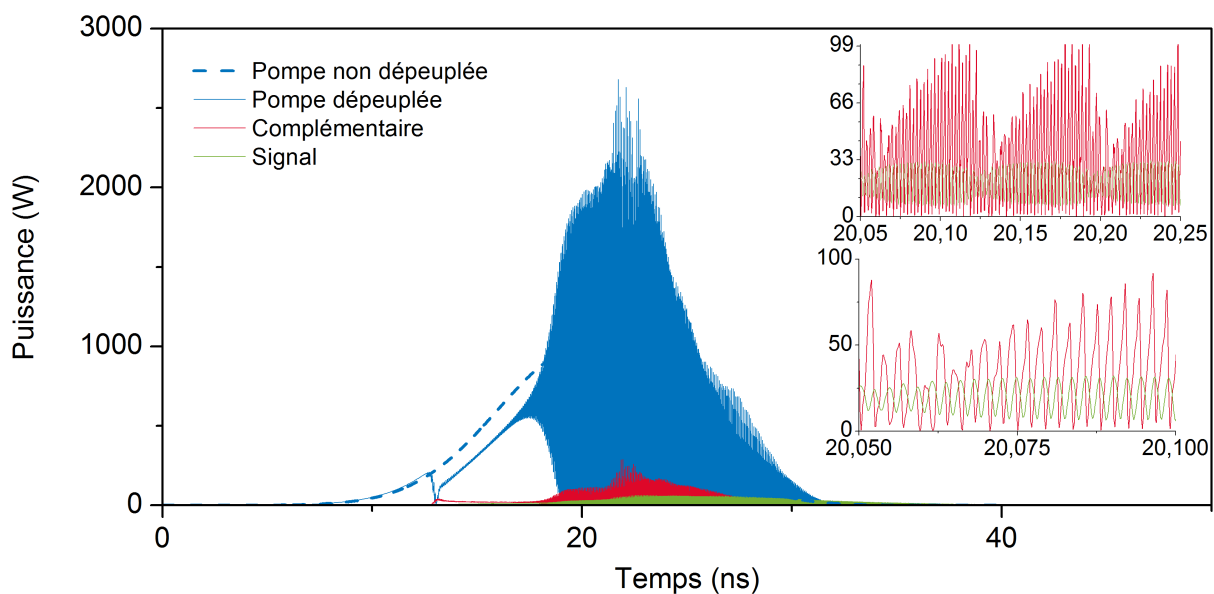


FIGURE 6.17 – Simulation numérique de l'enveloppe de la puissance, mesurée après la sortie par le miroir M1, pour une énergie de pompe incidente de  $E_p = 10 \mu\text{J}$ .

L'allure des réponses temporelles est complètement modifiée comparée au cas précédent. L'allure des courbes reste conforme jusqu'à  $t = 17 \text{ ns}$ . Au delà, on note l'apparition d'une forme d'instabilité, et l'enveloppe de la puissance oscille ensuite de manière beaucoup plus désordonnée. La première partie correspond à une situation où seuls les modes des clusters oscillent, et ils sont les seuls car leur seuil est bas. Au delà de  $t = 17 \text{ ns}$ , on peut interpréter le changement de régime par l'arrivée de modes longitudinaux hors des clusters, qui ont suffisamment de gain pour osciller malgré l'existence des clusters qui dépeuplent la pompe. Cette observation est confirmée par le spectre du champ électrique signal, présenté sur la figure 6.18, et qui montre que de nombreuses fréquences sont excitées. On note toujours la présence de deux clusters principaux parmi les composantes spectrales les plus intenses, ainsi que la décroissance de l'amplification à mesure que l'on

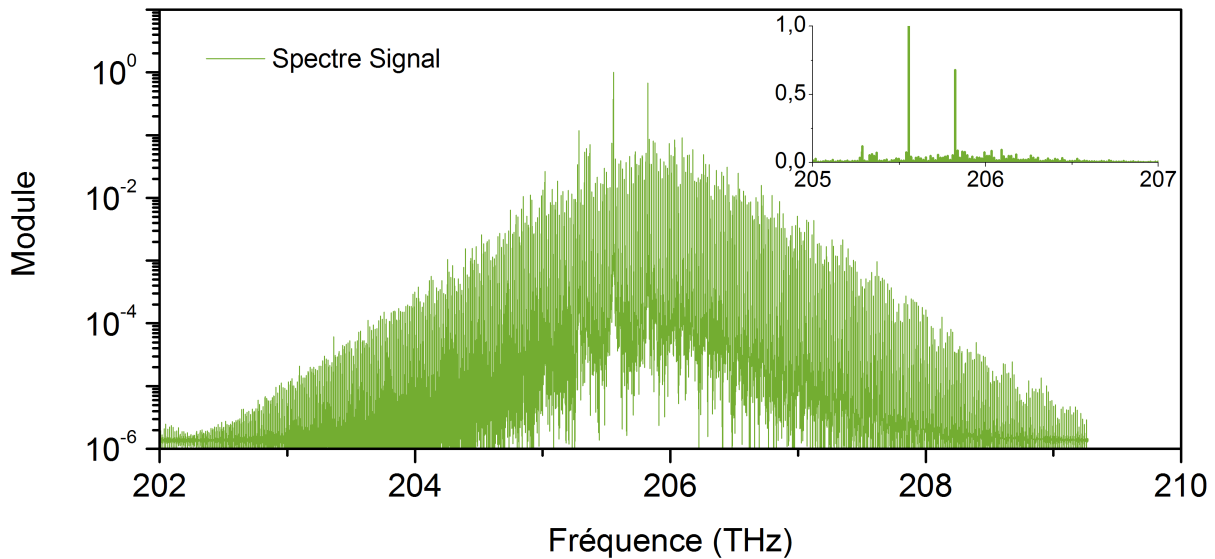


FIGURE 6.18 – Spectre normalisé de l’onde signal, dont le profil temporel est donné sur la figure 6.15.

s’éloigne de l’accord de phase.

On constate également que les modes spatiaux transverses n’émergent pas, en raison d’une constante de couplage très réduite. Notre simulation prédit donc que le profil de chaque onde demeure  $TEM_{00}$ . Cette dernière caractéristique est une conséquence directe de l’alignement parfait ici considéré, et du recouvrement excellent des ondes comme montré sur la figure 6.8. En pratique, les profils spatiaux des ondes, l’alignement et le recouvrement sont loin d’être aussi bien affinés et les modes transverses apparaissent pour des taux de pompage bien plus bas.

### 6.3.4 Conclusion

Un outil de simulation numérique complet a été développé, permettant d’explorer l’influence des nombreux paramètres en présence sur le spectre du NesCOPO. Son architecture a été élaborée dans l’idée d’incorporer les diverses approches qui sont apparues dans la littérature, en pouvant choisir les hypothèses temporelles et spatiales en fonction des précisions requises et des hypothèses voulues.

Une méthode de résolution FDTD modale a été implémentée, permettant d’effectuer des simulations supposant les trois ondes en interaction monochromatiques. Cette méthode a été utilisée dans le cadre de l’hypothèse spatiale des ondes planes et des ondes  $TEM_{00}$ , et a permis de vérifier les prédictions analytiques que l’on a développé au cours de la partie 5.1. On a notamment validé la majorité des résultats, et nous avons démontré que le formalisme des équations de taux n’est plus adapté dès lors que le gain par aller retour est important.

Une généralisation de la méthode FDTD aux ondes gaussiennes a été développée, et la gestion de la propagation par la méthode ABCD permet désormais de simuler com-

---

plètement des structures complexes mettant en oeuvre une interaction non linéaire. Pour le NesCOPO, il est désormais possible de prendre en compte la dissociation des cavités signal et complémentaire de manière exacte. Il est également très facile de faire varier des paramètres évoluant lentement par rapport au temps d'aller retour des ondes dans les cavités, comme par exemple la température des divers éléments optiques.



# Conclusion et perspectives

## Résumé des travaux de thèse

Dans cette thèse, des avancées ont été apportées à la fois dans le domaine des sources infrarouges et de l'instrumentation QEPAS.

Nous avons développé dans le chapitre 1 un modèle analytique complet permettant d'exprimer les performances d'un instrument de mesure QEPAS non résonant en terme de NNEA. Un modèle de simulation numérique par éléments finis a également été mis en place, permettant ainsi d'obtenir un second modèle semi-analytique. Grâce à ce dernier, l'hypothèse centrale qui veut que la présence du résonateur ne modifie pas le champ de pression photoacoustique a été remise en question. Nous avons en effet mis en évidence qu'il existe un écart entre les deux méthodes de modélisation, responsable d'un facteur 2 d'amélioration sur les performances estimées d'un diapason horloger commercial quand le modèle semi-analytique est employé. Des expériences sur ce même résonateur ont été réalisées, et les résultats obtenus sont compris entre les prédictions des modèles analytique et semi-analytique. Le modèle analytique a également été étendu au cas du QEPAS résonant, et il a été comparé à la simulation numérique par éléments finis. L'accord obtenu est remarquable, et permet de fournir les outils nécessaires pour améliorer ce type de configuration à l'avenir.

Une nouvelle formule analytique pour prédire le facteur de qualité des résonateurs mécaniques en flexion a été obtenue dans le chapitre 2. La fiabilité du modèle a été établie en réalisant le diapason nommé U1, qui possède la géométrie qui maximise le facteur de qualité lors d'une vibration dans l'air à pression atmosphérique avec  $Q = 41000$  (pour toute épaisseur de résonateur de 2 mm ou moins). Cette nouvelle formule a ensuite été incorporée au modèle analytique QEPAS développé dans le chapitre 1, permettant d'obtenir une modélisation complètement analytique faisant intervenir les dimensions du diapason. Ce dernière a alors été utilisée pour optimiser le QEPAS non résonant, aboutissant à la définition du résonateur optimal pour la sensibilité nommé U2. En particulier, nous avons démontré qu'un gain maximal de 3 est à attendre avec cette forme.

Un nouveau concept de résonateur en flexion vibrant dans l'air a également été introduit, permettant de dépasser le facteur de qualité optimal de U1. L'idée est de modifier la géométrie du diapason afin de minimiser ses pertes visqueuses, même si le résonateur

présente alors beaucoup de pertes acoustiques. Ces dernières sont ensuite annulées grâce à l'emploi d'un dispositif de récupération des ondes acoustiques externe au résonateur. Grâce à un tel système, un résonateur nommé C2 présentant un facteur de qualité de 75000 à pression atmosphérique a été réalisé. Ce nouveau résonateur a ensuite été adapté pour une application QEPAS.

Dans le chapitre 3, les diapasons U1 et C2 ont été mis en œuvre et leurs sensibilités ont été comparées à celle d'un diapason horloger nommé Euro 1. En configuration non résonante, nous avons démontré que C2 est aussi performant que Euro 1. Les performances ultimes de U1 n'ont pas pu être obtenues car le système était limité par son circuit de détection électronique. Ses performances sont 45% en dessous de celles de Euro 1, mais restent compatibles avec les prédictions de nos modèles analytiques qui prévoient un gain d'un facteur 2. En configuration résonante, nous avons prouvé que notre modèle analytique développé au chapitre 1 reproduit correctement toutes les tendances expérimentales observées sur Euro 1. Cet outil de prédiction devrait donc être utilisé à l'avenir pour la conception de résonateurs optimaux en milieu résonant. Le résonateur C2 a également été caractérisé en configuration résonante, avec une optimisation de la géométrie des tubes d'amplification acoustique utilisés en configuration on-beam. En utilisant un mélange de 1% d'acétylène dilué dans l'air ambiant, nous avons démontré des performances légèrement améliorées par rapport à celles de l'état de l'art, avec un NNEA mesuré de  $2,4 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  contre  $3,3 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  obtenus par Dong *et al.* avec un diapason horloger (DONG, Anatoliy A KOSTEREV *et al.* 2010). Le NNEA a été amélioré grâce à l'emploi d'une forme de modulation quasi-carrée jusqu'à une valeur de  $1,8 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ . En plus de leurs excellentes performances, tous les résonateurs optimisés mis en œuvre présentent d'autres avantages sur les résonateurs horlogers commerciaux, avec par exemple une fréquence de fonctionnement réduite permettant d'adresser des gaz avec des temps de relaxation plus long. Leur inter-branche élargi à 2 mm permet un alignement optique moins contraint, et l'emploi de grandes longueurs d'ondes ( $\lambda > 10 \mu\text{m}$ ) ou de faisceaux de faible qualité spatiale est possible.

Alors que la première partie de la thèse a permis de progresser dans notre compréhension du QEPAS, elle a également rappelé l'importance de disposer de sources infrarouges étant à la fois largement accordables, fines spectralement et capables d'émettre une forte puissance moyenne. La seconde partie de la thèse a alors porté sur le développement des sources QCLs et OPOs, les deux types de sources infrarouges les plus prometteuses pour répondre à ces critères.

En collaboration avec le Capasso Lab de Harvard University, un travail de réflexion a été mené et présenté dans le chapitre 4 en vue de réaliser un nouveau type de QCL. En synthétisant des rétro-actions réparties pseudo-périodiques de manière judicieuse, nous avons vu qu'il était possible pour un QCL d'émettre plusieurs longueurs d'onde d'émission choisies à l'avance. L'expérience a montré que l'emploi d'une section de phase monolithique permet d'obtenir une forme de contrôle sur la (les) longueur d'onde émise(s),

sans que l'allure de ce contrôle ne soit clairement comprise. Une modélisation à l'aide de la méthode des matrices de transfert (TMM) a alors été développée pour répondre à cette question. Elle est capable d'interpréter un grand nombre de résultats expérimentaux observés, comme le comportement spectral, la périodicité des profils en puissance modale ou encore la dynamique de la compétition de modes. L'une des interprétations fournies, visant à prédire quantitativement les profils de puissances modales à l'aide du spatial hole burning (SHB), a toutefois été remise en cause récemment. Bien qu'elle permette de reproduire très bien les données expérimentales, elle suppose la coexistence simultanée de plusieurs longueurs d'ondes dans le QCL. Les dernières expériences dynamiques effectuées au Capasso Lab tendent à montrer que cette cohabitation est possible, mais qu'elle n'avait pas lieu dans l'expérience que l'on cherchait à expliquer. Ainsi, les longueurs d'onde étaient émises séquentiellement, à savoir une longueur d'onde par impulsion. Les spectres réalisés étaient donc un reflet d'une moyenne temporelle. Les travaux se poursuivent au Capasso Lab autour de nouveaux scénarios de compétition de modes.

Le chapitre 5 a été consacré à l'étude de la forme temporelle optimale de pompe nécessaire pour maximiser l'efficacité des OPOs. Après avoir généralisé le formalisme des équations de taux, la forme optimale a été analytiquement déterminée quelle que soit la configuration de l'OPO (simplement résonante ou doublement résonante). Nous avons en particulier montré que lors de la phase de construction des impulsions, l'OPO doit être pompé par une puissance crête constante prenant une valeur bien définie pour minimiser son énergie de construction. Une formule originale donnant le temps de construction de l'OPO a été déduite de l'analyse précédente, couvrant le cas général de l'OPO doublement résonant. Des expériences ont ensuite été conduites à l'aide d'un laser à fibre permettant de moduler temporellement les impulsions de pompe. Ce laser a été utilisé pour pomper un NesCOPO, et les impulsions rectangulaires utilisées ont confirmé la validité de notre formule analytique du temps de construction. Ce même dispositif expérimental a également mis en évidence la présence d'une énergie de construction minimale, conformément au résultat analytique obtenu à propos de la forme optimale de pompage. Enfin, nous avons étudié l'influence de la durée de l'impulsion de l'OPO sur son efficacité de conversion, et nous avons montré que les impulsions longues permettent d'obtenir un rendement important et donc une puissance moyenne de rayonnement utile important et disponible pour la photoacoustique.

Enfin, une nouvelle méthode de simulation numérique des OPOs a été décrite dans le chapitre 6. Intégrée au cœur du logiciel GOSS réalisé au cours de la thèse, cette dernière permet d'effectuer rapidement des modélisations numériques des OPOs dans le domaine temporel, permettant ensuite d'obtenir le spectre des impulsions OPOs. Son originalité réside dans l'utilisation des modes propres spatiaux existant au sein des cavités optiques résonantes, permettant alors d'éviter une discrétisation de l'espace 3D, coûteuse en temps de calcul. Le logiciel est ensuite utilisé pour étudier en détail un NesCOPO. Le problème des impulsions de forme temporelle optimale, résolu analytiquement et vérifié expérimen-

talement dans le chapitre 5, est revisité sous l'angle de la simulation numérique. Les résultats obtenus sont en très bon accord, à condition que les taux de pompage ne soient pas trop importants. Au delà, il est démontré que le formalisme analytique des équations de taux n'est pas capable de reproduire les résultats numériques. Le code a également été utilisé afin de calculer le spectre d'émission d'un NesCOPO, ce qui n'avait jamais été fait auparavant. Ce code ouvre la voie vers l'étude numérique de l'influence de la température ou encore de la géométrie sur le spectre du NesCOPO, ainsi que l'impact des impulsions longues de pompe sur son accordabilité.

Avant d'identifier quels pourraient être les futurs axes de développement du QEPAS, il est important de prendre du recul pour replacer cette technique parmi les autres méthodes de spectrométrie infrarouge.

## Comparaison du QEPAS aux autres techniques

Maintenant que nous avons étudié en détail les limites ultimes de la technique QEPAS, il est intéressant de les comparer avec les résultats d'autres techniques de spectroscopie existantes.

