



HAL
open science

Étude et réalisation de la pré-amplification d'impulsions à dérive de fréquence par amplification paramétrique optique.

Amandine Renault

► **To cite this version:**

Amandine Renault. Étude et réalisation de la pré-amplification d'impulsions à dérive de fréquence par amplification paramétrique optique.. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X; ENSTA ParisTech, 2006. Français. NNT: . pastel-00603579

HAL Id: pastel-00603579

<https://pastel.hal.science/pastel-00603579>

Submitted on 26 Jun 2011

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

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

Thèse de Doctorat de l'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : **LASERS ET MATIÈRE**

présentée par

Amandine RENAULT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR de l'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Etude et réalisation de la pré-amplification
d'impulsions à dérive de fréquence par amplification
paramétrique optique

Soutenue publiquement le 6 avril 2006 devant le jury composé de :

| | |
|---------------------------------------|-------------------------------|
| M. Patrick GEORGES | Rapporteur |
| M. Eric FREYSZ | Rapporteur |
| Mlle. Frédérika AUGÉ-ROCHEREAU | Directeur de thèse |
| M. Luc VIGROUX | Responsable Industriel |
| Mme Agnès MAÎTRE | Examineur |
| M. François HACHE | Examineur |
| M. Denis VILLATE | Invité |

À mon grand-père, Guy.

À ma famille.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Introduction | i |
| 1 Technique d'amplification CPA pour les lasers femtoseconde | 1 |
| 1.1 Le laser ultra-court | 1 |
| 1.1.1 Représentation du champ électrique | 2 |
| 1.1.2 Durée et largeur spectrale d'une impulsion | 3 |
| 1.2 Phénomènes de dispersion | 4 |
| 1.2.1 Phase spectrale | 4 |
| 1.2.1.1 Définitions | 4 |
| 1.2.1.2 Vitesse de groupe et dispersion de vitesse de groupe | 5 |
| 1.2.2 Influence du terme de dispersion d'ordre deux | 6 |
| 1.3 La technique CPA | 8 |
| 1.4 Étirement temporel des impulsions | 11 |
| 1.5 Compression temporelle des impulsions | 12 |
| 1.5.1 Compresseur à réseaux | 13 |
| 1.5.2 Compresseur à prismes | 14 |
| 1.6 L'amplificateur régénératif | 18 |
| 1.7 Limites de la technique CPA | 22 |
| 1.7.1 Problème de contraste | 22 |
| 1.7.2 Problème du rétrécissement par le gain | 23 |
| 1.7.3 Intégrale B | 25 |
| 1.7.4 Complexité et encombrement | 26 |
| 2 Optique non linéaire | 27 |
| 2.1 Equations de Maxwell et relations constitutives | 27 |
| 2.2 Propagation non linéaire | 29 |
| 2.2.1 Polarisation non linéaire | 29 |

| | | |
|---------|---|----|
| 2.2.2 | Equation de propagation non linéaire | 30 |
| 2.2.3 | Susceptibilité non linéaire et symétries | 32 |
| 2.2.3.1 | Les symétries | 32 |
| 2.2.3.2 | Valeur effective de $d_{i\ell}$ | 35 |
| 2.3 | Milieu isotrope et milieu anisotrope | 36 |
| 2.3.1 | Milieu isotrope | 36 |
| 2.3.2 | Milieu anisotrope | 36 |
| 2.3.3 | Propagation des impulsions lumineuses dans un milieu anisotrope . | 37 |
| 2.3.3.1 | Définitions | 37 |
| 2.3.3.2 | Ellipsoïde des indices | 39 |
| 2.4 | Le BBO, cristal non linéaire | 42 |
| 2.4.1 | Coefficient effectif | 43 |
| 2.4.2 | Equations de Sellmeier | 44 |
| 2.4.3 | Seuil de dommage du BBO | 45 |
| 2.4.4 | Longueur quasi-statique d'interaction | 45 |
| 2.4.5 | Double réfraction ou Walk-off spatial | 47 |
| 2.5 | Les principaux effets non linéaires | 50 |
| 2.5.1 | Effet non linéaire du deuxième ordre | 51 |
| 2.5.2 | Effet non linéaire du troisième ordre | 52 |
| 2.5.3 | La différence de fréquences | 53 |
| 2.5.4 | Génération du second harmonique | 56 |
| 2.5.4.1 | Accord de phase | 58 |
| 2.6 | Amplification paramétrique optique | 60 |
| 2.6.1 | Principe | 60 |
| 2.6.2 | Accord de phase | 62 |
| 2.6.2.1 | Accord de phase colinéaire | 62 |
| 2.6.2.2 | Accord de phase non-colinéaire | 65 |
| 2.7 | Amplification paramétrique optique d'impulsions à dérive de fréquence . . | 69 |
| 2.7.1 | Principe | 69 |
| 2.7.2 | Gain petit signal d'un amplificateur paramétrique | 70 |
| 2.7.2.1 | Courbe de gain petit signal dans le cas non dégénéré et non colinéaire | 75 |
| 2.7.2.2 | Courbe de gain petit signal dans le cas dégénéré et colinéaire | 77 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 2.7.2.3 | Courbe de gain petit signal dans le cas quasi dégénéré et quasi colinéaire | 78 |
| 2.7.3 | Expression de la phase spectrale | 79 |
| 2.7.3.1 | Profil de phase spectrale dans le cas non dégénéré, non colinéaire | 79 |
| 2.7.3.2 | Profil de phase spectrale dans le cas dégénéré, colinéaire . | 80 |
| 2.7.3.3 | Profil de phase spectrale dans le cas quasi dégénéré, quasi colinéaire | 81 |
| 2.7.4 | Régime de fort dépeuplement de la pompe | 82 |
| 2.7.5 | Contraste | 84 |
| 2.7.6 | Conservation du spectre | 86 |
| 2.7.7 | Intégrale B | 87 |
| 2.7.8 | Un processus conservateur | 88 |
| 2.7.9 | Un injecteur pour système pétawatt (10^{15} W) | 88 |
| 2.7.10 | Synchronisation temporelle des faisceaux | 89 |
| 3 | OPCPA non dégénéré | 93 |
| 3.1 | Dispositif expérimental | 93 |
| 3.2 | Faisceau signal | 94 |
| 3.3 | Faisceau pompe | 96 |
| 3.4 | Synchronisation des faisceaux | 99 |
| 3.5 | Amplification | 101 |
| 3.6 | Spectre après amplification | 103 |
| 3.7 | Conclusions sur les configurations non dégénérées | 105 |
| 4 | OPCPA quasi-dégénéré | 107 |
| 4.1 | Présentation générale du dispositif | 108 |
| 4.1.1 | Faisceau de pompe | 108 |
| 4.1.1.1 | Description des éléments constituant le faisceau de pompe | 108 |
| 4.1.1.2 | Méthode de réduction du spectre | 111 |
| 4.1.1.3 | Influence de la coupure spectrale sur le profil temporel de l'impulsion | 119 |
| 4.1.2 | Faisceau signal | 119 |
| 4.1.3 | Synchronisation temporelle | 120 |
| 4.1.4 | Présentation des dispositifs réalisés | 122 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 4.2 | Pré-amplificateur paramétrique | 124 |
| 4.2.1 | Schéma expérimental | 124 |
| 4.2.2 | Spectres et énergies après amplification | 126 |
| 4.2.3 | Simulations des spectres amplifiés | 129 |
| 4.2.4 | Conclusion | 131 |
| 4.3 | Deux amplificateurs paramétriques successifs | 133 |
| 4.3.1 | Présentation générale du schéma expérimental | 133 |
| 4.3.2 | Pré-amplificateur OPCPA | 135 |
| 4.3.3 | Deux amplificateurs paramétriques | 137 |
| 4.3.4 | Conclusion | 141 |
| 4.4 | OPCPA Hybride | 142 |
| 4.4.1 | Dispositif | 142 |
| 4.4.2 | Spectres et énergies obtenues | 145 |
| 4.4.3 | Compression des impulsions amplifiées | 146 |
| 4.4.3.1 | Le Dazzler | 146 |
| 4.4.3.2 | Compression | 146 |
| 4.4.4 | Conclusion | 149 |
| 5 | Conclusion et perspectives | 151 |
| A | Effet non linéaire en cascade | 155 |
| A.1 | Mélange de fréquences en cascade | 155 |
| A.2 | Observations | 156 |
| B | Programmes Matlab | 159 |
| B.1 | Programme Matlab Calcul du gain | 159 |
| B.2 | Programme Matlab Calcul du gain par tranches | 161 |
| B.3 | Programme Matlab Angle d'accord de phase | 162 |
| | Bibliographie | 165 |
| | Liste des figures | 171 |
| | Index | 178 |

Introduction

Ce travail de thèse est consacré à l'étude et à la réalisation de systèmes d'amplification paramétrique d'impulsions générées par un laser. Le but est de déterminer les avantages et les limites de cette technique pour son utilisation en tant que pré-amplificateur de chaînes laser ultra intenses générant des impulsions infrarouges ultra-courtes.

Les progrès réalisés actuellement dans le domaine de la physique des champs intenses poussent les lasers de puissance élevée vers des performances que les techniques d'amplification conventionnelles ne peuvent plus atteindre. En effet, la génération de faisceaux de particules (protons, électrons) et de rayonnements X nécessitent d'une part des amplificateurs de puissance de l'ordre du Petawatt possédant un niveau de contraste élevé vis à vis des pré-impulsions et de l'émission spontanée amplifiée. D'autre part, la volonté de suivre les processus électroniques dans les atomes et les plasmas dans le domaine temporel du cycle optique du laser nécessite des amplificateurs Terawatt, capables de produire des impulsions de durée sub-10 femtosecondes à un taux de répétition élevé ($\geq 100 \text{ Hz}$).

Depuis leur première réalisation en 1965 par Giordmaine et Miller [1], le développement des sources laser, des techniques d'optique non linéaire et les progrès dans la réalisation de cristaux non linéaires efficaces ont mis en évidence la possibilité d'utiliser les amplificateurs paramétriques optiques (OPA) en tant que sources cohérentes largement accordables en fréquence. Les OPA sont très intéressants car ils possèdent une bande spectrale de gain très large, un gain élevé en un unique passage, une grande qualité spatiale du faisceau amplifié, un contraste élevé et préservent la phase du signal. Les OPA sont désormais devenus indispensables à de nombreux domaines de la science des phénomènes ultra rapides comme la spectroscopie par exemple et sont ainsi très prometteurs pour remplacer les amplificateurs CPA.

La technique OPA appliquée aux impulsions ultra-courtes s'appelle l'OPCPA pour

"Optical Parametric Chirped Pulse Amplification". La première démonstration expérimentale de ce dispositif a été faite en 1992 par l'équipe de Dubietis *et al.* [2], sous le nom de CPPA ("Chirped Pulse Parametric Amplification"). La technique OPCPA peut se définir comme l'amplification d'un spectre signal large, dont les impulsions sont étirées temporellement, par un faisceau pompe énergétique possédant un spectre étroit et une durée proche de celle du signal. L'OPCPA présente de nombreux avantages comparativement aux lasers CPA, comme la conservation du spectre lors de l'amplification par exemple.

Les OPCPA sont, le plus souvent, utilisés pour générer des impulsions d'énergie très élevée. Ce type de système utilise généralement un laser de pompe indépendant du signal à amplifier, de durée nanoseconde ou inférieure, ayant pour milieu à gain des barreaux de Nd :YAG ou Nd :Verre de longueur importante, ce qui limite son taux de répétition à une dizaine de Hertz. L'amplificateur paramétrique est constitué de plusieurs étages utilisant des cristaux non linéaires épais tels que le LBO ou le KDP. La puissance de sortie atteinte expérimentalement s'élève à plusieurs terawatt [3] et pourrait atteindre la dizaine de petawatt en théorie [4]. Ce type d'amplificateur produit des impulsions de quelques centaines de femtosecondes. Au début de ce travail de thèse, en 2002, la durée des impulsions les plus courtes générées par ce type d'amplificateur étaient de 155 *fs* [5].

Un autre aspect de la technique OPA appliquée aux impulsions étirées est l'amplification d'impulsions ultra-courtes. Les cristaux non linéaires utilisés sont généralement des BBO ou des cristaux polarisés périodiquement (PPKTP) de quelques millimètres d'épaisseur. Ceux-ci possèdent en effet une bande spectrale de gain large et plate, ce qui permet l'amplification d'impulsions de grande largeur de spectre. L'énergie du signal amplifié est généralement faible dans ce type de dispositif et ne dépassait pas 5 μJ en 2002 [6].

Nous avons décidé de combiner ces deux aspects dans deux configurations d'amplification paramétrique d'impulsions étirées différentes afin de bénéficier des avantages de chaque technique. Le premier dispositif que nous avons réalisé est inspiré des expériences proposées par Jovanovic *et al.* en 2002 qui propose d'augmenter le taux de conversion relatif à la pompe, faible dans les OPCPA, en réutilisant l'énergie non-convertie de celle-ci. Nous avons souhaité transposer cette expérience aux impulsions de durée ultra-courte. L'autre dispositif est un OPCPA non colinéaire où les impulsions signal ultra-courtes pro-

viennent de la même source laser que les impulsions de pompe.

Les deux premiers chapitres de ce manuscrit sont consacrés à l'étude de la théorie liée à ce processus, tandis que les deux derniers chapitres sont consacrés aux expériences réalisées au Laboratoire d'Optique Appliquée lors du déroulement de cette thèse.

La technique d'amplification d'impulsions à dérive de fréquence (CPA) définie par les expériences de D. Strickland et G. Mourou en 1985 a permis d'atteindre des intensités laser très élevées et a favorisé l'apparition de nombreuses applications scientifiques. Le premier chapitre fait la description des lasers produisant des impulsions de durée ultra-courte en détaillant la technique CPA. Les différents éléments intervenant dans la réalisation de ce type de laser et leurs paramètres sont également exposés.

Le deuxième chapitre effectue un rappel des principes de l'optique non linéaire appliqué au domaine des impulsions lasers ultra-courtes. Les équations des effets non linéaires utilisés dans les expériences, comme la génération de second harmonique et la différence de fréquence, sont détaillées et la notion d'accord de phase est introduite. La technique d'amplification paramétrique (OPA) et son utilisation avec des impulsions ultra-courtes (OPCPA) est alors présentée avec l'ensemble des paramètres intervenant dans la description théorique de cet effet non linéaire du deuxième ordre. Trois exemples de configurations servent de base pour la description des courbes de gain et de phase intervenant dans le processus. Enfin, les milieux anisotropes ainsi que les notions de milieu uniaxe ou biaxe et d'indice ordinaire ou extraordinaire sont définis. La dernière section de ce chapitre traite des caractéristiques du cristal non linéaire de BBO. Les paramètres importants sont calculés dans les cas précis des expériences réalisées.

Le chapitre 3 explicite une configuration d'amplification paramétrique non dégénérée et non colinéaire, où les faisceaux signal et pompe sont générés par deux sources laser indépendantes. Ce dispositif combine une large bande d'amplification (faisceaux non colinéaires) et une puissance de sortie élevée (pompe intense). Le signal est généré par une source femtoseconde autour de 800 nm , tandis que la pompe provient d'un laser Nd :YAG de durée nanoseconde fonctionnant avec une cadence de répétition de 20 Hz . Deux étages d'amplification paramétrique successifs ont été réalisés, permettant ainsi de définir les limites de l'utilisation d'un laser de pompe commercial et de sa synchronisation tempo-

relle avec les impulsions signal générées par un oscillateur de cadence élevée (80 MHz). Les paramètres de qualité spatiale et temporelle du faisceau de pompe permettant une amplification efficace sont également mis en évidence.

Dans le but d'amplifier des impulsions ultra-courtes peu énergétiques jusqu'à une énergie d'une centaine de μJ , nous avons réalisé un amplificateur paramétrique combinant les techniques OPCPA permettant d'obtenir des impulsions à la fois énergétiques et de durée ultra-courte, dans lequel le signal étiré provient d'une source laser femtoseconde étirée. Le chapitre 4 détaille la mise en oeuvre de ce dispositif. La pompe est réalisée à partir d'un laser titane saphir doublé en fréquence de cadence égale à 1 kHz et de durée picoseconde. Son énergie est de quelques centaines de microJoules. L'OPA consiste dans un premier temps en un pré-amplificateur auquel vient s'ajouter par la suite un deuxième amplificateur afin d'augmenter le niveau d'énergie des impulsions amplifiées. Un modèle simple a également été réalisé pour prévoir le spectre amplifié en fonction des paramètres expérimentaux. Par la suite, une configuration hybride a été réalisée. Celle-ci combine un amplificateur paramétrique proche de la dégénérescence et un amplificateur à 4 passages ayant pour milieu à gain un cristal de titane-saphir. Ce dispositif permet d'augmenter l'efficacité de conversion du signal par rapport à la pompe tout en conservant le spectre initial des impulsions grâce à un filtre acousto-optique à dispersion programmable inséré sur le trajet du signal à amplifier. La compression des impulsions se fait par une ligne à prismes composée de quatre prismes en LaK8. Les résultats des mesures de compression sont présentés à la fin de ce chapitre.

Chapitre 1

Technique d'amplification CPA pour les lasers femtoseconde

1.1 Le laser ultra-court

Historiquement, la notion d'émission stimulée à la base de la physique des lasers fut introduite dès 1917 par Albert Einstein. Le premier laser fut cependant réalisé bien plus tard, en 1960, par le physicien américain Théodore Maiman [7, 8] qui observa une émission laser dans le domaine des longueurs d'onde optiques avec un cristal de rubis. Un laser se définit comme un système qui génère ou amplifie un rayonnement cohérent et directif pour des longueurs d'onde situées dans les domaines infrarouge, visible ou ultraviolet du spectre électromagnétique [9].

Un laser est dit "ultra-court" si la durée des impulsions qu'il génère est égale à quelques cycles optiques. La durée d'un cycle optique dans le domaine du visible ($400 - 800nm$) est d'environ 2 femtosecondes et la plupart des lasers actuellement classés comme ultra-courts ont une durée maximale de quelques dizaines de femtosecondes ($10^{-15}s$). Pour rendre les choses moins abstraites, une femtoseconde est à une seconde ce que cinq minutes sont à l'âge de l'univers, ou encore, en se déplaçant dans le domaine spatial, ce que l'épaisseur d'un cheveu est à la distance Terre-Lune.

1.1.1 Représentation du champ électrique

L'émission laser est constituée de paquets d'ondes électromagnétiques que l'on peut décrire par un champ électrique dépendant de l'espace et du temps. Ces ondes électromagnétiques oscillent à des fréquences appartenant au domaine optique.

Pour plus de commodité, nous allons utiliser une représentation complexe pour définir le champ électrique E , même si celui-ci est une quantité mesurable, donc réelle. De plus on se limitera, dans une première approche, à une simple dépendance temporelle du champ. Il existe une correspondance entre la forme temporelle du champ et sa forme spectrale. Le champ spectral complexe est défini par la transformée de Fourier [10] :

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt = |\tilde{E}(\omega)|.e^{i\varphi(\omega)} \quad (1.1)$$

où $|\tilde{E}(\omega)|$ est l'amplitude spectrale et $\varphi(\omega)$ est la phase spectrale. Le spectre que l'on mesure avec un spectromètre est, lui, proportionnel à $|\tilde{E}(\omega)|^2$ et représente l'intensité spectrale.

Le champ électrique dépendant du temps s'écrit donc comme la transformée de Fourier inverse de $\tilde{E}(\omega)$:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega)e^{+i\omega t} d\omega \quad (1.2)$$

Une représentation complexe pour le champ électrique dans le domaine temporel est parfois également utilisée. On introduit alors un champ électrique $\tilde{E}^+(t)$ tel que :

$$\tilde{E}^+(t) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} \tilde{E}(\omega)e^{+i\omega t} d\omega \quad (1.3)$$

La quantité physique réelle $E(t)$ est égale à deux fois la partie réelle de la quantité complexe $\tilde{E}^+(t)$:

$$E(t) = 2 \times \Re\{\tilde{E}^+(t)\} \quad (1.4)$$

Le champ électrique complexe temporel $\tilde{E}^+(t)$ est le produit d'un terme d'amplitude et d'un terme de champ. Nous supposons de plus que l'amplitude spectrale est centrée autour de la pulsation ω_0 , ce qui nous permet d'écrire $\tilde{E}^+(t)$ ainsi :

$$\tilde{E}^+(t) = A(t).e^{i\omega_0 t} \quad (1.5)$$

où $A(t)$ est appelé l'enveloppe complexe du champ et ω_o est la fréquence de l'onde porteuse. Cette relation n'est valable que dans le cas où la largeur spectrale est une petite fraction de la fréquence porteuse.

1.1.2 Durée et largeur spectrale d'une impulsion

La durée d'une impulsion laser, notée Δt , est la largeur à mi-hauteur (ou FWHM pour "Full Width at Half Maximum") de son profil d'intensité, tandis que la largeur spectrale, notée $\Delta\omega$, est la largeur à mi-hauteur de son intensité spectrale [10].

La forme temporelle d'une impulsion n'est pas toujours bien définie, mais peut souvent être rapprochée d'un profil standard parmi lesquels les plus courants sont le profil gaussien et le profil sécante hyperbolique, représentés dans la figure 1.1. La dépendance temporelle de l'enveloppe complexe du champ électrique d'une impulsion de forme gaussienne s'écrit :

$$A(t) = A_o \cdot \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right] \quad (1.6)$$

où $\tau = \frac{\Delta t}{\sqrt{2 \cdot \ln 2}}$.

Pour une impulsion de profil sécante hyperbolique, $A(t)$ s'écrit :

$$A(t) = A_o \cdot \operatorname{sech} \left(\frac{t}{\tau} \right) \quad (1.7)$$

où $\tau = \frac{\Delta t}{1,76}$.

La relation de Fourier existant entre les caractéristiques spectrales et temporelles du champ électrique met en évidence un lien entre la durée d'une impulsion et sa largeur spectrale. Elle impose que ces deux grandeurs ne puissent varier indépendamment l'une de l'autre, telles que :

$$\Delta\omega \cdot \Delta t \geq 2\pi \cdot C \quad (1.8)$$

où C est une constante qui dépend de la forme de l'impulsion. Dans le cas d'une impulsion de forme gaussienne, C vaut 0,441 et dans le cas d'une sécante hyperbolique, celui-ci vaut 0,315.

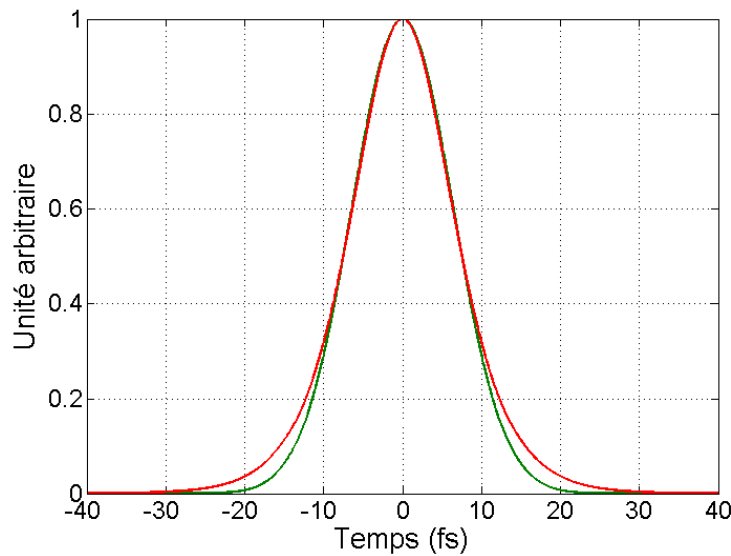


FIG. 1.1: Profils temporels en intensité gaussien (courbe verte) et sécante hyperbolique (courbe rouge)

Si le produit $\Delta\omega \cdot \Delta t$ devient égal à $2\pi \cdot C$, les impulsions sont dites "limitées par transformée de Fourier" ce qui signifie que, pour une largeur spectrale donnée, l'impulsion ne peut avoir une durée inférieure à $2\pi \cdot C / \Delta\omega$ qui est donc la durée la plus courte possible. Les impulsions ultra-courtes auront donc un spectre associé très large. Par exemple, le spectre associé à une impulsion gaussienne de longueur d'onde 800 nm et de durée égale à 15 fs est d'environ 60 nm.

1.2 Phénomènes de dispersion

1.2.1 Phase spectrale

1.2.1.1 Définitions

Un système laser est constitué de plusieurs composants optiques successivement traversés par la lumière. Les matériaux transparents constituant ces composants ont un indice de réfraction dans le visible qui varie avec la longueur d'onde. Or, comme les impulsions de durée femtoseconde ont une bande spectrale très large contenant de nombreuses longueurs d'onde, l'indice de réfraction ne sera pas le même pour tout le spectre. Il s'agit de la loi de dispersion de l'indice de réfraction.

Comme vu précédemment, le champ électrique d'une onde plane qui se propage à la fréquence ω peut s'écrire en fonction de sa phase spectrale $\varphi(\omega)$:

$$\tilde{E}(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|.e^{i\varphi(\omega)} \quad (1.9)$$

Dans le cas d'impulsions courtes, la phase spectrale $\varphi(\omega)$ va ainsi être modifiée au cours de la propagation dans les différents matériaux.

Si $\varphi(\omega) = \omega t_o$, où t_o est une durée arbitraire, la phase est linéaire et on a :

$$E(t) = \text{TF}\{\tilde{E}(\omega)\} = E(t - t_o) \quad (1.10)$$

On a décalé l'impulsion dans le temps, d'une valeur $\frac{d\varphi}{d\omega} = t_o$, mais toutes les fréquences possèdent le même temps de propagation. Il n'y aura pas de conséquence sur le profil temporel de l'impulsion.

Si $\varphi(\omega) = \frac{1}{2}(\omega - \omega_o)^2.a$ où a est un paramètre exprimé en s^2 , la phase est quadratique et on a :

$$\frac{d\varphi}{d\omega} = (\omega - \omega_o).a \quad (1.11)$$

On a un glissement de fréquence linéaire ou "chirp". Les différentes longueurs d'onde contenues dans le spectre de l'impulsion auront chacune un temps de propagation différent et les caractéristiques temporelles de cette impulsion seront modifiées au cours de la traversée des éléments optiques.

Si $\varphi(\omega) = \frac{1}{6}(\omega - \omega_o)^3.b$ où b est exprimé en s^3 , la phase est cubique et on a un glissement de fréquence quadratique. Ce terme de dispersion rend l'impulsion dissymétrique et fait apparaître des post-impulsions si $\varphi^{(3)}$ est positif ou des pré-impulsions si $\varphi^{(3)}$ est négatif qui dégradent le contraste de l'impulsion et réduisent son intensité crête.

On peut développer la phase spectrale en un développement limité autour de la pulsation centrale de l'impulsion afin de faire apparaître ses différents ordres.

1.2.1.2 Vitesse de groupe et dispersion de vitesse de groupe

Un champ électrique polarisé linéairement et se propageant suivant la direction z comme une onde plane peut s'écrire sous la forme :

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(0, \omega). e^{ik(\omega)z} \quad (1.12)$$

où $k(\omega)$ est le vecteur d'onde, égal à $\frac{\omega n(\omega)}{c}$.

Au cours de la propagation, on aura donc une accumulation d'une phase spectrale $\varphi(\omega) = k(\omega).z$. De même que la phase spectrale, le vecteur d'onde peut se décomposer en un développement limité autour de la pulsation centrale ω_o :

$$\begin{aligned} k(\omega) &= k(\omega_o) + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_o} (\omega - \omega_o) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_o} (\omega - \omega_o)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{\partial^3 k}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_o} (\omega - \omega_o)^3 + \dots \\ &= k_o + k'_o (\omega - \omega_o) + \frac{1}{2} k''_o (\omega - \omega_o)^2 + \frac{1}{6} k'''_o (\omega - \omega_o)^3 + \dots \end{aligned} \quad (1.13)$$

Si $k''_o = k'''_o = \dots = 0$, la phase est linéaire et le retard de groupe $\frac{d\varphi}{d\omega}$ vaut $k'_o.z$

Le terme $1/k'_o$ correspond à la vitesse de groupe, notée v_g . C'est la vitesse de propagation de l'amplitude. On a donc $v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k} = 1/k'_o$. La vitesse de groupe est constante pour toutes les longueurs d'onde du spectre quand la phase spectrale est linéaire.

Si, par contre, le terme k''_o n'est pas nul, la vitesse de groupe va dépendre de la pulsation (donc de la longueur d'onde). Le terme $\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}$ s'appelle la dispersion de vitesse de groupe, notée souvent DVG ou encore GVD, pour "group velocity dispersion". Dans le cas d'une dispersion de vitesse de groupe positive, on parle d'une dispersion normale, dans le cas d'une dispersion négative, on parle de dispersion anormale.

Quelques exemples de valeurs des termes d'ordre deux ($\varphi^{(2)}$) et trois ($\varphi^{(3)}$) de la phase spectrale sont donnés dans le tableau 1.1 ci-après pour différents matériaux.

1.2.2 Influence du terme de dispersion d'ordre deux

Pour rendre compte de la modification temporelle subit par une impulsion de forme temporelle gaussienne au cours de sa traversée de différents matériaux, nous allons calculer sa durée après l'application d'un terme de dispersion du deuxième ordre tel que $\varphi(\Omega) = \frac{1}{2} \varphi^{(2)}. \Omega^2$, où $\Omega = \omega - \omega_o$ et ω_o est la pulsation centrale de l'impulsion.

La dépendance spectrale du champ électrique s'écrit :

$$\tilde{E}(\Omega) = |\tilde{E}(\Omega)|.exp\left(-\frac{\Omega^2}{4}\tau^2\right).exp(i\varphi(\Omega)) \quad (1.14)$$

| Matériau | $\varphi^{(2)}$ en fs^2/cm | $\varphi^{(3)}$ en fs^3/cm |
|-------------|------------------------------|------------------------------|
| BK7 | 445 | 322 |
| LaK8 | 764 | 518 |
| SF10 | 1589 | 1042 |
| SF18 | 1531 | 963 |
| SF57 | 2233 | 1410 |
| SF6 | 1987 | 1245 |
| Ti :Sa | 580.35 | 425 |
| SiO2 | 361 | 275 |
| KDP | 273.2 | 485.5 |
| <i>KD*P</i> | 275.5 | 411.2 |
| Quartz | 465.8 | 218.6 |
| BBO | 746 | 505 |

TAB. 1.1: Valeur de la dispersion des 2ème et 3ème ordres pour différents matériaux

La dépendance temporelle du champ s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
E(t) &= \frac{1}{2\pi} |E(t)| \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\Omega^2}{4} \tau^2\right) \cdot \exp\left(i \frac{\varphi^{(2)}}{2} \Omega^2\right) \cdot \exp(+i\Omega t) \cdot d\Omega \\
&= \frac{1}{2\pi} |E(t)| \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\Omega^2 \left[\frac{\tau^2}{4} - i \frac{\varphi^{(2)}}{2}\right]\right) \cdot \exp(+i\Omega t) \cdot d\Omega \quad (1.15)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{2\pi} |E(t)| \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\Omega^2 \cdot \tau'^2}{4}\right) \cdot \exp(+i\Omega t) \cdot d\Omega \\
E(t) &= \frac{1}{2\pi} |E(t)| \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{\tau'^2}\right) \cdot \exp(+i\omega_0 t) \quad (1.16)
\end{aligned}$$

$$\text{avec } \tau'^2 = \tau^2 - 2i\varphi^{(2)} = \sqrt{\tau^4 + 4[\varphi^{(2)}]^2}$$

Comme nous l'avons vu précédemment, si l'impulsion est gaussienne, la durée de l'impulsion s'écrit $\Delta t = \tau \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2}$ avant propagation et donc $\Delta t' = \tau' \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2}$ après propagation.

La durée de l'impulsion après l'application d'un terme de dispersion du deuxième ordre $\varphi^{(2)}$ s'écrit alors :

$$\Delta t' = \Delta t \cdot \sqrt{1 + \frac{16 \cdot [\ln 2]^2 \cdot [\varphi^{(2)}]^2}{\Delta t^4}} \quad (1.17)$$

La forme de l'impulsion est toujours gaussienne, mais elle est temporellement plus longue. Cette formule nous permettra dans les prochains chapitres de calculer la durée des impulsions après leur passage dans un étireur.

1.3 La technique CPA

Depuis l'invention des lasers et plus encore depuis l'apparition de systèmes produisant des impulsions ultra-courtes, de nombreuses applications scientifiques ont nécessité une augmentation de l'intensité des impulsions pour réaliser des expériences d'interaction laser-matière, telles que la production de rayons X, de faisceaux d'électrons ou encore de protons.

