

Peignes de fréquences femtosecondes : aux limites de la spectroscopie



Inventés à la fin des années 1990, les lasers peignes de fréquences femtosecondes ont révolutionné les mesures précises de temps et de fréquence. Le train d'impulsions régulier d'un laser femtoseconde à modes verrouillés en phase produit un spectre composé d'un peigne équidistant de millions de modes lasers, séparés d'un intervalle précisément égal à la fréquence de répétition des impulsions. Le peigne de fréquences optiques peut alors être utilisé comme une règle de mesure pour déterminer avec précision n'importe quelle fréquence optique inconnue, en la connectant directement à une horloge micro-onde ou optique de haute exactitude. Les peignes de fréquences commerciaux sont aujourd'hui des outils de routine en spectroscopie de précision et deviennent des instruments adaptés pour une variété croissante d'applications, de l'astrophysique aux sciences attosecondes. Les millions de raies lasers de peignes précisément contrôlés sont exploités depuis peu pour la spectroscopie moléculaire à large bande spectrale. La spectroscopie de Fourier avec des peignes de fréquences améliore déjà d'un facteur un million le temps de mesure, la limite de résolution, l'exactitude et la sensibilité des instruments jusqu'alors les plus performants, les spectromètres de Fourier basés sur l'interféromètre de Michelson.

Peignes de fréquences femtosecondes et métrologie des fréquences

Le temps et la fréquence sont les quantités physiques que l'on sait mesurer avec la plus grande précision. Mesurer une fréquence, c'est-à-dire compter son nombre de cycles dans un intervalle de temps donné, est une procédure digitale exempte de nombreuses sources de bruit. Les compteurs électroniques capables de mesurer des fréquences micro-ondes sont disponibles depuis longtemps. En 1967, la Conférence Générale des Poids et Mesures a défini la seconde, notre unité de temps, comme la période pendant laquelle un atome de césium 133 oscille 9192631770 fois sur une transition d'horloge entre les niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 4$ de l'état fondamental $6S_{1/2}$. Aujourd'hui les horloges micro-ondes à césium atteignent une précision de 15 décimales. Une précision encore meilleure peut être obtenue avec des horloges atomiques à transitions optiques, qui utilisent des atomes ou des ions oscillant à la fréquence de la lumière comme balancier. Néanmoins, une onde laser cohérente oscille dans un

domaine de fréquences de l'ordre de 10^{14} oscillations par seconde et il n'existe pas de détecteurs et de circuits électroniques assez rapides pour construire un compteur de fréquences optiques. Longtemps, la seule manière de connecter fréquences micro-ondes et fréquences optiques a reposé sur des chaînes de multiplication de fréquences harmoniques, extrêmement complexes, conçues pour la mesure d'une unique fréquence optique et seulement une poignée de ces chaînes a été développée par quelques-uns des meilleurs laboratoires nationaux de métrologie. Le mécanisme d'horloge qui a longtemps fait défaut peut désormais être réalisé par un laser peigne de fréquences femtosecondes, un outil de mesure simple et ultra-précis qui peut relier et comparer de façon cohérente n'importe quelle fréquence optique et n'importe quelle fréquence micro-ondes en une seule étape.

Un peigne de fréquences optiques est une source laser qui émet un spectre large fait de raies fines et équidistantes, dont la position est connue de façon précise. Son spectre peut s'étendre sur plus d'une octave, c'est-à-dire sur plusieurs centaines de nanomètres. Le plus souvent, les peignes de fréquences sont générés à partir de

Article proposé par :

Theodor W. Hänsch^{1,2} et Nathalie Picqué^{1,2,3}, nathalie.picque@mpq.mpg.de

¹ Max Planck Institut für Quantenoptik, Germany

² Ludwig-Maximilians-Universität München, Fakultät für Physik, München, Germany

³ Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay, UMR 8214, CNRS / Univ. Paris-Sud 11, Orsay

lasers femtosecondes à modes verrouillés en phase. Dans le domaine temporel (figure 1), la sortie de tels lasers est une séquence d'impulsions qui sont essentiellement les répliques d'un même pulse séparées par le temps de parcours d'un tour de cavité. Dans le domaine fréquentiel (figure 1), la séparation entre deux modes ou raies du peigne est juste égale à la fréquence de répétition des impulsions f_{rep} . Ceci reste vrai même si les impulsions ne sont pas des répliques identiques, car un décalage reproductible de la phase de la porteuse de l'onde électromagnétique par rapport à l'enveloppe de l'impulsion se produit. De tels décalages se produisent dans un laser en raison de la dispersion dans la cavité, car l'enveloppe des impulsions se propage à une vitesse différente de leur porteuse. Le peigne de fréquences est alors décalé relativement aux multiples entiers de la fréquence de répétition f_{rep} par la fréquence f_0 , dite de décalage porteuse-enveloppe. La fréquence d'une raie du peigne de rang n est ainsi donnée par la relation $f_n = n f_{\text{rep}} + f_0$. La fréquence de n importe quelle raie du peigne peut être calculée à partir des deux fréquences radio f_{rep} et f_0 avec la connaissance de l'entier n . Un tel peigne peut donc être vu comme une règle de mesure dans l'espace des fréquences, qui peut être utilisée par exemple pour mesurer une grande séparation entre deux fréquences optiques différentes en relation avec la fréquence de répétition des impulsions.