### La PA conventionnelle

La technologie PA conventionnelle fait appel à des microphones commerciaux. Il peut s'agir de microphones capacitifs aussi bien que de microphones à électret, plus répandus. Le meilleur résultat rapporté est de  $2,2 \cdot 10^{-9} \text{W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  (WEBBER et al. 2003b), c'est à dire du même ordre de grandeur que le QEPAS aujourd'hui. Les expériences typiques sont effectuées à quelques kHz, et les facteurs de qualité acoustiques sont de l'ordre de quelques dizaines lorsque la méthode de détection est résonante.

### Les méthodes CE

Les méthodes de spectroscopie laser infrarouge qui ont démontré les plus fortes sensibilités à ce jour sont de type Cavity Enhanced (CE). Il s'agit de méthodes telles que Optical Feedback-Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy (OF-CEAS), Cavity Ring Down Spectroscopy (CRDS) ou encore Noise Immune Cavity Enhanced-Optical Heterodyne Molecular Spectroscopy (NICE-OHMS). Les performances de ces techniques sont généralement évaluées à l'aide du Noise Equivalent Absorption (NEA) qui s'exprime en  $\text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  plutôt que du NNEA, car elles ne dépendent pas linéairement de la puissance optique utilisée comme c'est le cas pour la photoacoustique.

En termes de sensibilité pure, les techniques NICE-OHMS et CRDS ont atteint leur limite ultime. Leur NEA est en effet fondamentalement limité par les fluctuations quantiques de la puissance du laser (shot noise) et dépend de la puissance optique comme  $1/\sqrt{P_L}$ , à condition de disposer d'un détecteur tenant le flux.



L'un des meilleurs résultats rapportés concerne la CRDS avec  $NEA = 1,0 \cdot 10^{-12} \text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  (SPENCE et al. 2000). Cette expérience est cependant limitée par des bruits autres que le shot noise. Un montage hétérodyne plus compliqué a récemment atteint cette limite ultime avec  $NEA = 6,0 \cdot 10^{-14} \text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  (LONG et al. 2014). Les puissances utilisées lors de ce record ( $\sim 1 \text{ mW}$ ) restent faibles en raison du détecteur employé.

Les méthodes CE sont donc extrêmement sensibles, mais la comparaison avec la photoacoustique n'est pas immédiate. Cette sensibilité n'est valable que sur une plage spectrale très réduite, et leur dynamique est aussi limitée. Une chose est cependant certaine : leurs performances sont aujourd'hui davantage liées aux détecteurs qu'aux sources lasers, contrairement à la photoacoustique.

## Le CEPAS

Le NNEA minimal du Cantilever Enhanced Photoacoustic Spectroscopy (CEPAS) rapporté jusqu'à maintenant est de  $1,4 \cdot 10^{-10} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ . On peut se demander pourquoi il existe un ordre de grandeur entre les performances de cette technique et le QEPAS, sachant que les deux reposent sur le déplacement d'une poutre.

Une différence majeure existe avec le QEPAS : le CEPAS est utilisé à très basse fréquence, généralement bien en dessous de la fréquence de résonance fondamentale du cantilever  $\omega_{n=0}$ . Les fréquences que l'on trouve dans la littérature varient de quelques dizaines de Hertz à quelques centaines de Hertz (KAUPPINEN et al. 2003 ; KOSKINEN et al. 2007). La cellule photoacoustique utilisée pour amplifier la pression est elle aussi utilisée bien en dessous de sa résonance :  $\omega \ll \omega_{m=0}$ . La différence entre QEPAS et CEPAS concerne donc davantage le mode d'opération du résonateur.

En pratique, le cantilever au cœur du CEPAS est une poutre encastree-libre, ce qui est compatible avec les modèles QEPAS que nous avons développés. On peut par conséquent assurer que le rapport signal à bruit ultime du CEPAS est donné par  $SNR = F_{pA}/F_b$ . On remarque alors que ce rapport ne dépend pas du fait que la pièce mécanique soit excitée à sa résonance ou non. L'expression de la force photoacoustique est en revanche légèrement différente de l'expression que nous avons donné dans le cas non résonant (équation 1.38). La pression qui existe dans toute cellule photoacoustique peut s'écrire dans le cadre du CEPAS (MIKLÓS et al. 2001) :

$$\hat{P}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{(\gamma - 1)L_t \hat{H}(\omega)}{V_{cell}} \left[ \frac{1}{j\omega} \right] \quad (6.25)$$

L'important est de remarquer ici qu'il y a un avantage fort à utiliser des fréquences de modulation  $\omega$  basses et des volumes de cellules photoacoustiques réduits. La force photoacoustique pour le CEPAS est ensuite bien plus facile à exprimer pour le CEPAS que pour le QEPAS, dans la mesure où les dimensions du cantilever sont bien plus petites que la longueur d'onde acoustique :

$$F_{pA} = (\gamma - 1)\hat{H}(\omega) \left[ \frac{L_t}{jV_{cell}\omega} \right] l \int_0^L \phi_n(x) dx \quad (6.26)$$

Si on ouvrait complètement la cellule photoacoustique autour du cantilever, l'expression de la force utiliserait l'expression que nous avons obtenue pour une onde de pression s'échappant à l'infini :

$$F_{pA} = (\gamma - 1)\hat{H}(\omega) \left[ \frac{\pi\omega}{6v^2} \right] l \int_0^L \phi_n(x) dx \quad (6.27)$$

Utiliser une cellule photoacoustique de faible volume et à basse fréquence est donc avantageux en terme de signal. Cela prouve un avantage au CEPAS grâce à leur optimisation du milieu acoustique utilisé. On se rend compte que les résonateurs optimaux en milieu non résonant que nous avons réalisés au cours de cette thèse sont optimisés par rapport à une force photoacoustique proportionnelle à la fréquence, alors que le cas résonant fait au contraire intervenir une force inversement proportionnelle à la fréquence.

## Perspectives d'amélioration

Avant d'identifier quels pourraient être les futurs axes de recherches, on peut suggérer une série de propositions et de remarques concernant le QEPAS.

### Le calcul du NNEA

Comme nous allons le souligner, un certain nombre de résultats que l'on peut trouver dans la littérature posent question du point de vue des performances annoncées en terme de NNEA. Ce type de situation existe car le calcul de ce chiffre est laissé à la discrétion de l'auteur, qui ne rapporte pas toujours les valeurs des différents facteurs utilisés.

Au travers de ce manuscrit, nous avons considéré comme le meilleur résultat du QEPAS les mesures obtenues par Dong *et al.* (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010). Ce choix est basé sur plusieurs constats :

- Le gain maximal du rapport SNR est de 30 pour l'ajout de micro-tubes optimaux. Ce résultat a été rapporté par de nombreux groupes indépendamment, et notre travail est compatible avec cette valeur (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010; HENG et al. 2016; YI, CHEN, SUN et al. 2012).
- Ce facteur de 30 est cohérent avec de nombreuses valeurs expérimentales rapportées pour le QEPAS non résonant avec un diapason horloger commercial, y compris celui de notre expérience dans ce travail de thèse.
- De nombreux NNEA rapportés sont très proches de cette valeur, comme on peut le voir sur la figure 6.19 qui regroupe plusieurs résultats extraits de la littérature.

Plusieurs résultats, présentés comme records et provenant du même groupe de recherche, sont pourtant annoncés bien meilleurs. C'est par exemple le cas de la détection de  $SF_6$  par V. Spagnolo *et al.*, qui a utilisé un diapason horloger commercial et des tubes

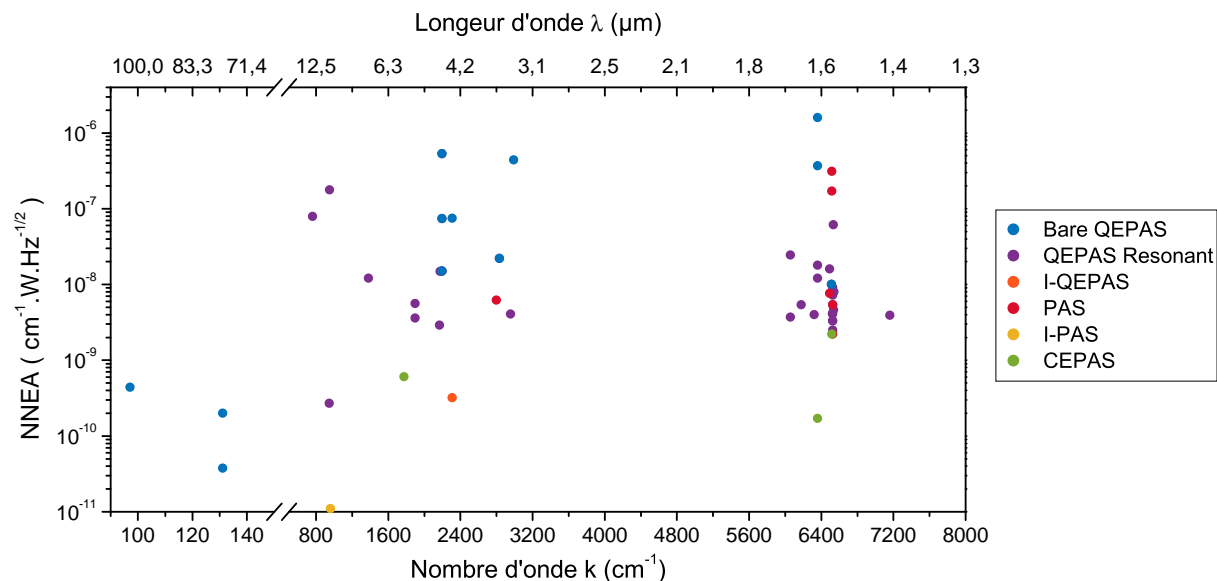


FIGURE 6.19 – NNEA obtenus par différentes techniques photoacoustiques et rapportés dans la littérature.

acoustiques optimaux. Avec un NNEA calculé de  $2,7 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ , ce dernier indique que son chiffre est limité par le fond laser et non le bruit brownien. Les performances projetées peuvent alors être estimées à  $6,75 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ .

Il s'agit là probablement d'une erreur. Cette valeur se détache nettement de tous les autres résultats QEPAS rapportés bien qu'elle soit obtenue en utilisant exactement le même instrument. Nos modèles montrent également que cette détection de  $SF_6$  n'a aucune raison d'être plus performante, notamment parce que le NNEA est normalisé par rapport à la force de l'absorption.

Un nombre croissant de papiers impliquant le groupe de V. Spagnolo présente des anomalies similaires. Ces dernières sont plus difficiles à déceler dans la mesure où les résultats concernent leurs nouveaux diapasons originaux, et que les gains à attendre sont donc difficiles à estimer. On peut par exemple citer les chiffres de  $4,4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  lors de la détection de  $H_2S$  (SPAGNOLO, Pietro PATIMISCO, PENNETTA et al. 2015), le chiffre de  $2,0 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  lors de la détection de  $CH_3OH$  (S BORRI, P PATIMISCO, A SAMPAOLO et al. 2013) ou encore le chiffre de  $3,75 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  sur  $CH_3OH$  également (Angelo SAMPAOLO, Pietro PATIMISCO, GIGLIO et al. 2016). Dans les trois exemples précédents, un diapason original est mis en œuvre sans tube et présente des gains compris entre 20 et 300 par rapport aux diapasons horlogers standards.

Nous disposons de plusieurs indices pour démontrer l'existence de ces erreurs. D'abord, les théories développées dans cette thèse, concordantes avec nos premières mesures sur nos diapasons originaux, montrent que ce gain ne peut pas dépasser un facteur 3 lorsqu'un diapason sans tube est utilisé. De plus, notre modèle prévoit des performances bien moins élevées que celle du diapason horloger pour leurs diapasons originaux. Ensuite, la seule étude comparative disponible, menée très récemment par l'un des membres du groupe à

l'aide d'un de leurs diapasons originaux, a démontré une performance quatre fois inférieure à celle du diapason horloger commercial pour une même expérience (HENG et al. 2016). Dans ce papier, le composé  $CO_2$  est détecté dans une atmosphère de  $N_2$  (sans eau). Les performances obtenues pour le résonateur commercial sont de  $3,7 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ , un chiffre conforme aux expériences d'autres auteurs pour le même montage (DONG, Anatoliy A KOSTEREV et al. 2010).

Dans tous les cas, les chiffres annoncés du NNEA dans la littérature sont à prendre avec beaucoup de précautions, et les études comparatives restent à privilégier pour comparer deux diapasons de la manière la plus fiable possible.

### Proposition d'un nouveau NNEA

L'introduction du NNEA est intéressante par rapport au NEA en photoacoustique, car les performances dépendent linéairement de la puissance utilisée (tant que le bruit de l'instrument est le bruit brownien du résonateur). La manière dont il est calculé expérimentalement possède en revanche une limitation.

On l'a vu, il est possible de modifier le NNEA en modifiant la forme de modulation utilisée pour le laser, ainsi que le type de modulation (AM ou WM). Elle dépend également du temps de relaxation du gaz utilisé, une valeur qui peut varier en fonction de la pression ou encore des autres espèces présentes dans le gaz. Si on considère que l'objectif du NNEA est de pouvoir comparer les performances d'un capteur donné indépendamment de la source d'excitation et du gaz utilisé, son mode de calcul devrait être modifié. On propose donc d'introduire une nouvelle façon de calculer le NNEA, qui soit compatible avec les formules utilisées jusqu'ici.

En effet, la formule utilisée actuellement est :

$$\text{NNEA} = \frac{\alpha_G P_{\text{moy}}}{\text{SNR}} \sqrt{\Delta f} \quad (6.28)$$

Elle fait intervenir la puissance moyenne  $P_{\text{moy}}$  qui entre dans le système de détection. On propose de remplacer le produit  $\alpha_G P_{\text{moy}}$  par le module de la densité de chaleur déposée  $|\hat{H}(\omega)|$ , dont on a donné la formule à l'équation 1.12. Le NNEA serait alors défini comme suit :

$$\text{NNEA} = \frac{|\hat{H}(\omega)|}{\text{SNR}} \sqrt{\Delta f} = \frac{\int_{-1}^1 \alpha_G(t/(2f_0)) P_L(t/(2f_0)) \exp(-j\pi t) dt}{\text{SNR} \sqrt{1 + (2\pi f_0 \tau_{VT})^2}} \sqrt{\Delta f} \quad (6.29)$$

Le seul inconvénient de cette proposition est que le NNEA est moins immédiat à calculer, et qu'il demande la connaissance de  $\tau_{V-T}$ . Pour une modulation AM purement sinusoïdale, alors on a  $|\hat{H}(\omega)| = \alpha_G P_{\text{moy}}$ , ce qui permet de rejoindre l'ancienne définition. Pour une modulation WM entraînant  $\alpha_G$  purement sinusoïdal, alors on aurait  $|\hat{H}(\omega)| = \alpha_G P_{\text{moy}}/2$ , soit la moitié de l'ancienne définition.

## Vers un QEPAS résonant optimisé

Nous avons bâti un modèle permettant d'optimiser les résonateurs en milieu non résonant. Nous avons montré qu'il existe une différence fondamentale entre l'amplitude de la pression dans un milieu libre (sans confinement) et dans un milieu restreint (qu'il soit résonant comme pour la PA conventionnelle ou bien non résonant comme le CEPAS) : elle est proportionnelle à  $\omega$  dans le premier cas et proportionnelle à  $\omega^{-1}$  dans le second. L'optimisation dans les deux cas ne peut donc qu'être différente, et devrait mener à l'avenir vers une fusion complète des principes de la photoacoustique conventionnelle et de ceux du QEPAS.

Le résonateur C2 que nous avons mis au point possède une spécificité de taille par rapport aux diapasons horloger pour atteindre cet objectif : ses dimensions sont comparables à la longueur d'onde acoustique. Ce diapason est par conséquent compatible avec une utilisation au sein d'une cavité acoustique résonante traditionnelle, dont les modes propres possèdent justement une distribution spatiale dont les variations sont définies par la longueur d'onde acoustique. Les dimensions de la cavité de récupération de l'énergie acoustique que nous avons présenté jusqu'à maintenant ne sont pas ajustées pour faire coïncider résonance acoustique et résonance mécanique du diapason. Cette voie est très prometteuse puisque nous avons vu que le facteur de qualité acoustique est largement diminué par les pertes visco-thermiques dans le cadre de l'utilisation de tubes acoustiques de faible diamètre. Passer à des diamètres millimétriques, permettrait de récupérer les facteurs de qualité acoustiques typiques de la photoacoustique conventionnelle, typiquement entre 30 et 100.

Concernant les diapasons dont les dimensions sont plus faibles que la longueur d'onde acoustique, cette insertion directement au sein de la cavité induirait un couplage moins efficace avec le mode acoustique. Il est en revanche toujours possible d'utiliser une configuration proche du CEPAS, qui isole le résonateur acoustique de l'un des deux flancs du diapason. L'interbranche est désignée comme faisant partie de la cavité acoustique, et l'effet photoacoustique est confiné à cet endroit. Ce choix implique d'isoler cet espace intérieur au maximum, et il est compatible avec le choix de diapasons de faible fréquence de fonctionnement qui garantissent une amplitude de la pression améliorée. À cet égard, le diapason U1 constitue un excellent candidat, même si une nouvelle optimisation pourrait mener vers un optimum différent.