Le système le plus simple permettant de produire des impulsions laser ultra-courtes s'appelle un "oscillateur". Il est constitué d'un milieu à gain possédant une bande d'émission spectrale large qui va augmenter la puissance de l'onde au cours de sa propagation, d'une cavité pour créer une oscillation laser résonnante, d'un système de pompage fournissant l'énergie nécessaire à l'amplification de l'onde électromagnétique et enfin, d'un coupleur de sortie. Ce dernier est généralement un miroir semi-réfléchissant permettant l'extraction hors de la cavité des impulsions laser amplifiées. Les oscillateurs ultra-courts produisent un train d'impulsions à une cadence de l'ordre de la centaine de mégahertz. Les impulsions ont une durée femtoseconde et une faible énergie, typiquement quelques nanoJoules ($10^{-9} J$) dans le cas d'un milieu amplificateur comme le saphir dopé au titane. Les caractéristiques de ce cristal sont données dans l'article de Moulton [11] publié en 1986.

La première idée qui vient à l'esprit pour augmenter l'énergie des impulsions produites par un oscillateur est d'amplifier directement ces impulsions dans un milieu à fort gain. Malheureusement, en augmentant l'énergie, l'intensité crête des impulsions augmente également et des effets non linéaires néfastes apparaissent.

En effet, lorsque l'intensité crête augmente, la partie non linéaire de l'indice de réfraction des milieux traversés n'est plus négligeable, ce qui entraîne une variation de l'indice avec le profil d'intensité du faisceau. L'indice de réfraction effectif s'écrit alors :

$$n = n_o + n_2.I \quad (1.18)$$

où n_o est l'indice de réfraction linéaire, $n_2.I$ est l'indice de réfraction non linéaire et I est l'intensité en $W.cm^{-2}$.

Ainsi, pour un faisceau de forme gaussienne, la partie centrale de l'impulsion qui est la plus intense voit un indice de réfraction plus important que la partie extérieure. Il se forme alors une lentille de focale variable avec l'intensité qui induit une auto-focalisation : le matériau amplificateur se comporte comme une lentille convergente, dite "lentille de Kerr", pour le faisceau qui le traverse. Ce dernier est focalisé sur le matériau avec une intensité élevée qui peut l'endommager. De plus, il se produit une distortion du front d'onde au cours de la propagation. Les inhomogénéités dans le profil spatial du faisceau peuvent alors créer une filamentation pouvant détruire le matériau [12].

Afin d'éviter l'apparition de ces effets non linéaires néfastes lors de l'amplification, la valeur de l'intensité crête doit rester limitée. L'intensité crête d'une impulsion laser peut s'exprimer comme suit :

$$I_c = \frac{E}{S.\Delta t} \quad (1.19)$$

où E est l'énergie de l'impulsion, S la surface du faisceau à amplifier et Δt sa durée.

Cette intensité, comme le montre l'équation précédente, peut être diminuée en agissant sur l'énergie, la surface du faisceau ou encore sa durée. La technique CPA que nous allons décrire agit sur la durée de l'impulsion.

C.P.A. est l'acronyme anglais de "Chirped Pulse Amplification", ce qui signifie "amplification d'impulsions à dérive de fréquence". Les différentes étapes de cette technique sont schématisées dans les figures 1.2 et 1.3. La première démonstration de la technique CPA a été faite en 1985 par D. Strickland et G. Mourou [13]. Dès lors, son application aux lasers ultra-courts a révolutionné la science des champs ultra intenses en permettant d'atteindre des puissances crêtes très importantes, impossibles à atteindre auparavant sans dommage optique.

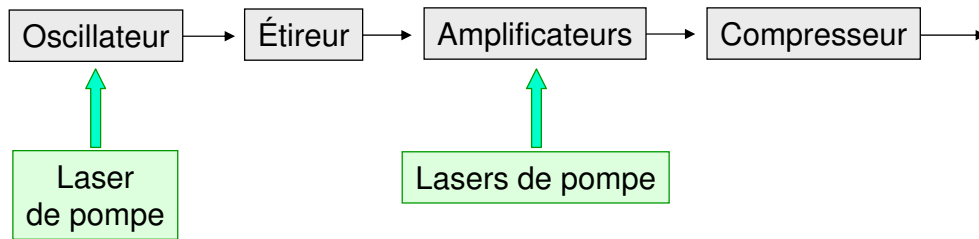


FIG. 1.2: Schéma d'un système CPA

La première étape de la technique CPA consiste à étirer dans le temps d'un facteur 10^3 à 10^5 les impulsions ultra-courtes produites par un oscillateur à l'aide d'un dispositif optique appelé "étireur", qui leur applique un terme de dispersion du deuxième ordre. On dit aussi que l'on "chirp" les impulsions. Il s'agit en fait d'un étalement spatial des différentes longueurs d'onde contenues dans le spectre des impulsions à l'aide d'un élément dispersif. Les longueurs d'onde courtes n'effectuent pas le même chemin optique que les longueurs d'onde élevées. Il existe alors un retard de propagation des différentes composantes du spectre, ce qui aboutit à un étalement temporel de celles-ci en sortie de l'étireur. L'intensité de l'impulsion est ainsi diminuée d'un facteur égal au facteur d'étirement.

Les impulsions sont ensuite amplifiées en utilisant les mêmes techniques que pour un laser standard sans créer de dommages optiques car l'intensité crête reste faible. Enfin, après amplification, les impulsions sont re-comprimées temporellement dans un "compresseur" jusqu'à une durée proche de la durée initiale par l'application d'un terme de dispersion du deuxième ordre négatif compensant celui de l'étireur. Il est important de bien accorder les caractéristiques de l'étireur et du compresseur pour retrouver une durée aussi proche que possible de la durée initiale des impulsions, tout en tenant compte des éventuelles limites de l'amplification, tel que le rétrécissement du spectre par le gain (voir la partie consacrée aux limites de la technique CPA).

La plupart des systèmes d'étirement/compression font intervenir soit des éléments à dispersion angulaire tels que des réseaux de diffraction [14] ou des prismes, soit des éléments à dispersion linéaire comme les fibres optiques. Dans les prochains paragraphes, un étireur à réseau unique ainsi que deux systèmes de compression, l'un utilisant des prismes et l'autre des réseaux [15], seront présentés. Il s'agit des systèmes que nous avons utilisés lors de nos expériences, présentées dans les chapitres 3 et 4.

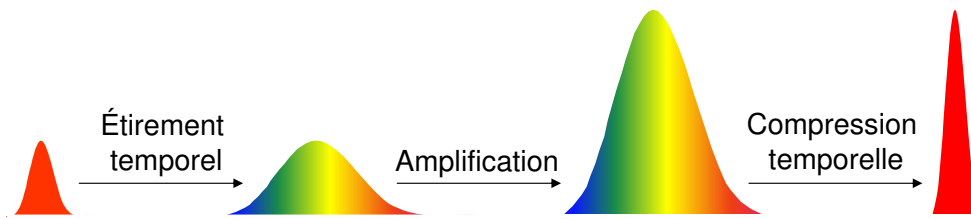


FIG. 1.3: Schéma de principe de la technique CPA

1.4 Étirement temporel des impulsions

Comme nous venons de le voir, les impulsions femtosecondes produites par un oscillateur doivent être étirées jusqu'à des durées de quelques centaines de picosecondes afin d'éviter les dommages optiques lorsqu'on souhaite amplifier celles-ci au niveau du Joule (pour une énergie de l'ordre du milliJoule, une durée de quelques dizaines de picosecondes suffit). Pour obtenir de tels facteurs d'étirement, seuls les réseaux de diffraction sont en mesure de fournir la quantité de dispersion d'ordre deux adéquate tout en conservant un système de taille raisonnable. L'étireur réalisé pour nos expériences utilise la géométrie du triplet de Öffner [16, 17, 18]. Celui-ci utilise un réseau de diffraction unique et un télescope constitué de deux miroirs sphériques concentriques, l'un concave et l'autre convexe, dont les rayons de courbure sont le double l'un de l'autre. Martinez [19] fut le premier à parler du principe de l'étireur en 1987 et notamment de l'utilisation d'un télescope entre les réseaux d'un compresseur pour modifier le signe de la dispersion.

Le schéma de l'étireur de type Öffner que nous avons réalisé est exposé dans la figure 1.4. L'impulsion incidente (à droite de la figure) est composée d'un ensemble de longueurs d'onde, qui arrivent toutes en même temps dans l'étireur. Deux miroirs m_1 et m_2 permettent d'injecter cette impulsion dans l'étireur et de réfléchir le faisceau incident sur le réseau de diffraction en réflexion noté ici R . Le réseau est gravé pour avoir une réflexion maximale au premier ordre de diffraction $p = 1$. Celui-ci introduit une dispersion angulaire des différentes longueurs d'onde contenues dans l'impulsion et les diffracte à un angle θ_d qui dépend de la longueur d'onde. La distance entre les miroirs sphériques est égale à la moitié du rayon de courbure du miroir concave M_2 .

La formule des réseaux permet de relier l'angle d'incidence i sur le réseau, l'angle

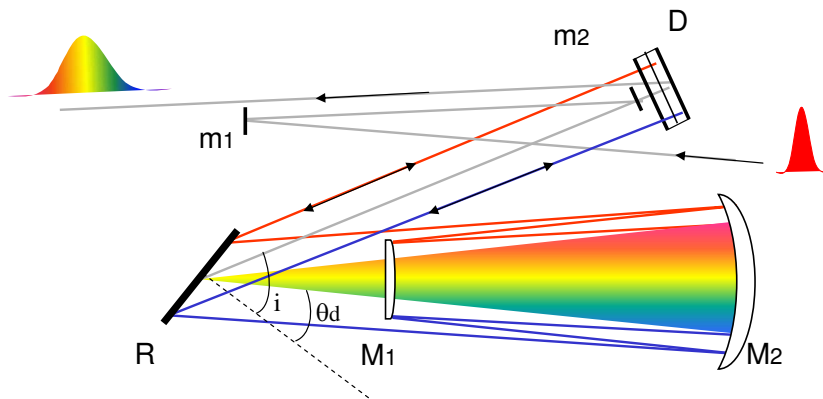


FIG. 1.4: Schéma d'un étireur à réseaux de type Öffner. Les fréquences "bleues" se retrouvent derrière les fréquences "rouges"

diffracté θ_d et la longueur d'onde centrale du spectre λ :

$$\sin i - \sin \theta_d = p \frac{\lambda}{\Lambda} \quad (1.20)$$

où Λ est la période du réseau et p est un entier.

Le faisceau diffracté est réfléchi par le miroir concave M_2 et le miroir convexe M_1 , puis est de nouveau diffracté par le réseau. Un dièdre D permet d'annuler la dispersion latérale du faisceau en lui faisant faire un deuxième passage dans le système (R, M_2, M_1).

Les longueurs d'onde les plus courtes sont les moins diffractées. Comme elles ont parcouru le plus long chemin, elles vont donc arriver après les longueurs d'ondes les plus longues. La durée de l'impulsion est ainsi allongée, avec les longueurs d'onde les plus longues en avant et les longueurs d'onde les plus courtes en arrière de l'impulsion étirée.

1.5 Compression temporelle des impulsions

La compression temporelle consiste à redonner à l'impulsion sa durée initiale, c'est-à-dire celle obtenue en sortie d'oscillateur, avant passage dans les étages d'amplification du laser. Le dispositif associé à la compression est un élément dispersif qui permet de compenser les différents ordres de dispersion introduits par la traversée de l'étireur et de l'ensemble des matériaux constituant le système laser. Les différents ordres de dispersion

du compresseur sont de signe opposé à ceux des matériaux et de l'étireur.

Dans les sections suivantes, nous allons décrire deux types de compresseur, l'un constitué de réseaux et l'autre de prismes.

1.5.1 Compresseur à réseaux

Le compresseur à réseaux est un dispositif comprenant deux réseaux de diffraction parallèles, disposés tels que le montre la figure 1.5. Les réseaux utilisés dans les compresseurs sont constitués de sillons parallèles et équidistants gravés sur une surface métallique pour les réseaux dits "gravés" ou sur une résine photosensible lorsqu'il s'agit de réseaux holographiques.

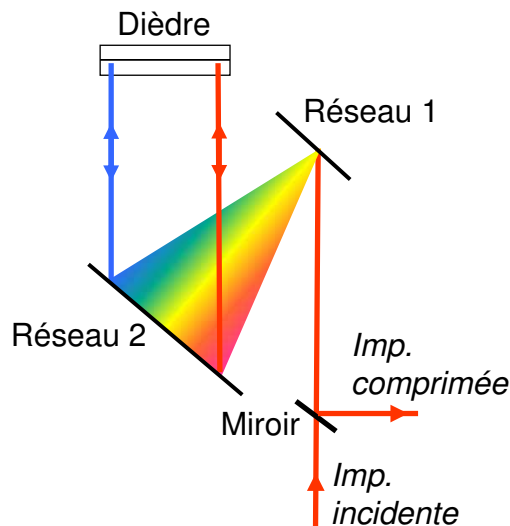


FIG. 1.5: Schéma d'un compresseur à réseaux

Les impulsions arrivent sous forme d'un faisceau spatialement collimaté sur le premier réseau de diffraction qui disperse les différentes composantes spectrales en direction du deuxième réseau, parallèle au premier. De même que dans un étireur, les réseaux effectuent ainsi un étalement spatial des longueurs d'onde en leur faisant parcourir un chemin différent. Cet étalement est compensé par un dièdre qui réfléchit les impulsions vers la paire de réseaux pour un second passage et les décale en hauteur. On récupère en sortie un faisceau spatialement et spectralement collimaté à l'aide d'un miroir de renvoi M situé en-dessous du trajet du faisceau incident.

La dispersion de vitesse de groupe d'un compresseur à réseaux s'écrit [17] :

$$\frac{d^2\varphi(\omega)}{d\omega^2} = -\frac{L \lambda^3 N^2}{\pi c^2 \cos^3 \theta_d} \quad (1.21)$$

où N est le nombre de traits par millimètre (tr/mm), θ_d est l'angle de diffraction et L est la distance entre les réseaux.

Le terme de dispersion sera donc plus important pour un réseau de $N = 2200$ tr/mm que pour un réseau de $N = 1200$ tr/mm. Un compresseur à réseaux permet de compenser le deuxième ordre de dispersion en ajustant la distance entre les réseaux (appelée tirage) et le troisième ordre en faisant varier l'angle d'incidence [17].

Après les différents étages d'amplification, le niveau d'énergie des impulsions est suffisamment élevé pour endommager les réseaux du compresseur si l'on ne prend aucunes précautions. Il faut en général veiller à diminuer la densité d'énergie des impulsions avant leur passage dans le compresseur en augmentant la taille du faisceau incident, grâce à un télescope disposé à l'entrée du compresseur.

1.5.2 Compresseur à prismes

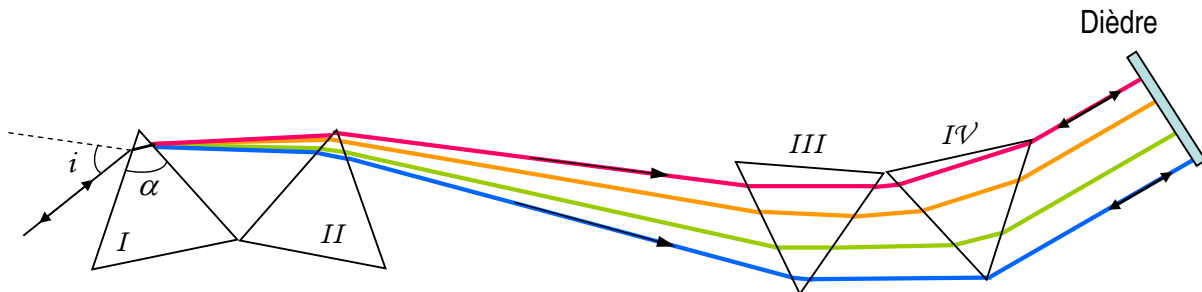


FIG. 1.6: Compresseur à quatre prismes. i est l'angle d'incidence et α l'angle au sommet

Pendant ma thèse, j'ai également utilisé un système de compression temporelle utilisant des prismes. Les principaux avantages d'un système à prismes comparé à un système à réseaux sont les faibles pertes en énergie et la facilité de mise en place [20]. En choisissant un matériau fortement dispersif pour les prismes, on peut compenser une dispersion forte introduite par l'ensemble matériaux + étireur d'un système laser.

Un compresseur à prismes est constitué d'une paire de m prismes. La configuration la plus simple et la plus courante est constituée de deux prismes positionnés tête bêche. Le système que nous avons réalisé contient une paire de double prismes, placés comme le montre la figure 1.6.

Les prismes sont orientés de telle sorte que le premier soit à l'angle de Brewster pour le faisceau incident et que les autres prismes soient au minimum de déviation [21]. Le plus souvent, l'angle au sommet des prismes est calculé de telle sorte que ces deux conditions soient respectées pour chaque prisme. Soient i , l'angle d'incidence sur le premier prisme et α , l'angle au sommet. La condition du minimum de déviation à la longueur d'onde centrale λ_o s'écrit :

$$i = i_D = \arcsin(n(\lambda_o) \cdot \sin(\alpha/2)) \quad (1.22)$$

La condition de Brewster minimisant les pertes par réflexions sur les faces des prismes s'écrit :

$$i = i_B = \arctan(n(\lambda_o)) \quad (1.23)$$

Le tableau ci-dessous résume les valeurs des angles au sommet pour deux types de matériaux pouvant constituer les prismes, à la longueur d'onde $\lambda_o = 800 \text{ nm}$.

| Type de matériau | Angle au sommet |
|------------------|-----------------|
| Silice | 69,1° |
| LaK8 | 60,83° |

TAB. 1.2: Angle au sommet des prismes en fonction du type de matériau

Toutes les composantes spectrales de l'impulsion femtoseconde incidente avec l'angle i sur la face d'entrée du premier prisme sont réfractées et traversent le prisme. Le faisceau spectralement étalé intercepte la face d'entrée du second prisme, subit de nouveau la réfraction, traverse le prisme et ainsi de suite jusqu'au quatrième prisme. A la suite de ce dernier, on place un dièdre de repli ou un miroir qui permet de repasser dans le système une seconde fois et donc de doubler la dispersion introduite (on parle de compresseur utilisé en double passage). Mais surtout, ce dièdre permet au faisceau de sortir du système spatialement collimaté et décalé en hauteur par rapport au faisceau incident.

La dispersion de vitesse de groupe d'une paire de double prismes s'écrit [20] :

$$\frac{d^2\varphi(\omega)}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2P(\lambda)}{d\lambda^2} \quad (1.24)$$

où $P(\lambda)$ représente le chemin optique total dans le système de prismes.

Pour illustrer l'influence du nombre de prismes constituant le compresseur sur la distance entre prismes internes et sur les dispersions du deuxième et troisième ordre, nous étudions l'exemple suivant : un signal de largeur à mi-hauteur égale à 80 nm , centré à 800 nm , ce qui correspond à une durée limitée par transformée de Fourier de 12 fs traverse les éléments suivants : une lentille (1 cm de BK7), deux polariseurs en Quartz (2 cm), une cellule de Pockels (2 cm de KD*P), une deuxième lentille (1 cm de BK7), 3 mm de BBO, une lame demi-onde de 5 mm en Quartz, $4 \times 1 \text{ cm}$ de Ti :Sa et enfin une deuxième lame demi-onde de 5 mm en Quartz. La dispersion totale du deuxième ordre pour l'ensemble de ces matériaux est égale à $5383,6 \text{ fs}^2$, à laquelle vient s'ajouter 2500 fs^2 introduit par un Dazzler (cf. chapitre 6). Au total, on a donc $7883,6 \text{ fs}^2$ et la dispersion d'ordre trois est, elle, égale à $3973,7 \text{ fs}^3$.

Dans cet exemple, les prismes sont en LaK8 et utilisés en double passage. Le diamètre du faisceau sur le premier prisme est de 2 mm . Le faisceau passe à 1 cm du sommet du prisme. La face du prisme a pour largeur 70 mm . Nous allons comparer les distances nécessaires entre les prismes dans le cas de systèmes à deux et quatre prismes permettant de compenser la même quantité de $\varphi^{(2)}$ et de $\varphi^{(3)}$. Les résultats sont indiqués dans le tableau 1.3, avec N le nombre de prismes et D la distance entre prismes.

| N | D (mm) | $\varphi^{(2)}(\omega_o)$ en fs^2 | $\varphi^{(3)}(\omega_o)$ en fs^3 |
|---|--------|--|--|
| 2 | 1748 | -7886 | -16350 |
| 4 | 305 | -7888 | -16100 |

TAB. 1.3: Influence du nombre de prismes sur la distance entre les prismes centraux, pour une même quantité de $\varphi^{(2)}$ et $\varphi^{(3)}$ à compenser

Plus le nombre de prismes du compresseur est grand, plus la distance entre les prismes est faible, et plus le système est compact.

Nous comparons maintenant les valeurs des dispersions d'ordre deux et trois obtenues pour une distance fixe de 305 mm entre prismes internes et des systèmes de deux, quatre ou six prismes : plus le nombre de prismes est grand, plus le $\varphi^{(2)}$ et le $\varphi^{(3)}$ sont importants,

| N | D (mm) | $\varphi^{(2)}(\omega_o)$ en fs^2 | $\varphi^{(3)}(\omega_o)$ en fs^3 |
|---|--------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| 2 | 305 | -218 | -2033 |
| 4 | 305 | -7888 | -16100 |
| 6 | 305 | -31700 | -65000 |

TAB. 1.4: Influence du nombre de prismes sur les valeurs du $\varphi^{(2)}$ et du $\varphi^{(3)}$, pour une même distance entre prismes centraux

pour une même distance entre prismes (cf. tab.1.4). Ceci est dû à la dispersion angulaire des chemins optiques qui est accentuée à chaque passage au travers d'un prisme. Si l'on souhaite compenser une grande quantité de dispersion d'ordre deux, il faudra alors se tourner vers un dispositif comportant plus de prismes que celui que nous avons réalisé [22, 23].

Les tableaux 1.5 et 1.6 suivants donnent les différents paramètres de systèmes à quatre prismes, permettant de compenser une telle quantité de dispersion d'ordre deux à 800 nm et constitués respectivement de prismes en silice et LAK8. L'utilisation de prismes en silice (peu dispersive autour de 800 nm) nécessite une distance entre les prismes centraux plus grande, l'alignement du système devient alors difficile à réaliser. Par contre, le choix de prismes en LAK8 permet grâce à une dispersion plus importante de réduire cette distance mais au prix d'une dispersion négative d'ordre trois généralement plus importante que la dispersion positive d'ordre trois à compenser.

Les compresseurs à prismes posent néanmoins des problèmes pour la compensation des ordres de dispersion supérieurs et ne permettent pas de recomprimer des faisceaux trop énergétiques à cause des phénomènes non linéaires qui peuvent se produire à l'intérieur même des prismes. Pour compenser les dispersions d'ordre supérieurs (ordre 3 et 4) résiduels, il faut alors utiliser d'autres dispositifs optiques tels qu'un filtre acousto optique programmable (AOPDF). Ce dispositif diffracte l'impulsion lumineuse incidente sur un réseau produit par une onde acoustique dans un cristal biréfringent. Il s'intègre sur le trajet du faisceau à recomprimer et introduit des dispersions d'ordre 2, 3 et 4 réglables. De

| Matériaux constituant les prismes | Distance en mm |
|-----------------------------------|----------------|
| Silice | 1084 |
| LaK8 | 305 |

TAB. 1.5: Influence du matériaux constituant les prismes sur la distance entre prismes centraux, pour une même valeur de $\varphi^{(2)}$ à compenser

| Matériaux | D en mm | $\varphi^{(2)}(\omega_o)$ en fs^2 | $\varphi^{(3)}(\omega_o)$ en fs^3 |
|-----------|---------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| LaK8 | 305 | -7888 | -16100 |
| Silice | 305 | -3908 | -5168 |

TAB. 1.6: Influence du matériau sur la valeur des dispersions d'ordre deux et trois, pour une même distance entre prismes internes

nombreuses équipes utilisent un système de recompression constitué de prismes et d'un AOPDF pour recomprimer des spectres larges [22, 24]. Une description de l'utilisation de cette technique pour recomprimer des impulsions amplifiées par OPCPA est faite dans le chapitre 4 (configuration hybride). Afin d'éviter l'apparition d'effets non linéaires pouvant endommager les optiques, on augmente généralement le diamètre des faisceaux avant de les comprimer temporellement dans la ligne de prismes.

Dans la technique d'amplification CPA, on procède à l'amplification des impulsions entre les phases d'étirement et de compression. Dans les paragraphes suivants, je vais décrire principalement un type d'amplificateur, l'amplificateur régénératif, que nous avons utilisé pour nos expériences.

1.6 L'amplificateur régénératif

Un amplificateur régénératif est une cavité laser amplificatrice possédant un gain élevé et dans laquelle l'impulsion à amplifier effectue de nombreux passages. Pour décrire le fonctionnement de cet amplificateur schématisé dans la figure 1.7, je vais traiter le cas d'impulsions pénétrant dans l'amplificateur avec une polarisation horizontale.

Le premier polariseur de type diélectrique (P_1) est positionné pour laisser passer cette impulsion. La lame demi-onde et le rotateur de Faraday (F) qui le suivent font tourner la polarisation de l'onde incidente vers une polarisation verticale. Le deuxième polariseur (P_2) réfléchit le faisceau vers la cellule de Pockels. Celle-ci agit comme une porte optique. Lorsqu'elle est ouverte, l'impulsion circule librement dans la cavité et peut être amplifiée. Lorsqu'elle est fermée, aucune amplification n'est possible. L'alignement de la cellule de Pockels a été réalisé de sorte que la cellule ne change pas la polarisation des impulsions quand la porte optique est ouverte et qu'un double passage dans la cellule tourne la polarisation de 90° quand la porte est fermée.

Le milieu amplificateur de la cavité régénérative est un cristal de saphir dopé au titane de 10 mm , taillé à l'angle de Brewster pour éviter les réflexions parasites sur ses faces.

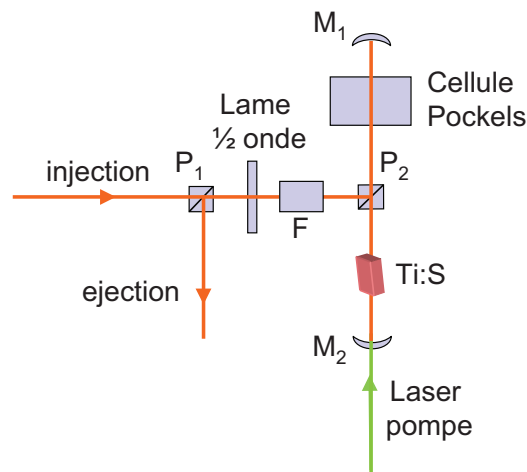


FIG. 1.7: Schéma de principe d'un amplificateur régénératif

Le polariseur (P_2) transmet l'impulsion en direction du cristal amplificateur à condition que sa polarisation soit horizontale. Le passage de la cellule de Pockels en mode ouvert permet alors à cette impulsion d'osciller dans la cavité. Une commutation en mode fermé tourne de nouveau la polarisation de l'impulsion et permet son éjection par la polariseur (P_2) après amplification. L'ensemble lame demi-onde et rotateur de Faraday laisse passer l'onde polarisée verticalement sans tourner sa polarisation. Finalement, le polariseur (P_1) réfléchit le faisceau désormais amplifié vers le reste de la chaîne laser. L'évolution de la polarisation de l'onde optique au cours de sa propagation dans l'amplificateur régénératif est résumée dans la figure 1.8 et le tableau 1.7 ci-après.

L'énergie de pompe est fournie au système par un laser Nd :YLF fonctionnant à une cadence de 1 kHz . Les impulsions de pompe sont synchronisées avec celles à amplifier à l'aide de cartes électroniques fonctionnant en générateurs de délais (BME-SG05P1 BME-G05P2, Bergman Messgeräte Entwicklung).

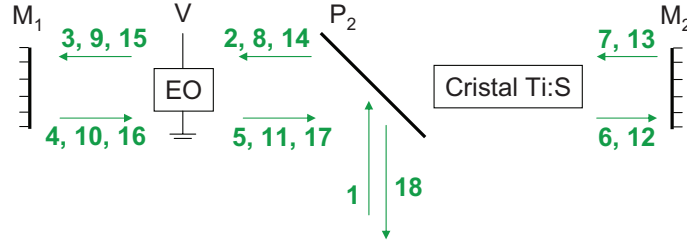


FIG. 1.8: Principe de fonctionnement d'une cavité régénérative

| Pos° | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6, 12 | 7, 13 | 8, 14 | 9 | 10 | 11 | 15 | 16 | 17 | 18 |
|--------|---|---|-------------|---|-------------|-------|-------|-------|-------------|----|-------------|-------------|----|-------------|----|
| Polar° | ↑ | ↓ | ⊙ | ⊙ | ⊙ | ⊙ | ⊙ | ⊙ | ↓ | ↑ | ⊙ | ⊙ | ⊙ | ↑ | ↓ |
| Déph. | | | 0 | | 0 | | | | $\lambda/4$ | | $\lambda/4$ | 0 | | 0 | |
| Pock. | | | $\lambda/4$ | | $\lambda/4$ | | | | $\lambda/2$ | | $\lambda/2$ | $\lambda/4$ | | $\lambda/4$ | |
| Mode | | | F | | F | | | | O | | O | F | | F | |

TAB. 1.7: Evolution de la polarisation de l'onde optique pour 2 passages dans le cristal de la cavité régénérative. \odot : polarisation horizontale, \uparrow : verticale, \ominus : circulaire droite, \oplus : circulaire gauche. Pos° : Position de l'impulsion dans la cavité, Polar° : Etat de polarisation de l'impulsion, Déph. : déphasage induit par la tension appliquée, Pock. : état de polarisation de la Pockels. F : fermé, O : ouvert

Rappelons brièvement le fonctionnement d'une cellule de Pockels (C. A. Pockels 1893). Il s'agit d'un commutateur de polarisation qui agit comme un interrupteur pour la cavité laser de l'amplificateur régénératif en changeant la polarisation de l'onde optique par l'application d'une tension électrique. Quand la cellule est en mode "fermé", l'oscillation laser ne démarre pas, même si le matériau amplificateur est pompé optiquement. Quand on "ouvre" la cellule, on extrait une impulsion de puissance élevée. Le temps d'établissement de cet effet est rapide (entre quelques centaines de picosecondes $10^{-12}s$ et une nanoseconde,

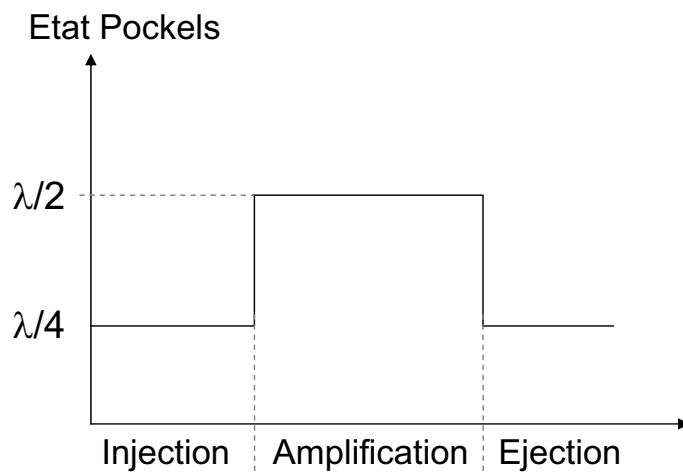


FIG. 1.9: État de polarisation de la cellule de Pockels

$10^{-9}s$). Dans le cas où la tension appliquée est égale à 0, l'onde est bloquée car la cellule se comporte comme une lame quart d'onde et l'oscillation laser ne se déclenche pas. Dans le cas où la tension est telle que le déphasage vaut $\lambda/4$, l'onde peut circuler dans la cavité car la cellule est équivalente à une lame demi-onde ($\lambda/4 + \lambda/4 = \lambda/2$) et peut être amplifiée dans le milieu actif.

L'effet physique qui intervient dans le fonctionnement d'une cellule de Pockels est l'effet electro-optique. L'application d'un champ électrique statique (tension électrique élevée) sur le cristal de la Pockels entraîne des modifications de ses propriétés optiques, comme par exemple ses indices de réfraction. L'onde optique traversant le cristal voit alors sa polarisation changée.