Un peigne de fréquences optiques relie donc directement fréquences optiques et fréquences micro-ondes. Cette relation peut s'appliquer dans les deux directions. Il est possible de mesurer et contrôler la fréquence de répétition f_{rep} avec une horloge atomique à césium pour synthétiser plusieurs centaines de milliers de fréquences optiques de référence qui sont précisément connues avec l'exactitude de l'horloge primaire de temps et de fréquence. N'importe quelle fréquence optique inconnue peut alors être déterminée en mesurant son battement avec les raies du peigne. Un lambda-mètre conventionnel, interféromètre de Michelson à réflecteur mobile qui mesure la longueur d'onde d'un laser continu monomode et accordable par comparaison à un laser de longueur d'onde étalonée, peut par exemple fournir une mesure de fréquence suffisamment exacte pour déterminer l'ordre m de la raie de peigne la plus proche, et la distance précise à cette raie de référence est ensuite mesurée avec un compteur micro-ondes. Inversement, une transition fine de référence provenant d'ions ou d'atomes froids piégés peut être utilisée pour l'asservissement, c'est-à-dire le contrôle et la stabilisation active, d'une des raies du peigne. Toutes les autres raies du peigne sont alors des multiples fractionnaires de la fréquence optique de référence. Le peigne peut alors également générer des fréquences micro-ondes avec une

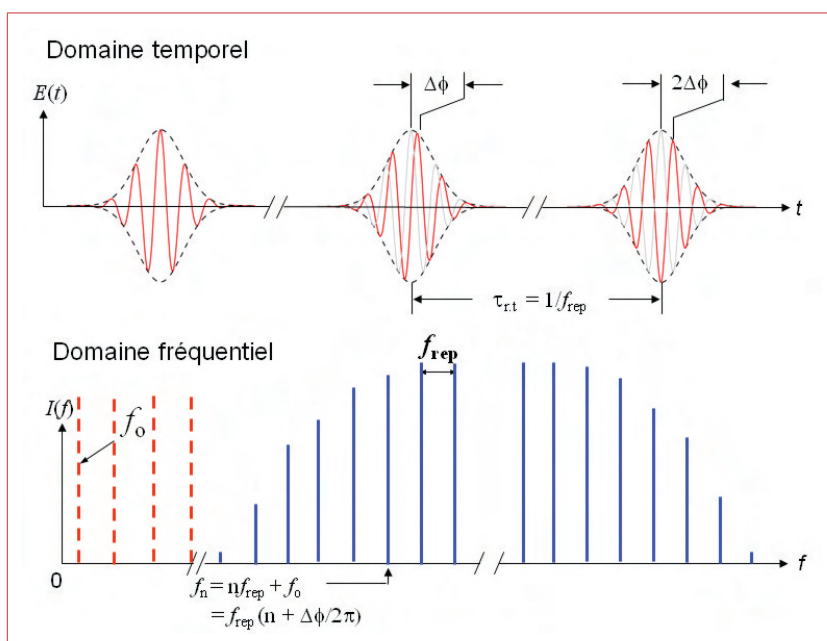


Figure 1 – Impulsions consécutives d'un train émis par un laser à modes verrouillés en phase et spectre correspondant.

Ligne supérieure : la porteuse du champ électrique se meut à la vitesse de phase alors que son enveloppe est gouvernée par la vitesse de groupe, différente. La porteuse se déphase donc de $\Delta\phi$ après chaque tour de cavité par rapport à l'enveloppe de l'impulsion.

Ligne inférieure : de ce déphasage impulsion-à-impulsion résulte un décalage fréquentiel $f_0 = \Delta\phi / \tau_{rt}$ qui empêche le peigne d'être formé d'harmoniques exactes de la fréquence de répétition des impulsions f_{rep} .

stabilité de phase extrême. Les peignes de fréquences optiques peuvent être compris comme équivalents à plusieurs centaines de milliers de lasers monofréquences ultrastables et précisément accordés fonctionnant simultanément.

La nature cohérente du train d'impulsions émis par les lasers à modes verrouillés en phase a ainsi remarquablement réuni les deux domaines jusqu'alors distincts de l'optique aux temps ultracourts et de la spectroscopie de précision. Jusqu'à présent, aucune limite fondamentale dans l'exactitude des peignes de fréquences n'a été mise en évidence. En repoussant les limites de la métrologie de temps et de fréquence, ils permettent de nouveaux tests des lois fondamentales de la physique. Des comparaisons précises de la fréquence des résonances optiques des atomes, ions et molécules établissent de nouvelles limites pour d'hypothétiques variations lentes des constantes fondamentales. L'extension des techniques de peignes de fréquences à de nouvelles régions spectrales, depuis les fréquences THz jusqu'à l'extrême ultraviolet, est maintenant en cours d'exploration et pourrait donner accès à de nouvelles investigations en spectroscopie de précision. Rapidement, il est devenu évident que de nombreuses autres applications dans de nombreux domaines des sciences et de la technologie pourraient bénéficier de ces sources laser remarquables. En particulier, les techniques de peignes de fréquences créent de nouvelles opportunités en sciences attosecondes en permettant le contrôle de la phase de la porteuse du champ électrique par rapport à son enveloppe. L'étalonnage des spectromètres



astrophysiques avec des peignes de fréquences permettra la recherche de nouvelles planètes extrasolaires et les mesures interférométriques précises de distance rendront possibles de nouvelles missions spatiales avec des formations d'engins spatiaux hautement contrôlées. Un des autres domaines où les lasers peignes de fréquences ont récemment démontré un potentiel excitant d'avancées significatives est la spectroscopie moléculaire. C'est sur celui-ci que nous concentrons la suite de cet article.