## L'avènement du I-QEPAS

Même sans compter sur les gains qu'apporteraient les améliorations proposées précédemment, les NEA records de  $NEA = 6,0 \cdot 10^{-14} \text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  obtenus à l'aide du CRDS ne sont pas inaccessibles pour la photoacoustique. En plaçant un système QEPAS au sein d'une cavité résonante, on obtient un montage dit Intracavity-QEPAS (I-QEPAS) qui bénéficie de l'amplification de la puissance du laser injecté dans la cavité. Cette technique

a déjà été utilisée en combinaison avec un diapason horloger standard (sans tube), et un facteur d'amplification de la puissance optique de 240 a été obtenu.

En considérant les meilleurs résultats actuels de  $NNEA = 3 \cdot 10^{-9} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  pour le QEPAS, et en employant des cavités optiques résonantes avec des miroirs de réflectivités typiques  $T \sim 10^{-4}$  ( $R = 99.99\%$ ), le QEPAS peut théoriquement atteindre  $NNEA = 3 \cdot 10^{-13} \text{cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ . Un laser de 5 W peut donc en principe atteindre la même performance que le record de NEA annoncé pour la CRDS, et ce niveau de puissance est déjà démontré par la technologie OPO ainsi que QCL. Le principal défi de cette technique reposera probablement sur la réduction du bruit de fond laser, d'autant plus important que la puissance utilisée est importante et qui pourrait dépasser le bruit brownien du résonateur.

### **Vers la recherche de nouveaux compromis**

Si ce travail de thèse a porté avant tout sur la recherche de la sensibilité, les outils présentés peuvent s'adapter à la recherche d'autres compromis. Ces instruments sont en effets destinés à être déployés hors des laboratoires, et de nombreuses autres problématiques doivent être prises en compte lors de cette transition. Compacité, coût, sensibilité aux vibrations, sensibilité à la température et bien d'autres critères encore devront être incorporés dans la recherche de l'instrument complètement optimisé.

# Bibliographie

- ANGELMAHR, M, A MIKLÓS et P HESS. « Wavelength -and amplitude-photoacoustics : comparison of simulated and measured spectra of higher harmonics ». In : *Applied Optics* 47.15 (2008), p. 2806–2812 (cf. p. 143).
- ARISHOLM, Gunnar. « Advanced numerical simulation models for second-order nonlinear interactions ». In : *Proceedings of SPIE*. T. 3685. 1999 (cf. p. 248).
- ARISHOLM, Gunnar. « General numericals methods for simulating second-order nonlinear interactions in birefringent media ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 14.10 (1997), p. 2543–2549 (cf. p. 233, 236).
- ARISHOLM, Gunnar et Helge FONNUM. *Simulation System For Optical Science ( SISY-FOS )*. October. 2012, p. 1–28 (cf. p. 233).
- ARMSTRONG, J.A., N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING et P.S. PERSHAN. « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric ». In : *Physical Review* 127.6 (1962), p. 1918–1939 (cf. p. 193, 202, 230).
- BAO, Minhang et Heng YANG. « Squeeze film air damping in MEMS ». In : *Sensors and Actuators : A* 136 (2007), p. 3–27 (cf. p. 90).
- BARBOUR, Neil M. « Inertial Navigation Sensors ». In : *NATO* 116 (2011), p. 1–28 (cf. p. 80).
- BARRIENTOS BARRIA, Jessica, Sophie ROUX, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Myriam RAYBAUT, Jean-Michel MELKONIAN, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Microsecond fiber laser pumped , single-frequency optical parametric oscillator for trace gas detection ». In : *Optics Letters* 38.13 (2013), p. 2165–2167 (cf. p. 197).
- BELL, Alexander Graham. « Production of sound by radiant energy ». In : *National Academy of Sciences*. 1881 (cf. p. 5, 6).
- BELL, Alexander Graham. « Upon the production and reproduction of sound by light ». In : *American Association for the Advancement of Science*. 1880 (cf. p. 5).
- BERROU, Antoine. « Développement d’un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications ». Thèse de doct. 2009 (cf. p. 255).
- BESSON, Jean-philippe. « photoacoustic spectroscopy for multi-gas sensing using near infrared lasers ». Thèse de doct. 2006 (cf. p. 30).
- BINNIG, G. et F.C. QUATE. « Atomic Force Microscope ». In : *Physical Review Letters* 56.9 (1986), p. 930–934 (cf. p. 80).

- BJORKHOLM, J. « Some effects of spatially nonuniform pumping in pulsed optical parametric oscillators ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 7.3 (1971) (cf. p. 198).
- BJORKHOLM, J.E. « Analysis of the Doubly Resonant Optical Parametric Oscillator Without Power-Dependent Reflections ». In : *Journal of Quantum Electronics* (1969), p. 293–295 (cf. p. 240).
- BJORKHOLM, J.E., A. ASHKIN et R. SMITH. « Improvement of optical parametric oscillators by nonresonant pump reflection ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 6.12 (déc. 1970), p. 797–799 (cf. p. 252).
- BLAAUWGEERS, R., M. BLAZKOVA, M. ČLOVEČKO, V. B. ELTSOV, R. de GRAAF, J. HOSIO, M. KRUSIUS, D. SCHMORANZER, W. SCHOEPE, L. SKRBK, P. SKYBA, R. E. SOLNTSEV et D. E. ZMEEV. « Quartz Tuning Fork : Thermometer, Pressure- and Viscometer for Helium Liquids ». In : *Journal of Low Temperature Physics* 146.5-6 (fév. 2007), p. 537–562 (cf. p. 81).
- BLAKE, W.K. *On the damping of transverse motion of free-free beams in dense stagnant fluids*. Rapp. tech. Bethesda, Maryland : Naval Ship Research et Development Center, 1971, p. 41–55 (cf. p. 92).
- BLAKE, W.K. « The radiation from free-free beams in air and in water ». In : *Journal of Sound and Vibration* 33.4 (avr. 1974), p. 427–450 (cf. p. 97).
- BLANCHARD, R, S MENZEL, C PFLÜGL, L DIEHL, C WANG, Y HUANG, J-H RYOU, R D DUPUIS, L DAL NEGRO et F CAPASSO. « Gratings with an aperiodic basis : single-mode emission in multi-wavelength lasers ». In : *New Journal of Physics* 13.11 (nov. 2011), p. 113023 (cf. p. 176).
- BOHREN, A. et M.W. SIGRIST. « Optical parametric oscillator based difference frequency laser source for photoacoustic trace gas spectroscopy in the 3  $\mu\text{m}$  mid-IR range ». In : *Infrared Physics & Technology* 38.7 (1997), p. 423–435 (cf. p. 195).
- BOLLER, K. J. et T. SCHRÖDER. « Demonstration of broadband intracavity spectroscopy in a pulsed optical parametric oscillator made of fl-barium borate ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 10.9 (1993), p. 1778–1784 (cf. p. 236).
- BORRI, S, P PATIMISCO, I GALLI, D MAZZOTTI, G GIUSFREDI, N AKIKUSA, M YAMANISHI et Vincenzo SPAGNOLO. « Intracavity quartz-enhanced photoacoustic sensor ». In : *Applied Physics Letters* 104 (2014) (cf. p. 20).
- BORRI, S, P PATIMISCO, A SAMPAOLO, H E BEERE, D A RITCHIE, M S VITIELLO, G SCAMARCIO et V SPAGNOLO. « Terahertz quartz enhanced photo-acoustic sensor ». In : *Applied Physics Letters* 021105.103 (2013) (cf. p. 21, 273).
- BOSENBERG, Walter R, Alexander DROBSHOFF et Jason I ALEXANDER. « 93% pump depletion, 3.5W continuous wave, singly resonant optical parametric oscillator ». In : *Optics Letters* 21.17 (1996), p. 1336–1338 (cf. p. 198).
- BOURGETEAU-VERLHAC, Béatrice, Raphaël LÉVY, Thomas PERRIER, Pierre LAVENUS, Jean GUÉRARD et Olivier Le TRAON. « Extension Mode Resonator ». In : *European Frequency and Time Forum (EFTF)*. York, UK, 2016, p. 1–4 (cf. p. 147).



- BOYD, G. D. et D.A. KLEINMAN. « Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams ». In : *Journal of Applied Physics* 39.8 (1968), p. 3597 (cf. p. 253).
- BRADLEY, D.I., M. CLOVECKO, S.N. FISHER, D GARG, E GUISE, R P HALEY, O KOLOSOV, G R PICKETT et V TSEPELIN. « Crossover from hydrodynamic to acoustic drag on quartz tuning forks in normal and superfluid He ». In : *Physical Review B* 85.014501 (2012), p. 1–9 (cf. p. 81).
- BROSNAN, Stephen J. et Robert L. BYER. « Optical Parametric Oscillator Threshold and Linewidth Studies ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 15.6 (1979), p. 415–431 (cf. p. 200, 202).
- BYER, R.L. *Nonlinear Optics, Chap. 2, PG Harper and BS Wherrett Eds.* 1977 (cf. p. 200).
- CANAT, Guillaume, Jean-Claude MOLLIER, Jean-Pierre BOUZINAC, Glenn M WILLIAMS, Brian COLE et Lew GOLDBERG. « Dynamics of high-power erbium – ytterbium fiber amplifiers ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 22.11 (2005), p. 2308–2318 (cf. p. 218).
- CAO, Yingchun, Wei JIN et Hoi Lut HO. « Optimization of spectrophone performance for quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy ». In : *Sensors and Actuators B* 174 (nov. 2012), p. 24–30 (cf. p. 19, 73, 76).
- CASEDY, Edward S. et Manoj JAIN. « A theoretical study of injection tuning of optical parametric oscillators ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 15.11 (nov. 1979), p. 1290–1301 (cf. p. 231, 236).
- CHAUMET, B., B. LEVERRIER, C. ROUGEOT et S. BOUYAT. « A New Silicon Tuning Fork Gyroscope for Aerospace Applications ». In : *Proceedings of the Gyro Technology Symposium*. Karlsruhe, 2009 (cf. p. 80).
- CHIU, Hsin-Ying, Peter HUNG, Henk W C POSTMA et Marc BOCKRATH. « Atomic-scale mass sensing using carbon nanotube resonators. » In : *Nano letters* 8.12 (déc. 2008), p. 4342–6 (cf. p. 81).
- CHRISTEN, Michel. « Air and gas damping of quartz tuning forks ». In : *Sensors and Actuators* 4 (1983), p. 555–564 (cf. p. 81).
- CLUBB, D. O., O. V L BUU, R. M. BOWLEY, R. NYMAN et J. R. OWERS-BRADLEY. « Quartz tuning fork viscometers for helium liquids ». In : *Journal of Low Temperature Physics* 136.1-2 (2004), p. 1–13 (cf. p. 97).
- COX, Russell, Fabien JOSSE, Stephen M HEINRICH, Oliver BRAND et Isabelle DUFOUR. « Characteristics of laterally vibrating resonant microcantilevers in viscous liquid media ». In : *Journal of Applied Physics* 111.014907 (2012) (cf. p. 84, 88, 107).
- COX, Russell, Fabien JOSSE, Stephen HEINRICH, Isabelle DUFOUR et Oliver BRAND. « Resonant Microcantilevers Vibrating Laterally in Viscous Liquid Media ». In : *IEEE*. 2010, p. 85–90 (cf. p. 83).
- DESORMAUX, Aude. « Développement d'un oscillateur paramétrique optique monofréquence et réalisation d'un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire ». Thèse de doct. Université de Paris-Sud, 2005 (cf. p. 255).

- DONG, Lei, Anatoliy A KOSTEREV, David M. THOMAZY et Frank K. TITTEL. « QEPAS spectrophones : design, optimization, and performance ». In : *Applied Physics B* 100.3 (mai 2010), p. 627–635 (cf. p. [7](#), [19](#), [20](#), [72](#), [152](#), [154](#), [161](#), [166](#), [268](#), [272](#), [274](#)).
- DONG, Lei, Vincenzo SPAGNOLO, Rafał LEWICKI et Frank K TITTEL. « Ppb-level detection of nitric oxide using an external cavity quantum cascade laser based QEPAS sensor. » In : *Optics Express* 19.24 (nov. 2011), p. 24037–45 (cf. p. [154](#)).
- DONG, Lei, Hongpeng WU, Huadan ZHENG, Yanyan LIU, Xiaoli LIU, Wenzhe JIANG et Lei ZHANG. « Double acoustic microresonator quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy ». In : *Optics Letters* 39.8 (2014), p. 2479–2482 (cf. p. [20](#)).
- DRAG, Cyril, Isabelle RIBET, Mathieu JEANDRON, Michel LEFEBVRE et Emmanuel ROSENCHER. « Temporal behavior of a high repetition rate infrared optical parametric oscillator ». In : *Applied Physics B* 73 (2001), p. 195–200 (cf. p. [235](#), [236](#)).
- ECKARDT, Robert C, C D NABORS, William J KOZLOVSKY et Robert L BYER. « Optical parametric oscillator frequency tuning and control ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 8.3 (1991), p. 646–667 (cf. p. [197](#), [262](#)).
- FAIST, Jérôme, Federico CAPASSO, Deborah L SIVCO, Carlo SIRTORI, Albert L HUTCHINSON et Alfred Y CHO. « Quantum Cascade Laser ». In : *Science* 264.5158 (1994), p. 553–556 (cf. p. [4](#), [171](#), [196](#)).
- FIDDLER, Marc N., Israel BEGASHAW, Matthew a. MICKENS, Michael S. COLLINGWOOD, Zerihun ASSEFA et Solomon BILILIGN. « Laser spectroscopy for atmospheric and environmental sensing ». In : *Sensors* 9.12 (2009), p. 10447–10512 (cf. p. [2](#)).
- FIREBAUGH, Samara L, Francois ROIGNANT et Eugene A TERRAY. « Modeling the Response of Photoacoustic Gas Sensors ». In : *COMSOL*. 1. 2009 (cf. p. [19](#)).
- FIX, a. et R. WALLENSTEIN. « Spectral properties of pulsed nanosecond optical parametric oscillators : experimental investigation and numerical analysis ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 13.11 (1996), p. 2484 (cf. p. [236](#)).
- FRANKEN, P. A., A. E. HILL, C. W. PETERS et G. WEINREICH. « Generation of optical harmonics ». In : *Physical Review Letters* 7.4 (1961), p. 118–119 (cf. p. [193](#)).
- FRANTZ, Lee M et John S NODVIK. « Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier ». In : *Journal of Applied Physics* 34.8 (1963), p. 2346–2349 (cf. p. [218](#)).
- FUJITA, Kazuue, Shinich FURUTA, Atsushi SUGIYAMA, Takahide OCHIAI, Tadataka EDAMURA, Naota AKIKUSA, Masamichi YAMANISHI et Hirofumi KAN. « High-Performance 8.6  $\mu\text{m}$  Quantum Cascade Lasers With Single Phonon-Continuum Depopulation Structures ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 46.5 (2010), p. 683–688 (cf. p. [173](#)).
- GAVAN, Khashayar Babaei, Joost VAN DER HEIJDEN, Emile W J M VAN DER DRIFT et Herre S J VAN DER ZANT. « Effect of Pressure on the Q factor and the Resonance Frequency of SiN Microcantilevers ». In : *4th IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems*. 2009, p. 380–384 (cf. p. [32](#)).

- GAYER, O., Z. SACKS, E. GALUN et A. ARIE. « Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> ». In : *Applied Physics B : Lasers and Optics* 91.2 (2008), p. 343–348 (cf. p. 251).
- GIORDMAINE, J. A. et Robert C. MILLER. « Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO<sub>3</sub> at Optical Frequencies ». In : *Physical Review Letters* 14.24 (1965), p. 973–976 (cf. p. 4, 194).
- GODARD, Antoine et Emmanuel ROSENCHER. « Energy Yield of Pulsed Optical Parametric Oscillators : A Rate-Equation Analysis ». In : *Journal of Quantum Electronics* 40.6 (2004), p. 784–790 (cf. p. 200, 203, 207).
- GORDON, Ariel, Christine Y WANG, L DIEHL, F X KÄRTNER, A BELYANIN, D BOUR, S CORZINE, G HÖFLER, H C LIU, H SCHNEIDER, T MAIER, M TROCCHI, Jérôme FAIST et Federico CAPASSO. « Multimode regimes in quantum cascade lasers : From coherent instabilities to spatial hole burning ». In : *Physical Review A* 77 (2008), p. 1–18 (cf. p. 173, 187).
- GREEN, Christopher P et John E SADER. « Small amplitude oscillations of a thin beam immersed in a viscous fluid near a solid surface ». In : *Physics of Fluids* 073102.17 (2005) (cf. p. 89, 105).
- HARDY, Bertrand, Antoine BERROU, S GUILBAUD, Myriam RAYBAUT, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Compact, single-frequency, doubly resonant optical parametric oscillator pumped in an achromatic phase-adapted double-pass geometry. » In : *Optics Letters* 36.5 (mar. 2011), p. 678–680 (cf. p. 197, 225, 227).
- HARDY-BARANSKI, Bertrand. « Façonnage du contenu spectral d ’ un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative , applications pour la spectroscopie ». Thèse de doct. ONERA, 2011 (cf. p. 197, 249, 253).
- HARRIS, S.E. « Tunable optical parametric oscillators ». In : *Proceedings of the IEEE* 57.12 (1969), p. 2096–2113 (cf. p. 198).
- HAUB, J G, M J JOHNSON, J B ORR et R WALLENSTEIN. « Continuously tunable, injection-seeded  $\beta$ -barium borate optical parametric oscillator : Spectroscopic applications ». In : *Appl. Phys. Lett.* 58.16 (1991), p. 1718–1720 (cf. p. 195).
- HENDERSON, Angus J, Pamela M ROPER, Lawrence A BORSCHOWA et Roy D MEAD. « Stable , continuously tunable operation of a diode-pumped doubly resonant optical parametric oscillator ». In : *Optics Letters* 25.17 (2000), p. 1264–1266 (cf. p. 197, 226).
- HENG, H Uadan Z, L E I D ONG, A Ngelo S AMPAULO, H W U ONGPENG, P Ietro P ATIMISCO, X Ukun Y IN, W M A EIGUANG, L E I Z HANG, W Angbao Y IN, V Incenzo S PAGNOLO, S Uotang J IA et F Rank K T ITTEL. « Single-tube on-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy ». In : *Optics Letters* 41.5 (2016), p. 978–981 (cf. p. 22, 151, 272, 274).
- HESS, Peter. « Resonant photoacoustic spectroscopy ». In : *Physical and Inorganic Chemistry*. Springer, 1983, p. 1–32.
- HETZEL, M. *Electric TimePiece*. 1960 (cf. p. 80).