Les matériaux utilisés pour obtenir un effet Pockels important sont des cristaux biréfringents uniaxes négatifs de symétrie tétragonale $\bar{4}2m$ ou rhomboédrique $3m$. J'ai résumé dans le tableau ci-dessous quelques exemples de cristaux. Des précisions sur ces types de cristaux seront données dans le chapitre suivant.

Il existe un autre type d'amplificateurs pour lesquels l'impulsion effectue seulement quelques passages dans le milieu à gain (typiquement moins de 10 passages). On les nomme amplificateurs à multi-passages géométriques. Ils possèdent un gain moins élevé que celui que l'on peut obtenir avec un amplificateur régénératif et sont souvent utilisés en tant que pré-amplificateur ou amplificateur de puissance.

| Nom commun du cristal | n_o | n_e | classe |
|-----------------------------|--------|--------|-------------|
| <i>KDP</i> à 0.546 μm | 1,514 | 1,472 | $\bar{4}2m$ |
| <i>KD*P</i> à 0.546 μm | 1,508 | 1,468 | $\bar{4}2m$ |
| <i>ADP</i> à 0.546 μm | 1,53 | 1,483 | $\bar{4}2m$ |
| <i>LiNbO3</i> à 0.5 μm | 2,3410 | 2,2457 | $3m$ |

TAB. 1.8: Exemple de cristaux uniaxes permettant l'effet Pockels [25]

1.7 Limites de la technique CPA

La technique CPA, malgré la révolution qu'elle a engendré dans le domaine des lasers depuis sa mise en œuvre, n'est plus nécessairement la meilleure technique à utiliser pour fabriquer des lasers ultra courts et ultra intenses. En effet, le titane-saphir, matériau amplificateur traditionnellement utilisé dans la technique CPA, n'est accordable que sur une centaine de nanomètres, ce qui limite la bande spectrale d'amplification des impulsions et par conséquent leur durée. De plus, elle nécessite de nombreux éléments optiques et de nombreux lasers de pompe ce qui représente un coût élevé et un encombrement important. Cette section détaille les inconvénients liés à la technique CPA elle-même ainsi que ses limites techniques.

1.7.1 Problème de contraste

Le milieu actif d'un laser émet spontanément des photons dans toutes les directions de l'espace avec la même probabilité. Il existe une certaine probabilité pour que ce rayonnement se fasse dans la direction d'amplification de la cavité laser et soit donc amplifié. Ce phénomène donne naissance à du bruit, indésirable pour l'amplificateur [10], connu sous le nom d'émission spontanée amplifiée ou ASE pour "amplified spontaneous emission". L'ASE ne possède pas de bonnes propriétés de cohérence car elle est générée par des photons pour la plupart incohérents et représente un problème lorsqu'on utilise plusieurs amplificateurs à la suite les uns des autres car celle-ci est réamplifiée à chaque étage et rentre en compétition avec le signal [26]. L'ASE apparaît dans le profil temporel d'une impulsion sous la forme d'un piédestal nanoseconde qui diminue ainsi le contraste de l'impulsion. Le contraste temporel est en effet défini comme le rapport entre le niveau

maximal de l'intensité temporelle et le niveau de bruit temporel.

Par ailleurs, si le système CPA possède un amplificateur régénératif, le contraste sera également diminué. En effet, à chaque tour de cavité, une petite fraction de l'impulsion est éjectée par le polariseur de sortie qui ne peut être parfait et avoir un taux d'extinction de 100%. Le système produit ainsi des pré-impulsions, espacées dans le temps par un multiple entier du temps nécessaire pour effectuer un tour de cavité, et ceci, avant l'éjection de l'impulsion principale. Sans isolation de ces pré-impulsions parasites, le contraste qui en résulte est faible (10^3) et n'est pas toujours compatible avec les expériences d'interaction forte sur cible solide ou gazeuse. Si l'intensité de ces pré-impulsions est suffisamment élevée, elles peuvent détruire la cible avant l'arrivée de l'impulsion principale. Il en est d'ailleurs de même pour l'ASE si son niveau est trop élevé. Pour éviter la pré-ionisation des cibles, il est nécessaire d'avoir un contraste relatif aux pré-impulsions et à l'ASE de plus de 10^8 . Il existe dorénavant des techniques permettant d'améliorer le contraste [27, 28, 29] des systèmes CPA, mais ceux-ci ne sont pas toujours simples à mettre en place.

1.7.2 Problème du rétrécissement par le gain

Dans les amplificateurs à multi-passages, l'impulsion passe plusieurs fois dans le milieu à gain. Ce milieu possède une bande de gain spectral de largeur finie. Au premier passage dans l'amplificateur, les longueurs d'onde du spectre de l'impulsion qui sont proches de la longueur d'onde de résonance de la courbe de gain seront plus amplifiées que les longueurs d'onde situées dans les ailes du spectre, subissant un gain moins intense. Au deuxième passage, c'est de nouveau cette même zone du spectre qui sera la plus amplifiée. Au bout de plusieurs passages successifs dans le milieu à gain, le niveau d'intensité au centre du spectre est nettement plus élevé que sur les côtés. La largeur à mi-hauteur du spectre est ainsi diminuée [30].

On peut compenser ce rétrécissement en utilisant un filtre acousto-optique programmable [31], mais cela réduit l'énergie introduite dans le premier amplificateur. L'équipe de Kalashnikov propose l'utilisation d'un système combinant un CPA chirpé positivement et un CPA chirpé négativement [32], qui permet une réduction plus faible du spectre après amplification. Cette technique ne permet pas encore de récupérer la totalité des composantes spectrales générées par l'oscillateur.

Nous allons calculer la largeur à mi-hauteur du spectre d'une impulsion de forme temporelle gaussienne après passage dans un milieu amplificateur de longueur L et de coefficient de gain en intensité $\alpha(\omega)$. Nous ne tenons pas compte ici des effets de chirp linéaire (DVG) ou non linéaire (auto-modulation de phase) présents dans les impulsions ultra-courtes, mais seulement de l'effet de filtrage spectral par l'amplificateur. D'après les équations (1.5) et (1.6), le champ électrique s'écrit :

$$\begin{aligned} E(t) &= A(t).exp(i \omega_o t) \\ &= A_o \exp \left[- \left(\frac{t\sqrt{2\ell n 2}}{\Delta t} \right)^2 \right] exp (-i \omega_o t) \end{aligned} \quad (1.25)$$

La composante spectrale du champ électrique s'écrit alors :

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 \exp \left[- \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega} \right)^2 \right] \quad (1.26)$$

Le coefficient de gain en intensité de l'amplificateur titane saphir suit une loi de Poisson qu'on peut assimiler à une lorentzienne, centrée en ω_o et de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ [30, 33] :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha(\omega_0)}{1 + \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_\alpha} \right)^2} \quad (1.27)$$

Le champ spectral après amplification devient :

$$\begin{aligned} \tilde{E}(\omega)_{ampli} &= \tilde{E}(\omega) \exp \left[\frac{\alpha(\omega)}{2} L \right] \\ &= \tilde{E}_0 \exp(g). \exp \left[- \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega'} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (1.28)$$

avec $g = \frac{\alpha(\omega)}{2} L$

La nouvelle largeur à mi-hauteur $\Delta\omega'$ est donnée par :

$$\left(\frac{1}{\Delta\omega'} \right)^2 = \left(\frac{1}{\Delta\omega} \right)^2 + \frac{g}{(\Delta\omega_\alpha)^2} \quad (1.29)$$

La demi-largeur temporelle à mi-hauteur devient alors :

$$(\Delta t')^2 = \frac{4}{(\Delta\omega')^2} = (\Delta t)^2 + \frac{4g}{\Delta\omega_\alpha} \quad (1.30)$$

Le spectre du signal amplifié est alors rétréci et, par transformée de Fourier, la durée de l'impulsion est ainsi allongée. La figure 1.10 illustre cet effet en comparant les spectres obtenus à différents endroits d'un système laser CPA. Le spectre initial de 38 nm de large est fortement réduit après passage dans un amplificateur régénératif suivi d'un amplificateur à quatre passages et ne fait plus que 22 nm de large.

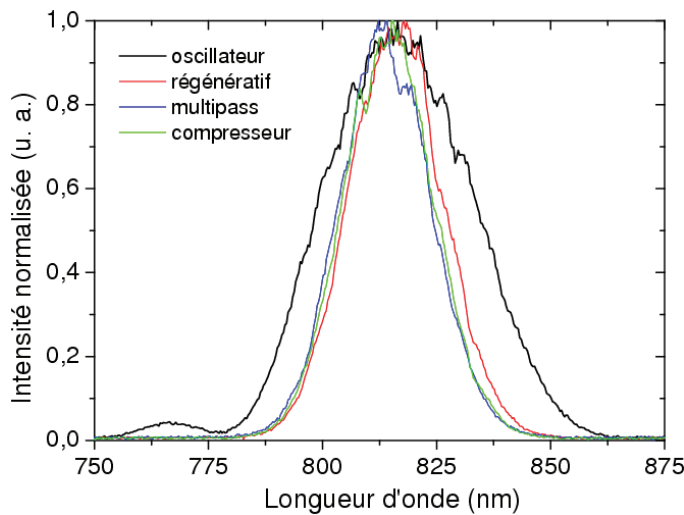


FIG. 1.10: Illustration du rétrécissement par le gain observé dans une chaîne laser CPA

On peut toutefois noter que l'effet de rétrécissement spectral intervient principalement dans le pré-amplificateur régénératif dont le gain est très élevé. Il reste en revanche limité dans les amplificateurs à faible gain.

1.7.3 Intégrale B

La variation de l'indice de réfraction avec l'intensité ($n = n_o + n_2 \cdot I$) provoque une distorsion du front d'onde de l'impulsion. Cette distorsion peut être caractérisée par une phase non linéaire ou intégrale B :

$$\phi_{NL} = \frac{2\pi n_2}{\lambda} \int_0^L I(L) dL \quad (1.31)$$

où L est la longueur de matériau traversé.

L'intégrale B doit être inférieure à 1 radian pour que les effets d'auto-focalisation soient faibles. Dans un système CPA, les impulsions générées par l'oscillateur traversent un grand nombre de matériaux qui vont contribuer chacun à augmenter la valeur de la phase non linéaire. L'intégrale B d'un système laser CPA sera comparée avec celle d'un système OPA dans la section du chapitre 2 consacrée à la technique d'amplification paramétrique.

1.7.4 Complexité et encombrement

Un système laser utilisant la technique CPA comporte comme nous venons de le voir un certain nombre d'éléments indispensables à sa réalisation. Malgré les efforts concernant la compacité des systèmes laser, entre chaque élément de la chaîne, il faut disposer de suffisamment de miroirs, de polariseurs et autres lentilles pour que les caractéristiques du faisceau soit celles recommandées pour une efficacité optimale, ce qui représente une certaine complexité et un coût élevé. Cependant, cette solution est la plus largement utilisée pour des raisons de simplicité conceptuelle, même s'il existe de plus en plus de systèmes innovants, comme l'amplification paramétrique optique qui fait l'objet de ce manuscrit.

Chapitre 2

Optique non linéaire

L'Optique non linéaire regroupe l'ensemble des phénomènes optiques qui apparaissent quand la réponse d'un matériau à l'excitation par un champ électromagnétique intense est non linéaire en fonction de l'amplitude de ce champ. De tels phénomènes ne sont facilement observés que dans les cas de sources lumineuses cohérentes intenses : les lasers. Cette non linéarité permet en particulier des interactions entre faisceaux à l'intérieur du matériau. Depuis l'apparition des lasers au début des années 1960, une grande variété d'effets non linéaires a été découverte et ceux-ci possèdent de nombreuses applications technologiques (dans le domaine des télécommunications, par exemple). Nous allons voir dans ce chapitre comment certains processus d'optique non linéaire peuvent permettre l'amplification d'impulsions ultra-courtes. Je rappelle tout d'abord les équations de Maxwell macroscopiques et introduit les relations constitutives qui décrivent la propagation d'une onde électromagnétique dans un matériau. Dans un deuxième temps, la propagation dans un milieu non linéaire sera étudiée et mettra en évidence deux types d'interactions non linéaires du deuxième ordre, la différence de fréquence et la génération de second harmonique qui ont été utilisés dans nos expériences. Enfin seront traités les milieux isotropes et anisotropes, afin de montrer comment la lumière s'y propage et d'introduire les notions d'indice ordinaire, extraordinaire, de milieu biaxe et uniaxe qui seront utilisées plus tard dans la description des amplificateurs OPA.

2.1 Equations de Maxwell et relations constitutives

Quand une onde lumineuse interagit avec un matériau, le champ électrique polarise les molécules, les électrons se déplacent et induisent ainsi des dipôles oscillants à l'intérieur

de ce matériau. La fréquence d'oscillation de ces dipôles est identique à la fréquence du champ électrique incident. La somme de tous les dipôles est la polarisation, que l'on note \mathbf{P} .

Les équations de Maxwell macroscopiques permettent de relier l'évolution des champs et des inductions électriques et magnétiques aux densités de courant et de charge qui existent dans le matériau. Elles sont valables pour tous les phénomènes électromagnétiques. Elles sont données ici en unités internationales S.I. :

$$\begin{aligned}\nabla \wedge \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho \\ \nabla \wedge \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{I} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0\end{aligned}\tag{2.1}$$

où $\mathbf{H}(\vec{r}, t)$ est le champ magnétique, $\mathbf{B}(\vec{r}, t)$ l'induction magnétique, $\mathbf{E}(\vec{r}, t)$ le champ électrique, $\mathbf{D}(\vec{r}, t)$ l'induction électrique, $\mathbf{I}(\vec{r}, t)$ la densité de courant et ρ la densité de charge à l'échelle atomique.

Le vecteur déplacement électrique (ou induction électrique) et l'induction magnétique s'écrivent :

$$\begin{cases} \mathbf{D}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \mathbf{E}(\vec{r}, t) + \mathbf{P}(\vec{r}, t) \\ \mathbf{B}(\vec{r}, t) = \mu_o \cdot [\mathbf{H}(\vec{r}, t) + \mathbf{J}(\vec{r}, t)] \end{cases}\tag{2.2}$$

ε_o est la permittivité du vide ($\varepsilon_o = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$), $\mathbf{P}(\vec{r}, t)$ et $\mathbf{J}(\vec{r}, t)$ sont les polarisations dipolaires électriques et magnétiques, calculées à partir des densités de charge et de courant par l'équation de mouvement des charges :

$$\begin{cases} \mathbf{P}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \chi \cdot \mathbf{E}(\vec{r}, t) \\ \mathbf{J}(\vec{r}, t) = \kappa \cdot \mathbf{H}(\vec{r}, t) = 0 \end{cases}\tag{2.3}$$

où χ est la susceptibilité linéaire électrique et κ la susceptibilité linéaire magnétique. On se place dans un milieu non magnétique et donc $\mathbf{J} = 0$.

Ces dernières relations sont les relations constitutives . Elles complètent les équations de Maxwell et permettent ainsi de décrire l'évolution de l'onde électromagnétique au cours

de sa propagation. Par exemple, c'est à partir de ces équations et plus particulièrement de la polarisation $\mathbf{P}(\vec{r}, t)$ que l'on pourra prendre en compte les modifications des propriétés optiques d'un matériau traversé par un faisceau laser intense.

2.2 Propagation non linéaire

2.2.1 Polarisation non linéaire

Lorsque le champ appliqué sur le matériau est du même ordre de grandeur que le champ électrique atomique $E_{at} = 10^8 \text{ esu}$ [34], on sort du domaine linéaire où $\mathbf{P}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \cdot \chi \cdot \mathbf{E}(\vec{r}, t)$.

$E_{at} = e/a_o^2$ où $-e$ est la charge de l'électron et $a_o = \hbar^2/me^2$ est le rayon de Bohr de l'atome d'Hydrogène, avec \hbar , la constante de Planck divisée par 2π et m , la masse de l'électron [35]. Le champ E_{at} est exprimé en statvolt/cm.

La polarisation est alors la somme d'une polarisation linéaire notée \mathbf{P}_L , proportionnelle à l'amplitude du champ et d'une polarisation non linéaire notée \mathbf{P}_{NL} :

$$\mathbf{P}(\vec{r}, t) = \mathbf{P}_L(\vec{r}, t) + \mathbf{P}_{NL}(\vec{r}, t) \quad (2.4)$$

La polarisation induite, qui n'est donc plus proportionnelle à l'amplitude du champ appliqué, s'écrit comme la somme des différentes polarisations non linéaires $\mathbf{P}^{(n)}$ d'ordre n , où chaque $\mathbf{P}^{(n)}$ est le produit de n champ électriques \mathbf{E} :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\vec{r}, t) &= \mathbf{P}^{(1)}(\vec{r}, t) + \mathbf{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \mathbf{P}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots + \mathbf{P}^{(n)}(\vec{r}, t) \\ &= \int \int \varepsilon_o (\chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} \cdot \mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^{(3)} \cdot \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots) \cdot d\vec{r} \cdot dt \end{aligned} \quad (2.5)$$

où $\mathbf{P}^{(1)}(\vec{r}, t) = \int \int \varepsilon_o \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} \cdot d\vec{r} \cdot dt = \mathbf{P}_L(\vec{r}, t)$ correspond à la partie linéaire de la polarisation.

Pour simplifier l'écriture, le champ électrique est noté \mathbf{E} . La notation rigoureuse montrant la dépendance en \vec{r} et t est $\mathbf{E}(\vec{r}, t)$. Par la suite, cette écriture simplifiée sera employée dans certaines équations, par souci de clarté.

Nous faisons l'approximation permettant d'écrire la polarisation comme une somme discrète au lieu d'une intégrale double sur l'espace et le temps, car le temps de réponse non-linéaire du milieu est supposé plus court que la durée des impulsions [21] :

$$\tau_{NL} \ll \Delta t \quad (2.6)$$

Quand cette condition est applicable, les termes situés sous l'intégrale double s'écrivent comme un produit de fonctions delta de Dirac et le calcul de l'intégrale se simplifie en une sommation discrète sur les différents indices de pulsations intervenant dans le processus non-linéaire. Ceci est valable pour des durées d'impulsions plus longues que $10fs$. En-dessous de cette durée, le formalisme décrit ici n'est plus valable et il faut prendre en compte une intégration sur le temps et l'espace.

On écrit alors :

$$\begin{cases} P_i^{(1)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \cdot \sum_j \chi_{ij}^{(1)} \cdot E_j(\vec{r}, t) \\ P_i^{(2)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \cdot \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} \cdot E_j(\vec{r}, t) \cdot E_k(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.7)$$

Et plus généralement, pour une polarisation d'ordre n :

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \cdot \sum_{j_1 \dots j_n} \chi_{ij_1 \dots j_n}^{(n)} \cdot E_{j_1}(\vec{r}, t) \cdot E_{j_2}(\vec{r}, t) \dots E_{j_n}(\vec{r}, t) \quad (2.8)$$

Le coefficient $\chi^{(n)}$ introduit dans l'équation précédente est la susceptibilité non linéaire d'ordre n. C'est la constante de proportionnalité entre la polarisation non linéaire et le produit des amplitudes des n champs électriques $\mathbf{E}(\vec{r}, t)$. La susceptibilité non linéaire d'ordre n est un tenseur de rang n+1.

2.2.2 Equation de propagation non linéaire

Dans ce contexte, le milieu est non linéaire, non magnétique, sans charge ni courant et les ondes sont considérées comme planes. En utilisant les équations de Maxwell et les relations constitutives, on peut écrire :

$$\begin{aligned} \nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) &= -\frac{\partial}{\partial t} (\nabla \wedge \mathbf{B}) \\ &= -\mu_o \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \end{aligned} \quad (2.9)$$

avec

$$\begin{aligned}
\mathbf{D} &= \varepsilon_o \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} \\
&= \varepsilon_o \cdot \mathbf{E} + \varepsilon_o \cdot \boldsymbol{\chi}^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \\
&= \varepsilon_o (\mathbf{1} + \boldsymbol{\chi}^{(1)}) \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \\
&= \mathbf{D}_L + \mathbf{P}_{NL}
\end{aligned} \tag{2.10}$$

On obtient ainsi l'équation de propagation de l'onde électromagnétique :

$$\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) + \mu_o \frac{\partial^2 \mathbf{D}_L}{\partial t^2} = -\mu_o \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.11}$$

que l'on peut encore écrire :

$$\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) + \mu_o \cdot \varepsilon^{(1)} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_o \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.12}$$

avec $\varepsilon^{(1)} = \varepsilon_o (\mathbf{1} + \boldsymbol{\chi}^{(1)}) = \varepsilon_o \cdot \varepsilon_r$.

Dans le cas d'ondes planes, cette équation peut être simplifiée en développant l'expression $\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E})$:

$$\begin{aligned}
\nabla \wedge \nabla \wedge \mathbf{E} &= \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \\
&= -\nabla^2 \mathbf{E}
\end{aligned} \tag{2.13}$$

En outre, comme les lasers concernés par cette étude possèdent un spectre large, le champ électrique doit être décomposé en ses différentes composantes spectrales. On écrit le champ comme une somme d'ondes planes monochromatiques de pulsation ω_p . Il en est de même pour l'induction électrique et la polarisation non linéaire :

$$\left\{ \begin{array}{l}
\mathbf{E}(\vec{r}, t) = \sum_p \mathbf{E}_p(\vec{r}, t) = \sum_p \mathbf{E}_p(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_p t} + c.c. \\
\mathbf{P}_{NL}(\vec{r}, t) = \sum_p \mathbf{P}_p^{NL}(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_p t} + c.c. \\
\mathbf{D}(\vec{r}, t) = \sum_p \mathbf{D}_p(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_p t} + c.c.
\end{array} \right. \tag{2.14}$$

L'équation de propagation non linéaire peut donc s'écrire, pour chacune des pulsations ω_p contenues dans le spectre du laser, sous la forme :

$$-\nabla^2 \mathbf{E}_p(\vec{r}, t) + \mu_o \cdot \varepsilon^{(1)} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_p(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = -\mu_o \frac{\partial^2 \mathbf{P}_p^{NL}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \tag{2.15}$$

soit,

$$-\nabla^2 \mathbf{E}_p(\vec{r}) - \omega_p^2 \mu_o \varepsilon^{(1)} \mathbf{E}_p(\vec{r}) = \omega_p^2 \mu_o \cdot \mathbf{P}_p^{NL}(\vec{r}) \quad (2.16)$$

2.2.3 Susceptibilité non linéaire et symétries

2.2.3.1 Les symétries

La susceptibilité non linéaire possède un certain nombre de propriétés de symétrie qu'il est important de prendre en compte car elles permettent de réduire considérablement le nombre de composantes contenues dans le tenseur $\chi^{(n)}$. Ces symétries sont étudiées ci-après. Pour simplifier les notations, on se limitera à une non linéarité du deuxième ordre dans tous les cas de symétries présentés. La susceptibilité du deuxième ordre peut être notée $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$, étant entendu que le premier terme de pulsation ω_3 est la somme des deux termes suivants et que les indices ijk correspondent aux axes (x, y, z) d'un repère cartésien. Cette notation peut aussi être simplifiée et écrite $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$.

Champs réels

La polarisation est une quantité mesurable, donc purement réelle, tout comme le champ électrique. Comme la polarisation et le champ sont reliés entre eux par la susceptibilité du deuxième ordre, les composantes positives et négatives de la susceptibilité non linéaire peuvent alors être reliées l'une à l'autre :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; -\omega_1, -\omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)^* \quad (2.17)$$

Permutation intrinsèque

Le coefficient $\chi_{ij_1 j_2 \dots j_n}^{(n)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n)$ est invariant par permutation sur les couples (ω_1, j_1) , (ω_2, j_2) , ..., (ω_n, j_n) car les indices j_1, j_2 etc et n sont arbitraires. Dans le cas d'une non linéarité d'ordre deux, les deux derniers indices peuvent alors être intervertis sans modification de $\chi_{ijk}^{(2)}$:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_2, \omega_1) \quad (2.18)$$

Milieu sans perte

Quand le milieu est sans perte (c'est-à-dire sans absorption ou dispersion), deux symétries supplémentaires peuvent s'appliquer à la susceptibilité non linéaire. La première propriété d'un milieu sans perte est que toutes les composantes $\chi_{ij_1 j_2 \dots j_n}^{(n)}$ sont réelles. La deuxième propriété est la symétrie de permutation totale. Toutes les composantes de la susceptibilité

non linéaire peuvent être interchangées librement. Par exemple dans le cas du deuxième ordre :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1; \omega_2, -\omega_3) \quad (2.19)$$

Ces relations sont connues sous le nom de ABDP (pour Armstrong, Bloembergen, Ducuing et Pershan)[36].

En combinant les quatre propriétés de symétrie que sont la réalité des champs, la symétrie intrinsèque, la réalité de la susceptibilité non linéaire et la permutation totale dans le cas d'un milieu sans perte, la suite d'égalités successives entre les différentes composantes de $\chi^{(2)}$ peut s'écrire ainsi :

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1; \omega_2, -\omega_3) \\ &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1; -\omega_2, \omega_3)^* \\ &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1; -\omega_2, \omega_3) \end{aligned} \quad (2.20)$$

Par suite, la susceptibilité non linéaire du deuxième ordre d'un milieu sans perte est un tenseur $3 \times 3 \times 3$ composée de 27 termes indépendants.

Symétrie de Kleinman

Cette symétrie s'applique quand les fréquences des ondes mises en jeu sont plus faibles que la plus petite fréquence de résonance du matériau. Dans ce cas, $\chi^{(2)}$ est indépendante de la fréquence.

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{jki}^{(2)} = \chi_{kij}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} = \chi_{jik}^{(2)} = \chi_{kji}^{(2)} \quad (2.21)$$

Pour simplifier, on introduit une notation tensorielle contractée d_{ijk} qui est plus souvent utilisée que $\chi^{(2)}$ car elle ne contient que 18 composantes. La relation entre la susceptibilité non linéaire du deuxième ordre et cette notation contractée est telle que :

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (2.22)$$

Il est alors possible de simplifier l'écriture des indices de ce tenseur en remplaçant les deux derniers indices j et k par un indice unique ℓ défini comme suit :

| jk | 11 | 22 | 33 | 23=32 | 13=31 | 12=21 |
|--------|----|----|----|-------|-------|-------|
| ℓ | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |

TAB. 2.1: Simplification des coefficients d_{ijk}

Le tenseur contracté $d_{i\ell}$ peut alors s'écrire sous la forme d'une matrice 3×6 [35] :

$$d_{i\ell} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

La symétrie de Kleinman [37] permet de permuter librement les indices d_{ijk} . Par exemple :

$$\begin{cases} d_{13} = d_{133} = d_{313} = d_{35} \\ d_{25} = d_{213} = d_{123} = d_{14} \end{cases} \quad (2.24)$$

Le tenseur $d_{i\ell}$ se simplifie alors comme suit :

$$d_{i\ell} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

Ainsi, il ne reste plus que 10 termes indépendants.

Les valeurs des éléments du tenseur $d_{i\ell}$ sont caractéristiques du milieu non linéaire. Dans le cas d'un cristal, les symétries spatiales supplémentaires simplifient encore le tenseur en réduisant le nombre de composantes indépendantes $d_{i\ell}$.

En particulier, toutes les susceptibilités dipolaires d'ordre pair sont nulles pour les systèmes ayant la symétrie d'inversion. Autrement dit, $\chi^{(i)}$ (avec i pair) sera non nul seulement pour les cristaux non-centrosymétriques (c'est-à-dire sans centre d'inversion). Les critères de symétrie des cristaux sont déterminés par la classe (ou groupe de symétrie) à laquelle ils appartiennent. Rappelons qu'il existe 7 systèmes cristallins regroupant 32 classes de cristaux dont 21 sont non-centrosymétriques.

2.2.3.2 Valeur effective de $d_{i\ell}$

Pour une symétrie donnée, c'est-à-dire pour une direction de propagation et de polarisation bien déterminées, une valeur effective du coefficient $d_{i\ell}$, notée d_{eff} , peut être définie afin d'estimer l'efficacité relative des processus non linéaires du deuxième ordre. Celle-ci est déterminée par l'expression de $P_i^{(2)}$ donnée dans l'équation (2.7) en faisant la somme sur tous les indices j et k [35].

Le calcul du coefficient effectif pour chaque classe de cristal a été présenté par Midwinter en 1965 [38, 39]. Il montre ainsi que, pour la classe de cristaux 3m, dans le cas du "type I", on a (cf. fig.2.1) :

$$d_{eff} = d_{31} \cdot \sin \theta - d_{22} \cdot \cos \theta \cdot \sin 3\varphi \quad (2.26)$$

où le type I représente le cas d'une interaction entre deux ondes de même polarisation.

Dans le cas de deux ondes de polarisations orthogonales, on parle de "type II" et le coefficient effectif s'écrit :

$$d_{eff} = d_{22} \cdot \cos^2 \theta \cdot \cos 3\varphi \quad (2.27)$$

Dans les deux cas, θ est l'angle entre la direction de propagation et l'axe optique z et φ est l'angle azimuthal entre la direction de polarisation et le plan cristallin (xz), comme indiqué sur la figure 2.1.

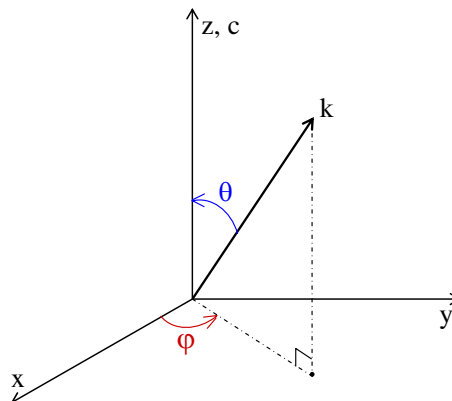


FIG. 2.1: Définition des angles θ et φ par rapport au vecteur d'onde k

2.3 Milieu isotrope et milieu anisotrope

2.3.1 Milieu isotrope

Les propriétés optiques d'un milieu isotrope (par exemple les milieux amorphes tels que le verre) sont toujours les mêmes, quelle que soit la direction de propagation des rayons lumineux qui le traversent. Le vecteur déplacement électrique \mathbf{D} est parallèle au champ électrique appliqué \mathbf{E} , quelle que soit l'orientation de ce champ. Il existe une relation de proportionnalité entre le champ appliqué et la polarisation induite dans le matériau par ce champ. On aura alors :

$$\mathbf{P} = \varepsilon_o \cdot \chi \cdot \mathbf{E} \quad (2.28)$$

où χ est la susceptibilité du matériau et ε_o est la permittivité du vide.

L'induction \mathbf{D} devient alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \varepsilon_o \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P} \\ &= \varepsilon_o (1 + \chi) \cdot \mathbf{E} \\ &= \varepsilon_o \cdot \varepsilon_r \cdot \mathbf{E} \end{aligned} \quad (2.29)$$

où ε_r est la constante diélectrique du matériau telle que $\varepsilon_r = 1 + \chi$.

2.3.2 Milieu anisotrope

L'existence des milieux anisotropes a été mise en évidence en 1669, par Erasme Bartholin qui observa un dédoublement d'objets regardés à travers un cristal de calcite (ou spath d'Islande).

Le plus souvent, un cristal présente une structure géométrique avec des surfaces planes et des angles qui se répètent. En optique cristalline, l'arrangement ordonné des atomes constitutifs caractérisant les cristaux fait ressortir des directions privilégiées. Par opposition à l'état cristallin, on parle d'état amorphe pour les milieux n'ayant pas d'arrangement à l'échelle atomique ou moléculaire.

Dans un milieu homogène anisotrope, la densité de courant i et la densité de charge ρ sont nulles. De plus, le reste de l'exposé considère le cas d'un milieu non magnétique

($\mathbf{B} = \mu_o \mathbf{H}$). En présence d'anisotropie, la polarisation induite par le champ \mathbf{E} n'est plus parallèle à celui-ci. Elle se décompose alors selon les axes du système en fonction des coordonnées j du champ :

$$P_i = \varepsilon_o \cdot \sum_j \chi_{ij} \cdot E_j \quad (2.30)$$

où χ_{ij} est le tenseur susceptibilité électrique. On a $\varepsilon_o[1 + \chi_{ij}] = [\varepsilon_{ij}]$

De même, le vecteur déplacement électrique \mathbf{D} n'est plus parallèle au champ \mathbf{E} . Il existe alors une relation tensorielle entre les deux grandeurs :

$$\mathbf{D} = [\varepsilon] \cdot \mathbf{E} \quad (2.31)$$

où $[\varepsilon]$ est le tenseur permittivité ou tenseur diélectrique. C'est un tenseur de rang 2.