Peignes de fréquences femtosecondes pour la physique moléculaire

La spectroscopie d'absorption est un outil puissant de recherche fondamentale en physique atomique et moléculaire et de caractérisation de milieux variés. Elle permet de comprendre la matière en donnant par exemple accès aux grandeurs essentielles caractérisant les molécules (structure, niveaux d'énergie, potentiel...). Ces informations facilitent ensuite l'analyse d'environnements divers (composition, concentration, température, pression, rapports de mélanges, rapports isotopiques...). La spectroscopie d'absorption résulte de la mesure de l'intensité d'une source lumineuse après traversée d'un milieu, et de son atténuation lorsque sa couleur (sa longueur d'onde) coïncide avec celle d'une transition entre deux niveaux d'énergie d'un des constituants du milieu sondé. La loi de Beer-Lambert régit l'évolution de l'absorption en fonction de la longueur d'onde. Elle donne le rapport entre le flux lumineux pénétrant dans un milieu absorbant et le flux lumineux résiduel sortant après un parcours de longueur donnée. Ce rapport varie de façon exponentielle avec la longueur parcourue, la concentration, et un facteur qui qualifie l'aptitude spécifique du milieu à absorber. La source de lumière peut être par exemple le soleil qui sonde l'atmosphère terrestre ou un laser utilisé en laboratoire pour déterminer une structure moléculaire inconnue.

La spectroscopie d'absorption est un domaine de recherche lié à des préoccupations fondamentales et appliquées. Parmi elles, on peut citer la spectroscopie fondamentale, la métrologie, la physico-chimie du milieu interstellaire, la détection *in situ* de composés à l'état de traces impliqués dans la pollution atmosphérique accidentelle ou criminelle, le contrôle de procédés industriels. Cette approche bénéficie d'avantages spécifiques. En effet, elle est non-intrusive et permet de sonder les milieux sans les perturber, de façon locale et *in situ*. Elle peut fournir des mesures de concentration. Elle discrimine de façon non ambiguë les espèces détectées et leurs isotopologues, molécules qui diffèrent uniquement par leur composition isotopique. Chaque espèce moléculaire

possède en effet une « empreinte digitale » spectrale unique, qui consiste en des transitions radiatives bien définies. La concentration d'une molécule donnée peut alors être mesurée en sondant une de ses transitions par spectroscopie d'absorption. De nombreuses techniques expérimentales exploitent donc l'absorption moléculaire.

Comme il est développé dans l'*encadré 1*, le spectromètre de Fourier basé sur l'interféromètre de Michelson a été l'instrument prépondérant depuis les années 70 pour la mesure de spectres moléculaires de grande qualité s'étendant sur de larges plages spectrales. La spectroscopie de Fourier avec deux peignes de fréquences démontre aujourd'hui sa capacité à révolutionner ce domaine de la physique par ses caractéristiques impressionnantes : n'impliquant plus l'interféromètre de Michelson, elle est en passe de bouleverser conceptuellement et techniquement la spectroscopie moléculaire.

Le principe du nouveau spectromètre est représenté sur la *figure 2*. Un premier peigne avec une fréquence de répétition f_{rep1} interagit avec l'échantillon atomique ou moléculaire. Cet échantillon peut être un solide, un liquide ou un gaz. À la sortie de l'échantillon, le spectre de la lumière émise par le peigne de fréquences « interrogateur » est atténué à certaines longueurs d'onde par les transitions de l'absorbant. L'information encodée par ce premier peigne s'étend sur une large bande spectrale : elle n'est limitée que par le domaine d'émission du laser et/ou la réponse spectrale des détecteurs et peut ainsi s'étendre sur plusieurs centaines de nanomètres. Elle nécessite donc un spectromètre pour être restituée. Ceci est accompli par battement hétérodyne du peigne interrogateur avec un second peigne de fréquences, qui sert de référence : le mélange, dit hétérodyne, de deux fréquences distinctes f_1 et f_2 sur un photodétecteur produit effectivement deux nouvelles fréquences, $f_1 + f_2$ et $f_1 - f_2$. Un choix approprié de f_2 par rapport à f_1 peut permettre de décaler l'information relative à f_1 dans un domaine de fréquences plus pertinent pour sa mesure. Ici, le faisceau du peigne interrogateur est superposé à celui du peigne de référence, de

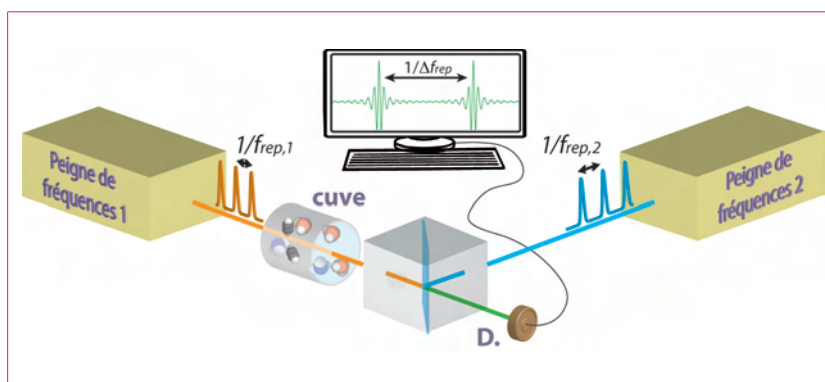


Figure 2 – Deux sources de peignes de fréquences, notées 1 et 2, ont des fréquences de répétition d'impulsions légèrement différentes ($\delta = f_{rep1} - f_{rep2}$). Le peigne 1 est transmis à travers l'échantillon absorbant à analyser puis il bat avec le peigne 2 sur un photodétecteur rapide. Leurs interférences génèrent un peigne démultiplié dans le domaine des fréquences radio, qui contient l'information sur les absorptions subies par chaque raie du peigne 1. Le signal électrique temporel est numérisé et sa transformée de Fourier restitue le spectre.