- HONSCHOTEN, J W Van, W W KOELMANS, S M KONINGS, L ABELMANN et M ELWENS-POEK. « Nanotesla torque magnetometry using a microcantilever ». In : *Euroensors XXII*. 2008 (cf. p. 80).
- HOPCROFT, M. A., B. KIM, S. CHANDORKAR, R. MELAMUD, M. AGARWAL, C. M. JHA, G. BAHL, J. SALVIA, H. MEHTA, H. K. LEE, R. N. CANDLER et T. W. KENNY. « Using the temperature dependence of resonator quality factor as a thermometer ». In : *Applied Physics Letters* 91.1 (2007), p. 013505 (cf. p. 81).
- HOSAKA, H et K ITAO. « Theoretical and Experimental Study on Airflow Damping of Vibrating Microcantilevers ». In : *Journal of Vibration and Acoustics* 121 (1999), p. 64–69 (cf. p. 83, 107).
- IGUCHI, Toshio. « Modulation waveforms for second-harmonic detection with tunable diode lasers ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 3.3 (1986), p. 419 (cf. p. 143, 162).
- JAMES, B. J. « A new measurement of the basic elastic and dielectric constants of quartz ». In : *Frequency Control Symposium*. 1988, p. 146–154 (cf. p. 36).
- JANIAUD, Denis, Olivier LE TRAON, B. LECORRE, Raphaël LEVY, S. MULLER et Marc PERNICE. « The VIG vibrating gyrometer : a new quartz micromachined sensor ». In : *Symposium Gyro Technology*. Stuttgart, 2004 (cf. p. 80).
- JAYARAMAN, Vijayasekhar, Zuon Min CHUANG et Larry a. COLDREN. « Theory, design and performance of extended tuning range semiconductor lasers with sampled gratings ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 29.6 (1993), p. 1824–1834 (cf. p. 176).
- JEYAPALAN, R K et E J RICHARDS. « Radiation efficiencies of beams in flexural vibration ». In : *Journal of Sound and Vibration* 67.1 (1979), p. 55–67 (cf. p. 92).
- JOHNSTON, R A et A D S BARR. « Acoustic and internal damping in uniform beams ». In : *Journal of Mechanical Engineering Science* 11.2 (1969) (cf. p. 92, 97).
- JUNGER, M. C. « Sound Radiation by Resonances of Free-Free Beams ». In : *The Journal of the Acoustical Society of America* 52.1 (1972), p. 332–334 (cf. p. 93).
- KAUPPINEN, Jyrki, Klaus WILCKEN, Ismo KAUPPINEN et Vesa KOSKINEN. « High sensitivity in gas analysis with photoacoustic detection ». In : *Microchemical Journal* 76.1-2 (fév. 2003), p. 151–159 (cf. p. 7, 271).
- KAZARINOV, R F et R A SURIS. « Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice ». In : *Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov* 5.4 (1971), p. 797–800 (cf. p. 171).
- KERR, Edwin L et John G ATWOOD. « The Laser Illuminated Absorptivity Spectrophone : A Method for Measurement of Weak Absorptivity in Gases at Laser Wavelengths ». In : *Applied Optics* 7.5 (1968), p. 915–921 (cf. p. 6).
- KHANIN, Y.I. *Principles of Laser Dynamics*. Elsevier Science, 1995 (cf. p. 188).

- KLEIN, M.E., P. GROSS, K.J. BOLLER, M. AUERBACH, P. WESSELS et C. FALLNICH. « Rapidly tunable continuous-wave optical parametric oscillator pumped by a fiber laser ». In : *Optics Letters* 28.11 (2003), p. 920–922 (cf. p. 197).
- KOGELNIK, H. « Coupled-Wave Theory of Distributed Feedback Lasers ». In : *Journal of Applied Physics* 43.5 (1972), p. 2327 (cf. p. 174, 185).
- KOGELNIK, Herwig. « On the Propagation of Gaussian Beams of Light Through Lenslike Media Including those with a Loss or Gain Variation ». In : *Applied Optics* 4.12 (déc. 1965), p. 1562 (cf. p. 301).
- KOGELNIK, Herwig et T. LI. « Laser beams and resonators ». In : *Applied Optics* 54.10 (1966), p. 1312–1329 (cf. p. 236).
- KÖHRING, M., S. BÖTTGER, U. WILLER et W. SCHADE. « Temperature effects in tuning fork enhanced interferometric photoacoustic spectroscopy ». In : *Optics Express* 21.18 (août 2013), p. 20911 (cf. p. 19).
- KÖHRING, M., A. POHLKÖTTER, Ulrike WILLER, M. ANGELMAHR et Wolfgang SCHADE. « Tuning fork enhanced interferometric photoacoustic spectroscopy : a new method for trace gas analysis ». In : *Applied Physics B* 102.1 (sept. 2010), p. 133–139 (cf. p. 20).
- KOSKINEN, V., J. FONSEN, K. ROTH et J. KAUPPINEN. « Cantilever enhanced photoacoustic detection of carbon dioxide using a tunable diode laser source ». In : *Applied Physics B* 86.3 (jan. 2007), p. 451–454 (cf. p. 7, 271).
- KOSTEREV, a.a., Y.a. BAKHIRKIN et F.K. TITTEL. « Ultrasensitive gas detection by quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy in the fundamental molecular absorption bands region ». In : *Applied Physics B* 80.1 (sept. 2004), p. 133–138 (cf. p. 18).
- KOSTEREV, a.a., Y.a. BAKHIRKIN, F.K. TITTEL, S. BLASER, Y. BONETTI et L. HVOZDARA. « Photoacoustic phase shift as a chemically selective spectroscopic parameter ». In : *Applied Physics B : Lasers and Optics* 78.6 (avr. 2004), p. 673–676 (cf. p. 18, 31).
- KOSTEREV, Anatoliy A., Yu A BAKHIRKIN, Robert F. CURL et Frank K. TITTEL. « Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy. » In : *Optics Letters* 27.21 (nov. 2002), p. 1902–4 (cf. p. 7, 17).
- KOSTEREV, Anatoliy A. et James H DOTY. « Resonant optoacoustic detection : technique for measuring weak optical absorption by gases and micro-objects. » In : *Optics Letters* 35.21 (nov. 2010), p. 3571–3 (cf. p. 81).
- KOSTEREV, Anatoliy a., Frank K. TITTEL, Dmitry V. SEREBRYAKOV, Alexander L. MALINOVSKY et Igor V. MOROZOV. « Applications of quartz tuning forks in spectroscopic gas sensing ». In : *Review of Scientific Instruments* 76.4 (2005), p. 043105 (cf. p. 18).
- KREUZER, L B. « Ultralow Gas Concentration Infrared Absorption Spectroscopy ». In : *Journal of Applied Physics* 42.7 (1971), p. 2934–2943 (cf. p. 6).
- KREUZER, L B et C K N PATEL. « Nitric Oxide Air Pollution : Detection by Optoacoustic Spectroscopy ». In : *Science* 173.3991 (juil. 1971), p. 45–47 (cf. p. 6).
- KULCSAR, Gabor, Yves JAOUËN, Guillaume CANAT, Elena OLMEDO et Guy DEBARGE. « Multiple-Stokes Stimulated Brillouin Scattering Generation in Pulsed High-Power



- Double-Cladding Er(3+) – Yb(3+) Codoped Fiber Amplifier ». In : *IEEE Photonics Technology Letters* 15.6 (2003), p. 801–803 (cf. p. 199).
- LANDAU, L.D. et E.M. LIFSHITZ. *Fluid Mechanics*. Sous la dir. d'USSR Academy of SCIENCES. Pergamon Press, 1959 (cf. p. 68, 74, 83).
- LANGLOIS, W.E. *Isothermal Squeeze Films*. Rapp. tech. 1961 (cf. p. 90).
- LASTZKA, Nico et Roman SCHNABEL. « The Gouy phase shift in nonlinear interactions of waves ». In : 4 (2008), p. 1–5 (cf. p. 253).
- LE TRAON, O., S. MASSON, C. CHARTIER et D. JANIAUD. « LGS and GaPO<sub>4</sub> piezoelectric crystals : New results ». In : *Solid State Sciences* 12.3 (2010), p. 318–324 (cf. p. 147).
- LE TRAON, Olivier, Denis JANIAUD, Stève MASSON, S MULLER et Marc PERNICE. « The DIVA Accelerometer and VIG Gyro : Two Quartz Inertial MEMS for Guidance and Navigation Applications ». In : *IEEE NTM Institute Of Navigation (ION)*. 2007 (cf. p. 80).
- LE TRAON, Olivier, Denis JANIAUD, S. MULLER et P. BOURNIOL. « The VIA Beam Accelerometer : Concept and Performances ». In : *Position, Location and Navigation Symposium*. Palm Springs, 1998 (cf. p. 80).
- LEE, Benjamin G., Haifei A. ZHANG, Christian PFLÜGL, Laurent DIEHL, Mikhail A. BELKIN, Milan FISCHER, Andreas WITTMANN, Jérôme FAIST et Federico CAPASSO. « Broadband Distributed-Feedback Quantum Cascade Laser Array Operating From 8 . 0 to 9 . 8 m ». In : *IEEE Photonics Technology Letters* 21.13 (2009), p. 914–916 (cf. p. 176).
- LEE, Jiunn-Horng, Sheng-Ta LEE, Chih-Min YAO et Weileun FANG. « Comments on the size effect on the microcantilever quality factor in free air space ». In : *Journal of Micromechanics and Microengineering* 17 (2007), p. 139–146 (cf. p. 84, 103).
- LI, Gary et Henry HUGHES. « Review of Viscous Damping in Micro-Machined Structures ». In : *Micromachined Devices and Components VI*. 2000, p. 30–46 (cf. p. 32).
- LI, Mo, E B MYERS, H X TANG, S J ALDRIDGE, H C McCAIG, J J WHITING, R J SIMONSON, N S LEWIS et M L ROUKES. « Nanoelectromechanical resonator arrays for ultrafast, gas-phase chromatographic chemical analysis. » In : *Nano letters* 10.10 (oct. 2010), p. 3899–903 (cf. p. 81).
- LINDSAY, I. D., G. a. TURNBULL, M. H. DUNN et M. EBRAHIMZADEH. « Doubly resonant continuous-wave optical parametric oscillator pumped by a single-mode diode laser ». In : *Optics Letters* 23.24 (déc. 1998), p. 1889 (cf. p. 197, 253).
- LIU, Kun, Xiaoyong GUO, Hongming YI, Weidong CHEN, Weijun ZHANG et Xiaoming GAO. « Off-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy ». In : *Optics Letters* 34.10 (2009), p. 1594–1596 (cf. p. 19).
- LOCHON, Frédéric, Isabelle DUFOUR et Dominique REBIÈRE. « A microcantilever chemical sensors optimization by taking into account losses ». In : *Sensors and Actuators, B : Chemical* 118.1-2 (2006), p. 292–296 (cf. p. 97).

- LONG, D. A., A. J. FLEISHER, S. WOJTEWICZ et J. T. HODGES. « Quantum-noise-limited cavity ring-down spectroscopy ». In : *Applied Physics B* (2014), p. 149–153 (cf. p. 271).
- LUFT, K F. « Über eine neue Methode der registrierenden Gasanalyse mit Hilfe der Absorption ultraroter Strahlen ohne spektrale Zerlegung ». In : *Z. tech. Phys* 5 (1943), p. 97–104 (cf. p. 6).
- MA, Yufei, Xin YU, Guang YU, Xudong LI, Jingbo ZHANG, Deying CHEN, Rui SUN et Frank K. TITTEL. « Multi-quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy ». In : *Applied Physics Letters* 107.2 (2015), p. 021106 (cf. p. 20, 53).
- MAHLER, Lukas, Alessandro TREDICUCCI, Fabio BELTRAM, Christoph WALTHER, Jérôme FAIST, Harvey E. BEERE, David a. RITCHIE et Diederik S. WIERSMA. « Quasi-periodic distributed feedback laser ». In : *Nature Photonics* 4.3 (2010), p. 165–169 (cf. p. 176).
- MAIMAN, Theodore H. « Stimulated optical radiation in ruby ». In : (1960) (cf. p. 3, 193).
- MANSURIPUR, Tobias S, Stefan MENZEL, Romain BLANCHARD, Laurent DIEHL, Yong HUANG, Jae-hyun RYOU, Russell D DUPUIS, Marko LONCAR et Federico CAPASSO. « Widely tunable mid-infrared quantum cascade lasers using sampled grating reflectors ». In : *Optics Express* 20.21 (2012), p. 23339–23348 (cf. p. 176).
- MC CAULLEY, J A, V M DONNELLY, M VERNON, I TAHA, T Bell LABORATORIES, Mountain AVENUE et Murray HILL. « Temperature dependence of the near-infrared refractive index of Silicon, gallium arsenide, and indium phosphide. » In : *Physical Review B* 49.11 (1994), p. 7408–7417 (cf. p. 186).
- MIKLÓS, András, Peter HESS et Zoltán BOZÓKI. « Application of acoustic resonators in photoacoustic trace gas analysis and metrology ». In : *Review of Scientific Instruments* 72.4 (2001), p. 1937 (cf. p. 6, 43, 44, 67, 271).
- MOLONEY, Michael J. et Daniel L. HATTEN. « Acoustic quality factor and energy losses in cylindrical pipes ». In : *American Journal of Physics* 69.3 (2001), p. 311–314 (cf. p. 74).
- MORSE, Philip M. et Herman FESHBACH. *Methods of theoretical physics*. New York : Mc Graw-Hill Book Compagny, Inc, 1953 (cf. p. 32).
- MORSE, Philip M. et Herman FESHBACH. *Methods of theoretical physics*. New York : Mc Graw-Hill Book Compagny, Inc, 1953 (cf. p. 44, 94, 96, 97).
- NAIK, Tikeswar, Ellen K LONGMIRE et Susan C MANTELL. « Dynamic response of a cantilever in liquid near a solid wall ». In : *Sensors and Actuators : A* 102 (2003), p. 240–254 (cf. p. 89).
- NAMJOU, K, S CAI, E A WHITTAKER, J FAIST, C GMACHL, F CAPASSO, D L SIVCO et A Y CHO. « Sensitive absorption spectroscopy with a room-temperature distributed-feedback quantum-cascade laser. » In : *Optics letters* 23.3 (1998), p. 219–221 (cf. p. 196).
- NEWELL, William E. « Miniaturization of Tuning Forks ». In : *Science* 161 (1968) (cf. p. 103, 107).

- OPEN ENGINEERING, s. a. *OOFELIE* : :*Multiphysics*©. 2013 (cf. p. 309).
- PAQUAY, Stéphane. « Développement d ' une méthodologie de simulation numérique pour les problèmes vibro-acoustiques couplés intérieurs / extérieurs de grande taille ». Thèse de doct. Liège University (Belgium), 2001 (cf. p. 309).
- PATEL, C. K.N. « Laser photoacoustic spectroscopy helps fight terrorism : High sensitivity detection of chemical Warfare Agent and explosives ». In : *The European Physical Journal Special Topics* 153.1 (jan. 2008), p. 1–18 (cf. p. 2).
- PATIMISCO, Pietro, Simone BORRI, Iacopo GALLI, Davide MAZZOTTI, Giovanni GIUSFREDI, Naota AKIKUSA, Masamichi YAMANISHI, Gaetano SCAMARCIO, Paolo De NATALE et Vincenzo SPAGNOLO. « High fi nesse optical cavity coupled with a quartz-enhanced photoacoustic spectroscopic sensor ». In : *The Royal Society of chemistry* 00 (2014), p. 1–8 (cf. p. 20).
- PATIMISCO, Pietro, Simone BORRI, Angelo SAMPAOLO, Harvey E BEERE, David A RITCHIE, Miriam S VITIELLO, Gaetano SCAMARCIO et Vincenzo SPAGNOLO. « A quartz enhanced photo-acoustic gas sensor based on a custom tuning fork and a terahertz quantum cascade laser ». In : *Analyst* 139.9 (2014), p. 2079–2087 (cf. p. 21).
- PEARSON, J., U. GANIEL et A. YARIV. « Rise time of pulsed parametric oscillators ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 8.5 (1972), p. 433–440 (cf. p. 200).
- PETRA, N., J. ZWECK, Anatoliy A KOSTEREV, S. E. MINKOFF et D. THOMAZY. « Theoretical analysis of a quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor ». In : *Applied Physics B* 94.4 (fév. 2009), p. 673–680 (cf. p. 19, 31, 34, 57, 64).
- PLAESSMANN, Henry, Alex DROBSHOFF et Walter R BOSENBERG. « Long-pulse, amplitude-modulated optical parametric oscillator ». In : *Applied Optics* 35.30 (1996), p. 5964–5966 (cf. p. 200).
- RAYBAUT, Myriam, Bertrand HARDY, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. *Nested-cavity optical parametric oscillator for fast frequency tuning*. 2011 (cf. p. 197).
- RENAUD, Cyril C, H L OFFERHAUS, J NILSSON, W A CLARKSON, P W TURNER, D J RICHARDSON et A B GRUDININ. « Characteristics of Q-Switched Cladding-Pumped Ytterbium-Doped Fiber Lasers with Different High-Energy Fiber Designs ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 37.2 (2001), p. 199–206 (cf. p. 199).
- RICHARDSON, D J, J NILSSON et W A CLARKSON. « High power fiber lasers : current status and future perspectives ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 27.11 (2010), B63–92 (cf. p. 197).
- RÖNTGEN, W C. « On tones produced by the intermittent irradiation of a gas ». In : *Philosophical Magazine Series 5* 11.68 (avr. 1881), p. 308–311 (cf. p. 6).
- ROSENCHER, Emmanuel et Claude FABRE. « Oscillation characteristics of continuous-wave optical parametric oscillators : beyond the mean-field approximation ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 19.5 (2002), p. 1107–1116 (cf. p. 198, 199, 203, 204, 210, 212, 216, 225, 258).