2.3.3 Propagation des impulsions lumineuses dans un milieu anisotrope

2.3.3.1 Définitions

Le champ électrique d'une onde plane de pulsation ω et de vecteur d'onde \mathbf{k} se propageant dans un milieu anisotrope a la forme suivante :

$$\mathbf{E}(\vec{r}, t) = \mathbf{A}(\vec{r}) \cdot e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \quad (2.32)$$

Les champs \mathbf{D} , \mathbf{B} et \mathbf{H} ont des expressions similaires.

Les équations de Maxwell s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} i\mathbf{k} \wedge \mathbf{E} &= i\omega \mathbf{B} \\ i\mathbf{k} \wedge \mathbf{B} &= -i\mu_o \omega \mathbf{D} \\ \mathbf{k} \cdot \mathbf{D} &= 0 \\ \mathbf{k} \cdot \mathbf{B} &= 0 \end{aligned} \quad (2.33)$$

Les vecteurs \mathbf{D} , \mathbf{B} et \mathbf{k} forment un trièdre rectangle direct. Le plan (\vec{B}, \vec{D}) forme donc le plan d'onde, noté P.O. sur le schéma ci-après (cf. fig 2.2).

On définit le rayon lumineux comme la direction de propagation de l'énergie électromagnétique, c'est-à-dire la direction du vecteur de Poynting $\mathbf{S} = \mathbf{E} \wedge \mathbf{H}$. Les vecteurs \mathbf{D} ,

\mathbf{E} , \mathbf{k} et \mathbf{S} sont coplanaires et contenus dans le plan de vibration électrique, noté P.V. sur le schéma. Ce plan s'appelle aussi le plan de polarisation. Dans un milieu isotrope, le rayon lumineux est perpendiculaire au plan d'onde, il est donc parallèle à \mathbf{k} , alors que, dans un milieu anisotrope, il existe un angle entre le vecteur d'onde \mathbf{k} et le vecteur de Poynting \mathbf{S} . Il s'agit de l'angle de Walkoff ou de double réfraction, noté ρ .

Le schéma de la figure 2.2 donne les directions des vecteurs \mathbf{D} , \mathbf{E} , \mathbf{k} , \mathbf{S} et \mathbf{H} dans le cas d'un milieu anisotrope.

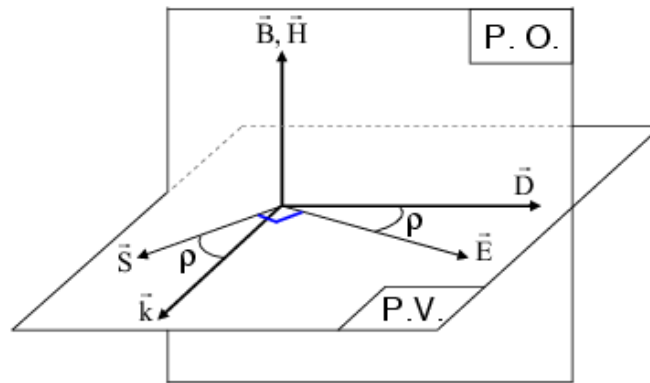


FIG. 2.2: Direction des vecteurs caractéristiques dans le cas d'un milieu anisotrope

Le rayon lumineux (vecteur de Poynting) et les normales (\mathbf{k}) au plan d'onde ne sont pas confondus. Enfin, les vecteurs \mathbf{D} et \mathbf{H} appartiennent au plan d'onde.

Lorsqu'une onde pénètre dans un milieu anisotrope, elle voit deux valeurs d'indices de réfraction différentes car celui-ci dépend de la direction de propagation. Ce phénomène est connu sous le nom de biréfringence et explique l'observation de dédoublement d'image faite par Bartholin.

Pour une direction de propagation donnée \mathbf{k} , il existe deux valeurs d'indice n , donc deux valeurs de $k(n) = \frac{n \cdot \omega}{c}$ qui satisfont aux équations de Maxwell. Aux deux valeurs de $k(n)$ correspondent deux directions privilégiées pour le vecteur \mathbf{D} , notées D' et D'' , perpendiculaires à \mathbf{k} et orthogonales entre elles, qui correspondent aux directions suivant lesquelles une onde plane se propage sans déformation dans le milieu. Ces directions sont les "lignes neutres" du matériau pour une direction donnée du vecteur d'onde. Le milieu possède ainsi deux plans de polarisation orthogonaux. La vitesse d'un rayon lumineux

dépend donc de la direction initiale de ce rayon. La surface d'onde est alors un ellipsoïde, dit "Ellipsoïde des indices". Celle-ci permet de caractériser les lignes neutres du matériau et de construire géométriquement les vecteurs \mathbf{D}' et \mathbf{D}'' .

2.3.3.2 Ellipsoïde des indices

L'ellipsoïde des indices est la surface décrite par l'ensemble des points M tels que : $OM = n \frac{\mathbf{D}}{|\mathbf{D}|}$, où n est l'indice de réfraction. Il s'agit de l'équation donnant les directions des vecteurs \mathbf{D} .

On peut réécrire cette équation en la décomposant sur les différentes coordonnées (x, y, z) de l'espace :

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \quad (2.34)$$

Cet ellipsoïde possède trois axes orthogonaux qui sont appelés "axes principaux", et les valeurs des demi-axes sont les indices principaux du cristal, notés n_x , n_y et n_z .

L'intersection du plan d'onde avec l'ellipsoïde est une ellipse dont les axes correspondent aux directions des lignes neutres. Les valeurs des indices de réfraction pour chaque vecteur \mathbf{D}' et \mathbf{D}'' sont les longueurs des demi-axes de l'ellipse et sont notés n' et n'' , comme l'illustre la figure 2.3.

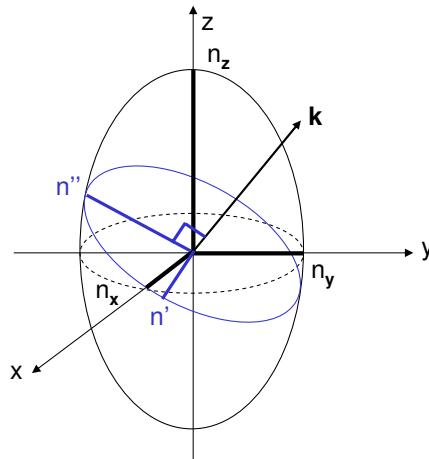


FIG. 2.3: Ellipsoïde des indices dans le cas général

Dans le cas général, les indices des lignes neutres (n' et n'') ne sont pas égaux aux indices principaux n_x , n_y ou n_z . Lorsque le vecteur d'onde est parallèle à l'un des axes du

repère, par exemple à l'axe z , le plan d'onde et par conséquent l'ellipse d'intersection sont contenus dans le plan perpendiculaire au vecteur d'onde, c'est-à-dire ici le plan (x,y) (cf. figure 2.4).

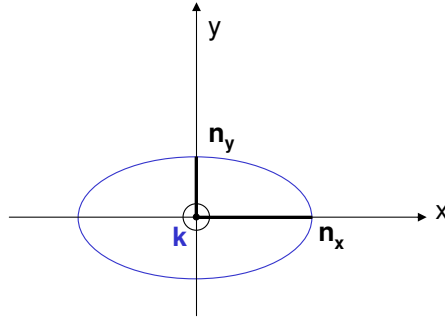


FIG. 2.4: Ellipse d'intersection

Il existe cependant deux cas particuliers permettant de diviser les milieux anisotropes en deux catégories : les milieux biaxes et les milieux uniaxes.

Si le milieu anisotrope est biaxe, alors $n_x \neq n_y$, et $n' = n''$. Le milieu possède deux directions de propagation pour lesquelles la surface d'intersection est un cercle. Ces directions sont les deux axes optiques du milieu.

Un milieu anisotrope est dit uniaxe quand deux des trois indices principaux sont égaux. Lorsqu'un rayon lumineux pénètre le milieu cristallin, il est divisé en deux rayons (ou ondes). L'onde dont le plan est perpendiculaire à l'axe optique et qui se situe donc dans la prolongation du rayon initial est appelée onde ordinaire et l'indice correspondant est appelé indice ordinaire (noté n_o). L'onde dont le plan est parallèle à l'axe optique est appelée onde extraordinaire et l'indice correspondant est appelé indice extraordinaire (noté n_e). Le rayon ordinaire et le rayon extraordinaire ont des polarisations perpendiculaires entre elles.

Un tel milieu présente une symétrie de révolution autour de l'axe optique. Le milieu apparaît donc comme isotrope pour le rayon ordinaire. Par exemple si $n_x = n_y = n_o$, où n_o est l'indice ordinaire, cela revient à choisir l'axe optique suivant Oz , et l'indice principal n_z sera alors égal à n_e , appelé indice extraordinaire.

La biréfringence linéaire dans le cas d'un milieu uniaxe est la différence entre l'indice ordinaire du matériau et son indice extraordinaire. Dans le cas où n_e est supérieur à n_o , le milieu est dit uniaxe positif (cf. figure 2.5). Dans le cas où n_e est inférieur à n_o , le milieu est dit uniaxe négatif (c'est le cas du cristal de BBO que nous avons utilisé dans nos expériences). Cette biréfringence est nulle sur l'axe optique car alors l'indice ordinaire est égal à l'indice extraordinaire.

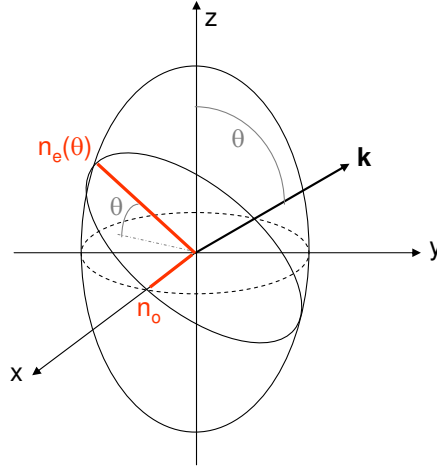


FIG. 2.5: Ellipsoïde des indices dans le cas d'un milieu uniaxe positif

L'équation de l'ellipsoïde dans un milieu uniaxe où l'axe optique est confondu avec l'axe z s'écrit :

$$\frac{x^2 + y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1 \quad (2.35)$$

En tenant compte des coordonnées de l'onde extraordinaire dans le repère (x, y, z) :

$$\begin{cases} x = -n_e(\theta) \cos \theta \\ y = 0 \\ z = n_e(\theta) \sin \theta \end{cases} \quad (2.36)$$

où θ est l'angle entre l'axe optique et la normale à l'onde.

On obtient ainsi la relation entre l'indice extraordinaire et l'angle θ :

$$n_e^2(\theta) \left\{ \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} \right\} = 1 \quad (2.37)$$

Dans un milieu isotrope, l'ellipsoïde des indices est une sphère, car les indices principaux n_x, n_y et n_z sont tous égaux à un seul et même indice n :

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n^2} = 1 \quad (2.38)$$

Il existe alors une seule direction pour le vecteur induction électrique, perpendiculaire au vecteur d'onde. Les propriétés de l'onde qui pénètre dans un milieu isotrope ne sont donc pas modifiées.

Les propriétés des milieux non linéaires et anisotropes étant ainsi définies, nous allons pouvoir les utiliser dans la section suivante pour étudier un cas particulier d'effet non linéaire du deuxième ordre : l'amplification paramétrique optique.

2.4 Le BBO, cristal non linéaire

Dans les expériences que nous avons réalisées au LOA, nous avons choisi de travailler avec des cristaux de BBO car ceux-ci possèdent de nombreux avantages pour la technique d'amplification paramétrique [40]. Ils offrent notamment l'une des plus larges bandes de gain en type I dans le cas d'une configuration dégénérée. Je vais maintenant décrire ce matériau plus en détail.

Le BBO, ou plus exactement le Bêta-borate de Baryum, de formule chimique $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ [41] est un cristal trigonal de la classe 3m, qui est tel que les composantes du coefficient non linéaire $d_{i\ell}$ vérifient l'égalité : $d_{11} = -d_{12} = -d_{26}$. C'est un cristal uniaxe négatif pour lequel l'indice extraordinaire n_e est inférieur à l'indice ordinaire n_o . Il fut découvert en 1985 par un groupe de scientifiques chinois [41].

Le BBO est très bien adapté au processus d'amplification paramétrique car il possède une non linéarité élevée, ce qui rend le processus plus efficace. Comme le montre la courbe de la figure 2.6, c'est un milieu transparent aux fréquences utilisées dans nos expériences (400 nm, 532 nm, 600-1200 nm), évitant les pertes par absorption, et sa bande de gain est plus large que celle du titane saphir [11]. De plus, il possède un seuil de dommage élevé, ce qui en fait un cristal adapté aux interactions entre des ondes de durée femtoseconde pour lesquelles la densité d'énergie est souvent très élevée. Le cristal est faiblement hygroscopique (peu sensible à l'humidité) et ne vieillit donc pas trop vite. Le défaut principal du BBO est sa faible acceptance angulaire.

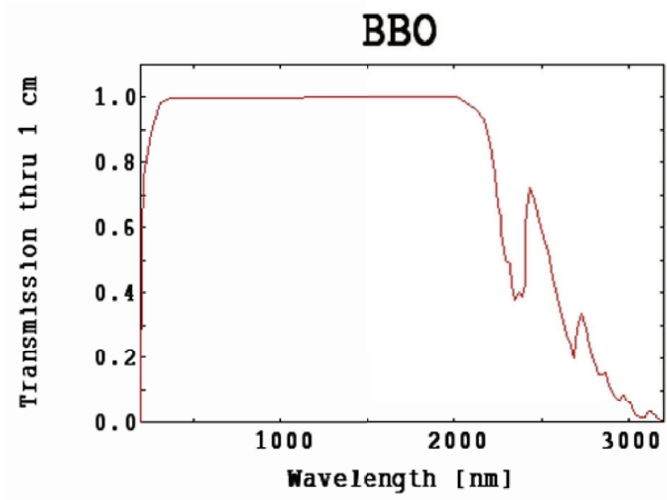


FIG. 2.6: Zone de transparence du BBO en fonction de la longueur d'onde [25]

2.4.1 Coefficient effectif

Le coefficient non linéaire du BBO est simple car il ne comporte que deux composantes d_{22} et d_{31} distinctes et non nulles. En utilisant l'expression simplifiée $d_{i\ell}$ définie par l'équation (2.25) dans le chapitre précédent, on écrit le tenseur d_{eff} comme suit :

$$d_{i\ell} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.39)$$

Son coefficient effectif pour le type I est :

$$d_{eff}^{ooe} = d_{31} \cdot \sin \theta - d_{22} \cdot \cos \theta \cdot \sin 3\varphi \quad (2.40)$$

Avec $\varphi = 90^\circ$ (cf. figure 2.1), on maximise le coefficient effectif.

Les valeurs de d_{31} et d_{22} données par Chen *et al.* sont [41] :

$$\begin{cases} d_{31} = 0.16 \text{ pm/V} \\ d_{22} = 2.3 \text{ pm/V} \end{cases} \quad (2.41)$$

On peut trouver d'autres valeurs pour ces coefficients dans la littérature résultant de mesures expérimentales [42], qui diffèrent très peu des valeurs données ici.

Les valeurs du coefficient d_{eff} sont données dans le tableau 2.2 pour les deux configurations étudiées dans ce travail de thèse.

| | Configuration non dégénérée | Configuration quasi-dégénérée |
|-----------------------|--------------------------------|----------------------------------|
| λ signal (nm) | 800 | 810 |
| λ pompe (nm) | 532 | 400 |
| θ | 23, 8° | 29, 2° |
| d_{eff} (pm/V) | 2, 17 | 2, 08 |

TAB. 2.2: Valeurs du coefficient effectif pour les deux configurations étudiées

2.4.2 Equations de Sellmeier

Les équations de Sellmeier permettent de calculer les valeurs des indices ordinaire et extraordinaire d'un cristal anisotrope en fonction de la longueur d'onde :

$$n_i(\lambda) = a_i + \frac{b_i}{\lambda^2 - c_i} - d_i \cdot \lambda^2 \quad (2.42)$$

où $i=o$ ou e pour ordinaire et extraordinaire respectivement et λ est exprimée en μm . Les coefficients a_i , b_i , c_i et d_i sont déterminés expérimentalement et dépendent du cristal.

Les équations de Sellmeier pour le BBO sont données par [43] :

$$\begin{cases} n_o^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354 \lambda^2 \\ n_e^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516 \lambda^2 \end{cases} \quad (2.43)$$

Les valeurs des indices pour chaque configuration étudiée sont données dans le tableau 2.3 ci-dessous.

| | Configuration non dégénérée | Configuration quasi-dégénérée |
|--|-----------------------------|-------------------------------|
| λ signal (nm) | 800 | 810 |
| Indice ordinaire signal n_{so} | 1,6606 | 1,6603 |
| λ complémentaire (nm) | 1588, 1 | 790, 2 |
| Indice ordinaire complémentaire n_{co} | 1,6460 | 1,6608 |
| λ pompe (nm) | 532 | 400 |

TAB. 2.3: Valeurs des indices ordinaires et extraordinaires pour les deux configurations étudiées.

2.4.3 Seuil de dommage du BBO

Le seuil de dommage est le niveau d'intensité limite du faisceau laser éclairant le cristal au delà duquel on détériore ce cristal de manière irréversible. Il est très important de rester en dessous de ce seuil. Le seuil de dommage dépend de la durée des impulsions laser envoyées sur le matériau. Le tableau 2.4 donne les valeurs de seuil de dommage pour le BBO pour quatre exemples de durée du faisceau de pompe à la longueur d'onde de 532 nm [4, 39, 44].

| Durée de la pompe | Seuil de dommage |
|-------------------|----------------------|
| 8 ns | 32 GW/cm^2 |
| 100 ps | 10 GW/cm^2 |
| 10 ps | 70 GW/cm^2 |
| 1 ps | 300 GW/cm^2 |

TAB. 2.4: Seuil de dommage du BBO pour différentes durées de la pompe de longueur d'onde égale à 532 nm [4, 39, 44].

2.4.4 Longueur quasi-statique d'interaction

Le cristal non-linéaire de BBO, comme tout matériaux, est dispersif, c'est-à-dire que deux longueurs d'onde différentes ne se déplacent pas à la même vitesse dans le cristal.

Autrement dit, l'impulsion signal ne se propage pas avec la même vitesse de groupe que l'impulsion pompe. On définit alors l'écart de vitesses de groupe, noté evg ou GVM (pour "group velocity mismatch").

Le processus paramétrique ne sera efficace que sur la distance pendant laquelle les deux impulsions seront superposées temporellement [45], appelée longueur quasi-statique d'interaction, qui dépend de la durée la plus courte des deux paquets d'onde signal et pompe et de l'écart de vitesse de groupe. Au delà de cette distance, le profil temporel de l'impulsion pourra être déformé et l'échange d'énergie entre signal et pompe ne se fera plus correctement.

La vitesse de groupe d'un paquet d'onde de pulsation centrale ω_o s'écrit comme l'inverse de la dérivée du vecteur d'onde par rapport à la pulsation :

$$v_g = \frac{1}{(dk/d\omega)_{\omega_o}} = \frac{c}{n_g} \quad (2.44)$$

où n_g est l'indice de groupe, tel que $n_g = n + \omega \frac{dn}{d\omega}$.

L'écart de vitesse de groupe entre l'onde signal et l'onde pompe s'exprime en $fs.mm^{-1}$ et s'écrit :

$$evg = \frac{1}{v_{gp}} - \frac{1}{v_{gs}} \quad (2.45)$$

L'interaction paramétrique entre le signal et la pompe se fera sur une distance d'autant plus courte que l'écart des vitesses de groupe est grand.

La longueur quasi-statique s'écrit alors :

$$L_{quastat} = \frac{\Delta t}{evg} \quad (2.46)$$

où Δt est la valeur minimale entre la durée du signal et la durée de la pompe : $\Delta t = \min(\tau_s, \tau_p)$.

Le tableau 2.5 présente la valeur de la longueur quasi-statique pour les deux configurations d'amplification paramétrique étudiées expérimentalement :

| | Configuration non dégénérée | Configuration quasi-dégénérée |
|--|-----------------------------|--|
| Longueur d'onde signal (nm) | 800 | 810 |
| Vitesse groupe signal ($mm.fs^{-1}$) | $1,7809.10^{-4}$ | $1,7816.10^{-4}$ |
| Longueur d'onde pompe (nm) | 532 | 400 |
| Vitesse groupe pompe ($mm.fs^{-1}$) | $1,7669.10^{-4}$ | $1,7216.10^{-4}$ |
| evg ($fs.mm^{-1}$) | 44,5 | 195,7 |
| Longueur quasi-statique | 11 m | 5,1 mm ($\tau_s = 1 ps$) 1,8 mm ($\tau_s = 357 fs$) |

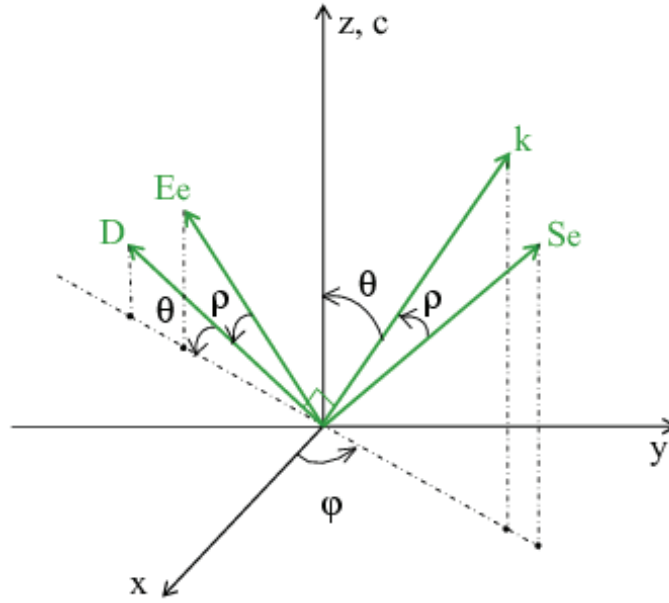
TAB. 2.5: Valeurs de la longueur quasi-statique pour les deux configurations étudiées. Les valeurs des indices de groupe sont donnés par le programme SNLO [25].

D'après les valeurs du tableau, l'interaction paramétrique en configuration non dégénérée de notre expérience sera efficace sur toute la longueur du cristal que nous avons choisi (15 mm , cf. chapitre 3). L'écart des vitesses de groupe dans le cas d'impulsions de plusieurs centaines de picosecondes est faible. En revanche, dans l'expérience quasi-dégénérée, cet écart devient important et la longueur de superposition temporelle des faisceaux pompe et signal est fortement réduite en raison de la durée du signal qui peut être inférieure à 500 fs (cf. chapitre 4). Il faudra tenir compte de cette longueur maximale dans le choix des cristaux.

2.4.5 Double réfraction ou Walk-off spatial

La définition de l'angle de birefringence a été donnée dans la section 2.3.3. Il s'agit de l'angle entre le vecteur d'onde \mathbf{k} et le vecteur de Poynting \mathbf{S} existant dans un milieu anisotrope. Pour les ondes ordinaires, le vecteur de Poynting est parallèle à la direction de propagation. Dans le cas de l'amplification paramétrique de type I considérée ici, les ondes signal et complémentaire sont ordinaires et ne vont donc pas subir de double réfraction. Par contre, l'onde pompe est polarisée extraordinairement, son énergie ne se propage pas dans la même direction que son vecteur d'onde, elle va donc subir cet effet.

$$\mathbf{D} = [\varepsilon].\mathbf{E} \quad (2.47)$$

FIG. 2.7: Angles φ , θ et ρ

où $[\varepsilon]$ est le tenseur de rang deux dont les seules composantes non nulles sont situées sur la diagonale.

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix} \quad (2.48)$$

Dans le cas de l'amplification paramétrique étudiée ici, le milieu est uniaxe et l'axe optique est confondu avec l'axe z . On a donc :

$$\begin{cases} \varepsilon_x = \varepsilon_y = n_o^2 \\ \varepsilon_z = n_e^2 \end{cases} \quad (2.49)$$

Dans le cas d'un angle φ égal à 90° , les coordonnées de \mathbf{D} et \mathbf{E} dans le repère (O, x, y, z) s'écrivent :

$$\mathbf{D} = \begin{cases} D_x = 0 \\ D_y = -\cos \theta \\ D_z = \sin \theta \end{cases} \quad (2.50)$$

$$\mathbf{E} = \begin{cases} E_x = 0 \\ E_y = -\cos(\theta + \rho) \\ E_z = \sin(\theta + \rho) \end{cases} \quad (2.51)$$

D'après les relations (3.45) et (3.47), on peut écrire :

$$\begin{cases} \cos \theta = n_o^2 \cdot \cos(\theta + \rho) \\ \sin \theta = n_e^2 \cdot \sin(\theta + \rho) \end{cases} \quad (2.52)$$

D'où :

$$\begin{aligned} \tan \theta &= \frac{n_e^2}{n_o^2} \tan(\theta + \rho) \\ &= \frac{n_e^2}{n_o^2} \left[\frac{\tan \theta + \tan \rho}{1 - \tan \rho \tan \theta} \right] \end{aligned} \quad (2.53)$$

L'expression de l'angle de biréfringence s'écrit alors :

$$\rho \approx \tan \rho = -\tan \theta \cdot \frac{1 - (n_o/n_e)^2}{(n_o/n_e)^2 \tan^2 \theta + 1} \quad (2.54)$$

On peut ainsi en déduire une longueur de Walk off limite ℓ_{WO} sur laquelle les énergies des faisceaux signal et pompe vont se superposer spatialement [45], comme le montre la figure 2.8. La longueur ℓ_{WO} s'obtient facilement à partir du schéma :

$$\ell_{WO} = \frac{\phi_p}{\rho} \quad (2.55)$$

où ϕ_p est le diamètre du faisceau de pompe.

Le programme Matlab `angles.m` donné en annexe permet de calculer rapidement les angles α , θ et ρ et la longueur de Walkoff. Les résultats obtenus pour une configuration non dégénérée avec une pompe à 532 nm et un angle entre faisceaux $alpha = 3,9^\circ$ à l'extérieur du cristal, et pour une configuration quasi-dégénérée avec une pompe à 400 nm et un angle $alpha = 2^\circ$ à l'extérieur du cristal sont indiqués dans le tableau ci-dessous. Dans les deux configurations présentées, la longueur de Walkoff est élevée et nous permet de choisir des cristaux suffisamment longs pour obtenir un gain paramétrique important dans les amplificateurs. Les longueurs choisies dans le cadre des expériences sont égales à 15 mm, 2 mm et 3 mm pour la configuration dégénérée et la configuration quasi-dégénérée respectivement.

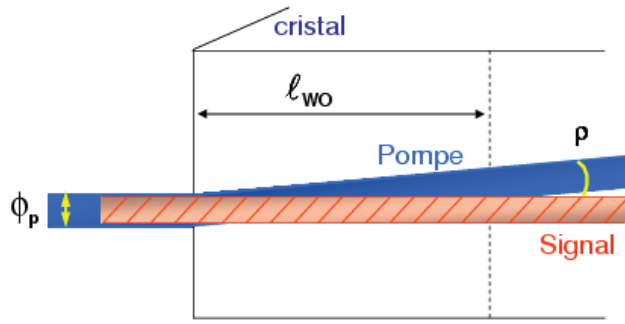


FIG. 2.8: Longueur de Walk off pour le faisceau de pompe

| | Configuration non dégénérée | Configuration quasi-dégénérée |
|------------------|-----------------------------|-------------------------------|
| α externe | $3,92^\circ$ | 2° |
| θ | $23,8^\circ$ | $29,2^\circ$ |
| ϕ_p | $1,5 \text{ mm}$ | $700 \mu\text{m}$ |
| ρ | $3,29^\circ$ | $3,90^\circ$ |
| l_{WO} | $26,10 \text{ mm}$ | $10,27 \text{ mm}$ |

TAB. 2.6: Valeurs de l'angle de Walkoff et de la longueur de Walkoff pour les deux configurations étudiées

2.5 Les principaux effets non linéaires

Afin de mettre en évidence les principaux effets non linéaires d'ordre 2 et d'ordre 3, on suppose que le champ électrique incident comprend deux composantes aux fréquences ω_1 et ω_2 .

De plus, on considère un milieu sans perte.

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(\vec{r}, t) &= \mathbf{E}_1(\vec{r}, t) + \mathbf{E}_2(\vec{r}, t) \\
 &= \mathbf{E}_1(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_2 t} + c.c.
 \end{aligned} \tag{2.56}$$

2.5.1 Effet non linéaire du deuxième ordre

Si le matériau dans lequel se propage l'onde est non-centrosymétrique, d'après l'équation (2.7), ce champ génère la polarisation non linéaire du deuxième ordre suivante :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{P}^{(2)} &= \varepsilon_o \cdot \chi^{(2)} (\mathbf{E}_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + c.c. \\
 &+ 2\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + c.c. \\
 &+ 2\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c. \\
 &+ 2\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_1^* + 2\mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_2^*) \quad (2.57)
 \end{aligned}$$

Des termes apparaissent pour des fréquences différentes de celle d'origine. Les deux premiers correspondent à la génération du second harmonique des champs \mathbf{E}_1 et \mathbf{E}_2 , aux fréquences $2\omega_1$ et $2\omega_2$ respectivement. La deuxième ligne correspond au processus de somme de fréquence $\omega_1 + \omega_2$. La troisième ligne correspond au processus de différence de fréquence ($\omega_1 - \omega_2$). Enfin, les deux derniers termes correspondent à une onde de fréquence nulle, il s'agit de la rectification optique qui génère un champ statique.

Trois exemples de processus non linéaires du deuxième ordre sont détaillés dans la figure 2.9 ci-après.

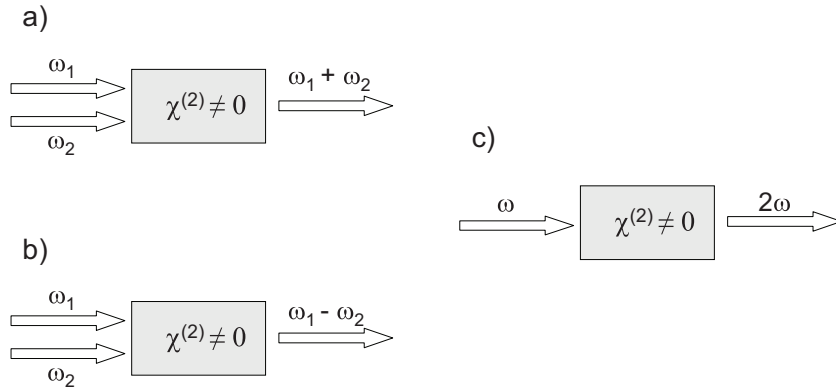


FIG. 2.9: Effets non linéaires du deuxième ordre : a) Somme de fréquences (SFG), b) Différence de fréquences (DFG), c) Doublage de fréquence (SHG).

2.5.2 Effet non linéaire du troisième ordre

Pour faire apparaître les effets du troisième ordre intervenant lors de l'interaction entre trois champs E pouvant prendre les valeurs de pulsation ω_1 ou ω_2 , on écrit la polarisation sous la forme calculée à partir de l'équation générale 2.8 :

$$P_i^{(3)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_o \sum_{j_1 j_2 j_3=1}^2 \chi_{ij_1 j_2 j_3}^{(3)} \cdot E_{j_1}(\vec{r}, t) \cdot E_{j_2}(\vec{r}, t) \cdot E_{j_3}(\vec{r}, t) \quad (2.58)$$

Ce qui peut se développer comme suit :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)} &= \varepsilon_o \cdot \chi^{(3)} (\mathbf{E}_1^3 e^{-3i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2^3 e^{-3i\omega_2 t} + c.c. \\ &+ 3\mathbf{E}_1^2 \cdot \mathbf{E}_2 e^{-i(2\omega_1 + \omega_2)t} + 3\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^2 e^{-i(2\omega_2 + \omega_1)t} + c.c. \\ &+ 3\mathbf{E}_1^2 \cdot \mathbf{E}_2^* e^{-i(2\omega_1 - \omega_2)t} + 3\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^2 e^{-i(2\omega_2 - \omega_1)t} + c.c. \\ &+ 3\mathbf{E}_1^2 \cdot \mathbf{E}_1^* e^{-i\omega_1 t} + 3\mathbf{E}_2^2 \cdot \mathbf{E}_2^* e^{-i\omega_2 t} + c.c. \\ &+ 3\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_2^* e^{-i\omega_1 t} + 3\mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_1^* e^{-i\omega_2 t} + c.c.) \end{aligned} \quad (2.59)$$

Les termes de la première ligne font apparaître la génération d'ordre 3, ceux de la deuxième et la troisième ligne sont relatifs à la somme de fréquence.