Encadré 1

Spectroscopie par transformation de Fourier basée sur l'interféromètre de Michelson

La spectroscopie par transformation de Fourier fait partie des avancées majeures en instrumentation scientifique de la seconde moitié du XX^e siècle. Cette recherche fondamentale de méthodologie instrumentale a été motivée initialement par le besoin d'explorer le domaine infrarouge quasiment en friche. Ce domaine, zone des transitions optiques intenses observables en émission ou en absorption, permet de comprendre la matière sous ses formes les plus diverses (atomes, molécules, en phases gazeuse, liquide, ou solide). Aujourd'hui, cette méthode couvre la totalité de la gamme spectrale s'étendant de l'infrarouge lointain à l'extrême ultraviolet. Les spectromètres de Fourier basés sur l'interféromètre de Michelson sont disponibles commercialement et sont des outils de base dans beaucoup de domaines de recherche ou de diagnostic, en physique, chimie, biologie, médecine et dans l'industrie.

Les progrès spectaculaires apportés par la spectroscopie de Fourier résultent des utilisations optimales du temps d'observation et de la lumière disponible. Ils ont permis de réduire la durée d'une expérience d'un siècle à une heure. Sous la direction de P. Jacquinot, menée par P. et J. Connes, l'équipe française principalement constituée de H. Delouis, G. Guelachvili, J.-P. Maillard, G. Michel, et J. Pinard a joué un rôle considérable, dans les années 60, dans la conception et la mise en œuvre de la méthode au sein du laboratoire Aimé Cotton du CNRS.

La spectroscopie de Fourier repose sur le phénomène d'interférences à deux ondes. Sa pratique la plus répandue fait usage de l'interféromètre de Michelson (figure E1). Si la source est monochromatique et si la différence de marche Δ varie linéairement, le détecteur délivre un signal périodique de période proportionnelle à la longueur d'onde caractérisant la source. Lorsque la source est polychromatique, le signal du détecteur devient la somme des signaux de chacune des composantes monochromatiques constituant la source. Cette somme $I(\Delta)$ est l'interférogramme :

$$I(\Delta) = \int_0^{\infty} B(\nu)(1 + \cos(2\pi\nu\Delta)) d\nu \quad (1)$$

où $B(\nu)$ est la densité spectrale d'énergie caractérisant la source, et ν le nombre d'onde (inverse de la longueur d'onde). L'équation (1) se compose d'un terme constant et d'un terme pair

$$I'(\Delta) = \int_0^{\infty} B(\nu)\cos(2\pi\nu\Delta)d\nu \quad (2)$$

fréquence de répétition légèrement décalée. Une photodiode rapide produit alors un signal, l'interférogramme, fait d'un peigne de fréquences radio dû aux interférences entre paires de raies de peignes optiques.

Le principe même du spectromètre fournit un accès simultané et exact à une large plage spectrale dans un faible temps de mesure et peut se comprendre physiquement également en termes d'interférences dans le domaine temporel, de détection multi-hétérodyne, de

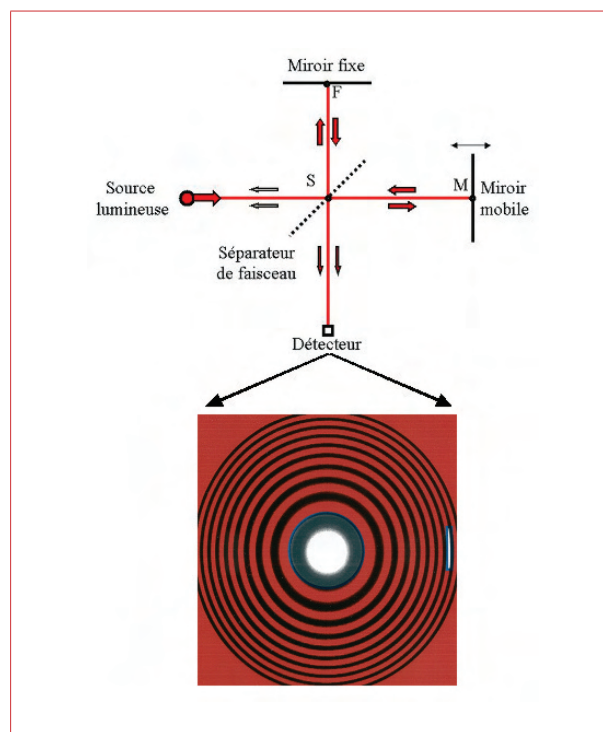


Figure E1 – Interféromètre de Michelson.

a) Le faisceau lumineux issu du milieu sondé est divisé en parts égales par le séparateur de faisceau. La lumière est réfléchi dans chacun des bras SF et SM de l'interféromètre par les miroirs fixe et mobile. Elle se recombine en interférant sur le détecteur. Celui-ci mesure une intensité fonction de la différence de marche (Δ) des chemins parcourus dans chacun des bras. C'est l'interférogramme, transformée de Fourier du spectre de la source.

b) Avec une source étendue, le détecteur voit un système d'anneaux aspirés par le centre lorsque Δ augmente et d'autant plus dense que Δ est grand.

qui est la transformée de Fourier en cosinus du spectre $B(\nu)$. La transformation :

$$B(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} I'(\Delta)\cos(2\pi\nu\Delta) d\Delta \quad (3)$$

restitue le spectre.