- ROTHMAN, L S et al. « The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database ». In : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 110 (2009), p. 533–572 (cf. p. 28).
- SAARELA, Jaakko, Juha TOIVONEN, Albert MANNINEN, Tapio SORVAJÄRVI et Rolf HERNBERG. « Wavelength modulation waveforms in laser photoacoustic spectroscopy. » In : *Applied Optics* 48.4 (fév. 2009), p. 743–7 (cf. p. 143, 162).
- SACKS, Zachary, Ofer GAYER, Eran TAL et Ady ARIE. « Improving the efficiency of an optical parametric oscillator by tailoring the pump pulse shape ». In : *Optics Express* 18.12 (2010), p. 12669–12674 (cf. p. 200, 221).
- SADER, John Elie. « Frequency response of cantilever beams immersed in viscous fluids with applications to the atomic force microscope ». In : *Journal of Applied Physics* 84.64 (1998) (cf. p. 83, 87).
- SAMPAOLO, A., P. PATIMISCO, L. DONG, A. GERAS, G. SCAMARCIO, T. STARECKI, F. K. TITTEL et V. SPAGNOLO. « Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy exploiting tuning fork overtone modes ». In : *Applied Physics Letters* 107.23 (2015), p. 231102 (cf. p. 135).
- SAMPAOLO, Angelo, Pietro PATIMISCO, Marilena GIGLIO, Miriam S VITIELLO, Harvey E BEERE, David A RITCHIE, Gaetano SCAMARCIO, Frank K TITTEL et Vincenzo SPAGNOLO. « Improved Tuning Fork for Terahertz ». In : *Sensors* 16.439 (2016), p. 1–8 (cf. p. 21, 273).
- SAMPAOLO, Angelo, Pietro PATIMISCO, Riccardo PENNETTA, Gaetano SCAMARCIO, Frank K. TITTEL et Vincenzo SPAGNOLO. « New approaches in quartz-enhanced photoacoustic sensing ». In : *SPIE Photonics West*. T. 9370. 2015 (cf. p. 21).
- SAVANIER, M., C. OZANAM, L. LANCO, X. LAFOSSE, A. ANDRONICO, I. FAVERO, S. DUCCI et G. LEO. « Near-infrared optical parametric oscillator in a III-V semiconductor waveguide ». In : *Applied Physics Letters* 103.26 (2013) (cf. p. 197).
- SCHEIDT, M, B BEIER, R KNAPPE, K BOLLER et R WALLENSTEIN. « Diode-laser-pumpe continuous-wave KTP optical parametric oscillator ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 12.11 (1995), p. 2087–2094 (cf. p. 197).
- SCHILT, Stéphane et Luc THÉVENAZ. « Wavelength modulation photoacoustic spectroscopy : Theoretical description and experimental results ». In : *Infrared Physics and Technology* 48.2 (2006), p. 154–162 (cf. p. 143).
- SCHMORANZER, D., M. LA MANTIA, G. SHESHIN, I. GRITSENKO, A. ZADOROZHKO, M. ROTTER et L. SKRBEK. « Acoustic Emission by Quartz Tuning Forks and Other Oscillating Structures in Cryogenic He Fluids ». In : *Journal of Low Temperature Physics* 163.5-6 (mar. 2011), p. 317–344 (cf. p. 95, 97).
- SCHWOB, Catherine, Pierre-François COHADON, Claude FABRE, M.A.M. MARTE, H. RITSCH, A. GATTI et L. LUGIATO. « Transverse effects and mode couplings in OPOS ». In : *Applied Physics B : Lasers and Optics* 66.6 (juin 1998), p. 685–699 (cf. p. 202, 223, 234–236).

- SEREBRYAKOV, D V, I V MOROZOV, A A KOSTEREV et V S LETOKHOV. « Laser micro-photoacoustic sensor of ammonia traces in the atmosphere ». In : *Quantum Electronics* 40.2 (2010), p. 167–172 (cf. p. [20](#), [41](#), [72](#), [76](#), [152](#)).
- SHAW, Kenneth D. « Spatio-temporal evolution of the intra-cavity fields in a pulsed doubly resonant optical parametric oscillator ». In : *Optics communications* 144.1 (1997), p. 134–160 (cf. p. [199](#)).
- SHEN, Yonghang, Shaif-ul ALAM, Kang Kang CHEN, Dejiao LIN, Shuangshuang CAI, Bo WU, Peipei JIANG, Andrew MALINOWSKI et David J RICHARDSON. « PPMgLN-based high-power optical parametric oscillator pumped by Yb-doped fiber amplifier incorporates active pulse shaping ». In : *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* 15.2 (2009), p. 385–392 (cf. p. [197](#)).
- SIDLER, Meinrad, Patrick RAUTER, Romain BLANCHARD, Pauline MÉTIVIER, Tobias S. MANSURIPUR, Christine WANG, Yong HUANG, Jae-Hyun RYOU, Russell D. DUPUIS, Jérôme FAIST et Federico CAPASSO. « Mode switching in a multi-wavelength distributed feedback quantum cascade laser using an external micro-cavity ». In : *Applied Physics Letters* 104.5 (fév. 2014), p. 051102 (cf. p. [177](#), [181](#)).
- SIEGMAN, Anthony E. *Lasers*. Sous la dir. d'Aidan KELLY. California, 1986 (cf. p. [188](#), [230](#), [232](#), [234](#), [301](#)).
- SILLITTO, R. M. « Angular Distribution of the Acoustic Radiation from a Tuning Fork ». In : *American Journal of Physics* 34.8 (1966), p. 639–644 (cf. p. [97](#)).
- SKAAR, Johannes et Knut Magne RISVIK. « A Genetic Algorithm for the Inverse Problem in Synthesis of Fiber Gratings. » In : *Journal of Lightwave Technology* 16.10 (1998), p. 1928–1932 (cf. p. [176](#)).
- SLATER, J C et N H FRANK. *Electromagnetism. International series in pure and applied physics*. New York : McGraw-Hill Book Company, Inc, 1947 (cf. p. [230](#)).
- SMITH, A V, W J ALFORD, T D RAYMOND et Mark S BOWERS. « Comparison of a numerical model with measured performance of a seeded , nanosecond KTP optical parametric oscillator ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 12.11 (1995), p. 2253–2267 (cf. p. [233](#), [236](#)).
- SMITH, Arlee V. *How to use SNLO nonlinear optics software to select nonlinear crystals and model their performance*. Rapp. tech. 2003, p. 50–57 (cf. p. [233](#)).
- SMITH, A.V., Russell J GEHR et Mark S BOWERS. « Numerical models of broadband nanosecond optical parametric oscillators ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 16.4 (1999), p. 609–619 (cf. p. [233](#), [235](#), [236](#), [240](#), [242](#), [261](#)).
- SPAGNOLO, Vincenzo, Pietro PATIMISCO, Simone BORRI, Gaetano SCAMARCIO, Bruce E. BERNACKI et Jason KRIESEL. « Mid-infrared fiber-coupled QCL-QEPAS sensor ». In : *Applied Physics B* 112.1 (mar. 2013), p. 25–33 (cf. p. [21](#)).
- SPAGNOLO, Vincenzo, Pietro PATIMISCO, Riccardo PENNETTA, Angelo SAMPAOLO, Gaetano SCAMARCIO, Miriam S. VITIELLO et Frank K. TITTEL. « THz Quartz-enhanced

- photoacoustic sensor for H<sub>2</sub>S trace gas detection ». In : *Optics Express* 23.6 (2015), p. 7574 (cf. p. [21](#), [50](#), [273](#)).
- SPAJER, Michel, Bruno CAVALLIER, Sébastien EUPHRASIE, Gaël MATTEN, Xavier VACHERET, Pascal VAIRAC, David VERNIER et Alain JALOCHA. « Thermoelastic investigation of a quartz tuning fork used in infrared spectroscopy ». In : *Applied Physics Letters* 103.20 (2013), p. 2–5 (cf. p. [59](#)).
- SPENCE, T G, C C HARB, B a PALDUS, Richard N ZARE, B WILLKE et R L BYER. « A laser-locked cavity ring-down spectrometer employing an analog detection scheme ». In : *Review of Scientific Instruments* 71.2 (2000), p. 347–353 (cf. p. [271](#)).
- STAUDTE, Juergen S. *Microresonator of Tuning Fork Configuration*. 1971 (cf. p. [80](#)).
- STIPE, B., H. MAMIN, T. STOWE, T. KENNY et D. RUGAR. « Magnetic Dissipation and Fluctuations in Individual Nanomagnets Measured by Ultrasensitive Cantilever Magnetometry ». In : *Physical Review Letters* 86.13 (mar. 2001), p. 2874–2877 (cf. p. [80](#)).
- SUTHERLAND, R. L. *Handbook of Nonlinear Optics*. Marcel Dek. 1996 (cf. p. [199](#)).
- TACHÉ, J.-P. « Derivation of ABCD law for Laguerre-Gaussian beams ». In : *Applied Optics* (1987), p. 1–3 (cf. p. [307](#)).
- TANG, C. L., H. STATZ et G. DEMARS. « Spectral output and spiking behavior of solid-state lasers ». In : *Journal of Applied Physics* 34.8 (1963), p. 2289–2295 (cf. p. [187](#)).
- TUORINIEMI, J, J RYSTI, A SALMELA et M MANNINEN. « Mode analysis for a quartz tuning fork coupled to acoustic resonances of fluid in a cylindrical cavity ». In : *26th International Conference on Low Temperature Physics*. T. 400. 1. Déc. 2012, p. 012077 (cf. p. [81](#)).
- TYNDALL, J. « Action of an Intermittent Beam of Radiant Heat upon Gaseous Matter ». In : *Proceedings of the Royal Society of London* 31.206-211 (1881), p. 307–317 (cf. p. [6](#)).
- URSCHEL, R, A BORSUTZKY et R WALLENSTEIN. « Numerical analysis of the spatial behaviour of nanosecond optical parametric oscillators of beta-barium borate ». In : *Applied Physics B* 70 (2000), p. 203–210 (cf. p. [235](#), [236](#)).
- VAN EYSDEN, Cornelis A. et John E SADER. « Frequency response of cantilever beams immersed in compressible fluids with applications to the atomic force microscope ». In : *Journal of Applied Physics* 106.094904 (2009) (cf. p. [83](#)).
- VAN EYSDEN, Cornelis A. et John E SADER. « Frequency response of cantilever beams immersed in viscous fluids with applications to the atomic force microscope : Arbitrary mode order ». In : *Journal of Applied Physics* 101.044908 (2007), p. 1–11 (cf. p. [83](#)).
- VAN EYSDEN, Cornelis A. et John E SADER. « Resonant frequencies of a rectangular cantilever beam immersed in a fluid ». In : *Journal of Applied Physics* 100.114916 (2006) (cf. p. [81](#), [83](#)).
- VAN EYSDEN, Cornelis A. et John E SADER. « Small amplitude oscillations of a flexible thin blade in a viscous fluid : Exact analytical solution ». In : *Physics of Fluids* 18.123102 (2006) (cf. p. [83](#), [87](#)).

- VIENGEROV, M L. « New method of gas analysis based on tyndall-roentgen optoacoustic effect ». In : *Doklady Akademii Nauk SSSR* 19.687 (1938), p. 8 (cf. p. 6).
- VIGNOLA, Joseph F, John A JUDGE, Jacek JARZYNSKI, Maxim ZALALUTDINOV, Brian H HOUSTON, W JEFFREY et Jeffrey W BALDWIN. « Effect of viscous loss on mechanical resonators designed for mass detection ». In : *Applied Physics Letters* 88 (2006) (cf. p. 84, 103).
- WANG, Christine Y, Lyuba KUZNETSOVA, V M GKORTSAS, L DIEHL, F X KÄRTNER, M a BELKIN, a BELYANIN, X LI, D HAM, H SCHNEIDER, P GRANT, C Y SONG, S HAFFOUZ, Z R WASILEWSKI, H C LIU et Federico CAPASSO. « Mode-locked pulses from mid-infrared quantum cascade lasers. » In : *Optics express* 17.15 (2009), p. 12929–12943 (cf. p. 187).
- WANG, Yong et Hong PO. « Dynamic Characteristics of Double-Clad Fiber Amplifiers for High-Power Pulse Amplification ». In : *Journal of Lightwave Technology* 21.10 (2003), p. 2262–2270 (cf. p. 218).
- WEBBER, Michael E, Michael PUSHKARSKY et C Kumar N PATEL. « Fiber-amplifier-enhanced photoacoustic spectroscopy with near-infrared tunable diode lasers ». In : *Applied Optics* 42.12 (2003), p. 2119–2126 (cf. p. 18).
- WEBBER, Michael E, Michael PUSHKARSKY et C Kumar N PATEL. « Fiber-amplifier-enhanced photoacoustic spectroscopy with near-infrared tunable diode lasers. » In : *Applied Optics* 42.12 (avr. 2003), p. 2119–26 (cf. p. 270).
- WILLER, U., M. KÖHRING, M. MORDMÜLLER et W. SCHADE. « Photoacoustic sensing with micro-tuning forks ». In : 9482 (2015), 94820B (cf. p. 20).
- WU, Hongpeng, Angelo SAMPAOLO, Lei DONG, Pietro PATIMISCO, Xiaoli LIU, Huadan ZHENG, Xukun YIN, Weiguang MA, Lei ZHANG, Wangbao YIN, Vincenzo SPAGNOLO, Suotang JIA et Frank K. TITTEL. « Quartz enhanced photoacoustic H<sub>2</sub>S gas sensor based on a fiber-amplifier source and a custom tuning fork with large prong spacing ». In : *Applied Physics Letters* 107.11 (2015), p. 111104 (cf. p. 167).
- WYSOCKI, Gerard, Anatoliy A KOSTEREV et Frank K. TITTEL. « Influence of molecular relaxation dynamics on quartz-enhanced photoacoustic detection of CO<sub>2</sub> at  $\lambda = 2$  microns ». In : *Applied Physics B* 85 (2006), p. 301–306 (cf. p. 18, 61, 140, 150).
- YARIV, Amnon. « Parametric Interactions of Optical Modes ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 2.2 (1966), p. 30–37 (cf. p. 194, 231, 236).
- YE, Jun, Long-Sheng MA et John L. HALL. « Ultrasensitive detections in atomic and molecular physics : demonstration in molecular overtone spectroscopy ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 15.1 (1998), p. 6 (cf. p. 28).
- YI, Hongming, Weidong CHEN, Shanwen SUN, Kun LIU et Tu TAN. « T-shape microresonator-based high sensitivity quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor ». In : *Optics Express* 20.8 (2012), p. 9187–9196 (cf. p. 19, 152, 272).
- YI, Hongming, Weidong CHEN, Aurore VICET et Zhensong CAO. « T-shape microresonator-based quartz enhanced photoacoustic spectroscopy for ambient me-

- thane monitoring using 3 . 38  $\mu\text{m}$  antimonide-distributed feedback laser diode ». In : *Applied Physics B* 116 (2014), p. 423–428 (cf. p. 19).
- ZENER, Clarence. « Internal Friction in Solids ». In : *Physical Review* 52 (1937), p. 230–235 (cf. p. 82).
- ZHANG, Weibin et Kimberly L TURNER. « Pressure-Dependent Damping Characteristics of Micro Silicon Beam Resonators for Different Resonant Modes ». In : *IEEE*. 2005, p. 357–360 (cf. p. 102).



# Annexes





# Annexe A

## Modes propres des poutres en flexion

On s'intéresse à l'équation suivante portant sur la fonction inconnue  $\phi$ , dans laquelle on introduit un coefficient réel  $B_r$  :

$$\frac{\partial^4}{\partial x^4} \phi - B_r^4 \phi = 0 \quad (\text{A.1})$$

Elle représente entre autre l'équation aux valeurs propres pour la déformée dynamique des poutres en vibration harmonique, dans le cadre de la théorie de flexion des poutres d'Euler Bernoulli.