Les termes de la quatrième ligne décrivent la contribution non linéaire de chacun des deux faisceaux incidents à leur fréquence fondamentale respective, c'est-à-dire ω_1 et ω_2 . L'amplitude de cette contribution varie comme le carré de l'amplitude du faisceau l'ayant générée. Il s'agit d'une action de la lumière sur elle-même. Cela donne lieu à une contribution non linéaire des indices de réfraction des deux ondes incidentes :

$$n = n_o + n_2 \cdot I \quad (2.60)$$

où n_o est l'indice de réfraction habituel dans le cas d'une intensité faible, et $n_2 \cdot I$ est l'indice de réfraction non linéaire. Cet effet est connu sous le nom d'effet Kerr optique et donne lieu à une auto-focalisation (ou une auto-défocalisation) qui peut s'avérer être un phénomène catastrophique pour le matériau, en causant des dommages irréversibles car celle-ci crée une augmentation excessive de la densité de puissance de l'impulsion. Cet effet peut néanmoins être utilisé pour augmenter la bande spectrale, comme c'est le cas dans les oscillateurs à modes bloqués en phase.

La dernière ligne de la polarisation du 3ème ordre définie ci-dessus apporte également une contribution à la fréquence de chacune des deux ondes incidentes. Les effets qui apparaissent ici, contrairement aux effets précédents, sont dus à un couplage entre les deux ondes incidentes. On peut citer, comme exemple de ces effets, la création d'un réseau optique dû aux interférences entre les deux ondes.

Dans le tableau ci-dessous sont regroupés un certain nombre d'exemples d'effets non linéaires du 2ème et du 3ème ordre. Les phénomènes non linéaires d'ordre plus élevés sont appelés effets multiphotoniques.

| Effet Non linéaire | χ | Fréquences mises en jeu | Fréquences créées |
|------------------------------------|--------------|--------------------------------|----------------------------------|
| Génération de seconde harmonique | $\chi^{(2)}$ | ω, ω | 2ω |
| Rectification optique | $\chi^{(2)}$ | $\omega, -\omega$ | 0 |
| Somme de fréquences | $\chi^{(2)}$ | ω_1, ω_2 | $\omega_1 + \omega_2$ |
| Différence de fréquence | $\chi^{(2)}$ | $\omega_1, -\omega_2$ | $\omega_1 - \omega_2$ |
| Génération de troisième harmonique | $\chi^{(3)}$ | ω, ω, ω | 3ω |
| Somme de fréquences | $\chi^{(3)}$ | $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ | $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ |
| Effet Kerr optique | $\chi^{(3)}$ | $\omega, -\omega, \omega$ | ω |
| ... | ... | ... | ... |

TAB. 2.7: Exemple d'effets non linéaires optiques du 2ème et du 3ème ordre

2.5.3 Exemple d'effet non linéaire du 2ème ordre :

La différence de fréquences

Dans le processus de différence de fréquences, les deux champs électriques incidents ont pour pulsation ω_1 et ω_2 respectivement et génèrent un champ de pulsation $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. Nous souhaitons écrire l'équation de propagation correspondant à la différence de fréquences. Pour cela, intéressons-nous d'abord à la composante de la polarisation non linéaire du deuxième ordre responsable de ce processus. D'après l'équation (2.57), celle-ci peut s'écrire :

$$\mathbf{P}_3(\vec{r}, t) = 2\varepsilon_o \chi^{(2)} \cdot \mathbf{E}_1(\vec{r}) \cdot \mathbf{E}_2^*(\vec{r}) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c. \quad (2.61)$$

Cette dernière notation de la polarisation sous-entend l'indice de non linéarité du

deuxième ordre, pour plus de lisibilité. L'écriture rigoureuse serait : $\mathbf{P}_3^{(2)}(\vec{r}, t)$.

Les sources lumineuses étudiées pendant mon travail de thèse appartiennent à un type particulier de sources cohérentes : les lasers. Une impulsion laser n'est pas une onde plane, mais est constituée d'un paquet d'onde ayant une enveloppe spatialement et temporellement limitée (la limite temporelle étant la durée de l'impulsion).

On considère que le faisceau laser de pulsation ω_p se propage suivant l'axe z et que le champ électrique correspondant est uniforme dans le plan transverse (x, y) . La structure du champ électrique de ce faisceau s'écrit alors sous la forme :

$$E_p(z, t) = E_p(z).e^{-i\omega_p t} + c.c. = A_p(z).e^{-i(\omega_p t - k_p \cdot z)} + c.c. \quad (2.62)$$

où le vecteur \vec{k}_p est le vecteur d'onde du faisceau laser et A_p est l'enveloppe du champ électrique E_p .

Les champs E_1 et E_2 sont remplacés par leur expression dans la composante P_3 de la polarisation :

$$P_3(z, t) = 2\varepsilon_o \cdot \chi^{(2)} \cdot A_1(z) \cdot A_2^*(z) \cdot e^{i(k_1 - k_2)z} \cdot e^{-i\omega_3 t} + c.c. \quad (2.63)$$

ou encore :

$$P_3(z, t) = 4\varepsilon_o \cdot d_{eff} \cdot A_1(z) \cdot A_2^*(z) \cdot e^{i(k_1 - k_2)z} \cdot e^{-i\omega_3 t} + c.c. \quad (2.64)$$

Le terme de polarisation étant ainsi explicité, nous nous intéressons maintenant au premier terme $\nabla^2 E_3(z)$ de l'équation de propagation du champ à la pulsation ω_3 . Celui-ci se développe comme suit :

$$\nabla^2 E_3(z) = \frac{d^2 E_3}{dz^2} = \frac{d^2 A_3}{dz^2} e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} + 2ik_3 \frac{dA_3}{dz} e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} - k_3^2 \cdot A_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} \quad (2.65)$$

On se place dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable qui suppose que l'amplitude de l'impulsion varie lentement pendant la période d'oscillation du champ :

$$\left| k_3 \cdot \frac{dA_3}{dz} \right| \gg \left| \frac{d^2 A_3}{dz^2} \right| \quad (2.66)$$

La dérivée du 2ème ordre peut donc être négligée.

L'équation de propagation non linéaire de l'enveloppe du champ électrique devient alors :

$$\begin{aligned} & -2ik_3 \frac{dA_3(z)}{dz} \cdot e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} + k_3^2 \cdot A_3(z) \cdot e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} - \omega_3^2 \mu_o \varepsilon \cdot A_3(z) \cdot e^{-i(\omega_3 t - k_3 \cdot z)} \\ & = \omega_3^2 \mu_o \cdot 2\varepsilon_o \cdot \chi^{(2)} \cdot A_1(z) \cdot A_2^*(z) \cdot e^{i(k_1 - k_2)z} \cdot e^{-i\omega_3 t} \end{aligned} \quad (2.67)$$

Il existe une relation de dispersion entre le vecteur d'onde k et la pulsation ω de l'onde :

$$k(\omega) = \frac{n\omega}{c} \quad (2.68)$$

où $\omega = 2\pi\nu = 2\pi\frac{c}{\lambda}$, avec ν la fréquence d'oscillation de l'onde, λ la longueur d'onde, c la vitesse de la lumière dans le vide et n l'indice de réfraction du milieu non linéaire.

Alors,

$$k^2(\omega) = \frac{n^2 \cdot \omega^2}{c^2} = \varepsilon_r \cdot \omega^2 \cdot \varepsilon_o \cdot \mu_o = \varepsilon^{(1)} \cdot \mu_o \cdot \omega^2 \quad (2.69)$$

En utilisant cette égalité, l'équation de propagation de l'enveloppe est simplifiée :

$$-2ik_3 \frac{dA_3}{dz} = 2\frac{\omega_3^2}{c^2} \cdot \chi^{(2)} \cdot A_1(z) \cdot A_2^*(z) \cdot e^{i(k_1 - k_2 - k_3)z} \quad (2.70)$$

$$\frac{dA_3}{dz} = i \frac{2\pi}{\lambda_3 n_3} \cdot \chi^{(2)} \cdot A_1(z) \cdot A_2^*(z) \cdot e^{+i\Delta k z} \quad (2.71)$$

où $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$.

De même, pour les ondes incidentes aux fréquences ω_1 et ω_2 respectivement, les équations de propagation s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dz} = i \frac{2\pi}{\lambda_1 n_1} \cdot \chi^{(2)} \cdot A_2(z) \cdot A_3(z) \cdot e^{-i\Delta k z} \\ \frac{dA_2}{dz} = i \frac{2\pi}{\lambda_2 n_2} \cdot \chi^{(2)} \cdot A_1(z) \cdot A_3^*(z) \cdot e^{+i\Delta k z} \end{cases} \quad (2.72)$$

2.5.4 Exemple d'effet non linéaire du 2ème ordre : Génération du second harmonique

La polarisation est importante dans la description d'un phénomène d'optique non linéaire car elle peut être à la base de nouvelles composantes du champ. Une des conséquences de la non linéarité est la génération d'harmoniques. Par exemple, le milieu peut se polariser à une fréquence double de la fréquence laser, donnant lieu à la génération du second harmonique de l'onde se propageant dans le matériau. La génération du second harmonique fut observée pour la première fois dans un cristal de quartz excité par un laser à rubis par Franken *et al* en 1961 [34]. On parle également de doublage de fréquence.

Dans le processus de génération du second harmonique, deux photons à la fréquence ω interagissent avec la structure du cristal traversé. Selon le plan d'interaction et la coupe du cristal, les niveaux d'énergie sont modifiés par l'arrivée de l'onde lumineuse. En effet, les atomes présents dans le cristal, et initialement dans le niveau d'énergie fondamental, sont excités vers un niveau virtuel d'énergie plus élevée par l'absorption des deux photons incidents de pulsation ω chacun. Les atomes sont ensuite désexcités vers le niveau fondamental par l'émission induite d'un photon à la pulsation $\omega + \omega$. Un photon à la fréquence 2ω est ainsi créé, tandis que les deux photons incidents sont détruits, comme le résume le diagramme de la figure 2.10.

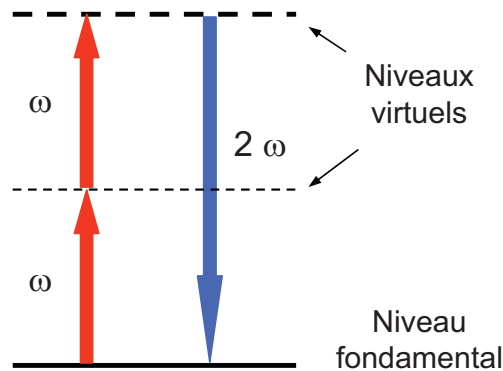


FIG. 2.10: Diagramme des échanges d'énergie dans le doublage de fréquence

Considérons l'interaction entre l'onde fondamentale et son second harmonique afin de déterminer l'équation de propagation de celui-ci. La description faite ici est simplifiée, une théorie plus complète de la génération du second harmonique est donnée dans l'article de Kleinman datant de 1962 [46]. On note ω_1 la pulsation de l'onde fondamentale et $\omega_2 = 2\omega_1$

celle de l'onde harmonique. Les champs E_j (avec $j = 1, 2$) s'écrivent :

$$E_j(z, t) = A_i \cdot e^{-i(\omega_j t - k_j z)} + A_j^* \cdot e^{+i(\omega_j t - k_j z)} \quad (2.73)$$

D'après l'équation (2.57), la polarisation non linéaire de l'onde à la fréquence double ω_2 peut s'écrire comme suit :

$$P_2(z, t) = \varepsilon_o \cdot \chi^{(2)} \cdot E_1^2(z) \cdot e^{-2i\omega_1 t} + c.c. \quad (2.74)$$

soit,

$$P_2(z, t) = 2\varepsilon_o \cdot d_{eff} \cdot A_1^2(z) \cdot e^{2ik_1 z} \cdot e^{-2i\omega_1 t} + c.c. \quad (2.75)$$

en posant $\chi^{(2)} = 2 d_{eff}$, d'après l'équation (2.22).

L'équation de propagation de l'enveloppe du second harmonique devient alors :

$$-2ik_2 \frac{dA_2}{dz} = 2 \frac{\omega_2^2}{c^2} \cdot d_{eff} \cdot A_1^2(z) \cdot e^{i(2k_1 - k_2)z} \cdot e^{i(\omega_2 - 2\omega_1)t} \quad (2.76)$$

Dans cette dernière écriture, le dernier terme peut être éliminé car $\omega_2 = 2\omega_1$.

On calcule maintenant la polarisation de l'onde à la fréquence ω_1 , en considérant que celle-ci est créée par un processus de différence de fréquence entre le second harmonique et le fondamental :

$$\omega_1 = \omega_2 - \omega_1 \quad (2.77)$$

L'expression de la polarisation P_1 de l'onde fondamentale est ainsi obtenue facilement, en se reportant à la section précédente sur le processus de différence de fréquences :

$$P_1(z) = 4\varepsilon_o \cdot d_{eff} \cdot A_1^*(z) \cdot A_2(z) \cdot e^{i(k_2 - k_1)z} \cdot e^{-i\omega_1 t} \quad (2.78)$$

En remplaçant la polarisation P_1 par son expression dans l'équation de propagation, on obtient pour l'onde à la fréquence ω_1 ,

$$-2ik_1 \frac{dA_1}{dz} = 4 \frac{\omega_1^2}{c^2} \cdot d_{eff} \cdot A_1^*(z) \cdot A_2(z) \cdot e^{i(k_2 - 2k_1)z} \quad (2.79)$$

Au final, les équations de propagation des ondes 1 et 2 forment un système de deux équations couplées :

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dz} = \frac{2i\omega_1 d_{eff}}{n_1 c} A_1^* A_2 e^{-i\Delta kz} \\ \frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega_2 d_{eff}}{n_2 c} A_1^2 e^{+i\Delta kz} \end{cases} \quad (2.80)$$

où $\Delta k = 2k_1 - k_2$.

Dans le cas d'un couplage faible entre l'onde fondamentale et son harmonique, on peut faire l'approximation paramétrique qui suppose que l'amplitude A_1 est constante au cours de la propagation dans le cristal non linéaire. En intégrant la deuxième équation de (2.80) sur la distance z , on obtient l'expression de l'amplitude de l'onde harmonique :

$$\begin{aligned} A_2(z) &= \frac{i\omega_2 d_{eff} A_1^2}{n_2 c} \int_0^z e^{i\Delta kz} dz \\ &= \frac{i\omega_2 d_{eff} A_1^2}{n_2 c} z e^{i\Delta kz/2} \text{sinc}(\Delta kz/2) \end{aligned} \quad (2.81)$$

L'intensité I_2 est alors égale à :

$$\begin{aligned} I_2(z) &= \frac{\varepsilon_o |A_2|^2 c n_2}{2} \\ I_2(z) &= \frac{2\pi^2 [\chi^{(2)}]^2 z^2 I_1^2}{n_2 n_1^2 c \lambda_2^2 \varepsilon_o} \text{sinc}^2(\Delta kz/2) \end{aligned} \quad (2.82)$$

L'intensité du second harmonique est donc proportionnelle au carré de l'intensité de l'onde incidente.

2.5.4.1 Accord de phase

Le processus de génération du second harmonique n'est efficace que si les conditions de conservation du moment (appelé aussi accord de phase) sont satisfaites :

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 = 0 \quad (2.83)$$

Pour réaliser l'accord de phase, il faut que $k_2 = 2k_1$, ce qui, d'après l'équation (2.68), est équivalent à $n_2 \equiv n(2\omega) = n(\omega) \equiv n_1$ car $k_i = \frac{n_i \omega_i}{c}$, avec $i=1$ ou 2 . Cette égalité peut être obtenue en exploitant la biréfringence de nombreux cristaux due à leur anisotropie. Comme on le verra par la suite, l'anisotropie d'un cristal induit deux indices, l'un

ordinaire et l'autre extraordinaire. Cette propriété sera développée plus en détail dans la section suivante.

Dans le cas d'un accord de phase de type I, dans un cristal uniaxe négatif (cf. section 2.3), un faisceau fondamental ordinaire et un faisceau de second harmonique extraordinaire peuvent ainsi être obtenus [47] (voir la figure 2.11) :

$$n_o(\omega) = n_e(2\omega) \quad (2.84)$$

L'accord de phase de type II nécessite la valeur de l'indice extraordinaire du second harmonique suivante :

$$n_e(2\omega) = \frac{n_o(\omega) + n_e(\omega)}{2} \quad (2.85)$$

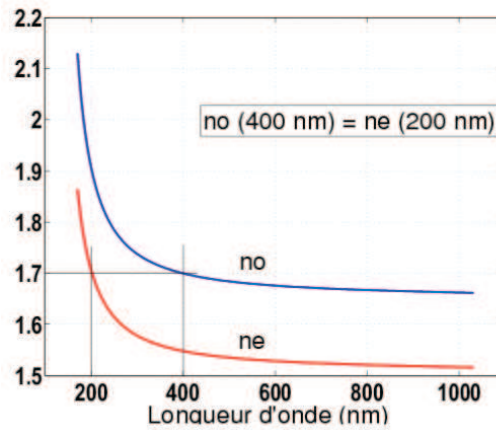


FIG. 2.11: Exemple de courbe des indices ordinaire et extraordinaire permettant l'accord de phase pour le doublage de fréquence dans le cas d'un cristal uniaxe négatif

D'après l'équation (2.82), un accord de phase parfaitement réalisé maximise l'intensité de l'onde harmonique I_2 et permet alors la meilleure efficacité de conversion de l'onde incidente. On aura alors une impulsion harmonique cohérente sur toute la longueur du cristal. Plus on s'éloigne de cet accord de phase parfait, moins le doublage est efficace.

2.6 Amplification paramétrique optique

La différence de fréquences décrite dans la section précédente est aussi souvent appelée processus de conversion paramétrique. Depuis sa démonstration en 1965 par Giordmaine et Miller [1], la conversion paramétrique est reconnue comme un effet important pour la réalisation d'une source infrarouge accordable sur une large gamme de fréquences.

Nous allons dans cette section décrire la technique d'amplification paramétrique et l'explicitier dans les cas particuliers des dispositifs réalisés. Les paramètres intervenant dans le processus OPA peuvent en effet être déterminés à partir des équations de propagation définies précédemment et permettent ainsi la préparation des expériences.

Comme nous avons pu le voir dans les sections précédentes, dans les cristaux uniaxes, deux types d'accord de phase sont possibles. Le type I correspond au cas où deux ondes ordinaires se combinent et créent une onde extraordinaire. Le type II correspond au cas où une onde ordinaire et une onde extraordinaire se combinent et créent une onde extraordinaire. La plupart des exemples présentés dans ce chapitre sont donnés pour un cristal de BBO uniaxe négatif de type I. En effet, celui-ci présente les meilleures caractéristiques pour nos expériences (celles-ci seront exposées à la fin de ce chapitre) et possède un coefficient effectif d_{eff} plus important en type I qu'en type II. De plus, l'accord de phase en type I permet d'obtenir une bande spectrale d'amplification plus large qu'en type II.

2.6.1 Principe

L'amplification paramétrique optique est un phénomène d'optique non linéaire du deuxième ordre présentant la propriété d'amplifier une onde de faible puissance à la pulsation ω_s (dite signal) à partir d'une onde intense de pulsation ω_p (dite pompe) en un simple passage dans un cristal non linéaire non centrosymétrique.

Il s'agit d'un cas particulier du processus de différence de fréquences vu précédemment, dans lequel on considère que l'une des ondes incidentes sur le cristal est très intense. En sortie de cristal, pour respecter la loi de conservation de l'énergie, une nouvelle onde de pulsation ω_c , dite complémentaire (idler en anglais), est créée, comme le montre le schéma de la figure 2.12. Pendant l'amplification paramétrique, l'énergie est donc transférée de

l'onde pompe vers les ondes signal et complémentaire. Ce transfert étant instantané, il n'y a pas de stockage d'énergie dans le cristal non linéaire, ce qui réduit les effets thermiques.

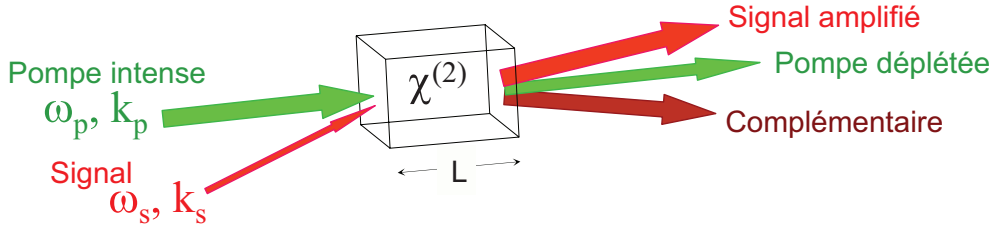


FIG. 2.12: Schéma de principe de l'amplification paramétrique optique

Le processus de conversion paramétrique étant un processus dérivé de la différence de fréquences, la théorie générale est la même. La seule différence concerne les conditions initiales [48] où l'un des deux faisceaux incidents est très intense et l'autre est faible. Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable définie dans la section précédente, et si la diffraction et la dispersion sont négligeables, trois équations couplées décrivent la propagation des trois ondes planes mises en jeu dans ce processus au cours de leur passage dans le cristal non linéaire [35, 36, 49] :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_s}{\partial z} = i \frac{2\pi}{\lambda_s n_s} d_{eff} A_p A_c^* e^{+i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_c}{\partial z} = i \frac{2\pi}{\lambda_c n_c} d_{eff} A_p A_s^* e^{+i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_p}{\partial z} = i \frac{2\pi}{\lambda_p n_p} d_{eff} A_s A_c e^{-i\Delta k z} \end{cases} \quad (2.86)$$

où le champ électrique s'écrit :

$$E_i(z, t) = A_i(z) \cdot e^{-i(\omega_i t - k_i \cdot z)} + c.c. \quad (2.87)$$

$A_i(z)$ représente l'amplitude de l'onde à la pulsation ω_i , d_{eff} est le coefficient effectif du cristal non-linéaire, λ_i est la longueur d'onde i , n_i est l'indice de propagation non-linéaire de l'onde à la pulsation ω_i , z est la distance parcourue dans le milieu non-linéaire. On retrouve ainsi les équations (2.71) et (2.72) valables pour la différence de fréquences,

avec $A_1 = A_p$, $A_2 = A_s$ et $A_3 = A_c$.

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Différence de fréquences : } A_p(0) \simeq A_s(0) \gg A_c(0) \\ \text{Amplification paramétrique : } A_p(0) \gg A_s(0); A_c(0) = 0 \end{array} \right. \quad (2.88)$$

2.6.2 Accord de phase

Le processus d'amplification paramétrique est efficace seulement si les conditions d'accord de phase et de conservation de l'énergie sont satisfaites :

$$\left\{ \begin{array}{l} \omega_p = \omega_s + \omega_c \\ \vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_c \end{array} \right. \quad (2.89)$$

où \vec{k}_l ($l = p, s$ ou c) représente le vecteur d'onde de l'onde à la pulsation ω_l .

Quand les conditions sont exactement satisfaites, on est dans le cas d'un accord de phase parfait. Dans le cas d'un accord moins bien réalisé, l'interaction entre les trois ondes aura toujours lieu mais avec une efficacité moindre. L'efficacité de conversion dépend fortement du vecteur d'onde de désaccord de phase $\vec{\Delta k}$, qui s'exprime :

$$\vec{\Delta k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c \quad (2.90)$$

L'efficacité sera maximale pour $\vec{\Delta k} = \vec{0}$.

Cette relation vectorielle ne peut être satisfaite que dans deux cas précis qui définissent deux types d'accord de phase, selon que les deux ondes incidentes sur le cristal sont colinéaires ou non. La longueur d'onde de la pompe va dépendre du type d'accord de phase. La figure 2.13 donnent les angles d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde pour différentes longueurs d'onde de la pompe, dans le cas de deux ondes colinéaires. Les points d'inflexion repérés par des carrés correspondent à la dégénérescence, pour laquelle les longueurs d'onde signal et complémentaire sont le double de la longueur d'onde de la pompe.

2.6.2.1 Accord de phase colinéaire

Nous allons commencer par regarder le cas de deux ondes incidentes colinéaires, telles que représentées dans la figure 2.14.

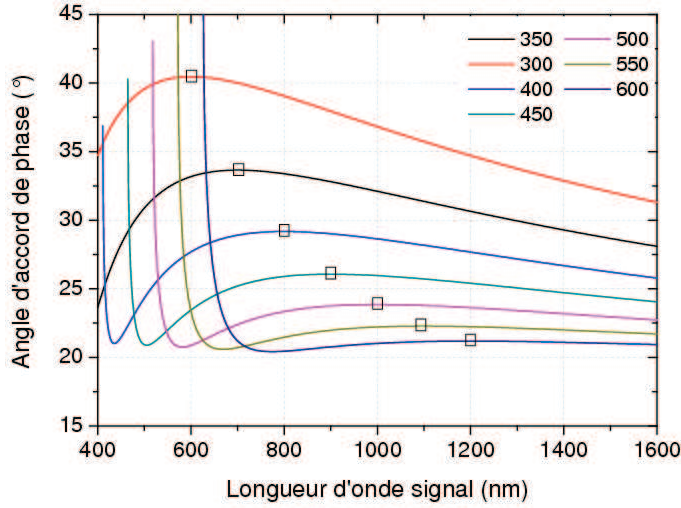


FIG. 2.13: Angle d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde pour différentes longueur d'onde de pompe, dans le cas colinéaire

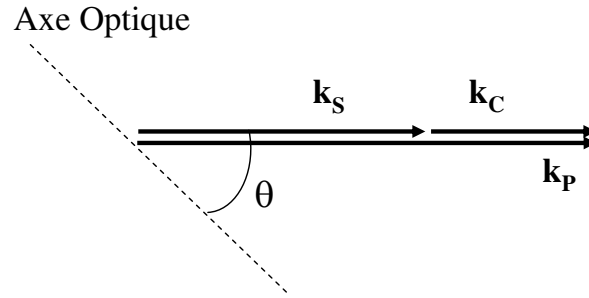


FIG. 2.14: Schéma d'accord de phase en régime colinéaire

Dans ce cas, les vecteurs d'onde du signal, de la pompe et du complémentaire sont parallèles et l'expression du désaccord de phase est donnée par :

$$\vec{\Delta k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c = (k_p - k_s - k_c) \cdot \vec{e}_z \quad (2.91)$$

où \vec{e}_z est le vecteur unitaire de la direction de propagation de la pompe. Un accord de phase parfait donne ainsi lieu à la relation suivante :

$$k_p^2 = k_s^2 + k_c^2 + 2 \cdot k_s \cdot k_c \quad (2.92)$$

De manière générale, le vecteur d'onde d'une onde à la fréquence i s'écrit $k_i = 2\pi \frac{n_i}{\lambda_i}$. Il existe une relation identique pour la pompe dont l'indice de réfraction dépend de l'angle

d'accord de phase θ :

$$k_p = 2\pi \frac{n_p(\theta)}{\lambda_p} \quad (2.93)$$

La seule onde extraordinaire qui intervient dans le processus d'amplification paramétrique de type I est la pompe. Son indice de réfraction se déduit des équations (2.92) et (2.93) :

$$n_p^2(\theta) = (k_s^2 + k_c^2 + 2.k_s.k_c) \cdot \frac{\lambda_p^2}{(2\pi)^2} \quad (2.94)$$

$$= \lambda_p^2 \left[\frac{n_{so}^2}{\lambda_s^2} + \frac{n_{co}^2}{\lambda_c^2} + 2 \frac{n_{so}n_{co}}{\lambda_s\lambda_c} \right] \quad (2.95)$$

où n_{so} et n_{co} sont les indices ordinaires respectifs du signal et du complémentaire.

De plus, l'équation (2.35) du chapitre précédent montre que l'équation de l'ellipsoïde des indices dans le cas d'un accord de phase de type I où l'axe optique est confondu avec un des axes du repère peut s'écrire :

$$\frac{1}{n_p^2(\theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_{po}^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_{pe}^2} \quad (2.96)$$

où n_{po} et n_{pe} sont les indices respectivement ordinaire et extraordinaire de la pompe.

Ainsi, avec l'ensemble de ces équations, on obtient la valeur de l'angle d'accord de phase qui tient compte des différentes longueurs d'onde mises en jeu dans le cas d'une propagation dans un cristal uniaxe de type I.

$$\theta = \arccos \sqrt{\frac{\frac{1}{n_p^2(\theta)} - \frac{1}{n_{pe}^2}}{\frac{1}{n_{po}^2} - \frac{1}{n_{pe}^2}}} \quad (2.97)$$

ou encore :

$$\theta = \arccos \sqrt{\frac{\left[\lambda_p^2 \left(\frac{n_{so}^2}{\lambda_s^2} + \frac{n_{co}^2}{\lambda_c^2} + 2 \frac{n_{so}n_{co}}{\lambda_s\lambda_c} \right) \right]^{-1} - \frac{1}{n_{pe}^2}}{\frac{1}{n_{po}^2} - \frac{1}{n_{pe}^2}}} \quad (2.98)$$

Dorénavant, la courbe d'accord de phase en fonction des longueurs d'onde contenues dans le spectre du signal à amplifier peut être tracée. Celle-ci est telle que :

$$\Delta k = \frac{2\pi n_p(\theta)}{\lambda_p} - \frac{2\pi n_{so}}{\lambda_s} - \frac{2\pi n_{co}}{\lambda_c} \quad (2.99)$$

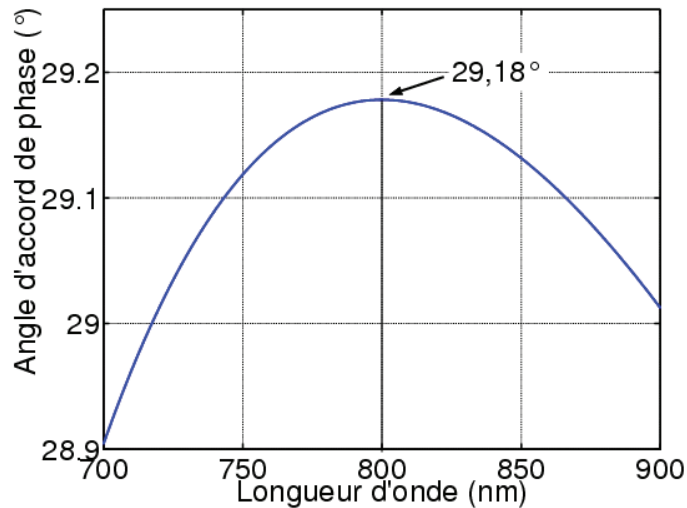


FIG. 2.15: Courbe d'accord de phase dans le cas dégénéré et colinéaire ($\lambda_s = 800nm$, $\lambda_p = 400nm$)

La courbe de la figure 2.15 permet de déterminer la valeur de l'angle d'accord de phase correspondant à une interaction colinéaire et dégénérée avec un faisceau signal de longueur d'onde centrale égale à 800 nm et un faisceau pompe de 400 nm . Celui-ci est égal à 29.18° .

L'accord de phase colinéaire n'est réalisé que pour une certaine plage de longueurs d'onde situées de part et d'autre de la longueur d'onde centrale. Une variation de l'angle d'accord de phase décale légèrement la zone de longueurs d'onde pour lesquelles l'accord de phase est réalisé.

2.6.2.2 Accord de phase non-colinéaire

On se place maintenant dans le cas de deux ondes incidentes non colinéaires. L'angle α représente l'angle interne au cristal entre le faisceau signal et le faisceau pompe et β , l'angle complémentaire du triangle formé par les trois vecteurs d'onde. La direction des vecteurs d'onde de chaque faisceau ainsi que celle des vecteurs de Poynting du signal (S_s) et de la pompe (S_p) sont schématisées ci-après (fig. 2.16) et définies par rapport à l'axe

optique du cristal, noté A.O.