La spectroscopie par transformation de Fourier se pratique donc en deux temps. L'interférogramme est d'abord enregistré en fonction de Δ , puis sa transformation de Fourier restitue le spectre, fonction de ν .

décroissance d'induction libre optique, d'échantillonnage optique linéaire ou de corrélation croisée entre deux champs électriques. Dans le domaine fréquentiel (figure 3a), le spectre optique est effectivement converti dans le régime radio-fréquence, où il devient accessible par les techniques rapides de traitement de signaux digitaux. Dans le domaine temporel (figure 3b), le train d'impulsions du peigne interrogateur excite l'échantillon absorbant à intervalles de temps réguliers. Un second train d'impulsions, de fréquence de répétition différente,

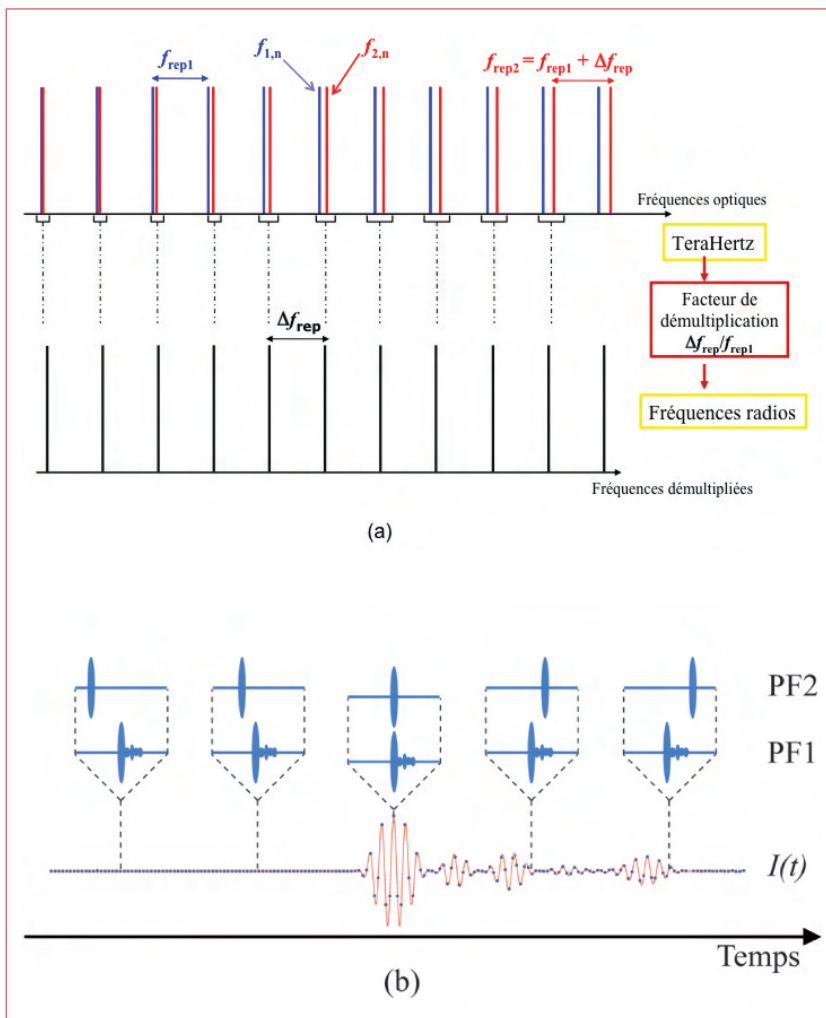


Figure 3 – Principe physique de la spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences. Les fréquences de répétition des deux peignes sont respectivement f_{rep1} et f_{rep2} et diffèrent de $\Delta f_{rep} \ll f_{rep1}$. a) Dans le domaine fréquentiel, le peigne de référence, noté 2, avec un intervalle entre raies f_{rep2} agit comme un détecteur hétérodyne fortement multiplex pour générer un peigne radio-fréquence. b) Dans le domaine temporel, le train d'impulsions du peigne de référence PF2 « parcourt » lentement les impulsions du peigne interrogateur PF1, modifiées par l'interaction avec l'échantillon, pour générer une mesure $I(t)$ du champ électrique interrogateur.

échantillonne interférométriquement la réponse transitoire – ou décroissance d'induction libre – du milieu, de façon semblable à un oscilloscope à échantillonnage optique. Les corrélations de phase entre les impulsions lasers successives sont cruciales pour la reproductibilité de l'échantillonnage, même si la décroissance de l'induction libre se produit sur une échelle de temps courte comparée à l'intervalle de temps entre deux impulsions laser.

La partie supérieure de la *figure 4* montre un interférogramme expérimental, obtenu à partir de deux peignes de fréquences basés sur des lasers femtosecondes à fibres dopées à l'erbium émettant dans la région de l'infrarouge proche (1,5 μm). En raison du léger désaccord entre les fréquences de répétition des impulsions des deux peignes, l'interférogramme se répète à l'identique avec une période qui est l'inverse de la différence des deux fréquences de répétition. Des signaux d'interférences intenses sont générés lorsque deux impulsions se superposent, c'est-à-dire à retard optique nul. D'un côté de ces pics de retard

optique nul, la modulation de l'interférogramme, agrandie sur la deuxième ligne de la *figure 4*, est due aux signatures moléculaires. Quand un seul peigne interroge l'échantillon, l'interféromètre résultant peut en effet être vu comme l'équivalent d'un spectromètre de Fourier dispersif, c'est-à-dire un interféromètre de Michelson dans lequel l'échantillon serait placé dans l'un des bras. La transformée de Fourier d'une petite portion de cet interférogramme restitue le spectre. Le spectre de la molécule d'acétylène, dans la région de la bande de combinaison $\nu_1 + \nu_3$, présenté ici couvre 115 nm. Il apparaît comme un continuum, résultant de l'émission des lasers dont la structure discrète des dents de peigne n'est pas résolue, auquel se superposent les transitions d'absorption de l'acétylène. Il est mesuré en un seul enregistrement de 42 μs , sans moyenne, avec une limite de résolution de 3 GHz, suffisante pour résoudre correctement la structure rovibrationnelle de la bande. En comparaison, enregistrer un tel spectre avec un spectromètre de Fourier traditionnel équipé d'une lampe blanche nécessite plus de 10 secondes. La méthode démontre ainsi, comparée à la spectroscopie de Fourier basée sur l'interféromètre de Michelson, une amélioration d'un facteur un million sur les temps d'enregistrement, à rapport signal-sur-bruit identique. Nous avons aussi montré qu'il est possible de mesurer de tels spectres toutes les dizaines de microsecondes, ce qui ouvre d'intéressantes perspectives pour l'analyse en temps réel de réactions chimiques ou d'autres phénomènes dynamiques. L'*encadré 2* montre qu'il est possible de combiner ces caractéristiques à une importante amélioration de la sensibilité, grâce à des cavités de haute finesse, qui augmentent la longueur d'interaction de la lumière avec l'échantillon.