### A.1 Méthode de résolution générale

Une solution formelle à l'équation A.1 s'écrit :

$$\phi(x) = a \sin(B_r x) + b \cos(B_r x) + c \sinh(B_r x) + d \cosh(B_r x) \quad (\text{A.2})$$

La valeur des quatre coefficients  $a, b, c$  et  $d$  introduits ci-dessus va dépendre des conditions aux limites, dont les différentes possibilités sont regroupées dans le tableau A.1.

TABLE A.1 – Conditions de fixation aux limites possibles pour une poutre.

| Conditions de fixations en $x = x_0$ | Déplacement<br>$\phi(x_0)$ | Rotation<br>$\frac{\partial}{\partial x} \phi _{x=x_0}$ | Moment<br>$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi _{x=x_0}$ | Cisaillement<br>$\frac{\partial^3}{\partial x^3} \phi _{x=x_0}$ |
|--------------------------------------|----------------------------|---|---|---|
| Libre                                |                            |   | 0   | 0   |
| Encastré                             | 0                          | 0   |   |   |
| Rotulé                               | 0                          |   | 0   |   |
| Glissant                             |                            | 0   |   | 0   |

On remarque également que la solution de l'équation A.1 est définie à une constante multiplicative près. Pour fixer une solution, on utilisera la convention de normalisation suivante :

$$\int_0^L \phi^2(x) dx = L \quad (\text{A.3})$$

Il est à noter que certains auteurs préfèrent normaliser par rapport au maximum de la déformée, c'est à dire par  $\max_x \phi(x) = 1$ .

L'écriture de l'équation A.1 en  $x = x_0$  pour chaque ordre de dérivation nous permet d'écrire le système suivant :

$$\begin{pmatrix} \sin(B_r x_0) & \cos(B_r x_0) & \sinh(B_r x_0) & \cosh(B_r x_0) \\ \cos(B_r x_0) & -\sin(B_r x_0) & \cosh(B_r x_0) & \sinh(B_r x_0) \\ -\sin(B_r x_0) & -\cos(B_r x_0) & \sinh(B_r x_0) & \cosh(B_r x_0) \\ -\cos(B_r x_0) & -\sin(B_r x_0) & \cosh(B_r x_0) & \sinh(B_r x_0) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \\ d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \phi(x = x_0) \\ \frac{1}{B_r} \frac{\partial}{\partial x} \phi|_{x=x_0} \\ \frac{1}{B_r^2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi|_{x=x_0} \\ \frac{1}{B_r^3} \frac{\partial^3}{\partial x^3} \phi|_{x=x_0} \end{pmatrix}$$

## A.2 La poutre encastree-libre

Supposons que la poutre soit encastree en  $x = 0$  et libre en  $x = L$ . Appliquée à chaque extrémité, l'utilisation conjointe du tableau A.1 avec le système précédent donne le système suivant à résoudre :

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 0 \\ -\sin(B_r L) & -\cos(B_r L) & \sinh(B_r L) & \cosh(B_r L) \\ -\cos(B_r L) & -\sin(B_r L) & \cosh(B_r L) & \sinh(B_r L) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \\ d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

Pour admettre une solution non triviale, le système précédent doit posséder un déterminant non nul. Cette condition équivaut à  $1 + \cosh(B_r L) \cos(B_r L) = 0$ . On conclut donc que seules certaines valeurs du coefficient  $\alpha_n \equiv B_r L$  permettent d'aboutir à une solution, avec  $n$  un entier naturel indexant l'ensemble des solutions possibles. Elles sont déterminées numériquement, et les premières valeurs par ordre croissant sont  $\alpha_0 = 1.875$ ,  $\alpha_1 = 4.695$ ,  $\alpha_2 = 7.855$ , puis  $\alpha_n = (2n + 1) \frac{\pi}{2}$  en remarquant que pour des valeurs de  $B_r L$  grandes, alors  $\cos(B_r L) \simeq 0$ .

La déformée associée à  $\alpha_n$  s'écrit comme suit :

$$\phi_n = \cosh\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \cos\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \frac{\sinh \alpha_n - \sin \alpha_n}{\cosh \alpha_n + \cos \alpha_n} \left[ \sinh\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \sin\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) \right] \quad (\text{A.5})$$

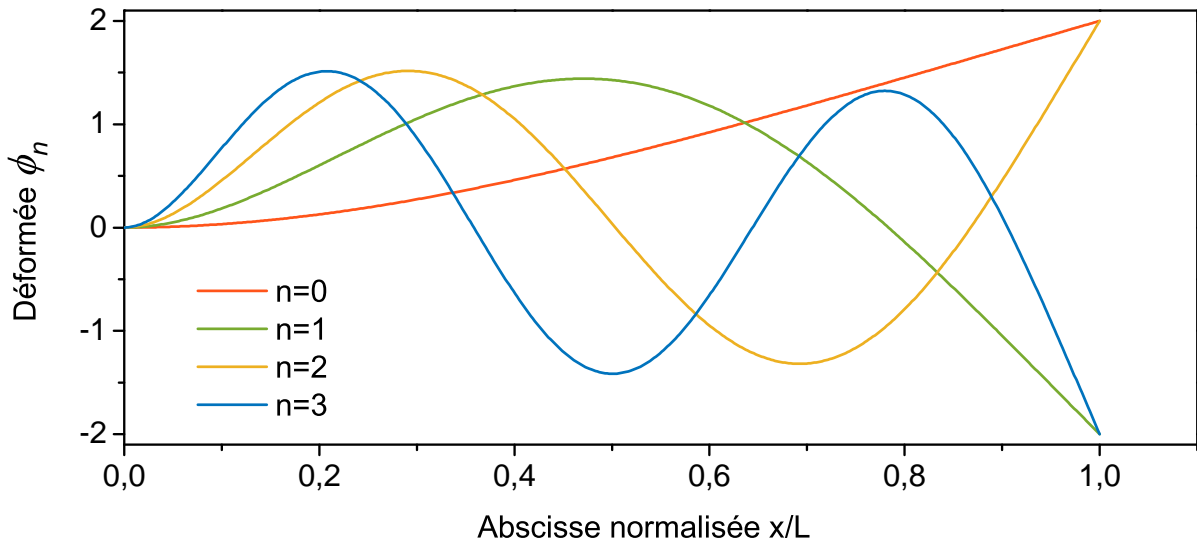


FIGURE A.1 – Les déformées des quatre premiers modes pour une poutre encastree-libre.

On donne également les intégrales suivante :

$$\int_0^L \phi_n(x) dx = \frac{2L}{\alpha_n} \left[ \frac{\sinh \alpha_n - \sin \alpha_n}{\cosh \alpha_n + \cos \alpha_n} \right] \quad (\text{A.6a})$$

$$\int_0^L \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi_n(x) dx = \frac{2\alpha_n}{L} \left[ \frac{\sinh \alpha_n \cos \alpha_n + \cosh \alpha_n \sin \alpha_n}{\cosh \alpha_n + \cos \alpha_n} \right] \quad (\text{A.6b})$$

### A.3 La poutre encastree-encastree

On applique exactement le même raisonnement que pour le cas précédent. Le système s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 1 & 0 \\ \sin(B_r L) & \cos(B_r L) & \sinh(B_r L) & \cosh(B_r L) \\ \cos(B_r L) & -\sin(B_r L) & \cosh(B_r L) & \sinh(B_r L) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \\ d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

Une solution non triviale existe à condition cette fois que  $1 - \cosh(B_r L) \cos(B_r L) = 0$ .

Les coefficients  $\alpha_n \equiv B_r L$  sont à nouveau déterminés numériquement, et les premières valeurs sont  $\alpha_0 = 4.730$ ,  $\alpha_1 = 7.853$ , puis  $\alpha_n = (2n + 1) \frac{\pi}{2}$ . La déformée s'écrit désormais :

$$\phi_n = \cosh\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \cos\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \frac{\cosh \alpha_n - \cos \alpha_n}{\sinh \alpha_n - \sin \alpha_n} \left[ \sinh\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) - \sin\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) \right] \quad (\text{A.8})$$

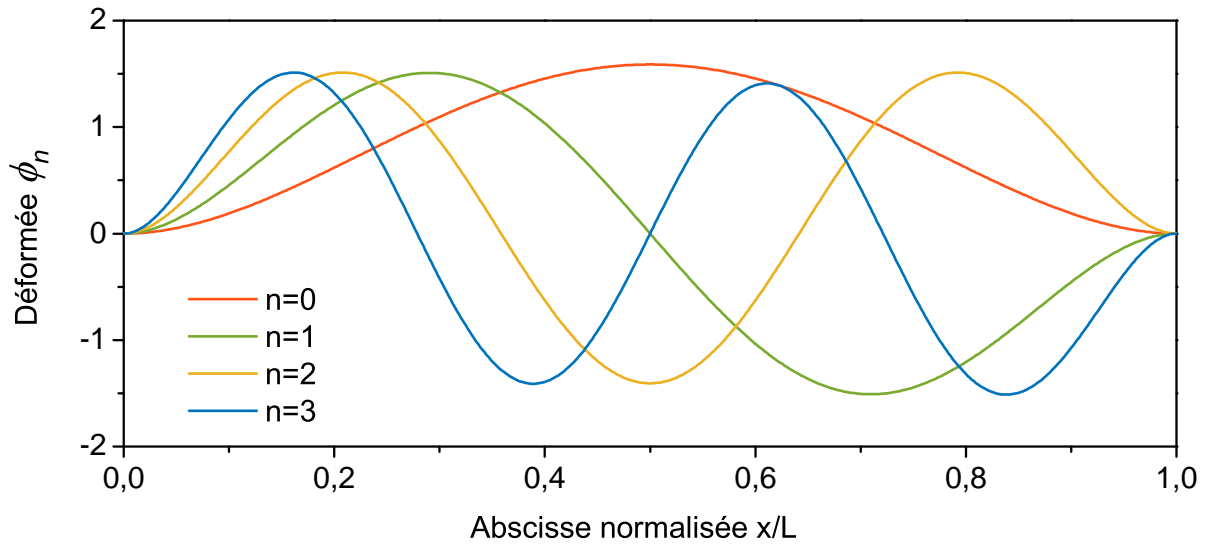


FIGURE A.2 – Les déformées des quatre premiers modes pour une poutre encastree-encastree.

On obtient enfin les intégrales suivantes :

$$\int_0^L \phi_n(x) dx = \frac{2L}{\alpha_n} \left[ \frac{\cosh \alpha_n - \cos \alpha_n - \sin \alpha_n \sinh \alpha_n}{\sinh \alpha_n - \sin \alpha_n} \right] \quad (\text{A.9a})$$

$$\int_0^L \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi_n(x) dx = 0 \quad (\text{A.9b})$$

## A.4 La poutre articulée-articulée

Le système à résoudre s'écrit dans ce cas :

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 & 1 \\ -\sin(B_r L) & \cos(B_r L) & \sinh(B_r L) & \cosh(B_r L) \\ -\sin(B_r L) & -\cos(B_r L) & \sinh(B_r L) & \cosh(B_r L) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \\ c \\ d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

Une solution non triviale existe à condition cette fois que  $\sinh(B_r L) \sin(B_r L) = 0$ . On obtient donc une expression exacte dans ce cas et  $\alpha_n \equiv B_r L = (n+1)\pi$ . La déformée s'écrit :

$$\phi_n = \sqrt{2} \sin\left(\alpha_n \frac{x}{L}\right) \quad (\text{A.11})$$

On obtient enfin les intégrales :

$$\int_0^L \phi_n(x) dx = \frac{\sqrt{2}L}{(n+1)\pi} [1 - (-1)^{n+1}] \quad (\text{A.12a})$$

$$\int_0^L \frac{\partial^2}{\partial x^2} \phi_n(x) dx = \frac{\sqrt{2}(n+1)\pi}{L} [(-1)^{n+1} - 1] \quad (\text{A.12b})$$

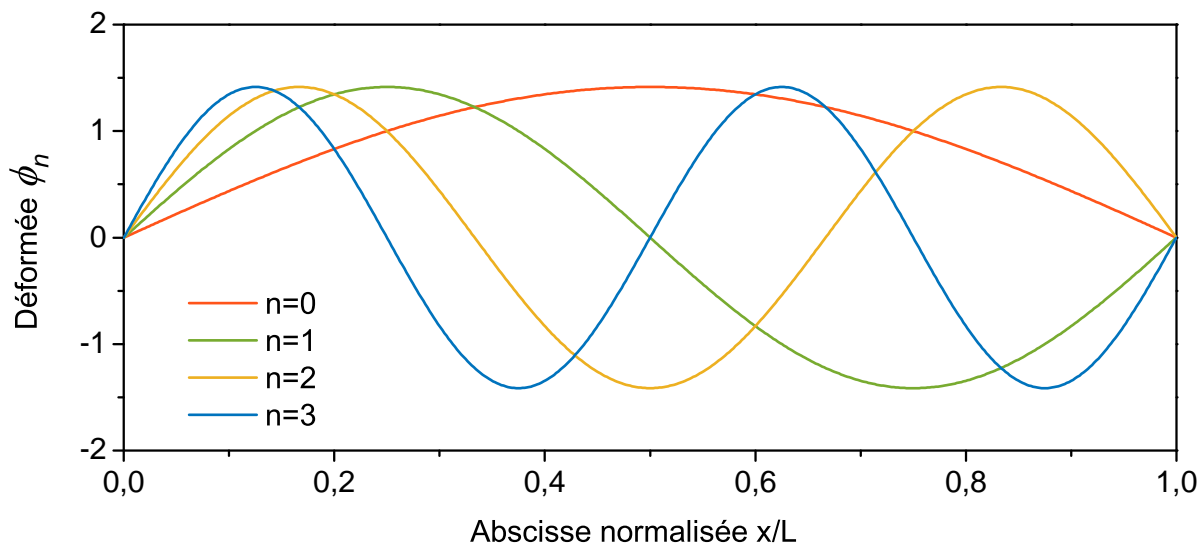


FIGURE A.3 – Les déformées des quatre premiers modes pour une poutre articulée-articulée.

## A.5 Formulaire

On donne les valeurs approchées des intégrales données précédemment pour les deux premiers mode de flexion.

TABLE A.2 – Valeurs propres  $\alpha_n$  en fonction des conditions de fixation des poutres et intégrales spécifiques associées de la déformée.

| Condition aux limites | $\alpha_0$ | $\int_0^L \phi_0(x)dx$ | $\alpha_1$ | $\int_0^L \phi_1(x)dx$ |
|-----------------------|------------|------------------------|------------|------------------------|
| Encastré-Libre        | 1.875      | $0.783L$               | 4.694      | $0.434L$               |
| Encastrée-Encastré    | 4.730      | $0.831L$               | 7.853      | 0                      |
| Articulé-Articulé     | $\pi$      | $0.9L$                 | $2\pi$     | 0                      |



# Annexe B

## Formalisme ABCD pour la propagation des faisceaux gaussiens

Cette annexe a pour but de résumer l'optique ondulatoire complexe paraxiale, et la règle ABCD de propagation des faisceaux gaussiens. Cette méthode a été développée en premier lieu par Herwig KOGELNIK 1965, puis généralisée pour devenir un outil très puissant pour la propagation de faisceaux gaussiens complexes. On propose ici une synthèse en s'appuyant sur celle de SIEGMAN 1986.

### B.1 Formalisme ABCD pour la propagation paraxiale

#### Représentation de Hermite Gauss complexe

On définit la famille de fonctions ci-dessous, indicée par les entiers  $r$  et  $n$ , et qui constitue une base des fonctions de l'espace  $]-\infty, +\infty[^2 \rightarrow \mathbb{C}$ .  $H_n(x)$  désigne le polynôme de Hermite d'ordre  $n$ , dans sa forme dite physique et non probabiliste.

$$\begin{cases} u_{nr}(x,y) = u_n(x)u_r(y), & \text{(B.1a)} \\ u_n(x) = \alpha_n \nu^n H_n\left(\frac{\sqrt{2}x}{\nu}\right) e^{-jk\frac{x^2}{2q}}. & \text{(B.1b)} \end{cases}$$

Dans l'équation précédente, les paramètres  $\nu$ ,  $q$  et  $\alpha_n$  peuvent être arbitrairement choisis dans  $\mathbb{C}^*$ . Tout champ électrique peut ainsi être décomposé sur cette base à n'importe quelle abscisse  $z$  au cours de sa propagation. Il est alors associé à trois fonctions  $\nu(z)$ ,  $q(z)$  et  $\alpha_n(z)$  qui sont a priori arbitraires. Cette famille de fonction est bi-orthogonale avec la famille de fonctions  $(\mu_n)_{n \in \mathbb{N}}$  définies par l'équation B.2, c'est à dire qu'elle vérifie la propriété  $\int_{-\infty}^{+\infty} \mu_n(x)u_{n'}(x)dx = \delta_{nn'}$  avec  $\delta$  le symbole de Kronecker.