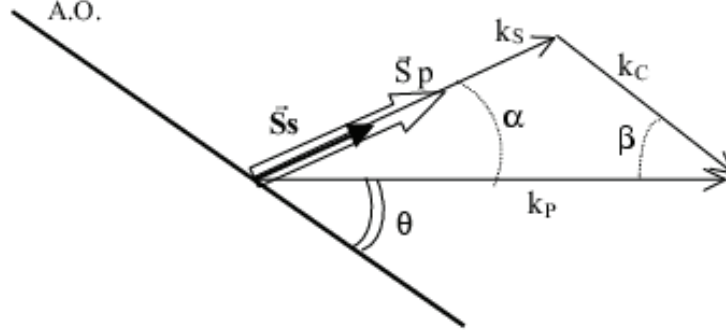


FIG. 2.16: Schéma d'accord de phase en régime non colinéaire

Le théorème de Carnot dans le triangle formé par les trois vecteurs d'onde du signal, de la pompe et du complémentaire induit la relation suivante :

$$k_p^2 = k_s^2 + k_c^2 + 2k_s \cdot k_c \cdot \cos(\alpha + \beta) \quad (2.100)$$

Cette relation fait intervenir l'angle α de non-colinéarité entre les faisceaux signal et pompe, ainsi que son angle complémentaire, β . De plus :

$$k_s \sin(\alpha) = k_c \sin(\beta) \quad (2.101)$$

L'indice de réfraction de la pompe en fonction de l'angle d'accord de phase θ s'écrit donc :

$$n_p^2(\theta) = \lambda_p^2 \left[\frac{n_{co}^2}{\lambda_c^2} + \frac{n_{so}^2}{\lambda_s^2} + 2 \frac{n_{co} n_{so}}{\lambda_c \lambda_s} \cos(\alpha + \beta) \right] \quad (2.102)$$

où l'expression du cosinus peut se développer comme suit :

$$\begin{aligned} \cos(\alpha + \beta) &= \cos \alpha \cdot \cos \beta - \sin \alpha \cdot \sin \beta \\ &= \cos \alpha \cdot \sqrt{1 - \sin^2 \beta} - \frac{k_s}{k_c} \cdot \sin^2 \alpha \\ &= \cos \alpha \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{n_{so}}{\lambda_s} \cdot \frac{\lambda_c}{n_{co}} \sin \alpha \right)^2} - \frac{n_{so}}{\lambda_s} \cdot \frac{\lambda_c}{n_{co}} \cdot \sin^2 \alpha \end{aligned} \quad (2.103)$$

L'expression de l'angle d'accord de phase θ tenant compte des longueurs d'onde mises en jeu et de l'angle α entre la pompe et le signal peut alors s'écrire :

$$\cos^2 \theta = \frac{\left[\lambda_p^2 \left(\frac{n_{so}^2}{\lambda_s^2} + \frac{n_{co}^2}{\lambda_c^2} + 2 \frac{n_{so} n_{co}}{\lambda_s \lambda_c} \left(\cos \alpha \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{n_{so}}{\lambda_s} \cdot \frac{\lambda_c}{n_{co}} \sin \alpha \right)^2} - \frac{n_{so}}{\lambda_s} \cdot \frac{\lambda_c}{n_{co}} \cdot \sin^2 \alpha \right) \right) \right]^{-1} - (n_{pe}^2)^{-1}}{(n_{po}^2)^{-1} - (n_{pe}^2)^{-1}} \quad (2.104)$$

Pour amplifier efficacement un faisceau signal de grande largeur spectrale, il faut avoir une courbe d'accord de phase la plus plate possible sur cette bande spectrale (donc autour de la longueur d'onde centrale) et une courbe de gain la plus large possible. La figure 2.17 illustre l'évolution du désaccord de phase en fonction de la longueur d'onde, pour différentes valeurs de l'angle α dans le cas de la première expérience d'OPCPA que nous avons réalisé (cf. chapitre 3) où $\lambda_p = 532 \text{ nm}$. Cette courbe a été tracée à partir d'un programme réalisé avec le logiciel Matlab permettant de choisir les angles les mieux adaptés à nos expériences. La courbe correspondant à un angle α externe au cristal proche de 4° est la plus plate dans la région comprise entre 750 nm et 950 nm dans laquelle se situe le spectre de notre signal. L'angle α externe au cristal se calcule facilement en multipliant la valeur de l'angle interne au cristal par l'indice ordinaire du faisceau signal (cf. tableau 2.3).

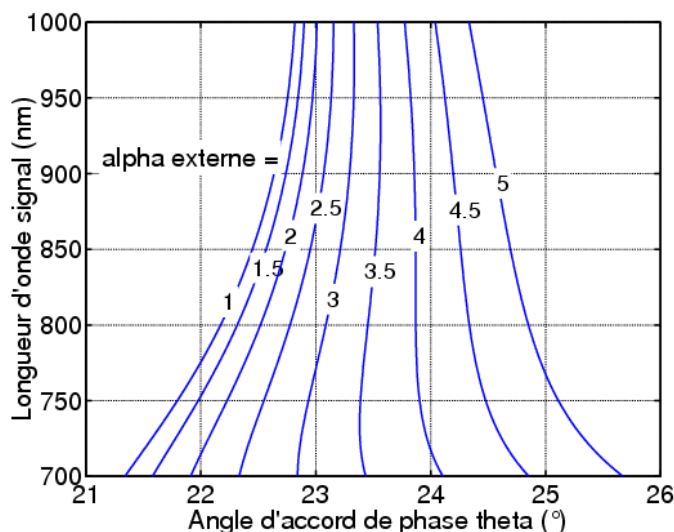


FIG. 2.17: Évolution du désaccord de phase en fonction de la longueur d'onde signal pour différentes valeurs de l'angle entre les ondes signal et pompe

Plus précisément, un angle (externe) de $3,9^\circ$ est le mieux adapté pour réaliser une amplification paramétrique efficace d'un signal centré à 800 nm avec une pompe de longueur d'onde égale à 532 nm et un angle θ égal à $23,8^\circ$. La figure 2.18 ci-dessous montre la courbe d'accord de phase correspondant à cette valeur de l'angle α .

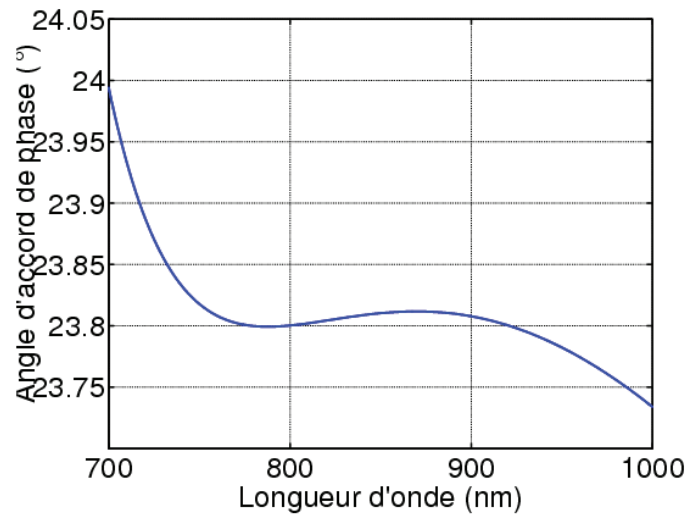


FIG. 2.18: Courbe d'accord de phase dans le cas non dégénéré et non colinéaire ($\lambda_s = 800\text{nm}$, $\lambda_p = 532\text{nm}$, $\alpha = 3.9^\circ$)

2.7 Amplification paramétrique optique d'impulsions à dérive de fréquence

2.7.1 Principe

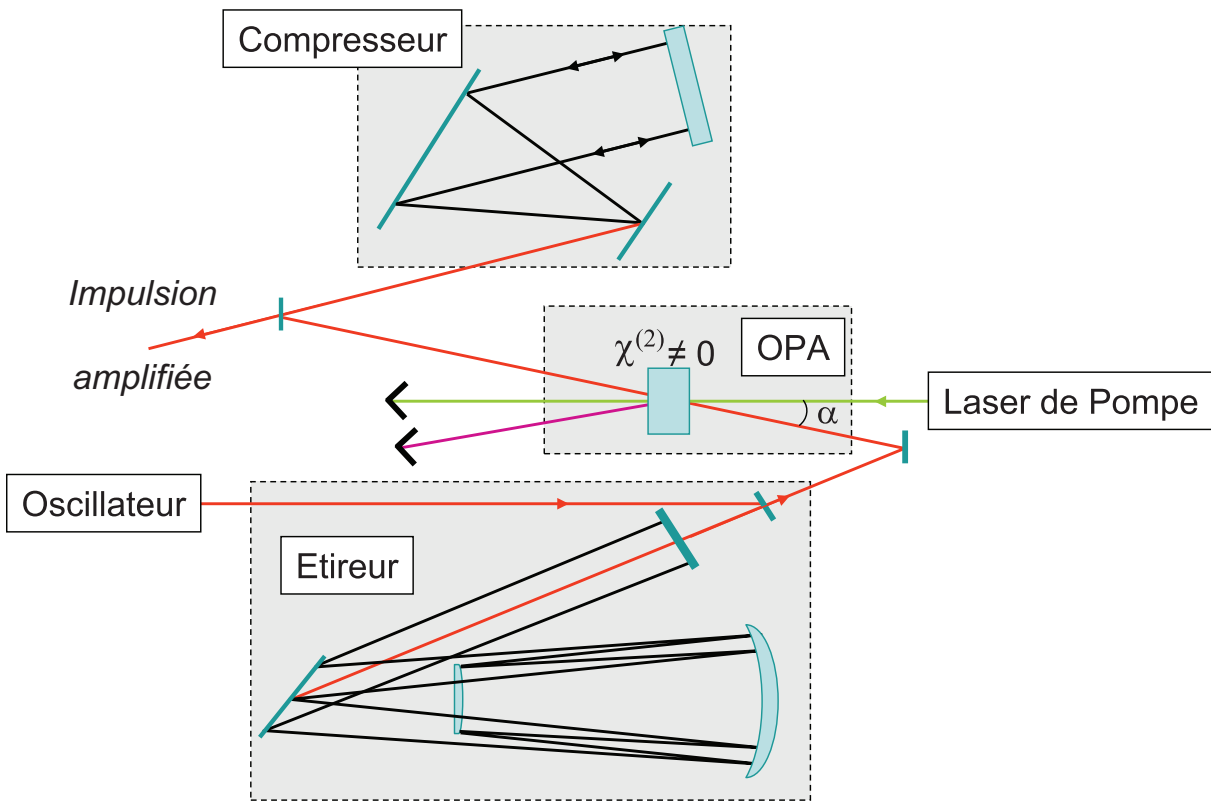


FIG. 2.19: Schéma de principe d'un OPCPA

Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé la technique d'amplification paramétrique optique (OPA) pour amplifier des impulsions "chirpées" (c'est-à-dire étirées temporellement) possédant une bande spectrale large. Ce schéma est communément appelé "Optical Parametric Chirped Pulse Amplification" (OPCPA), c'est-à-dire "Amplification paramétrique optique d'impulsions à dérive de fréquence" [50]. Ainsi, les systèmes d'amplification OPCPA utilisent des OPA pour amplifier les impulsions, contrairement aux systèmes laser basés sur la technique CPA dans lesquels les milieux à gain sont des amplificateurs laser standards (cristal de titane :saphir, par exemple) [51]. Le schéma de principe d'un OPCPA est donné dans la figure 2.19.

Les différents faisceaux de pompe utilisés possèdent une bande spectrale relativement étroite, et une durée d'impulsion longue. Les caractéristiques optimales du faisceau de pompe sont déterminées par la nécessité d'une conversion efficace et d'un gain élevé dans l'OPA, tout en veillant à rester en-dessous du seuil de dommage des matériaux et notamment de celui du cristal non linéaire utilisé pour l'interaction.

Les configurations présentées dans les exemples de ce chapitre sont celles qui ont été utilisées pour nos expériences. Elles diffèrent les unes des autres par les longueurs d'onde des trois ondes mises en jeu et par la géométrie d'interaction entre le faisceau signal et le faisceau pompe. On distingue ainsi les configurations colinéaires ou non colinéaires d'une part et dégénérées ou non dégénérées d'autre part. Dans tous les systèmes présentés, nous disposons d'une source infrarouge d'impulsions courtes, de durée comprise entre 10 et 20 femtosecondes. La longueur d'onde centrale du spectre d'émission de l'oscillateur générant ces impulsions se situe entre 795 nm et 820 nm, selon le type de système étudié.

Le premier OPCPA fut réalisé par l'équipe de A. Dubietis [2] en 1992. Un peu plus tard, l'équipe de I. N. Ross [50] a proposé l'utilisation de cette technique pour générer des impulsions courtes d'énergie élevée. De nombreuses équipes ont ensuite réalisé des pré-amplificateurs OPCPA large bande au niveau du milliJoule [24, 52, 53] et des amplificateurs de puissance de quelques centaines de femtosecondes, proche du Joule [5, 54, 55] dans des cristaux massifs de BBO [24, 52, 53, 55, 56] et de LBO [54, 57] utilisé seul ou avec du KDP [5, 58], ou encore dans des cristaux à quasi accord de phase ("QPM") [59]. Toutes ces références sont résumées dans le tableau 2.8 ci-après.

2.7.2 Gain petit signal d'un amplificateur paramétrique

La description complète de l'amplification paramétrique ne peut être obtenue qu'en résolvant le système de trois équations couplées explicité précédemment (équations 2.86). La solution est alors numérique et prend en compte les effets de dépeuplement du faisceau de pompe au cours de l'amplification paramétrique [36]. Cependant, il est plus simple dans un premier temps de se placer dans le cas d'une pompe non dépeuplée et de résoudre analytiquement le système d'équations. Cela permet de se rendre compte facilement de la bande spectrale qu'il est possible d'amplifier et de connaître la phase spectrale associée sans avoir à effectuer des calculs plus lourds et consommateurs de temps.

Énergie élevée et impulsions longues

| Nom | Cristaux NL | Énergie après compression | Durée | Référence |
|-----------|-------------|---------------------------|----------|-----------|
| Dubietis | BBO | 65 μJ | 70 fs | 1992 [2] |
| Ross | LBO + KDP | 400 μJ | 300 fs | 2000 [58] |
| Yang | LBO + KDP | 570 mJ | 155 fs | 2002 [5] |
| Jovanovic | BBO | 15 mJ | 310 fs | 2002 [55] |
| Yoshida | BBO | 65 mJ av. comp. | 350 fs | 2003 [56] |
| Jovanovic | PPKTP | 22 μJ | 390 fs | 2003 [59] |
| Collier | | 35 J av. comp. | 85 fs | 2005 [?] |
| Bagnoud | LBO | 250 mJ | 430 fs | [54] |

Énergie plus faible et impulsions ultra-courtes

| Nom | Cristaux NL | Énergie après compression | Durée | Référence |
|----------|-------------|---------------------------|-----------|-----------|
| Hauri | BBO | 77 μJ | 17,3 fs | 2004 [24] |
| Zinkstok | BBO | 120 μJ | 11,8 fs | 2005 [53] |
| Ishii | BBO | 5 mJ | 10 fs | 2005 [52] |
| Witte | | 10,5 mJ | 9,8 fs | 2005 [60] |

TAB. 2.8: Résumé de différents résultats d'OPCPA réalisés dans d'autres laboratoires

On se place dans le cas où il n'y a ni perte, ni absorption. Si la pompe n'est pas dépeuplée, cela revient à la considérer constante au cours de sa propagation dans le cristal. Autrement dit, $I_p(z) = I_p(0)$, quel que soit z . On suppose de plus que l'onde complémentaire n'est pas présente au début du processus et donc $I_c(0) = 0$. Le système de trois équations donnant l'évolution des amplitudes des ondes au cours de leur propagation se résume alors à un système de deux équations à deux inconnues, qui est relativement simple à résoudre.

Soit $\gamma_0 = 4\pi d_{eff} \sqrt{\frac{I_p(0)}{2\varepsilon_0 n_{pe} n_s n_c c \lambda_s \lambda_c}}$, le coefficient de gain par unité de longueur, exprimé en cm^{-1} , où $I_p(0)$ est l'intensité de la pompe constante au cours du temps.

L'intensité et l'amplitude de la pompe peuvent être reliées comme suit :

$$A_p = 2 \cdot \sqrt{\frac{I_p(0)}{2\varepsilon_0 \cdot c \cdot n_{pe}}} \quad (2.105)$$

Le coefficient de gain est alors introduit dans l'expression de $\frac{dA_s}{dz}$ donné dans les équations (2.86) :

$$\frac{dA_s}{dz} = -i \cdot \gamma_o \cdot A_c^* \sqrt{\frac{n_c \cdot \lambda_c}{n_s \cdot \lambda_s}} e^{-i\Delta k z} \quad (2.106)$$

On pose de plus :

$$\begin{cases} a_p = A_p \sqrt{n_p \cdot \lambda_p} \\ a_s = A_s \sqrt{n_s \cdot \lambda_s} e^{+i\frac{\Delta k}{2} z} \\ a_c^* = A_c^* \sqrt{n_c \cdot \lambda_c} e^{-i\frac{\Delta k}{2} z} \end{cases} \quad (2.107)$$

L'équation (2.105) devient ainsi :

$$\frac{da_s}{dz} = +i \frac{\Delta k}{2} a_s - i\gamma_o \cdot a_c^* \quad (2.108)$$

De la même façon, pour l'onde complémentaire :

$$\frac{da_c^*}{dz} = -i \frac{\Delta k}{2} a_c^* + i\gamma_o \cdot a_s \quad (2.109)$$

Ce système peut s'écrire sous une forme matricielle afin d'en déterminer les solutions :

$$\frac{d}{dz} \begin{pmatrix} a_s \\ a_c^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} i\frac{\Delta k}{2} & -i\gamma_o \\ i\gamma_o & -i\frac{\Delta k}{2} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_s \\ a_c^* \end{pmatrix} \quad (2.110)$$

Le déterminant de la matrice principale donne la solution notée γ telle que :

$$\gamma^2 = \gamma_o^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 \quad (2.111)$$

On déduit de cette solution que l'amplification paramétrique existe alors seulement si le gain γ_o est supérieur au coefficient de désaccord de phase divisé par deux : $\gamma_o \geq \Delta k/2$.

Les solutions de ce système d'équation sont de la forme :

$$\begin{cases} a_s(z) = A.e^{\gamma z} + B.e^{-\gamma z} \\ a_c^*(z) = C.e^{\gamma z} + D.e^{-\gamma z} \end{cases} \quad (2.112)$$

où les coefficients A, B, C et D sont déterminés par les conditions aux limites :

$$a_s(0) = A + B \text{ et } a_c^*(0) = 0.$$

Ainsi :

$$\begin{cases} A_s(z) = A_s(0) \cdot \left[\cosh(\gamma z) - \frac{i\Delta k}{2\gamma} \cdot \sinh(\gamma z) \right] e^{-i\frac{\Delta k z}{2}} \\ A_c(z) = i\sqrt{\frac{n_s \lambda_s}{n_c \lambda_c}} \frac{\gamma_o}{\gamma} \cdot A_s^*(0) \cdot \sinh(\gamma z) e^{-i\frac{\Delta k z}{2}} \end{cases} \quad (2.113)$$

Le gain en intensité G_s pour le signal est le rapport des intensités transmise et incidente :

$$\begin{aligned} G_s &= \frac{I_s(z)}{I_s(0)} = \left| \frac{A_s(z)}{A_s(0)} \right|^2 \\ &= \cosh^2(\gamma z) + \left(\frac{\Delta k}{2\gamma}\right)^2 \sinh^2(\gamma z) \end{aligned} \quad (2.114)$$

Celui-ci est souvent écrit sous la forme simplifiée suivante :

$$G_s = 1 + \frac{\gamma_o^2}{\gamma^2} \sinh^2(\gamma z) \quad (2.115)$$

On peut également définir un gain pour l'onde complémentaire, noté G_c :

$$\begin{aligned} G_c &= \left| \frac{A_c(z)}{A_s(0)} \right|^2 \\ &= \frac{\lambda_s}{\lambda_c} [G_s(z) - 1] \end{aligned} \quad (2.116)$$

Cette dernière expression signifie que, pour chaque photon perdu par la pompe, un photon est créé pour l'onde signal et un autre pour l'onde complémentaire.

Dans le cas d'un accord de phase parfaitement réalisé ($\Delta k = 0$) et tel que $\gamma L \gg 1$, où L est la longueur totale du cristal utilisé pour l'interaction, l'évolution des amplitudes des ondes signal et complémentaire est exponentielle, comme le montre la figure 2.20 ci-après.

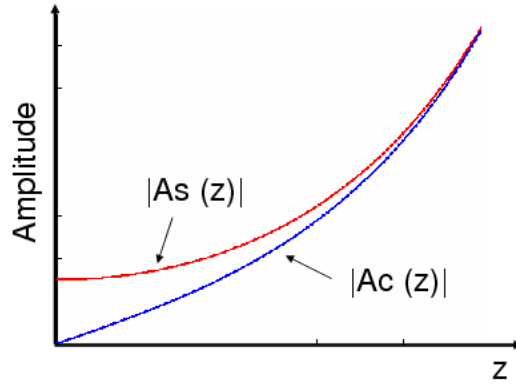


FIG. 2.20: Evolution des amplitudes des ondes signal et complémentaire au cours de la propagation dans le cas d'un accord de phase parfait.

Le gain évolue lui aussi de façon exponentielle en fonction de la longueur du cristal :

$$\begin{aligned} G &= \cosh^2(\gamma z) \\ G &\simeq \frac{1}{4} e^{2\gamma z} \end{aligned} \quad (2.117)$$

Le gain paramétrique peut atteindre des niveaux importants dans des cristaux non linéaires longs de seulement quelques millimètres. En guise d'exemple, la figure 2.21 montre l'évolution du gain en fonction de l'intensité de pompe pour un cristal de BBO de 12 mm de long. Un gain de 10^3 peut être facilement atteint en un seul passage, tout en restant en dessous du seuil de dommage du cristal avec une intensité de pompe de 500 MW/cm^2 . Il s'agit d'un des avantages principaux de la technique OPCPA qui permet d'obtenir des

gains élevés, dans des dispositifs nettement plus compacts que les systèmes d'amplification à multiples passages utilisés couramment dans les chaînes laser CPA.

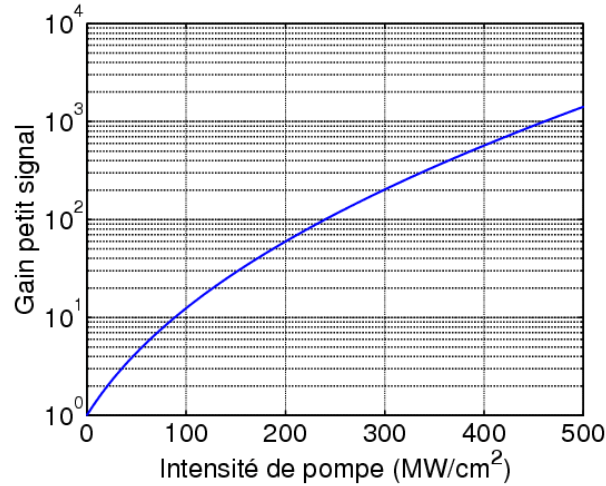


FIG. 2.21: Evolution du gain en fonction de l'intensité de pompe dans le cas d'un accord de phase parfait. $\lambda_s = 800 \text{ nm}$, $\lambda_p = 532 \text{ nm}$, longueur du BBO = 12 mm

La technique OPCPA présente ainsi la possibilité d'amplifier des impulsions sur une grande largeur spectrale, notamment lorsqu'on travaille dans un accord de phase de type I. Plusieurs solutions permettent d'obtenir une bande de gain large, en fonction du type de cristal utilisé pour l'amplification paramétrique. Dans le cas du BBO, et avec une pompe quasi-monochromatique ou possédant un spectre étroit, les deux solutions principales déjà présentées sont la configuration dégénérée colinéaire et la configuration non dégénérée non colinéaire, cette dernière option donnant la bande de gain la plus large dans le cas du BBO. Il peut aussi être intéressant de désaccorder un OPA proche de la dégénérescence pour augmenter la largeur de bande du gain. Pour cela, on introduit un angle entre le signal et la pompe, de sorte que la courbe de gain se creuse à la longueur d'onde centrale du signal et s'élargit. Les sections suivantes présentent les courbes de gain dans ces trois différentes configurations, ainsi que les profils de la phase spectrale.

2.7.2.1 Courbe de gain petit signal dans le cas non dégénéré et non colinéaire

Nous traitons de nouveau l'exemple de notre première expérience d'amplification paramétrique, dans laquelle le faisceau de pompe a pour longueur d'onde 532 nm et le faisceau signal 800 nm . Comme vu dans la section 2.6.2, les angles θ et α déterminés à partir de la

figure 2.17 sont égaux à $23,8^\circ$ et $3,9^\circ$ respectivement. Les paramètres du calcul (énergie de pompe, diamètres des faisceaux, durée du faisceau de pompe) permettant de tracer la courbe de gain sont fixés tels que l'intensité de pompe est égale à 500 MW/cm^2 et que le gain petit signal soit égal à 80 pour la longueur d'onde centrale, c'est-à-dire 800 nm . Le profil du gain est présenté dans la figure 2.22, pour un cristal d'épaisseur égale à 8 mm .

La largeur totale de la bande passante à mi-hauteur est supérieure à 200 nm , ce qui correspond à une durée d'impulsion limitée par transformée de Fourier inférieure à 5 fs pour un spectre centré à 800 nm . Cette configuration permet d'obtenir la bande de gain la plus large dans le cas du cristal de BBO. On voit qu'il est alors théoriquement possible d'amplifier des impulsions de très courte durée avec cette courbe de gain. Cependant, celle-ci dépend beaucoup de l'angle entre le signal et la pompe [61] et il existe un angle unique qui maximise la largeur de cette courbe, appelé pour cette raison "angle magique".

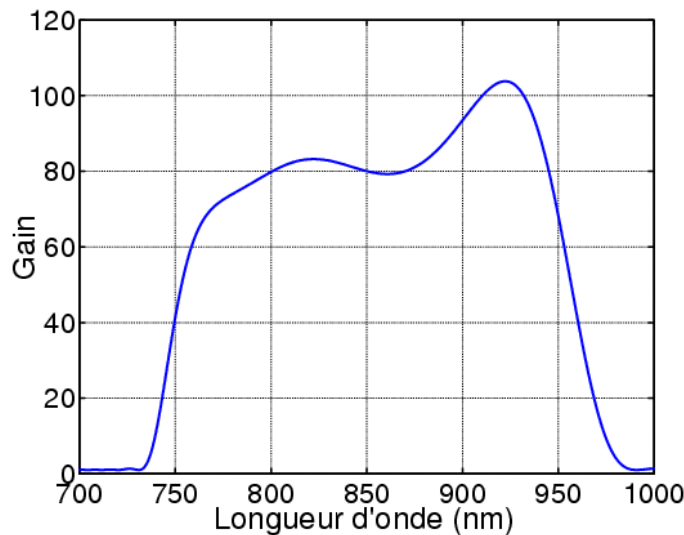


FIG. 2.22: Courbe de gain de l'OPA non dégénéré non colinéaire. $\lambda_p=532 \text{ nm}$, $\lambda_s=800 \text{ nm}$, $\theta = 23.8^\circ$ et $\alpha_{externe} = 3.9^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 500 \text{ MW/cm}^2$.

Une variation autour de cet angle réduit considérablement la bande d'amplification, même pour des variations de quelques dixièmes de degrés, et crée des distortions dans la courbe de gain, comme le montre les courbes de la figure 2.23. Les expériences présentées dans le chapitre 3 mettent en évidence les distortions qui apparaissent alors dans le spectre du signal amplifié.

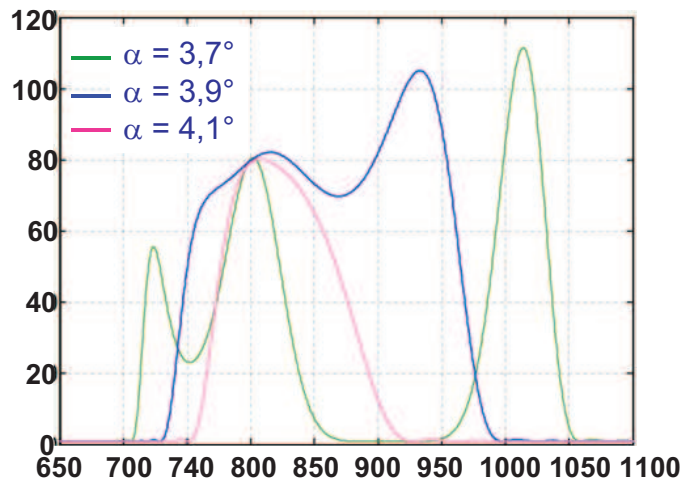


FIG. 2.23: Evolution de la courbe de gain d'un OPA non dégénéré et non colinéaire en fonction de la valeur de l'angle alpha, tous les autres paramètres étant constants.

2.7.2.2 Courbe de gain petit signal dans le cas dégénéré et colinéaire

Le profil de gain dans le cas d'un faisceau de pompe de longueur d'onde égale à 400 nm amplifiant un faisceau signal centré à 800 nm est représenté sur la figure 2.24 ci-après. Le cristal de BBO utilisé pour tracer cette courbe a une épaisseur de 3 mm . Nous avons fixé l'intensité de pompe à $3,45 \text{ GW/cm}^2$ et un angle α nul entre les deux faisceaux. Les paramètres du calculs sont tels que le gain petit signal soit proche de 400 à 800 nm .

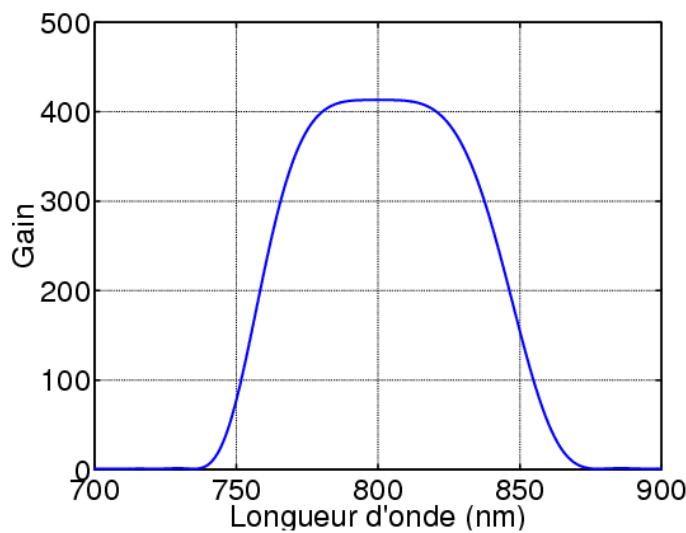


FIG. 2.24: Courbe de gain de l'OPA dégénéré et colinéaire avec $\lambda_p=400 \text{ nm}$, $\lambda_s=800 \text{ nm}$ $\theta = 29,2^\circ$ et $\alpha = 0^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,45 \text{ GW/cm}^2$

La courbe de gain, nettement moins large que dans le cas non dégénéré présenté dans la section précédente, s'étend de 750 nm à 850 nm et permet néanmoins d'amplifier des spectres d'une largeur spectrale proche de 100 nm, ce qui correspond à des durées d'impulsions limitées par transformée de Fourier inférieures à 10 fs.

2.7.2.3 Courbe de gain petit signal dans le cas quasi dégénéré et quasi colinéaire

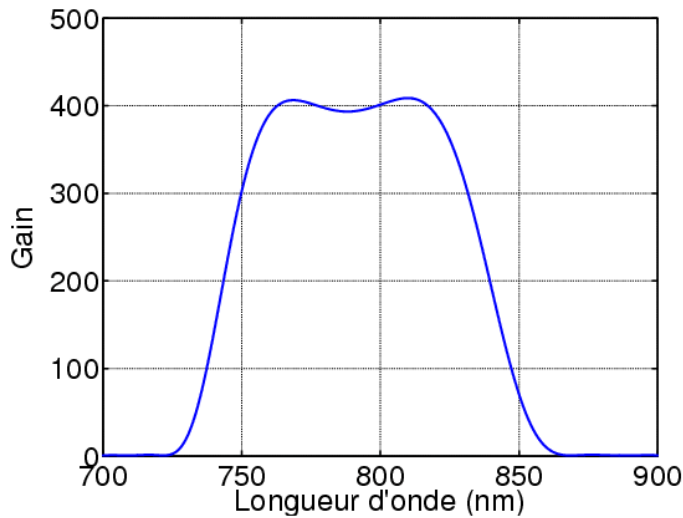


FIG. 2.25: Courbe de gain de l'OPA quasi-dégénéré et quasi-colinéaire avec $\lambda_p=400$ nm, $\lambda_s=810$ nm $\theta = 29,2^\circ$ et $\alpha_{exterieur} = 2^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,45$ GW/cm²

Il est possible d'élargir la courbe de gain correspondant à une configuration parfaitement dégénérée, en se plaçant dans un régime intermédiaire, quasi-dégénéré, dans lequel la longueur d'onde du signal n'est pas exactement égale au double de la longueur d'onde de pompe, et quasi-colinéaire en introduisant un petit angle entre la direction de propagation de la pompe et du signal. L'exemple présenté dans la figure 2.25 correspond à la deuxième expérience d'amplification paramétrique que nous avons réalisé, dans laquelle le signal est centré à 810 nm et l'angle α est égal à deux degrés à l'extérieur du cristal. Nous avons gardé les mêmes valeurs des paramètres que précédemment pour pouvoir comparer les deux courbes de gain.