Outre ces aspects de rapidité d'enregistrement et de très grande sensibilité, il est intéressant de se rappeler qu'un peigne de fréquences est initialement un outil de spectroscopie de précision. Une perspective excitante de la spectroscopie par peignes de fréquences est la possibilité d'émergence d'un nouveau domaine, unissant la spectroscopie à large bande spectrale et la métrologie des fréquences. Augmenter le temps de mesure et effectuer le calcul de transformée de Fourier sur une séquence qui inclut plus de deux pics de retard optique nul permet de résoudre les raies individuelles du peigne de fréquences interrogateur. La *figure 5* montre un spectre dont les raies du peigne sont résolues, le « fond continu » n'est plus un continuum mais se compose de raies discrètes. La ligne a) de la *figure 5* montre la totalité du spectre. Le spectre, mesuré en 6 secondes et composé de 536 millions

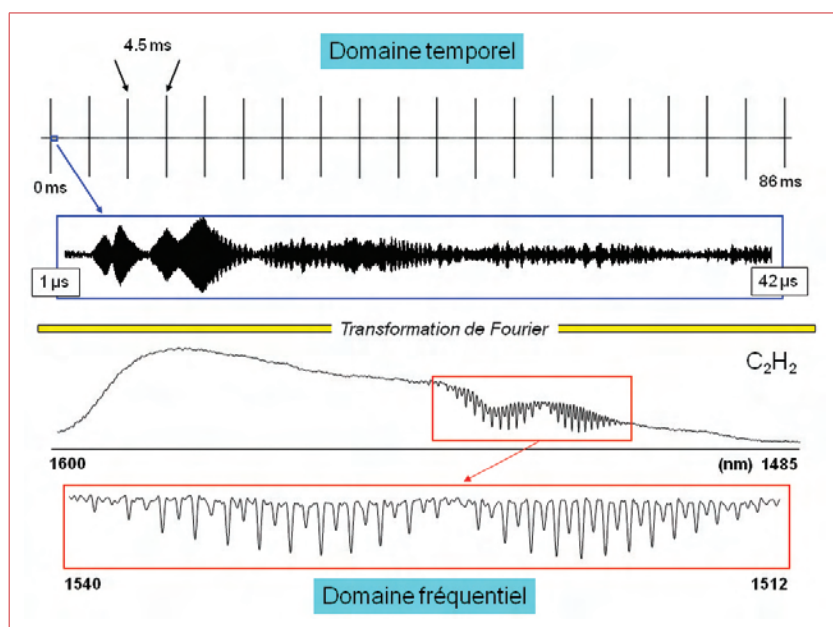


Figure 4 – La partie supérieure de la figure illustre l'apparence typique d'un interférogramme obtenu en spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences femtosecondes. Il se reproduit avec une périodicité égale à $1/\Delta f_{rep}$. Suivant la limite de résolution désirée, la transformée de Fourier d'une portion de cet interférogramme est calculée. Par exemple, la transformée de Fourier d'un interférogramme de 42 μ s est suffisante pour résoudre les profils rovibrationnels d'un échantillon moléculaire en phase gazeuse comme montré sur la partie inférieure de la figure avec l'exemple de la bande $\nu_1 + \nu_3$ de l'acétylène, avec une limite de résolution de 3 GHz.

d'éléments spectraux, est désormais échantillonné par un peigne de fréquence d'espacement de 100 MHz entre raies. La plage spectrale explorée est réduite à 1 nm, car notre système d'acquisition de données est limité à 536 millions d'échantillons et ce test vise à une limite de résolution améliorée. La largeur instrumentale des raies du peigne de fréquences est 2,3 kHz. Le temps de mesure de ce spectre est en outre plus court que celui qui est nécessaire à un interféromètre de Michelson pour rapporter un spectre avec une limite de résolution de quelques GHz, soit 10^6 fois moins bonne. Obtenir de tels résultats avec un spectromètre de Fourier basé sur un interféromètre de Michelson nécessiterait de déplacer le miroir mobile sur une distance de plus de 65 kilomètres à une vitesse de 10 km/s ! Notons aussi que l'information contenue dans cette largeur de raie instrumentale de 2,3 kHz est en fait beaucoup plus concentrée. Si le peigne interrogateur est parfaitement stabilisé, chacune de ses raies individuelles sonde l'échantillon avec une précision limitée par la relation d'incertitude temps-fréquence, sub-Hz dans le cas présent. Néanmoins, comme cela est manifeste sur la ligne b) de la figure 5, le spectre moléculaire est échantillonné par les raies discrètes du peigne, espacées de 100 MHz, ce qui constitue la limite de résolution du spectre moléculaire : toute signature spectrale ayant une largeur

à mi-hauteur inférieure à 200 MHz ne peut être correctement restituée. Dans le cas de profils élargis par l'effet Doppler de molécules en phase gazeuse, cela ne représente pas une limitation. Pour donner à notre méthode le potentiel de sonder des transitions plus fines, exemptes de l'effet Doppler, nous avons toutefois démontré l'efficacité des méthodes d'entrelacement de spectres, non illustrées ici, qui montrent que la résolution est fondamentalement limitée par la largeur intrinsèque des raies du peigne dans le domaine radio-fréquence, qui peut être aussi faible que le milli-Hertz. La position de chacune des raies du peigne peut être connue avec l'exactitude d'une horloge atomique et nous avons par exemple montré que, dans le cas du spectre de la figure 5, l'espacement fréquentiel entre les raies du peigne est restitué avec une régularité de quelques 10^{-15} . Ainsi, de nouvelles perspectives sont offertes dans le domaine de la spectroscopie de précision et la spectroscopie moléculaire à large bande spectrale pourrait devenir un nouvel outil de tests de lois fondamentales de la physique quantique.