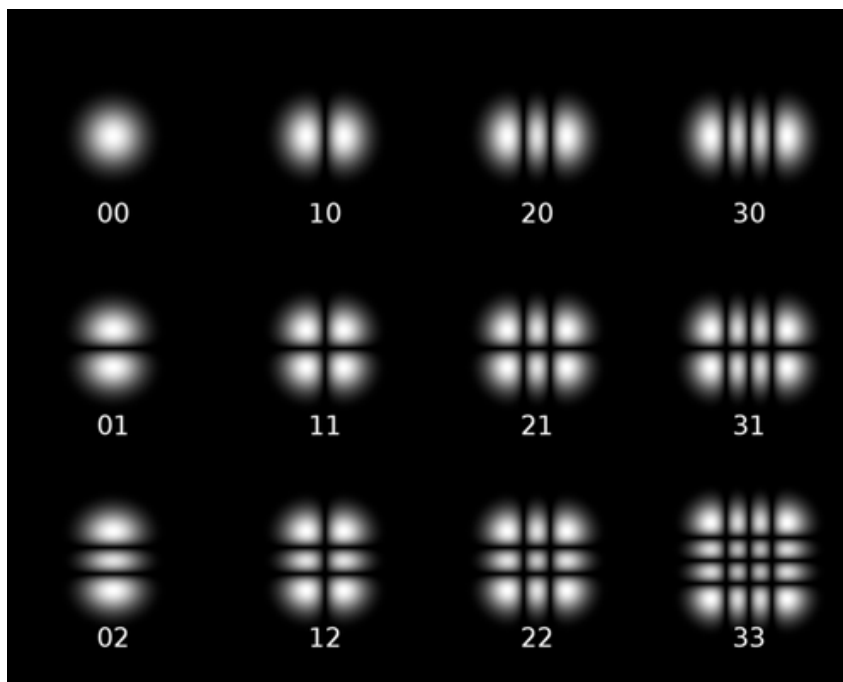


FIGURE B.1 – Allures de l'intensité des premiers faisceaux gaussiens en coordonnées cartésiennes (Source : site internet OPI-Optique Pour l'Ingénieur).

$$\mu_n(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{2^n n! \alpha_n \nu^{n+1}} H_n \left( \frac{\sqrt{2}x}{\nu} \right) e^{j \frac{kx^2}{2q} - 2 \frac{x^2}{\nu^2}} \quad (\text{B.2})$$

Grâce à la mise en place d'une loi de propagation issue du formalisme paraxial complexe et parfois appelée "loi ABCD", il est possible de poser des contraintes sur les fonctions  $\nu(z)$ ,  $q(z)$  et  $\alpha_n(z)$  afin que toutes les fonctions de la famille  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  soient solution de l'équation de Helmholtz paraxiale linéaire sans absorption :

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] u_n(x,y,z) - 2jk \frac{\partial}{\partial z} u_n(x,y,z) = 0 \quad (\text{B.3})$$

## Loi ABCD générale complexe

On introduit souvent le paramètre gaussien réduit  $\hat{q} = q/n_G$  permettant de simplifier le formalisme, avec  $n_G$  l'indice optique du milieu dans lequel le faisceau se situe. L'expression du faisceau gaussien donnée par l'équation B.1 fait désormais intervenir le vecteur d'onde dans le vide  $k_0 = \omega/c$ .

$$u_n(x) = \alpha_n \nu^n H_n \left( \frac{\sqrt{2}x}{\nu} \right) \exp \left( -jk_0 \frac{x^2}{2\hat{q}} \right) \quad (\text{B.4})$$

Supposons que l'on puisse décrire chaque élément de notre système optique se situant entre l'abscisse  $z_1$  et  $z_2$  par une matrice ABCD éventuellement complexe. Il existe en réalité deux écritures différentes des matrices ABCD, dépendant de la convention choisie pour le



paramètre gaussien  $q$ . Nous choisissons le paramètre réduit  $\hat{q}$ , si bien que l'expression d'une matrice de propagation au sein d'un milieu de longueur  $L$  et d'indice  $n$  est par exemple représentée par la matrice  $P = \begin{pmatrix} 1 & L/n_G \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ . On rappelle que de nombreux autres éléments d'optiques peuvent être représentés par une matrice ABCD, et seuls quelques uns sont rappelés sur la figure B.2. Dans le cadre de l'utilisation du paramètre gaussien  $q$  non réduit, l'expression de la matrice de propagation serait  $P = \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ . Ce changement d'expression pour les matrices ABCD permet de conserver une seule et unique loi pour le paramètre  $q$  présenté à l'équation B.5a, indépendamment du choix de la convention.

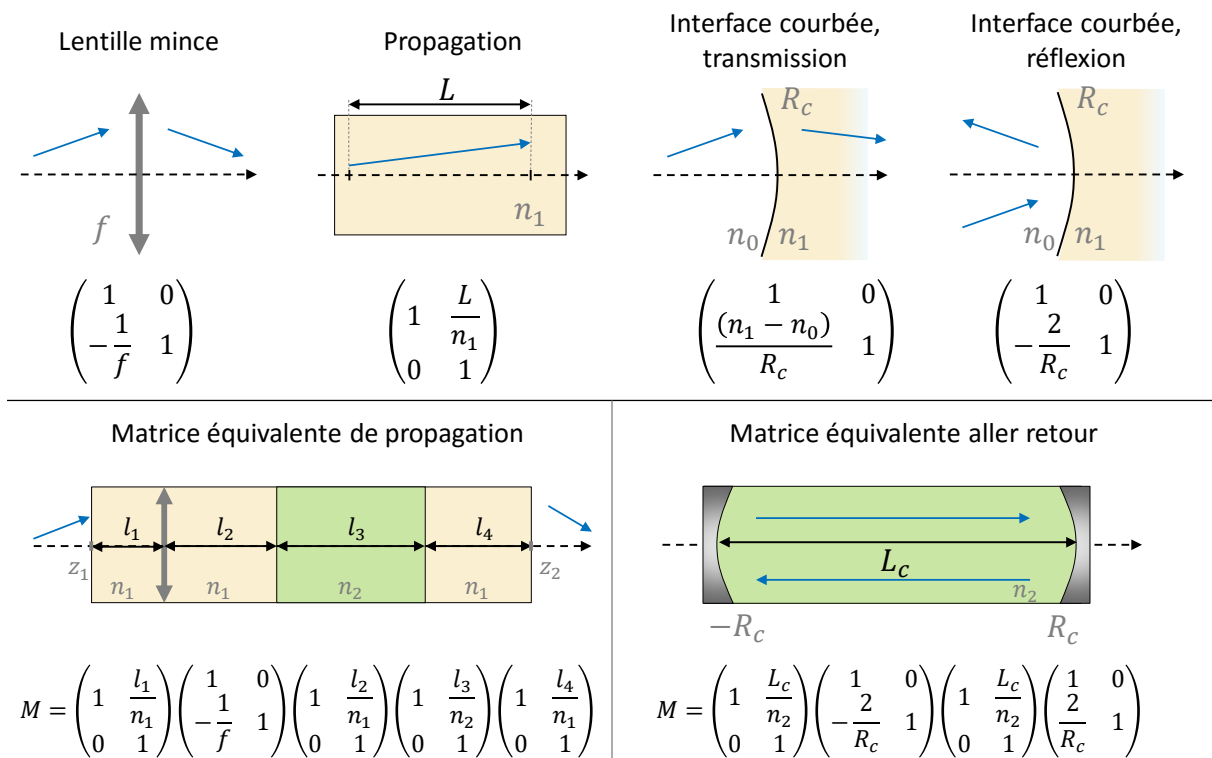


FIGURE B.2 – Exemples de matrices ABCD associées à des éléments d'optiques communs. Lorsque plusieurs de ces éléments sont mis bout à bout pour former une séquence, il suffit de cascader les matrices élémentaires pour obtenir la matrice équivalente à cette séquence. Les  $n_i$  représentent les indices optiques des différents milieux.

Notons  $M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$  la matrice ABCD de propagation équivalente entre les abscisses  $z_1$  et  $z_2$ , obtenue en multipliant les matrices élémentaires des différents éléments présents le long du trajet.

La théorie paraxiale complexe nous donne alors les lois de transformation qui relient les valeurs  $(\nu_1, \hat{q}_1, \alpha_{n,1})$  à l'abscisse  $z_1$  à leur valeur  $(\nu_2, \hat{q}_2, \alpha_{n,2})$  à l'abscisse  $z_2$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{q}_2 = \frac{A\hat{q}_1 + B}{C\hat{q}_1 + D}, \\ \nu_2^2 = (A + B/\hat{q}_1)^2 \nu_1^2 + j \frac{4B}{k_0} (A + B/\hat{q}_1), \\ \alpha_{n,2} = \alpha_{n,1} \left( \frac{1}{A + B/\hat{q}_1} \right)^{n+1/2}. \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(B.5a)} \\ \text{(B.5b)} \\ \text{(B.5c)} \end{array}$$

On rappelle que l'on **choisit** d'imposer les relations B.5 afin que la famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  soit solution de l'équation de Helmholtz paraxiale B.3. Il ne nous reste donc plus que ces trois degrés de liberté à fixer au niveau d'un plan  $z = z_0$  de l'espace.

En conclusion, la donnée des trois paramètres gaussiens au niveau d'un plan de référence est suffisant pour connaître la propagation des faisceaux gaussiens de tout ordre et dans tout l'espace. **Le choix de ces valeurs est à priori arbitraire.**

## B.2 Modes gaussiens paraxiaux en cavité optique complexe

Au sein d'un résonateur optique, le choix des paramètres gaussiens au niveau d'un plan de référence peut être judicieusement effectué. Au cours de la propagation d'un champ électrique au sein d'une cavité, il va à chaque tour passer au niveau des mêmes abscisses. Est-il possible de trouver un jeu de paramètres tel que le faisceau gaussien soit inchangé après un aller-retour ?

### Solutions du paramètre gaussien auto-reproduit

Fixons un plan arbitraire au sein de la cavité, et notons  $M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$  la matrice qui désigne maintenant la matrice équivalente de l'aller retour au sein de la cavité. D'après les lois de propagations ABCD présentées précédemment, le paramètre gaussien se reproduit strictement identique à lui-même après un aller-retour dans la cavité à condition que :

$$\hat{q} = \frac{A\hat{q} + B}{C\hat{q} + D} \quad \text{(B.6)}$$

La fonction homographique précédente admet deux points fixes possibles, en introduisant  $m = (A + D) / 2$  :

$$\hat{q}_{\pm}^{-1} = \frac{D - A}{2B} \mp \frac{1}{B} \sqrt{m^2 - 1} \quad \text{(B.7)}$$

On introduit également les valeurs propres de la matrice M comme  $\lambda_{\pm} = m \pm \sqrt{m^2 - 1}$ .

## Solutions physiques

Pour des faisceaux réels dont la courbure du front d'onde vaut  $R$  et de rayon  $w$  (mesuré à  $1/e^2$  en puissance), on a toujours la relation suivante :

$$\frac{1}{\hat{q}} = \frac{n_G}{R} - j \frac{2}{k_0 w^2} \quad (\text{B.8})$$

Parmi les deux solutions mathématiques trouvées à l'équation B.7, deux choses sont à vérifier pour garantir qu'il s'agit de solutions physiques. D'abord, il faut que les solutions soient confinées, et puisque le faisceau gaussien est dominé par le terme  $\exp\left(-jk_0 \frac{x^2}{2\hat{q}}\right)$  à l'infini sur le plan transverse, on doit donc assurer  $\text{Im}(\hat{q}^{-1}) < 0$  pour éviter toute divergence. Ensuite, il faut que ces deux paramètres gaussiens soient des solutions stables par rapport à une éventuelle perturbation. On peut montrer que si  $\Delta\hat{q}_1$  est l'écart de  $\hat{q}_+$  à sa valeur initiale  $\hat{q}_+^0$  au début d'un tour de cavité, alors l'écart  $\Delta\hat{q}_2$  observé après un aller-retour vaut  $\Delta\hat{q}_2|_{\hat{q}_+} = \lambda_+^2 \Delta\hat{q}_1|_{\hat{q}_+}$ . De même,  $\Delta\hat{q}_2|_{\hat{q}_-} = \lambda_-^2 \Delta\hat{q}_1|_{\hat{q}_-}$  (c'est pour cette raison d'ailleurs que les valeurs propres ont été indicées par les mêmes marqueurs  $\pm$ ).

## Solutions pour le rayon auto-reproduit

Nous venons d'établir une condition nécessaire pour pouvoir récupérer des faisceaux gaussiens dont le paramètre  $\hat{q}$  s'auto-reproduit au niveau du plan de référence de la cavité tour après tour. En utilisant son expression calculée précédemment, on en déduit le paramètre  $\nu$  auto-reproduit :

$$\nu_{\pm}^2 = \mp j \frac{2B}{k_0} \sqrt{\frac{1}{m^2 - 1}} \quad (\text{B.9})$$

On peut montrer cette fois  $\Delta\nu_2|_{\hat{q}_+} = \lambda_-^2 \Delta\nu_1|_{\hat{q}_+}$  et  $\Delta\nu_2|_{\hat{q}_-} = \lambda_+^2 \Delta\nu_1|_{\hat{q}_-}$ , soit exactement l'inverse du résultat obtenu sur le paramètre gaussien  $q$  ! Il est donc impossible dans le cas général d'obtenir un mode d'ordre supérieur ou égal à 2 à la fois stable pour  $q$  et pour  $\nu$ , sauf dans les cas particuliers où  $|\lambda_{\pm}| = 1$ .

## Solutions pour le pré facteur $\alpha_n$

Toujours en utilisant la valeur obtenue pour le paramètre gaussien auto reproduit  $q$ , on obtient pour le pré facteur :

$$\alpha_{n,2}|_{\hat{q}_{\pm}} = \alpha_{n,1}|_{\hat{q}_{\pm}} \lambda_{\pm}^{n+1/2} \quad (\text{B.10})$$

Il n'est pas possible dans le cas général d'obtenir un coefficient auto reproduit  $\alpha_n$  tour après tour. En revanche, on remarque que le rapport entre deux tours successifs est indépendant des coordonnées transverses  $(x,y)$  et constant.

## Conclusion

Sans perte de généralités quant au formalisme ABCD pour l'instant, il n'est pas toujours possible de fixer  $\nu$ ,  $\hat{q}$ , et  $\alpha_n$  capables de se reproduire identiques à eux même tour après tour. C'est néanmoins possible dans certaines configurations particulières où  $|\lambda_{\pm}| = 1$ , que seule la connaissance de la matrice ABCD d'aller-retour permet de déterminer.

## B.3 Modes gaussiens paraxiaux en cavité optique réelle et stable

Supposons maintenant que la matrice  $M$  d'aller retour soit purement réelle, correspondant à une cavité sans perte ni gain dépendant des coordonnées transverses. Dans ce cas, on peut vérifier que  $|\lambda_{\pm}| = 1$ , et une solution est donc possible. Supposons également que nous sommes en présence d'un résonateur stable, c'est à dire que  $m \in \mathbb{R}$  et  $m^2 < 1$ .

Dans cette situation, il existe **toujours** un unique paramètre  $q$  à la fois auto reproductible et confiné :

$$\frac{1}{\hat{q}} = \frac{D - A}{2B} - \frac{j}{|B|} \sqrt{1 - m^2} = \frac{n_G}{R} - j \frac{2}{k_0 w^2} \quad (\text{B.11})$$

Suivant le signe de  $B$ , il s'agira donc soit de  $\hat{q}_+$  soit de  $\hat{q}_-$ . La taille du faisceau  $w$  suit exactement la même loi ABCD que  $\nu$ , et le choix  $\nu = w$  nous assure d'avoir une taille de faisceau auto reproductible et donnée par l'équation B.9. La famille bi-orthogonale peut également se réécrire et on trouve :

$$\mu_n(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{2^n n! |\alpha_n|^2 |\nu|^{2n} \nu} [u_n(x)]^* \quad (\text{B.12})$$

On peut vérifier que  $|\alpha_n|^2 w^{2n+1}$  ne dépend pas de  $z$  ! Ceci nous permet d'imposer la condition suivante fixant ainsi le dernier paramètre libre  $\alpha_n$  au niveau du plan de référence choisi :

$$\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{2^n n! |\alpha_n|^2 w^{2n+1}} = 1 \quad (\text{B.13})$$

Grâce à ce choix de l'équation B.13, la famille de fonctions  $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$  est désormais orthonormée pour tout  $z$ . On retrouve bien l'expression classique des modes de Hermite Gauss dans le cas réel, avec une dépendance de leur module en  $1/w(z)$  lorsque les deux dimensions transverses sont prises en compte. Enfin, on peut aussi réduire l'expression de la valeur propre  $\lambda = \exp\left(j \times \frac{B}{|B|} \times \cos^{-1}\left(\frac{A+D}{2}\right)\right)$ . Ce terme de phase pure correspond à la phase de Gouy acquise par le mode fondamental au cours d'un aller-retour. Le mode gaussien est donc auto-reproduit au cours d'un aller retour dans la cavité, à une phase globale près.

### Remarque sur la propagation en cavité résonante

Lors du trajet retour dans une cavité optique asymétrique, rien ne nous affirme que les paramètres seront les mêmes que lors du trajet aller. A priori, les deux triplets de valeurs vérifient donc  $(\hat{q}^+(z), w^+(z), \alpha_n^+(z)) \neq (\hat{q}^-(z), w^-(z), \alpha_n^-(z))$ . Par contre, ils se reproduiront bien d'un tour sur l'autre à la phase de Gouy près.

### Traitement effectif des ondes non résonantes

Lorsque l'on traite de la propagation d'une onde non résonante, se réfléchissant éventuellement une fois lors du trajet aller, on a vu que le choix des paramètres gaussiens est libre et que le choix judicieux opéré pour les ondes résonantes n'a a priori pas de sens. Le choix d'un paramètre  $w$  faible devant le rayon réel du faisceau serait par exemple possible mais demanderait une décomposition conséquente et de nombreux ordres seraient nécessaires pour bien le décrire. On a donc intérêt de choisir  $w$  comme égal à la taille du spot réel si on veut simplifier au maximum la décomposition. Une fois cette valeur fixée, il est judicieux d'ajouter des éléments optiques "fictifs" à la situation en présence, de manière à créer une cavité fictive pour ces ondes non résonantes, choisie pour justement avoir comme paramètre  $w$  le rayon réel et la courbure réelle en un point donné. On peut alors bénéficier des propriétés des ondes résonantes démontrées dans la partie précédente, par exemple l'orthonormalisation.