Le fait d'introduire un petit angle entre les deux faisceaux d'interaction modifie la valeur du désaccord de phase à la longueur d'onde centrale du signal, ce qui se traduit par l'apparition d'un creux dans la courbe de gain et permet de l'élargir. Dans l'exemple présenté, on observe un élargissement de 8 nm. On utilise parfois l'expression "angle detuning" [4] pour désigner cette méthode.

2.7.3 Expression de la phase spectrale

Le rôle de la phase spectrale est très important dans le cas de l'amplification d'impulsions ultra-courtes car ses effets se répercutent sur la phase temporelle du signal chirpé amplifié qui détermine la qualité de la recompression temporelle. L'expression de la phase spectrale d'un mélange à trois ondes est obtenue à partir des parties imaginaires du système d'équations couplées correspondant. Dans le cas particulier de l'amplification paramétrique (cf. équation 2.86), d'après les articles de Armstrong *et al.* [36] et de Ross *et al.* [50], celle-ci a la forme suivante :

$$\varphi = \tan^{-1} \frac{\gamma \sin \frac{\Delta k L}{2} \cosh \gamma L - \frac{\Delta k}{2} \cos \frac{\Delta k L}{2} \sinh \gamma L}{\gamma \cos \frac{\Delta k L}{2} \cosh \gamma L + \frac{\Delta k}{2} \sin \frac{\Delta k L}{2} \sinh \gamma L} \quad (2.118)$$

où L est la longueur du cristal non linéaire.

Dans la technique OPCPA, la phase spectrale est déterminée par le désaccord de phase entre les ondes participant à l'interaction, c'est-à-dire le signal, la pompe et le complémentaire.

Nous avons tracé le profil de phase spectrale dans chaque cas à partir de la formule de l'équation (2.118). Il s'agit du profil théorique parfait de la phase du signal après amplification paramétrique, pour un accord de phase parfait à la longueur d'onde centrale du signal avant amplification.

2.7.3.1 Profil de phase spectrale dans le cas non dégénéré, non colinéaire

Les conditions choisies dans cet exemple de configuration non dégénérée et non colinéaire sont les mêmes que pour la courbe de gain (voir fig. 2.26), avec une intensité de pompe égale à 500 MW/cm². La phase spectrale est nulle à 800 nm, car nous avons choisi les paramètres de calculs permettant un accord de phase parfait à cette longueur d'onde.

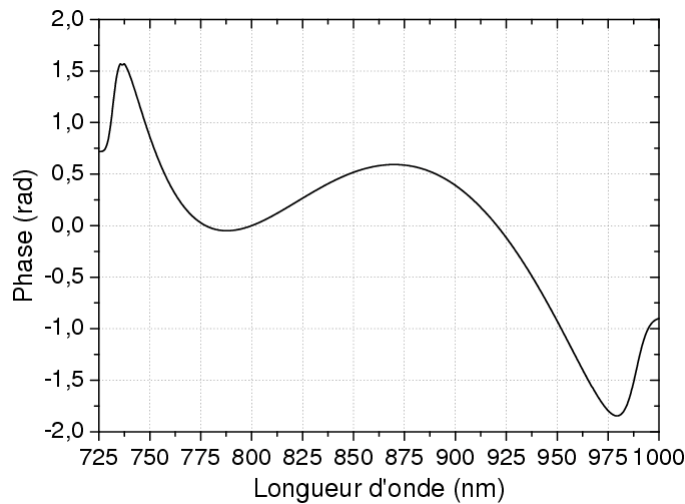


FIG. 2.26: Phase spectrale d'un OPA non dégénéré et non colinéaire avec $\lambda_p=532$ nm, $\lambda_s=800$ nm et $\alpha = 3.9^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 500$ MW/cm²

Dans le cas d'un spectre compris entre 750 nm et 950 nm, la phase spectrale du signal après amplification est située entre +1 rad et -1 rad, ce qui est suffisamment faible pour permettre une recompression proche de la durée limitée par transformée de Fourier.

2.7.3.2 Profil de phase spectrale dans le cas dégénéré, colinéaire

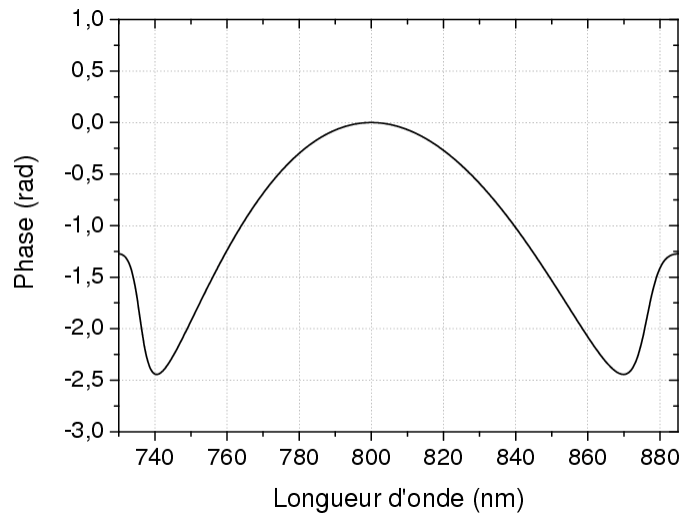


FIG. 2.27: Phase spectrale d'un OPA non dégénéré et non colinéaire avec $\lambda_p=400$ nm, $\lambda_s=800$ nm et $\alpha = 0^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,4$ GW/cm²

L'intensité de pompe est fixée comme précédemment (voir fig. 2.24) à 3,4 GW/cm².

Comme dans l'exemple précédent, la phase est nulle à 800 nm car dans le calcul l'accord de phase est fixé à zéro pour cette longueur d'onde. Pour un spectre qui s'étendrait de 750 nm à 850 nm , la phase spectrale du signal amplifié reste comprise entre 0 et -2 rad , ce qui représente la même amplitude de valeurs que pour l'OPCPA non dégénéré présenté dans l'exemple précédent.

2.7.3.3 Profil de phase spectrale dans le cas quasi dégénéré, quasi colinéaire

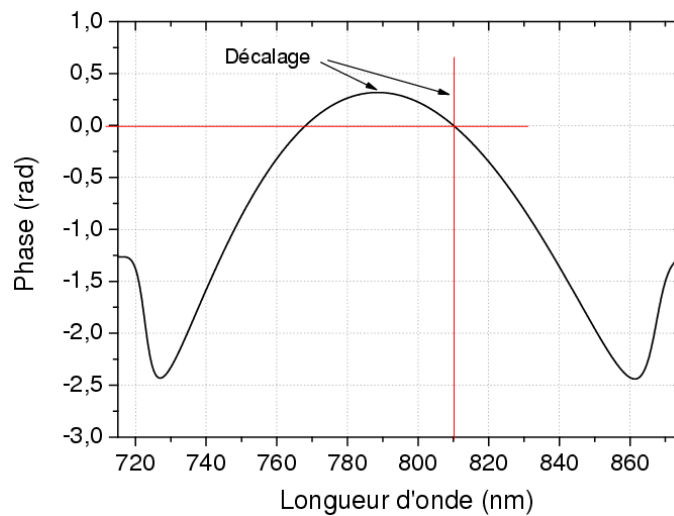


FIG. 2.28: Phase spectrale d'un OPA quasi dégénéré et quasi colinéaire avec $\lambda_p=400 \text{ nm}$, $\lambda_s=810 \text{ nm}$ et $\alpha = 2^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,4 \text{ GW/cm}^2$

La phase spectrale est cette fois-ci nulle à la longueur d'onde de 810 nm , comme indiqué sur la figure 2.28, car c'est, dans nos expériences, la longueur d'onde centrale du spectre signal. Nous avons donc fixé un accord de phase parfait pour cette longueur d'onde dans le calcul de la phase. L'amplitude de la phase spectrale est un peu plus importante dans ce cas car l'accord de phase est dévié de sa valeur optimale. Le décalage reste cependant faible et atteint moins de $2,5$ radians dans la gamme de longueurs d'onde $750 - 850 \text{ nm}$. On peut également remarquer que dans un OPCPA légèrement désaccordé, le point d'inflexion n'est plus situé à la longueur d'onde centrale du spectre. Dans notre exemple, il est déplacé vers les courtes longueurs d'onde et la phase devient positive pour les composantes situées entre 810 nm et 770 nm . La phase reste cependant inférieure à $0,5 \text{ rad}$ dans cette zone de valeurs positives, ce qui est faible.

La valeur de la phase spectrale reste faible dans les trois exemples de configuration présentés ci-après, ce qui signifie qu'elle pourra facilement être compensée. Cependant, deux autres contributions sont à prendre en compte pour permettre une recompression efficace du signal amplifié par effet paramétrique. Il s'agit d'une part de la valeur de l'intégrale B qui doit être inférieure à 1 *radian*, comme nous le verrons dans une prochaine section, et d'autre part, de la dispersion de vitesse de groupe ($\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}$). La vitesse de groupe résiduelle non compensée lors de la compression doit rester inférieure à la durée du signal recomprimé [50].

2.7.4 Régime de fort dépeuplement de la pompe

Pour certaines valeurs de l'intensité de pompe, un effet de saturation peut se produire pour lequel l'énergie de la pompe est entièrement transmise au signal et au complémentaire. La pompe est alors totalement dépeuplée et par conséquent l'intensité de la pompe n'est plus constante au cours de la propagation dans le cristal. On définit alors une fonction de dépeuplement notée f telle que [4] :

$$f = 1 - \frac{I_p(z)}{I_p(0)} \quad (2.119)$$

où $I_p(z)$ est l'intensité de pompe après la distance z parcourue dans le cristal.

D'après la définition du gain paramétrique pour le signal donné dans l'équation 2.114, nous pouvons écrire l'intensité du signal après propagation en fonction de l'intensité du signal incident $I_s(0)$, telle que :

$$I_s = I_s(0) \times G \quad (2.120)$$

On en déduit les relations suivantes entre les intensités de la pompe, du signal et du complémentaire :

$$\begin{cases} I_c = I_s \times \left(\frac{\lambda_s}{\lambda_p} - 1\right) + I_s(0) \times \left(1 - \frac{\lambda_s}{\lambda_p}\right) \\ I_p = I_p(0) - I_s - I_c + I_s(0) \end{cases} \quad (2.121)$$

Le profil de conversion de l'énergie de pompe en énergie signal au cours de la propagation dans le cristal non linéaire est tracée dans la figure 2.29. Dans le cas d'un accord de phase parfait, l'énergie du signal atteint un maximum lorsque la pompe est complètement dépeuplée (la fonction de dépeuplement est alors égale à 1). L'efficacité de conversion de

la pompe vers le signal est alors égale au rapport entre les deux longueurs d'onde : λ_p/λ_s . Le programme Matlab `gain_par_tranches.m` permettant de tracer ces courbes dans le cas d'un signal de longueur d'onde 800 nm et d'une pompe de longueur d'onde 532 nm est présenté en annexe de ce document. L'efficacité de conversion maximale est égale à $532/800 = 0.66$ dans l'exemple présenté. Cependant, au delà d'une certaine distance parcourue dans le cristal, appelée longueur d'interaction ou longueur de conversion optimale [49], l'énergie du signal et du complémentaire se re-convertissent en énergie de pompe. Ce processus inverse est à prendre en compte dès lors que le dépeuplement de la pompe est important, car il diminue fortement l'efficacité de l'amplification paramétrique.

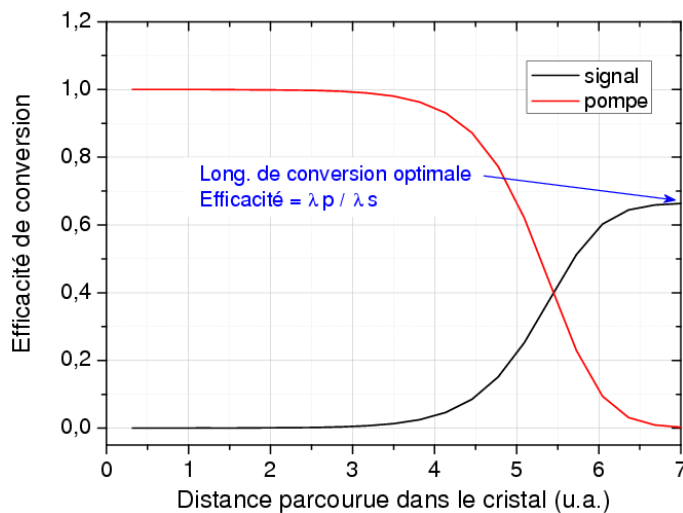


FIG. 2.29: Evolution de l'efficacité de conversion de la pompe vers le signal

Le phénomène de reconversion pourrait être assimilé à un effet de saturation du gain au delà duquel l'amplification paramétrique ne se fait plus. Cependant, contrairement à l'amplification d'une impulsion dans du saphir dopé au titane, la saturation qui apparaît ici n'est pas réelle. En effet, le phénomène de reconversion prend la place du processus d'amplification paramétrique mais le milieu à gain n'est pas saturé. De plus, d'autres processus non linéaires d'ordres supérieurs, plus efficaces, peuvent prendre la place de l'amplification paramétrique, comme par exemple l'automodulation de phase qui est un processus du troisième ordre, et peuvent diminuer l'efficacité de l'amplification paramétrique donnant ainsi une impression de saturation.

L'intérêt de travailler dans un régime proche du dépeuplement est la stabilité en énergie tir à tir qu'elle apporte au faisceau signal amplifié [62] ce qui peut être particulièrement intéressant quand l'énergie de pompe est très instable. De plus, l'efficacité de conversion [57] associée est plus importante, tant qu'on ne dépasse pas la longueur d'interaction.

2.7.5 Contraste

La technique OPCPA ne détériore a priori pas le contraste temporel car le gain est presque instantané. En effet, comme l'interaction paramétrique ne se fait que pendant la durée de présence du faisceau de pompe dans le cristal et souvent en un seul passage, les impulsions antérieures à l'impulsion principale du signal synchronisée avec la pompe ne peuvent pas être amplifiées. Le rapport entre l'intensité des pré-impulsions et post-impulsions et l'intensité de l'impulsion amplifiée se trouve ainsi fortement diminué, comme l'illustre la figure 3.8.

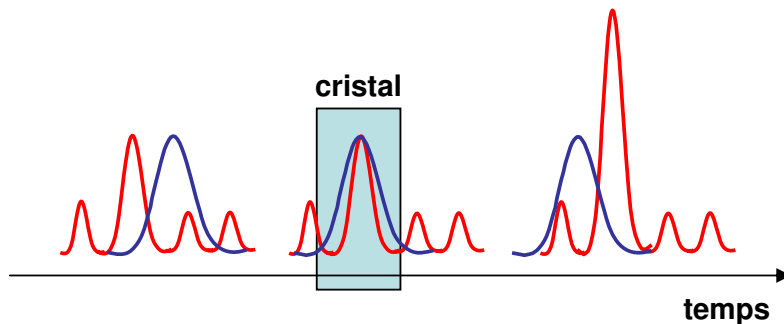


FIG. 2.30: Synchronisation du signal de pompe (en bleu) avec l'impulsion principale dans le cristal.

Il est cependant nécessaire de quantifier le bruit paramétrique qui correspond au cas particulier dans lequel un cristal non linéaire d'ordre 2, éclairé de façon intense par le faisceau de pulsation ω_p , émet spontanément des radiations aux pulsations ω_s et ω_c (telles que $\omega_s + \omega_c = \omega_p$), sans que ces photons ne soient présents à l'état initial. Il s'agit de l'émission paramétrique optique [63], ou fluorescence paramétrique (ou encore PF pour "parametric fluorescence"). Ce processus est analogue à l'émission spontanée amplifiée apparaissant dans les lasers et constitue le bruit de l'amplificateur paramétrique.

Cet effet peut se comprendre en écrivant la probabilité de fragmentation d'un photon

ω_p en deux photons ω_s et ω_c :

$$\frac{dP}{dt} = A.n_p(n_c + 1)(n_s + 1) \quad (2.122)$$

avec n_i le nombre de photons de fréquence ω_i , A une constante et P la probabilité.

On voit que l'émission paramétrique peut se faire même si les intensités initiales des ondes signal et complémentaire sont nulles ($n_s = n_c = 0$) [64].

La fluorescence paramétrique peut ainsi fournir des photons et démarrer un effet d'amplification paramétrique. Comme le gain paramétrique peut être d'un niveau important en un seul passage dans un cristal non linéaire, cet effet ne sera pas négligeable. On appelle cette amplification du bruit ambiant par interaction paramétrique la superfluorescence. Malgré la grande largeur spectrale de la fluorescence paramétrique, celle-ci ne peut cependant pas être utilisée comme source large car elle n'est pas cohérente.



FIG. 2.31: Photo de l'anneau de fluorescence apparaissant autour du faisceau de pompe bleu (à 400 nm) pour une intensité de quelques GW/cm^2

La figure 2.31 montre une photo de la fluorescence paramétrique observée derrière le cristal non linéaire sur un écran. Elle prend la forme d'un anneau contenant les différentes composantes des spectres du signal et du complémentaire, centré autour du faisceau de pompe, ici à la longueur d'onde de 400 nm.

La fluorescence paramétrique n'apparaît que pendant la fenêtre temporelle de la pompe, et s'ajoute au signal en faisant apparaître un piédestal autour de l'impulsion courte am-

plifiée après recompression. Comme la fenêtre temporelle du gain est plus courte que la durée pendant laquelle se fait l'amplification dans un amplificateur régénératif, la fluorescence paramétrique est plus faible que l'ASE. Le calcul précis permettant de comparer le niveau de l'ASE au niveau de la PF a été réalisé par l'équipe de I.N. Ross [50] et montre une amélioration du contraste d'un ordre de grandeur. Des mesures de contraste ont été récemment reportées par plusieurs équipes [65], avec notamment un contraste de plus de 10^8 pour le laboratoire de Rochester [66] et de 10^7 pour le laboratoire du Livermore [67].

Il est cependant important de noter que dans le cas d'une saturation très importante, le niveau de superfluorescence parasite augmente de façon dramatique [52] et empêche une bonne recompression de l'impulsion.

2.7.6 Conservation du spectre

Les courbes de gain des cristaux non linéaires dans lesquels le faisceau signal n'effectue le plus souvent qu'un seul passage sont à la fois très larges et plates, ce qui évite les phénomènes de rétrécissement spectral par le gain. Le spectre de l'impulsion initiale est donc intégralement conservé pendant le processus d'amplification. C'est l'un des aspects les plus intéressants de l'OPCPA comparé à la technique CPA, qui, comme nous l'avons déjà montré (cf. chapitre 1), entraîne une réduction importante du spectre lors de l'amplification. En effet, le rétrécissement spectral qui peut intervenir dans l'OPA dû au désaccord de phase est très nettement inférieur au facteur de rétrécissement des lasers CPA [4].

Dans le cas d'un amplificateur paramétrique non colinéaire, l'existence d'un angle "magique" optimisant la largeur de la bande de gain entraîne cependant une grande dépendance de celle-ci vis-à-vis de l'angle entre le signal et la pompe. Le spectre amplifié peut alors se retrouver très rétréci si l'angle entre le signal et la pompe s'écarte trop de l'angle "magique".

Il est néanmoins possible d'amplifier des impulsions de durée très courtes, la bande de gain étant limitée uniquement par la zone de transparence des cristaux non linéaires utilisés pour l'interaction paramétrique. La plupart des cristaux non linéaire actuellement utilisés dans les dispositifs OPCPA ont une zone de transparence suffisamment large pour permettre l'utilisation de la totalité de la bande de gain lors de l'amplification.

2.7.7 Intégrale B

La variation de l'indice de réfraction avec l'intensité ($n = n_o + n_2 \cdot I$) provoque une distorsion du front d'onde de l'impulsion. Cette distorsion peut être caractérisée par une phase non linéaire ou intégrale B. Dans le cas de l'amplification paramétrique, celle-ci est faible car l'impulsion ne traverse qu'une seule fois le milieu à gain. L'expression de l'intégrale B est la suivante :

$$\phi_{NL} = \frac{2\pi n_2}{\lambda} \int_0^L I(L) dL \quad (2.123)$$

où L est la longueur de matériau traversé.

L'intégrale B doit être inférieure à 1 radian pour que les effets d'auto-focalisation soient faibles dans le matériau. A titre de comparaison, considérons le cas d'un système laser basé sur la technique CPA et d'un amplificateur paramétrique de même gain et utilisant la même intensité de pompe I_p à 532 nm égale à 1 GW/cm². Les caractéristiques utilisées pour le calcul ainsi que les résultats sont résumés dans le tableau 2.9 ci-après.

| | OPCPA | CPA |
|---------------------------|--|---|
| λ_p / durée pompe | 532 nm / 10 ns | 532 nm / 10 ns |
| Cristal / longueur | BBO / 15 mm | Ti : Sa / 16 cm |
| Indice non linéaire n_2 | 4,1. 10 ⁻²⁰ m ² /W [68, 69] | 4,7. 10 ⁻²⁰ m ² /W [35] |
| Formule du gain | $G = 1 + \left[\left(\frac{\gamma_o}{\gamma} \right)^2 \cdot \sinh^2(\gamma L) \right]$ | $G = \exp(g_o \cdot L)$ |
| Valeur du gain | 1,5. 10 ⁶ | 1,53. 10 ⁶ |
| Intégrale B | $\left(\frac{2\pi}{\lambda_s} \right) \cdot n_2 \cdot I_{so} \cdot \left[\frac{L}{2} + \sinh \left(\frac{2\gamma L}{4\gamma} \right) \right]$ | $\left(\frac{2\pi}{\lambda_s} \right) \cdot n_2 \cdot I_{so} \cdot \left[\frac{\exp(g_o L) - 1}{g_o} \right]$ |
| Valeur de l'intégrale B | 0.0012 | 0,0161 |

TAB. 2.9: Calcul de l'intégrale B dans le cas d'un laser CPA et d'un laser OPCPA, pour les mêmes valeurs de l'intensité de pompe et de gain

Pour des longueurs d'onde identiques, à gain équivalent, l'intégrale B dans le cas d'un laser OPCPA est donc 10 fois plus faible que pour un laser CPA traditionnel.

2.7.8 Un processus conservateur

Les OPCPA possèdent la propriété de transférer l'énergie d'une pompe intense vers un signal faible, tandis que les aberrations de phase de la pompe sont transférées vers un faisceau complémentaire [4, 50]. Autrement dit, ni la phase spatiale, ni la phase temporelle du signal ne sont dégradées au cours de l'amplification.

Le seul facteur de bruit qui intervient pendant le processus d'amplification paramétrique est la superfluorescence, qui vient s'ajouter au signal qui, lui, est préservé.

Cette propriété reste valable tant que le faisceau de pompe est proche de la limite de diffraction et que le recouvrement spatial et temporel des deux faisceaux est bien réalisé tout au long de l'interaction. En effet, un faisceau de pompe non uniforme entraînera des modulations spatiales du signal, tandis qu'une mauvaise synchronisation temporelle modifiera le spectre des impulsions signal chirpées [55].

Une application importante de cette propriété est la conservation du décalage de phase initial entre l'onde porteuse du champ laser et son enveloppe ("CEP : Carrier-Envelope Phase"), très importante pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé [70]. Des expériences réalisées récemment avec des oscillateurs bloqués en phase [24, 53, 71] ont confirmé la préservation de la phase CEP lors du processus d'amplification paramétrique.

2.7.9 Un injecteur pour système pétawatt (10^{15} W)

La technique OPCPA présente de nombreux avantages qui font d'elle un très bon candidat pour l'injection des amplificateurs de niveau de puissance pétawatt (10^{15} W) [50, 58] et représente une alternative intéressante aux systèmes d'amplification large bande utilisant le titane saphir comme milieu à gain [55]. Ces dernières années ont ainsi vu l'apparition de nombreux projets d'OPCPA plus puissants permettant d'amplifier des impulsions au niveau du terawatt. Ces systèmes ont pour particularité d'être pompés par un laser indépendant du signal à amplifier, de durée nanoseconde ou inférieure. Le milieu à gain de la pompe est constitué de barreaux de Nd :YAG ou Nd :Verre de longueur importante,

ce qui limite son taux de répétition à une dizaine de Hertz. Le signal à amplifier provient le plus souvent d'une source femtoseconde titane saphir synchronisée précisément avec la pompe par un dispositif électronique externe. L'OPA est généralement constitué de plusieurs étages d'amplification fonctionnant en configuration proche de la dégénérescence avec des cristaux non linéaires de LBO ou de KDP de quelques centimètres d'épaisseur.

Les puissances les plus importantes reportées par Butkus *et al.* [72] en 2004 s'élevaient à 1,3 TW [58], 3,67 TW [5] et 16,7 TW [3]. De plus, l'équipe de Ross *et al.* [4] a démontré qu'il serait théoriquement possible d'atteindre une dizaine de pétawatt en optimisant l'ensemble des paramètres des amplificateurs paramétriques.

L'intérêt de ce type de système est donc la possibilité de produire des impulsions de puissance comparable à celle que l'on peut obtenir avec un laser CPA, mais sans les inconvénients liés à l'utilisation de systèmes de refroidissement des cristaux ou à l'accumulation d'une phase spectrale importante au cours de la propagation.

2.7.10 Synchronisation temporelle des faisceaux

La technique d'amplification paramétrique optique est basée sur un processus non linéaire instantané. La pompe doit donc être présente dans le cristal amplificateur en même temps que le signal, ce qui nécessite une synchronisation temporelle très précise des deux faisceaux. Deux voies sont possibles pour réaliser cette synchronisation. La synchronisation sera automatiquement réalisée si les deux faisceaux proviennent d'une même source (voir figure 2.33). Si par contre les deux sources sont indépendantes, il faudra réaliser un système de synchronisation externe (cf. figure 2.32). Dans le cas d'une synchronisation automatique, la difficulté réside alors dans la réalisation d'un faisceau de pompe intense à partir de la source du faisceau signal, tandis que dans le cas d'une synchronisation externe, la difficulté réside dans la stabilisation temporelle des faisceaux l'un par rapport à l'autre et notamment dans la minimisation de la gigue temporelle (appelée également "jitter") entre les deux faisceaux. On comprend alors que le composant le plus critique d'un laser OPCPA est la pompe, et ceci pour chacune des deux voies possibles de synchronisation. En effet, l'attention devra être portée soit sur la réalisation d'une telle source, avec les contraintes techniques permettant une amplification efficace que cela suppose, soit sur les qualités temporelles de la source quand celle-ci est indépendante du faisceau signal.

Pendant ma thèse, j'ai étudié deux configurations différentes d'amplification paramétrique. La première configuration utilise un laser de pompe commercial de durée nanoseconde, d'énergie élevée, à faible taux de répétition, tandis que la deuxième configuration utilise un laser de pompe picoseconde "fait maison" de faible énergie, avec un taux de répétition élevé. Les différentes caractéristiques des deux configurations étudiées sont résumées dans le tableau ci-dessous.

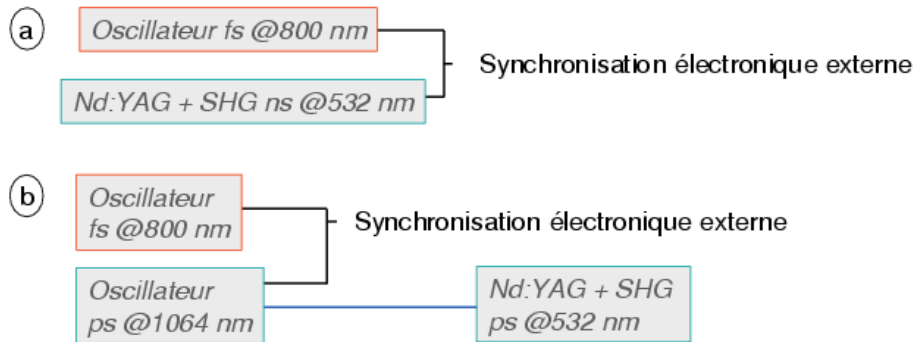


FIG. 2.32: Exemple de méthodes de synchronisation électronique externe. a : entre un oscillateur et un laser de pompe, b : entre deux oscillateurs

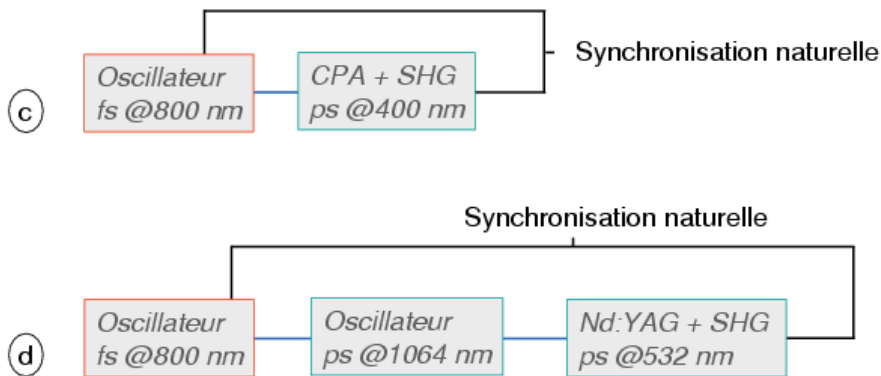


FIG. 2.33: Exemple de méthodes de synchronisation naturelle. c : un oscillateur injecte un laser de pompe, d : un oscillateur injecte un oscillateur

| Configuration | non dégénérée non colinéaire | quasi-dégénérée quasi colinéaire |
|----------------------|------------------------------|------------------------------------|
| λ_p | 532 <i>nm</i> | 400 <i>nm</i> |
| λ_s centrale | 800 <i>nm</i> | 810 <i>nm</i> |
| Énergie de pompe | 100 <i>mJ</i> | entre 100 μJ et 900 μJ |
| Durée pompe | 9 <i>ns</i> | entre 500 <i>fs</i> et 1 <i>ps</i> |
| Durée signal | 500 <i>ps</i> | entre 500 <i>fs</i> et 1 <i>ps</i> |
| Taux de répétition | 20 <i>Hz</i> | 1 <i>kHz</i> |

TAB. 2.10: Caractéristiques des deux configurations étudiées

Les deux chapitres suivants sont consacrés à la description détaillée de ces deux configurations. Le chapitre 3 expose la configuration non dégénérée non colinéaire, le chapitre 4 détaille deux types de configuration quasi-dégénérée non colinéaire ainsi qu'une configuration d'amplification hybride combinant les techniques OPCPA et CPA.

Chapitre 3

Amplification paramétrique d'impulsions ultra-courtes en configuration non dégénérée

Ce chapitre traite d'une configuration d'amplification paramétrique non dégénérée et non colinéaire où les faisceaux signal et pompe sont générés par deux sources laser indépendantes. Théoriquement, ce dispositif permet d'obtenir une large bande d'amplification grâce à l'existence d'un angle entre les faisceaux (voir chapitre précédent) ainsi qu'une énergie de sortie élevée si la pompe est intense. La méthode de synchronisation temporelle d'un train d'impulsions de fréquence de répétition mégahertz avec un laser de cadence faible (20 Hz) est présentée, ainsi que les paramètres de qualité spatiale et temporelle du faisceau de pompe permettant une amplification efficace.

3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué de deux amplificateurs paramétriques optiques consécutifs, tous deux pompés en configuration non colinéaire et non dégénérée par le même faisceau de pompe. Le processus d'amplification paramétrique étant instantané, l'énergie de pompe n'est pas stockée dans les cristaux non linéaires qui constituent le milieu à gain de ces amplificateurs. La part d'énergie non convertie dans le premier amplificateur reste ainsi disponible pour pomper un deuxième dispositif. Nous avons ainsi réalisé deux étages d'amplification paramétrique identiques et consécutifs afin d'augmenter l'efficacité de conversion globale et donc l'énergie du signal après amplification. Le

schéma de la figure 3.1 explicite le dispositif expérimental.