Au delà, quel avenir pouvons nous prédire à la spectroscopie par peignes de fréquences femtosecondes ? L'amélioration par un facteur un million du temps de mesure, de la limite de résolution, de la sensibilité et de l'exactitude de la spectroscopie de Fourier offre des possibilités immédiates dans le domaine de la spectroscopie fondamentale et du diagnostic optique. L'extension de la technique à des régions spectrales plus

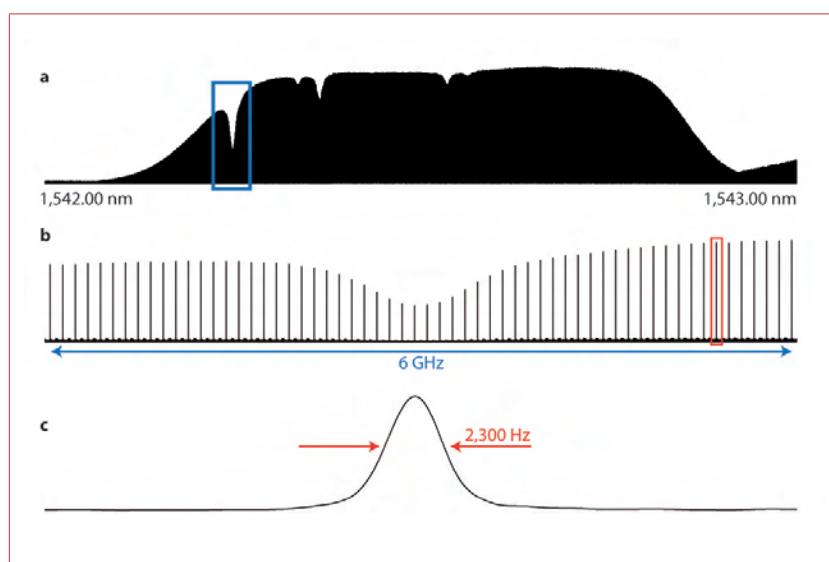


Figure 5 – Largeur de raie instrumentale de 2,3 KHz dans un spectre de Fourier de 536 Méga-échantillons mesuré en 6 secondes.

- a) Spectre d'un 1 nm de largeur spectrale révélant plusieurs transitions rovibrationnelles de l'acétylène superposées à l'émission des raies individuelles du peigne de fréquences.
 b) agrandissement sur la raie $P_e(27)$ de la bande $\nu_1 + \nu_3$ de C_2H_2 .
 c) agrandissement sur une raie individuelle de peigne illustrant la largeur de raie de 2300 Hz.



Encadré 2

Spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences avec cavité de haute finesse

Tous les modes, équidistants, d'un premier laser peigne de fréquences sont injectés dans un résonateur passif de haute finesse, qui contient un échantillon gazeux. A l'intérieur de la cavité, la longueur d'interaction entre la lumière et l'échantillon est significativement augmentée par l'effet des réflexions multiples. Cela exalte le signal d'absorption de plusieurs ordres de grandeur. La lumière transmise par la cavité est un spectre d'absorption s'étendant sur une large plage spectrale, qui nécessite d'être analysée par un spectromètre : un second peigne de fréquences, de fréquence de répétition légèrement différente. Les battements entre des paires de raies des deux peignes fournissent le spectre optique. Une démonstration expérimentale de principe a été conduite avec des peignes de fréquences basés sur des lasers à fibres dopées à l'Ytterbium émettant autour de 1 040 nm. Dans cette expérience, une cavité d'une finesse de 1 200 est couplée sur une bande spectrale de 25 nm à un peigne. La longueur d'absorption est ainsi augmentée jusqu'à environ 900 mètres. Cette expérience a déjà permis de résoudre pour la première fois le spectre dense et faible des bandes harmoniques de l'ammoniac, molécule d'intérêt planétologique et environnemental. En outre, le spectre a été mesuré en 18 μ s et la sensibilité obtenue est déjà 20 fois meilleure – pour un temps de mesure 100 fois plus faible – que l'état de l'art actuel. Ce concept expérimental peut être étendu dans toute région du spectre électromagnétique, en particulier dans l'infrarouge moyen, région des « empreintes digitales » des molécules, où aucune technique efficace de spectroscopie en temps réel n'existe. Dans ce cas, la mise en œuvre de la spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences femtosecondes couplée à