### Extension au cas des coordonnées cylindriques

Lors de l'utilisation des coordonnées cylindriques, l'expression des modes est différente. La famille de fonction s'exprime alors à l'aide des polynômes de Laguerre généralisés  $L_r^n$  comme suit :

$$u_{pl}(r, \theta) = \alpha_{pl} \left( \frac{\sqrt{2}r}{w} \right)^l L_p^l \left( \frac{2r^2}{w^2} \right) \exp(-jl\theta) \exp\left(-jk_0 \frac{r^2}{2\hat{q}}\right) \quad (\text{B.14})$$

Les lois de transformation des trois paramètres gaussiens sont différentes pour cette représentation. Pour le cas des faisceaux réels (non complexes), on peut les écrire sous la forme suivante (TACHÉ 1987) :

$$\begin{cases} \hat{q}_2 = \frac{A\hat{q}_1 + B}{C\hat{q}_1 + D}, & (\text{B.15a}) \\ w_2 = w_1 \left( A + \frac{B}{\hat{q}_1} \right) \exp\left(-j \tan^{-1} \left[ \frac{2B}{k_0 w_1^2 (A + B \cdot \text{Re}(1/\hat{q}_1))} \right]\right), & (\text{B.15b}) \\ \alpha_{n,2} = \alpha_{n,1} \frac{w_1}{w_2}. & (\text{B.15c}) \end{cases}$$

Tout comme pour le cas des coordonnées cartésiennes, le pré-facteur au niveau du plan de référence est calculé pour assurer l'orthonormalisation de la famille de fonctions dans le plan transverse, et on trouve  $\alpha_{pl} = \frac{2}{w} \sqrt{\frac{p!}{(p+l)! \pi (1 + \delta_{0l})}}$ . Cette nouvelle famille est

parfois mieux adaptée à la situation, de par sa symétrie circulaire naturelle. Les premiers modes sont représentés sur la figure B.3 ci dessous.

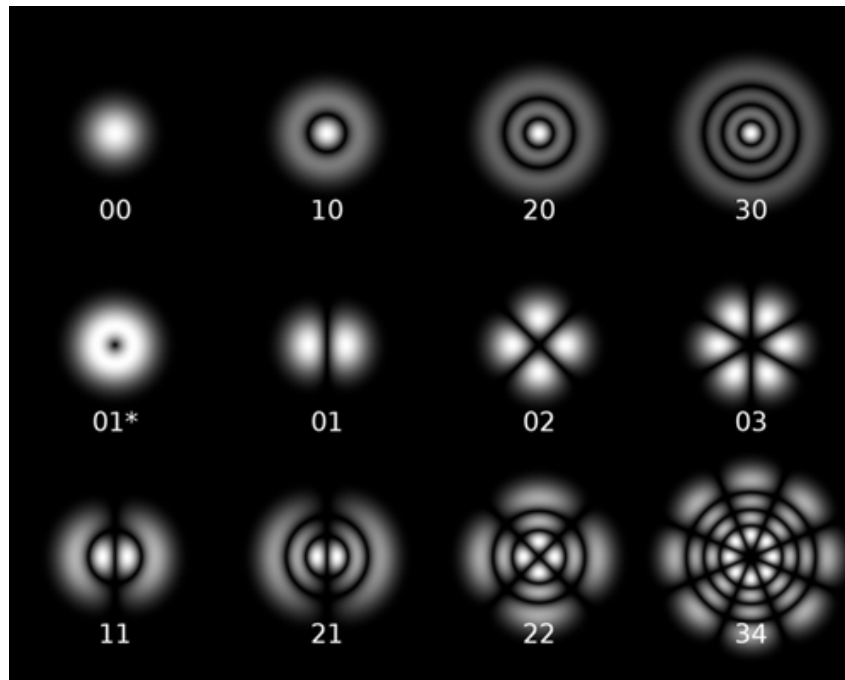


FIGURE B.3 – Allures de l'intensité des premiers modes gaussiens en coordonnées cylindriques (Source : site internet OPI-Optique Pour l'Ingénieur).

# Annexe C

## L'outil de simulation numérique OOFELIE

Il est possible d'utiliser le logiciel commercial de simulation par élément finis OOFELIE :Multiphysics afin de simuler une expérience de QEPAS. Le but de cette annexe est de donner des renseignements sur la manière dont cet outil est utilisé pour calculer différentes grandeurs intervenant au cours du processus photoacoustique.

### C.1 Résonance et facteur de qualité

La simulation par élément fini est essentielle avant de réaliser un résonateur pour garantir que le facteur de qualité mesuré sous vide soit excellent. En pratique, on calcule l'énergie de déformation présente au niveau des zones de fixation du diapason pour déterminer le facteur de qualité lié au support  $Q_{struct}$ .

Ensuite, la simulation permet de prédire avec précision la fréquence de résonance du résonateur (à moins de 1%).

Il est également possible d'estimer le facteur de qualité lié à la radiation acoustique  $Q_r$ . Pour ce faire, des éléments non visqueux sont choisis pour le milieu acoustique afin de simuler un fluide non visqueux et donc purement acoustique (OPEN ENGINEERING 2013; PAQUAY 2001). Le type de résolution est harmonique, et une "Perfectly Matched Layer" (PML) doit être utilisée en tant que condition à la frontière extérieure autour du résonateur. De cette manière, les ondes acoustiques s'échappant à l'infini constituent bien autant d'énergie extraite du résonateur. Afin d'obtenir la valeur de l'amortissement purement acoustique, on effectue les étapes suivantes :

- On calcule l'amplitude du mouvement des branches du résonateur pour des fréquences voisines de sa résonance  $f_n$ , en utilisant un amortissement du matériau nul.
- On mesure la bande passante à 3dB  $\Delta f_{3dB}$  de l'amplitude de déplacement des branches sur le diagramme de Bode précédemment obtenu.

- On en déduit le facteur de qualité en supposant que la poutre se comporte comme un filtre passe bande :  $Q_r = f_n / \Delta f_{3dB}$ .

Cette approximation du filtre passe bande est en général excellente pour les résonateurs mécaniques en flexion. Si l'interaction vibroacoustique devient très importante, le filtre théorique décrivant le résonateur peut changer et la méthode ne fonctionne plus.

## C.2 Paramètres équivalents électriques

On peut également retrouver l'expression de la résistance motionnelle en effectuant une simulation en régime harmonique, à la fréquence de résonance du système  $f_n$ , en imposant les potentiels  $V_+$  et  $V_-$  sur chacune des deux électrodes. La simulation retourne alors la charge totale accumulée  $\hat{q}_c$  sur une électrode par piézoélectricité.

Grâce à la relation électrique équivalente que l'on obtient à la résonance, valable dans le cas d'un filtre d'ordre 2, on peut écrire à la résonance :

$$j\omega_n \hat{q}_c = [R_n + j\omega_n C_i] [V_+ - V_-] \quad (\text{C.1})$$

Par identification des parties réelles et imaginaires, on en déduit donc la résistance motionnelle  $R_n$  et la capacité inter électrode  $C_i$ .

## C.3 Utilisation dans le cadre de la vibroacoustique

Dans ce type de logiciel, il est possible de résoudre de manière précise le couplage vibroacoustique tout en utilisant un terme de source complexe. Il doit être inséré dans le modèle par le terme  $\hat{q}(\mathbf{r}, \omega)$  appelé "VOLUME FLOW DENSITY" par OOFELIE, et qui correspond à la définition introduite à l'équation 1.15a. En utilisant l'épilogue de OOFELIE, il est possible d'utiliser une source volumique de pression et ainsi prendre en compte l'extension spatiale du faisceau laser dans l'excitation photoacoustique.

Si la longueur d'onde acoustique en présence est notée  $\lambda_v$ , il nous faut assurer au moins un maillage du volume acoustique de longueur moyenne  $\lambda_v/5$ . La PML est quand à elle configurée de manière à permettre aux ondes issues des radiations par le résonateur et par les terminaisons des tubes de s'échapper à l'infini comme dans un cas pratique. L'épaisseur de la PML doit être au moins de  $\lambda_v/3$ , et il faut au moins 3 ou 4 éléments dans l'épaisseur.

On peut également déterminer la phase du mouvement des branches par rapport à la pression exercée dans le cylindre laser. Pour ce faire, on observe d'abord la phase du champ de pression, ensuite celle du déplacement des branches. Par différence, on obtient bien la phase recherchée.



# Annexe D

## Publications et Communications

### Articles à comité de lecture

- AOUST, Guillaume. « Acoustic cavity coupled tuning fork for Quartz Enhanced Photoacoustic Spectroscopy ». In : *A paraitre* (2017).
- AOUST, Guillaume, Antoine GODARD, Myriam RAYBAUT, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Guillaume CANAT et Michel LEFEBVRE. « Pump duration optimization for optical parametric oscillators ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 31.12 (nov. 2014), p. 3113.
- AOUST, Guillaume, Antoine GODARD, Myriam RAYBAUT, Olivier WANG et Michel LEFEBVRE. « Optimal Pump Pulse Shapes for OPOs ». In : *Journal of the Optical Society of America B* 33.5 (2016).
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Béatrice BOURGETEAU et Olivier LE TRAON. « Acoustic Damping on Flexural Mechanical Resonators ». In : *Sensors and Actuators A : Physical* 238 (2016), p. 158–166.
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Béatrice BOURGETEAU et Olivier LE TRAON. « Viscous damping on flexural mechanical resonators ». In : *Sensors and Actuators A : Physical* 230 (2015), p. 126–135.
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Myriam RAYBAUT, Antoine GODARD, Jean-Michel MELKONIAN et Michel LEFEBVRE. « Theoretical analysis of a resonant quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor ». In : *Applied Physics B* (2017).
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY et Béatrice VERLHAC. « Acoustic radiation harvesting for high quality factor resonators operated in fluid ». In : *A paraitre* (2017).
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Béatrice VERLHAC et Olivier LE TRAON. « Optimal Q factor for Tuning Forks in a Fluid Media ». In : *Sensors and Actuators A : Physical* 243 (2016), p. 134–138.
- MANSURIPUR, Tobias S., Camille VERNET, Paul CHEVALIER, Guillaume AOUST, Benedikt SCHWARTZ, Feng XIE, Catherine CANEAU, Kevin LASCOLA, Chung-en ZAH, David P. CAFFEY, Timothy DAY, J. MISSAGIA, M. K. CONNORS, Christine WANG, A. BELYANIN et Federico CAPASSO. « Single-mode instability in standing-wave lasers :

Quantum cascade laser as a self-pumped parametric oscillator ». In : *Physical Review A* (2016).

## Propriété intellectuelle

AOUST, Guillaume. « Logiciel de simulation numérique GOSS (Gaussian Optics Simulation Software) ». 2016.

AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Béatrice BOURGETEAU et Olivier LE TRAON. « Dispositif de récupération de l'énergie acoustique ». Brevet en cours de dépôt. 2016.

JANIAUD, Denis, Guillaume AOUST, Raphaël LEVY, Béatrice BOURGETEAU, Pierre LAVENUS, Marc PERNICE et Vincent GAUDINEAU. « Résonateur mécanique vibrant en flexion ». Brevet FR3025673. 2016.

LEVY, Raphaël, Guillaume AOUST, Béatrice BOURGETEAU, Jean GUÉRARD, Olivier LE TRAON et Vincent GAUDINEAU. « Méthode de mesure électronique ». Brevet en cours de dépôt. 2016.

## Communications en conférence

AOUST, G, R LEVY, M RAYBAUT, J MELKONIAN, B BOURGETEAU, J DHERBECOURT, A GODARD et M LEFEBVRE. « Experimental and Numerical Analysis of Commercial and Homemade Tuning Forks for QEPAS . » In : *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*. 2015.

AOUST, G, J M MELKONIAN, M RAYBAUT, R LEVY, J B DHERBECOURT, A GODARD et M LEFEBVRE. « Nested Cavity Optical Parametric Oscillator in the 3.0 – 3.8 $\mu$ m range for Quartz Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy ». In : *2nd Conference on photoacoustic and photothermal theory and applications (CPPTA)*. T. 36. 5. 2014, p. 1–2.

AOUST, Guillaume, Julie ARMOUGOM, Erwan CADIOU, Quentin CLÉMENT, Dominique MAMMEZ, Guillaume GORJU, Jean-michel MELKONIAN, Myriam RAYBAUT, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Nested Cavity Optical Parametric Oscillator : A Versatile Tunable Emitter for Active Gas Sensing in the Short- to Long-Wave Infrared Invited ». In : *OPTIC 2015 - Optics & Photonics Taiwan*. 2015, p. 2–3.

AOUST, Guillaume, Jessica BARRIENTOS BARRIA, Hélène COUDERT-ALTEIRAC, Quentin CLEMENT, Dominique MAMMEZ, Myriam RAYBAUT, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Jean-Michel MELKONIAN, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Nested Cavity Optical Parametric Oscillator (NesCOPO) - A unique approach for gas sensing ». In : *Laser Applications to Chemical, Security and Environmental Analysis (LACSEA)*. Washington, D.C. : Osa, 2014.

- AOUST, Guillaume, Caroline COUVIN, Xavier DÉLEN, Myriam RAYBAUT, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Jean-Michel MELKONIAN, Guillaume GORJU, François BALEMBOIS, Patrick GEORGES et Antoine GODARD. « Singly Resonant Optical Parametric Oscillator Pumped By a Nanosecond-to-Microsecond ». In : *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*. 2016.
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Béatrice BOURGETEAU et Olivier LE TRAON. « Shape optimization for high quality factor flexural mechanical resonators operated in air ». In : *Design, Test, Integration & Packaging of MEMS, MOEMS (DTIP)*. 2016.
- AOUST, Guillaume, Raphaël LEVY, Myriam RAYBAUT, Jean-Michel MELKONIAN, Béatrice BOURGETEAU, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Optimal tuning fork for Quartz Enhanced PhotoAcoustic Spectroscopy ». In : *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*. 2016.
- AOUST, Guillaume, Myriam RAYBAUT, Jean-Michel MELKONIAN, Guillaume CANAT, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Antoine GODARD et Michel LEFEBVRE. « Influence of Pump Pulse Duration on Doubly Resonant Optical Parametric Oscillators Build-up Time ». In : *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*. Washington, D.C. : Osa, 2014.
- COUVIN, Caroline, Xavier DÉLEN, Guillaume AOUST, Myriam RAYBAUT, Jean-Baptiste DHERBECOURT, Jean-Michel MELKONIAN, Guillaume GORJU, François BALEMBOIS, Patrick GEORGES et Antoine GODARD. « Singly Resonant OPO Pumped by a Pulsewidth-Tunable Hybrid MOPA Source ». In : *High-Brightness Sources and Light-Driven Interactions*. OSA technical Digest (online). Long Beach, California : Optical Society of America, 2016, MS4C.6.

**Titre :** Développements de sources infrarouges et de résonateurs en quartz pour la spectroscopie photoacoustique

**Mots clés :** Photoacoustique, spectroscopie, résonateurs mécaniques, facteur de qualité, lasers, optique non-linéaire.

**Résumé :** La spectrométrie photoacoustique QEPAS constitue l'une des méthodes les plus sensibles pour la détection de gaz à l'état de traces. Ses performances sont étroitement liées à celles de sa source de lumière infrarouge cohérente et de son résonateur mécanique qui détecte les ondes acoustiques. La thèse a pour objectif de développer ces deux briques élémentaires.

Dans un premier temps, les performances des résonateurs mécaniques sont modélisées, permettant de mieux comprendre leur comportement. Une formule analytique originale de leur facteur de qualité  $Q$  est incorporée, permettant de prédire avec précision les pertes qu'ils subissent lorsqu'ils résonnent dans un gaz. Grâce à ces modèles, de nouveaux résonateurs optimisés sont conçus et réalisés, aboutissant à des performances améliorées. Dans un second temps, les sources cohérentes infrarouges QCL et OPO sont améliorées pour la photoacoustique. L'impulsion de pompe optimale pour un OPO est présentée pour distribuer au mieux l'énergie de pompe disponible dans le temps, et ainsi maximiser le rendement de rayonnement infrarouge disponible. Un logiciel de simulation numérique original des OPOs est également créé, et permet de simuler rapidement le spectre d'émission d'un OPO quelconque.

**Title :** Development of infrared sources and quartz resonators for photoacoustic spectroscopy

**Keywords :** Photoacoustic, spectroscopy, mechanical resonators, quality factor, lasers, non-linear optics.

**Abstract :** Infrared photoacoustic spectrometry QEPAS is one of the most sensitive technique for trace gas sensing. The goal of the thesis is to improve the two key elements of the instrument : the mechanical resonator and the coherent infrared light source.

First, the use of resonators as an acoustic waves sensor is investigated, allowing to better understand their behavior. Our modeling include a new analytical formula of their quality factor, predicting the amount of losses they experience when immersed within a gaz. The models are used to design and fabricate new custom resonators, leading to enhanced performances. Second, two infrared sources named QCL and OPO are optimized for the photoacoustic application. The optimal pump pulse for an OPO is derived to efficiently distribute the available pump energy in time, hence maximizing the yield of infrared light. A simulation software has also been created for OPOs, able to quickly predict the spectrum of any type of OPO.