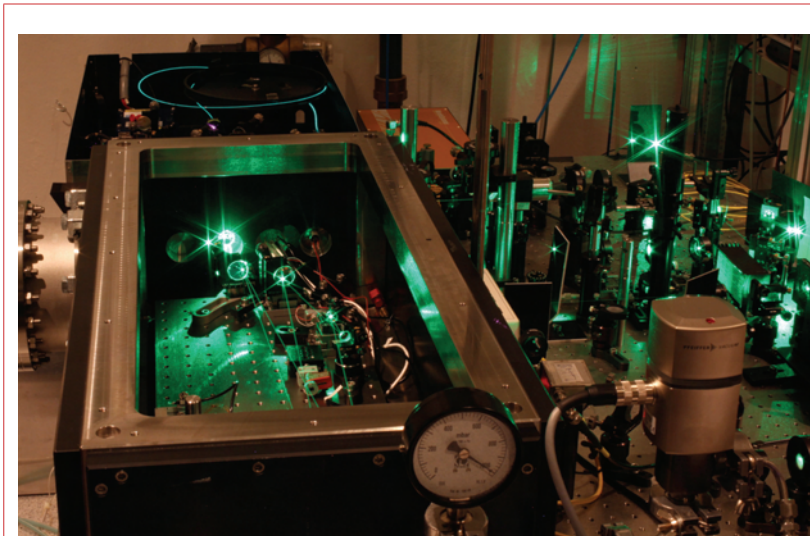


Figure E2 – Photographie du montage expérimental de spectroscopie par peignes de fréquences avec cavité de haute finesse. Une cavité de haute finesse, dans laquelle les modes résonants équidistants d'un laser peigne de fréquences sont injectés, produit une très forte augmentation de la longueur d'interaction entre la lumière et l'échantillon contenu dans la cavité. Le spectre de la lumière transmise par la cavité, qui présente une sensibilité extrême et une large bande spectrale, est mesuré en temps réel par un autre peigne. Cette photographie représente un résonateur de haute finesse, sur la gauche de la photographie. La lumière verte couplée au résonateur provient d'un peigne de fréquences à Ytterbium doublé en fréquence.

© T.W. Hänsch, N. Picqué, Max Planck Institut für Quantenoptik.

une cavité de haute finesse nous assurerait par exemple des seuils de détection sub-ppb pour une grande variété de molécules d'intérêt atmosphérique. Cette perspective excitante fait cependant encore face à de nombreux défis.

Le domaine de la détection de traces de gaz est actuellement en plein essor dans de nombreux domaines, de la biomédecine au sondage environnemental ou à la chimie analytique, la physique des plasmas et l'astrophysique de laboratoire. La spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences femtosecondes couplée à une cavité de haute finesse pourrait ainsi trouver de nombreuses applications.

intéressantes pour la spectroscopie moléculaire, comme l'infrarouge moyen, région des empreintes digitales des molécules, ou l'ultraviolet, est en cours et implique le développement de nouvelles sources laser peignes de fréquences femtosecondes. De manière similaire à la spectroscopie de Fourier basée sur l'interféromètre de Michelson, cette nouvelle spectroscopie d'absorption peut être combinée à d'autres méthodologies instrumentales : imagerie, microscopie, résolution temporelle, reconnaissance sélective de catégories de molécules, etc., tout en gardant le bénéfice des temps de mesure raccourcis de la seconde à la microseconde. Outre ces perspectives qui promettent de faire de la spectroscopie par peignes de fréquences femtosecondes un outil révolutionnaire

de spectroscopie linéaire, les particularités des peignes de fréquences génèrent un potentiel intrigant pour de nouvelles approches à la spectroscopie optique. En effet, en permettant le contrôle de la phase du champ électrique d'impulsions lasers ultracourtes, les peignes de fréquences sont devenus incontournables en sciences attosecondes. En outre, la possibilité démontrée de synchroniser de façon cohérente en phase deux peignes de fréquences et de réaliser de la mise en forme statique « raie-par-raie » d'impulsions ultracourtes avec une résolution de quelques gigahertz sur une centaine de raies de peigne peut être bénéfique au contrôle cohérent de phénomènes quantiques, en permettant de créer, par exemple, des champs électriques optimisés pour l'interrogation et

la détection d'une espèce particulière. La génération de signaux optiques arbitraires est donc devenue concevable. Enfin, comme les peignes de fréquences impliquent des impulsions laser ultracourtes intenses, des interactions non-linéaires, provoquées par une séquence d'impulsions parfaitement contrôlées, peuvent être mises à profit, comme l'excitation cohérente vibrationnelle, l'alignement ou l'orientation moléculaire, l'excitation à deux photons, l'effet Raman stimulé, l'excitation sélective par la mise en forme d'impulsions, incluant la génération d'échos de photons. De telles possibilités sont certainement prometteuses pour une spectroscopie optique multidimensionnelle, intégrant l'adaptation d'idées couronnées de succès du domaine radio-fréquence au domaine optique.

Remerciements : Les travaux de notre groupe présentés dans cet article ont grandement bénéficié de la contribution de Guy Guelachvili, Birgitta Bernhardt, Takuro Ideguchi, Patrick Jacquet, Marion Jacquy, Julien Mandon, Akira Ozawa et Antonin Poisson.

POUR EN SAVOIR PLUS

- A. Amy-Klein, « Des lasers à impulsions femtosecondes pour mesurer les fréquences », *Reflets de la Physique*, **1**, 42 (2010).
- B. Bernhardt, A. Ozawa, P. Jacquet, M. Jacquy, Y. Kobayashi, T. Udem, R. Holzwarth, G. Guelachvili, T.W. Hänsch, N. Picqué, « Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy », *Nature Photonics*, **4**, 55 (2010).
- T.W. Hänsch, Nobel Lecture: Passion for precision, *Rev. Mod. Phys.*, **78**, 1297 (2006).
- J. Mandon, G. Guelachvili, N. Picqué, « Fourier Transform Spectroscopy with a Laser Frequency Comb », *Nature Photonics*, **3**, 99 (2009).
- J. Mandon, « Spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences femtosecondes », Thèse de doctorat en sciences de l'Université Paris-Sud, <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00519027/fr/> (2009).
- D. Rovera, J.P. Wallerand, « Impulsions lumineuses ultracourtes pour la métrologie de fréquences », *Images de la Physique*, **146** (2005).
- T. Udem, R. Holzwarth, T.W. Hänsch, « Optical frequency metrology », *Nature*, **416**, 233 (2002).