Le milieu à gain choisi pour chacun des amplificateurs est un cristal non linéaire uniaxe de BBO de dimensions $7 \times 7 \times 15 \text{ mm}^3$, taillés pour un accord de phase de type I à $23,8^\circ$ (cf.chapitre 2). Un traitement anti-reflet déposé sur chacune des faces du cristal minimise les réflexions parasites des faisceaux pompe et signal qui constitueraient des pertes et gêneraient les caractérisations.

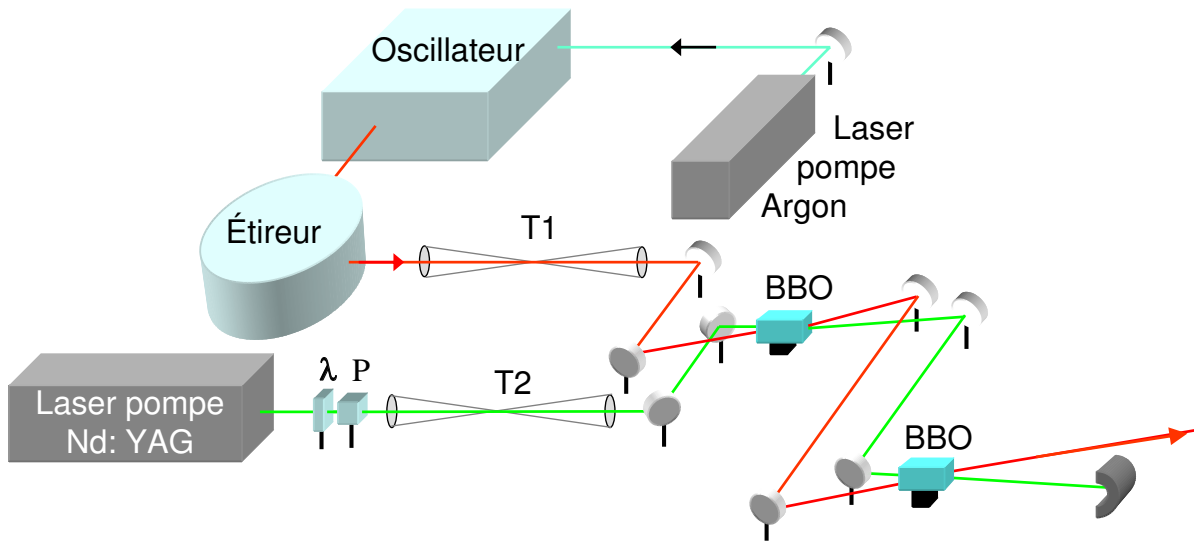


FIG. 3.1: Dispositif expérimental utilisé pour l'amplification paramétrique non dégénérée.

λ : lame demi-onde, P : Polariseur, T1 et T2 : Télescopes

L'angle entre le faisceau signal et le faisceau pompe est fixé à $3,9^\circ$ pour optimiser l'accord de phase. La figure 3.2 montre une photo du premier amplificateur et le trajet des faisceaux signal et pompe. Le signal est polarisé horizontalement et la pompe verticalement dans chacun des deux cristaux de BBO.

3.2 Faisceau signal

Les impulsions infrarouges à amplifier proviennent d'un oscillateur émettant un train d'impulsions à la cadence de 77 MHz , d'énergie égale à 3 nJ . L'oscillateur est pompé par un laser à argon continu de puissance égale à 5 Watts . Le spectre des impulsions est gaussien, centré à la longueur d'onde de 800 nm et possède une largeur à mi-hauteur de

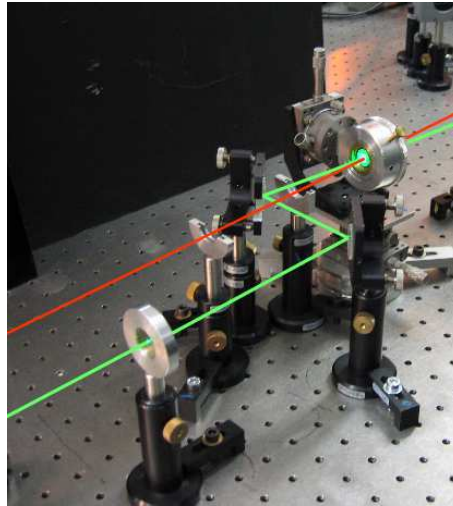


FIG. 3.2: Photo du premier amplificateur et trajet des faisceaux.

50 nm , ce qui correspond à une durée limitée par transformée de Fourier d'une vingtaine de femtosecondes. Les impulsions sont étirées temporellement jusqu'à 500 picosecondes dans un étireur à triplet de Öffner semblable à celui décrit dans le chapitre 1. Pour obtenir cette valeur d'étirement à 500 ps, sachant que le réseau utilisé possède 1200 tr/mm , l'angle d'incidence a été fixé à 38° et l'étireur est utilisé en double passage. Le rayon de courbure du miroir concave vaut 1000 mm , celui du miroir convexe vaut 500 mm . La distance entre le miroir concave et le réseau est égale à 750 mm . Deux dièdres de repli permettent aux impulsions d'effectuer les huit passages nécessaires à l'obtention d'un étirement aussi important correspondant à une dispersion du deuxième ordre $\varphi^{(2)}$ égale à $3,42 \cdot 10^6 \text{ fs}^2$. En raison de la dimension finie des deux miroirs sphériques, trop réduite pour intercepter l'intégralité du spectre après diffraction sur le réseau de l'étireur, le spectre obtenu après étirement est légèrement coupé du côté des longueurs d'onde les plus élevées. Les spectres obtenus en sortie d'oscillateur et d'étireur sont donnés dans la figure 3.3. Les différents trous apparaissant à certaines longueurs d'onde dans le spectre en sortie de l'étireur proviennent de défauts de surface des miroirs sphériques.

Les impulsions ainsi étirées ont un profil spatial gaussien (cf. figure 3.4) et constituent le faisceau signal des deux amplificateurs paramétriques. Ce faisceau est collimaté et son diamètre est réduit par un télescope (indiqué par T1 sur le schéma du dispositif, figure 3.1) jusqu'à atteindre 1 mm dans le premier amplificateur.

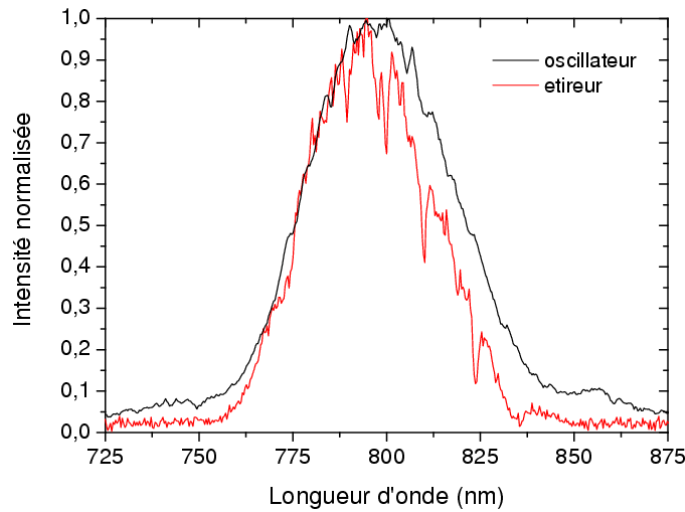


FIG. 3.3: Spectre du signal en sortie de l'oscillateur et de l'étireur.

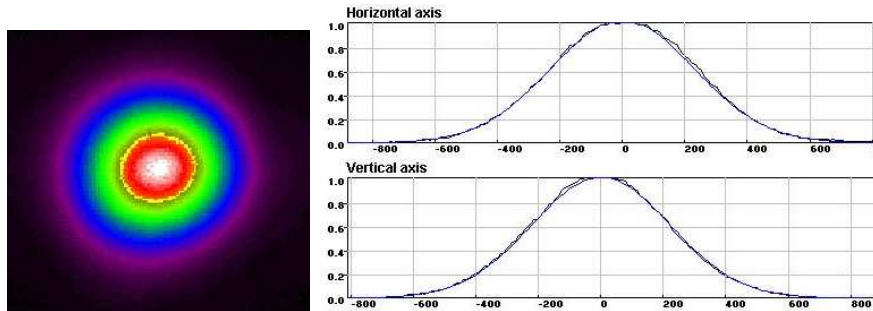


FIG. 3.4: Profil spatial du signal avant amplification. Les coupes horizontale et verticale correspondantes ainsi que leurs approximations gaussiennes sont indiquées à droite de la figure.

Le diamètre du faisceau signal reste constant au cours de la propagation, la distance séparant les deux amplificateurs étant trop faible (inférieure à 20 cm) pour prendre en compte la divergence du faisceau. Son profil spatial est le même sur la face d'entrée de chacun des deux cristaux.

3.3 Faisceau pompe

Le faisceau de pompe est généré par un laser Nd :YAG commercial de la société BMI produisant des impulsions de 9 nanosecondes à la longueur d'onde 1064 nm avec une cadence de 20 Hz . Le faisceau, doublé en fréquence dans un cristal non linéaire, possède

une énergie maximale de 200 mJ à la longueur d'onde 532 nm et constitue la source de pompe intense des deux amplificateurs paramétriques.

Ce laser peut fonctionner en mode injecté (ou SLM pour "Single longitudinal mode") ou non injecté. L'injection consiste à envoyer un faisceau continu émettant à 1064 nm dans la cavité oscillateur du laser de pompe, afin de forcer son fonctionnement en régime monomode longitudinal, ce qui garantit une meilleure stabilité temporelle de l'impulsion de pompe. Pour cela, un miroir de la cavité oscillateur est monté sur une cale piezoélectrique et ajuste la longueur de la cavité afin de minimiser le temps de création de l'impulsion laser. Le gain dans la cavité est ainsi maximal, ce qui correspond à un régime monomode longitudinal. Le YAG multimode est alors forcé à laser sur un seul mode longitudinal, à la longueur d'onde de 1064 nm .

Un exemple de profil temporel en mode injecté et non injecté est donné dans la figure 3.5 ci-après. Les modulations apparaissant dans le cas non injecté correspondent aux battements entre les différents modes. Comme on peut le constater, le profil est nettement plus lisse lorsque le laser est injecté. Le fonctionnement du laser en mode injecté garantit

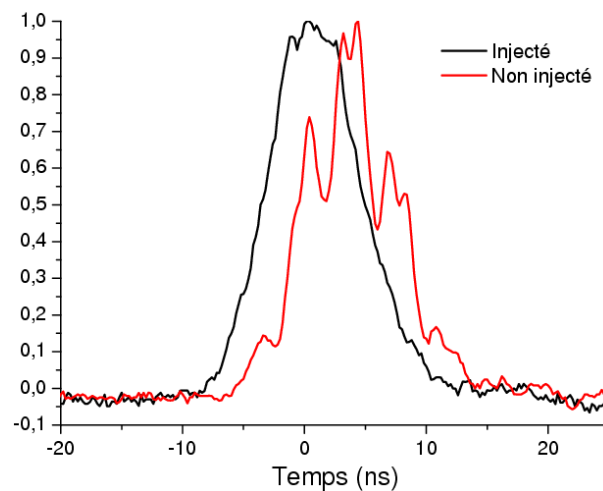


FIG. 3.5: Profil temporel du laser de pompe commercial Nd :YAG en mode injecté et non injecté.

un profil temporel non modulé, stable et permet d'obtenir une amplification uniforme du signal dans l'OPA. En effet, le signal étant chirpé, les modulations présentes dans le profil temporel non injecté de la pompe vont être transférées au profil spectral du signal amplifié. Le profil injecté permet au contraire d'amplifier uniformément la plupart des

composantes du spectre signal. De plus, quand la pompe est temporellement beaucoup plus longue que le signal, le profil temporel de celle-ci pendant la durée du signal peut être assimilé à un profil "top-hat" ou carré pour lequel l'efficacité de conversion est la plus importante [50, 57].

L'énergie de pompe est ajustable grâce à la combinaison d'une lame demi-onde notée λ sur le schéma de la figure 3.1 et d'un polariseur noté P. Le diamètre du faisceau de pompe en sortie du laser est de 7 mm . Son profil en champ proche (c'est-à-dire au niveau du cristal doubleur du laser Nd :YAG) est imagé en un point situé entre les deux cristaux non linéaires constituant les deux étages d'amplification paramétrique par un télescope (T2) réduisant le diamètre du faisceau ainsi collimaté à 2 mm . Le système d'imagerie a été optimisé afin d'obtenir le meilleur profil spatial possible pour chacun des deux amplificateurs paramétriques, et donc, la meilleure efficacité.

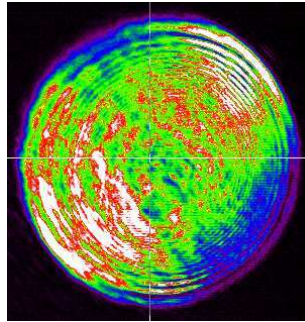


FIG. 3.6: Profil spatial du laser de pompe doublé (532 nm) entre les deux amplificateurs paramétriques.

Comme on peut le constater sur la figure 3.6, le profil spatial n'est cependant pas de bonne qualité. Les anneaux apparaissant dans la tache sont caractéristiques des lasers Nd :YAG. A titre de comparaison, la figure 3.7 montre les anneaux observés sur le faisceau d'un laser Nd :YAG de la société Amplitude Technologies. La présence de ces anneaux n'est pas un véritable problème tant que le faisceau ne présente pas d'inhomogénéité dans la répartition globale de l'énergie, ce qui n'est pas notre cas. En effet, les deux zones plus intenses situées de part et d'autre de la tache, appelées "points chauds" peuvent endommager les optiques. De plus, l'énergie de pompe n'étant pas uniformément répartie dans le faisceau, le signal ne sera pas amplifié de façon homogène en fonction de sa position par rapport au faisceau de pompe, ce qui conduira à une dégradation du profil spatial du

faisceau amplifié et à une chute de l'efficacité de conversion.

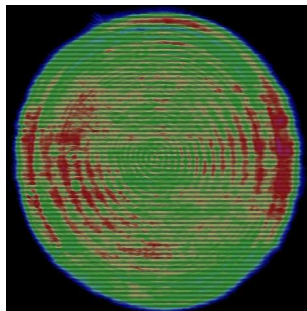


FIG. 3.7: Profil spatial d'un laser de pompe Nd :YAG fonctionnant à 10 Hz, société Amplitude Technologies. Les lignes horizontales sont liées à l'acquisition de la caméra.

La qualité des profils spatial et temporel du laser de pompe étant primordiale pour un bon fonctionnement d'un amplificateur OPCPA, cela nous a conduit à travailler fortement à l'amélioration de celui à notre disposition. Un alignement minutieux des différents éléments optiques ont permis d'améliorer légèrement l'astigmatisme du faisceau mais pas son homogénéité. Par ailleurs, cette amélioration n'a pas été suffisante pour permettre la mise en place d'un système de filtrage spatial efficace au niveau du télescope T2, le compromis entre énergie de sortie et profil étant impossible à réaliser. Nous avons ainsi réalisé les expériences d'amplification paramétrique avec les défauts restants de la pompe, tout en sachant que les résultats seraient décevants, afin d'acquérir une compréhension du phénomène d'amplification paramétrique associé à des impulsions de courtes durées.

3.4 Synchronisation des faisceaux

Pour obtenir une amplification efficace du signal à 800 nm , il faut le synchroniser et le superposer très précisément avec le faisceau de pompe à 532 nm . L'impulsion à amplifier doit arriver en même temps et dans la même zone du cristal que l'impulsion amplificatrice. Pour réaliser la superposition spatiale (ou recouvrement), on choisit le diamètre du faisceau signal deux fois plus petit (1 mm) que celui de la pompe (2 mm). Cette différence de diamètre permet de s'assurer que, malgré l'angle entre les deux faisceaux, le faisceau signal restera dans une zone pompée tout au long du cristal.

La synchronisation temporelle est moins immédiate. Il s'agit de superposer une impulsion à 20 Hz avec une impulsion provenant d'un train de cadence 77 MHz . Pour la

synchronisation temporelle, un boîtier de synchronisation (constituée d'une porte ET et d'un délai) permet, à partir de deux signaux indépendants l'un de l'autre, de créer un signal à 20 Hz synchrone du train d'impulsions à 77 MHz , comme le détaille les figures 3.8 et 3.9.

Une photodiode placée sur une fuite de l'oscillateur détecte l'amplitude du train d'impulsions et crée une référence haute cadence pour le boîtier de synchronisation (entrée Osc. du boîtier, fig. 3.9). Sur la deuxième entrée du boîtier est envoyé le signal électrique de l'injecteur du laser YAG (entrée Inj.). Les signaux sont synchronisés l'un rapport à l'autre grâce à une porte ET électronique. Le signal synchrone est récupéré en $S0$ et sert de nouvelle déclenche pour l'injection du YAG. Une deuxième sortie synchrone, notée $S1$, est utilisée pour déclencher la cellule de Pockels du YAG. C'est une copie de la sortie $S0$, décalée de 100 ns , pour respecter l'écart initial entre le déclenchement de l'injection et l'ouverture de la Pockels. Le délai entre le signal initial de l'injecteur et la sortie $S0$ est ajustable avec un pas de une ou dix nanosecondes grâce au délai τ du boîtier de synchronisation. Le jitter interne du boîtier est égal à 500 ps .

Si la synchronisation n'est pas suffisamment précise, l'intensité du signal amplifié sera instable. De plus, si le profil temporel de la pompe fluctue d'une impulsion à l'autre de façon trop importante, le spectre amplifié sera modulé.

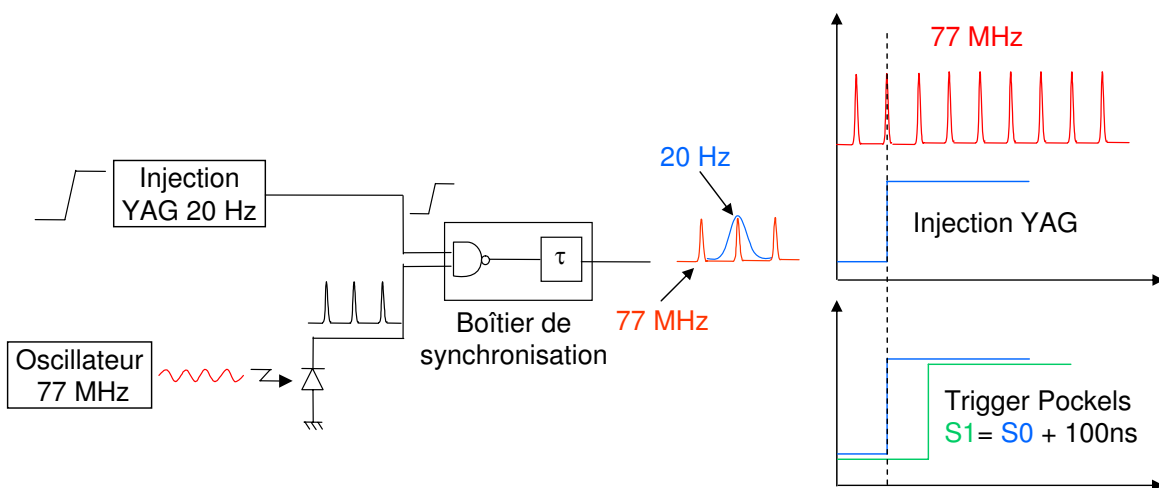


FIG. 3.8: Schéma de principe de la synchronisation temporelle entre le signal et la pompe.

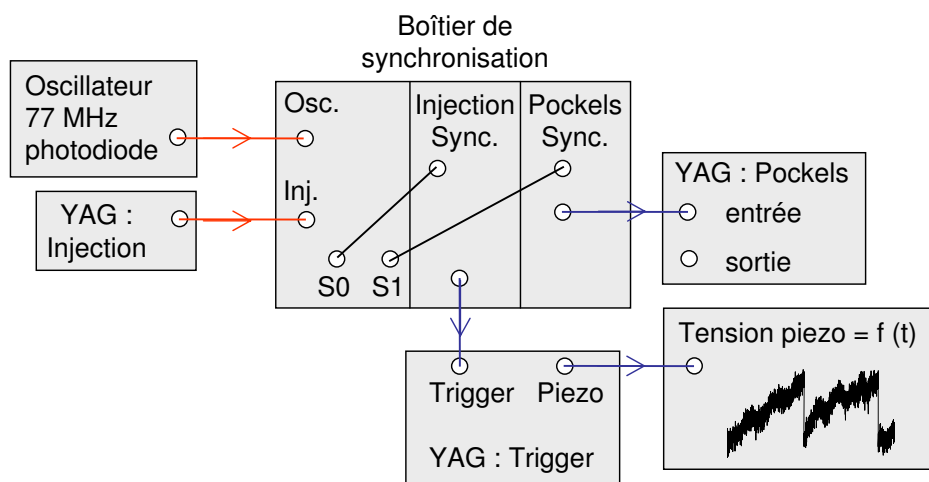


FIG. 3.9: Câblage électrique permettant la synchronisation temporelle.

3.5 Amplification

L'effet paramétrique étant instantané, une fois la synchronisation temporelle effectuée, l'amplification ne se produit que sur une seule des impulsions en provenance de l'oscillateur. L'amplificateur OPCPA se comporte donc comme une porte optique. En sortie, on observera l'intégralité du train d'impulsions qui va constituer un fond sur lequel vient se superposer l'impulsion amplifiée (cf. figure 3.10). Par conséquent, il est difficile d'effectuer une mesure précise de l'énergie du signal amplifié, puisqu'il est mélangé avec le reste du train d'impulsions qui n'a pas été amplifié. Pour réaliser les mesures de gain, nous avons utilisé une photodiode rapide et comparé le niveau du signal avant amplification avec celui après amplification, en prenant soin de soustraire le bruit paramétrique généré lors de l'amplification. Afin de ne pas saturer la photodiode, nous avons employé des densités calibrées permettant d'atténuer l'énergie du faisceau.

En ajustant les angles d'accord de phase (θ) et de non colinéarité (α) autour de leur valeur calculée, ainsi qu'en optimisant le recouvrement des faisceaux et la synchronisation, le signal infrarouge est amplifié d'un facteur 1000, en un seul passage dans le premier cristal de BBO pour une énergie de pompe égale à 100 *mJ*. Malgré cette amplification, le niveau d'énergie reste encore trop faible pour passer directement dans des amplificateurs de puissance. Pour augmenter le gain de l'amplificateur paramétrique, le signal est

redirigé vers un deuxième cristal non linéaire, identique au premier, pompé lui aussi en configuration non colinéaire par le faisceau à 532 nm non converti sortant du premier cristal. En théorie, le signal de pompe à 532 nm est très peu déplété, car le processus de conversion dans le premier cristal n'est pas suffisant et qu'il n'y a pas de stockage de l'énergie dans le cristal non linéaire. Les résultats d'amplification paramétrique à travers les deux cristaux non-linéaires en cascade ont donné une énergie de $300 \mu J$ pour le signal amplifié, soit un gain total de 3.10^5 , l'énergie du signal après l'étireur et le télescope ne valant plus que $1 nJ$. Le faisceau amplifié obtenu après les deux cristaux est visible sur une carte infrarouge, mais reste trop faible pour être vu à l'œil nu. Nous avons pu corrélérer les instabilités en énergie tir à tir du signal amplifié avec les instabilités temporelles du laser de pompe qui présente un jitter égal à $\pm 2,5 ns$.

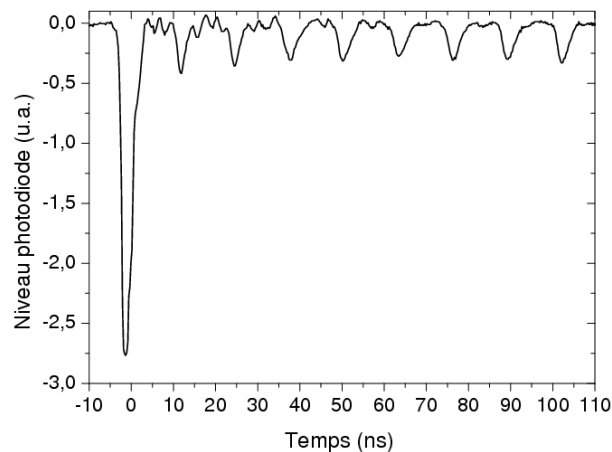


FIG. 3.10: Observation du pic amplifié sur un oscilloscope, pour un gain inférieur à 10.

La qualité du faisceau signal après amplification est dégradé, comme l'illustre la figure 3.11. Il semble que les zones situées à droite et à gauche du faisceaux soient moins amplifiées que le centre, ce qui rend le profil asymétrique. Ceci est certainement lié à la mauvaise répartition de l'énergie dans le profil spatial de la pompe. Les zones du faisceau signal superposées avec les zones très peu intenses du faisceau de pompe sont ainsi très peu amplifiées.

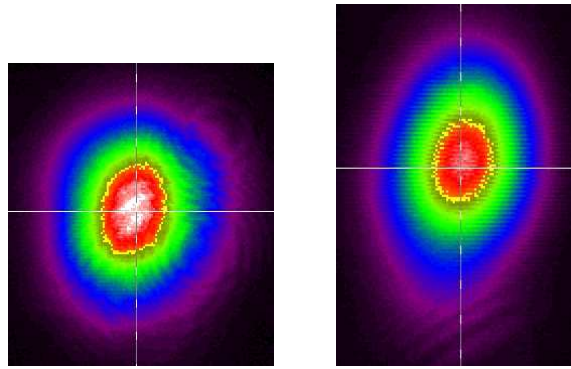


FIG. 3.11: Profils spatiaux du faisceau signal avant (à gauche) et après (à droite) amplification dans les deux cristaux de BBO.

3.6 Spectre après amplification

Les modulations temporelles de la pompe, présentes malgré l'injection, sont réinscrites sur le profil spectral du signal amplifié. Un article récent [73] a montré que celles-ci donnent alors lieu à un large piédestal picoseconde dans le domaine temporel, obtenu par transformée de Fourier.

La configuration non dégénérée non colinéaire nécessite une très grande précision de l'angle entre le signal et la pompe. En effet, quand on s'éloigne de l'angle "magique" pour lequel la courbe de gain est la plus large, celle-ci est fortement modifiée et rétrécie. Comme le spectre obtenu après amplification paramétrique dépend de la courbe de gain, ce dernier sera également rétréci et son maximum décalé spectralement si l'angle de non colinéarité expérimental est mal choisi. Il suffirait bien entendu de régler cet angle une fois pour toutes, mais ce réglage reste critique.

Dans l'exemple présenté ci après (cf. figure 3.12), on voit que le spectre initial du signal est plus ou moins préservé lors de l'amplification, pour un angle plus ou moins proche de l'angle "magique" [61]. La courbe tracée en noir représente le spectre de l'oscillateur. La courbe de gain est calculée pour trois valeurs différentes de l'angle α_1 (angle entre le signal et la pompe sur le premier cristal de l'OPA). Celles-ci diffèrent beaucoup les unes des autres, pour un écart entre les valeurs de α_1 inférieur à deux dixième de degré. Les spectres amplifiés calculés à partir des courbes de gain et du spectre de l'oscillateur ont des largeurs spectrales et une longueur d'onde centrale différentes. La courbe de gain

correspondant à un angle $\alpha_1 = 3,9^\circ$ possède une autre zone de gain située à 950 nm , c'est pourquoi sur la figure cette courbe ne semble pas normalisée.

Les spectres expérimentaux du signal amplifié après un seul cristal et après les deux cristaux placés l'un derrière l'autre sont tracés sur la figure 3.13. Le spectre après le premier cristal est fortement déformé et son maximum est décalé vers les courtes longueurs d'onde. Le spectre après les deux amplificateurs est lui fortement rétréci et ne fait plus que 20 nm de large.

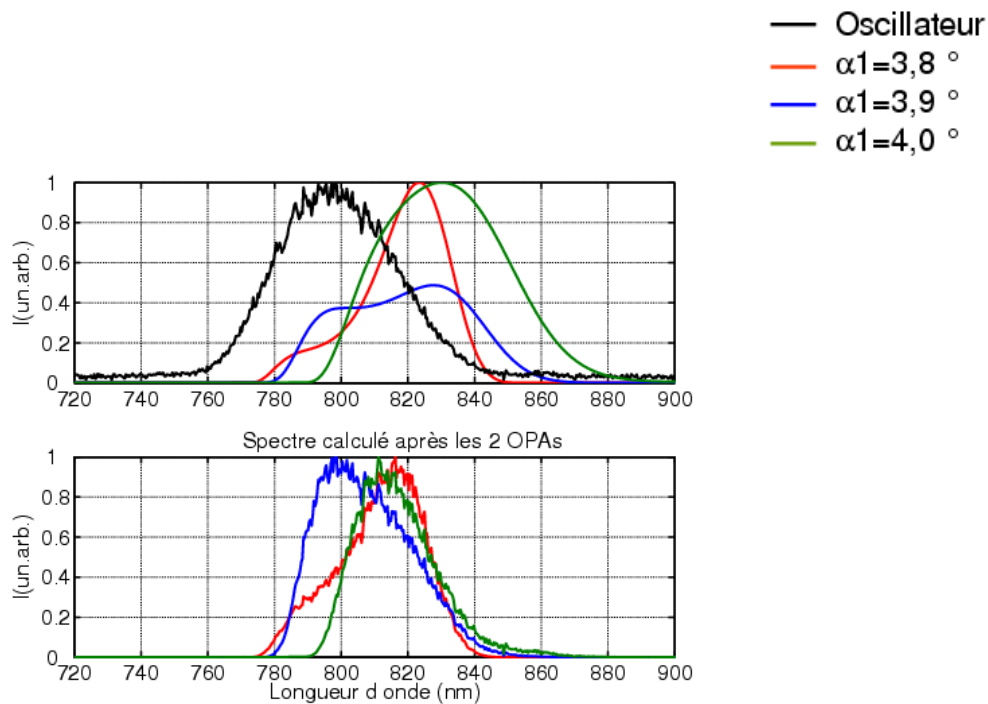


FIG. 3.12: Spectre de l'oscillateur (en noir), courbes de gain total (fig. du haut) et spectres calculés après les 2 OPAs (fig. du bas) en fonction de l'angle α entre le signal et la pompe du premier cristal

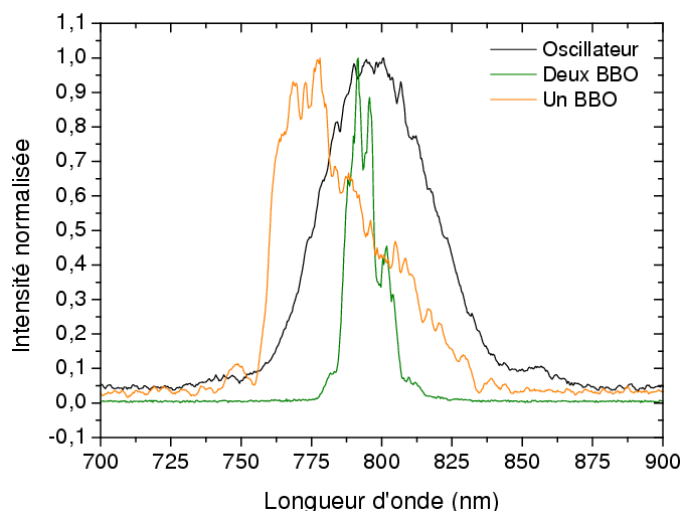


FIG. 3.13: Spectres de l'oscillateur, du signal après un seul amplificateur et après les deux amplificateurs paramétriques

Nous pensons que ce rétrécissement spectral est en partie dû à un mauvais réglage expérimental de l'angle entre le signal et la pompe. D'autre part, celui-ci peut également résulter des variations du gain dans le temps, elles-mêmes dues aux modulations présentes dans le profil temporel de la pompe [55, 58]. Il aurait fallu saturer au moins l'un des deux amplificateurs pour réduire cet effet, ce qui n'a pas été possible en raison de l'énergie de pompe disponible.

3.7 Conclusions sur les configurations non dégénérées

Ce dispositif d'OPCPA en configuration non dégénérée a été réalisé pour en tester les limites. Il en ressort que la pompe est le composant le plus critique d'un système d'amplification paramétrique. Nous avons mené des expériences avec deux lasers de pompe commerciaux différents qui avait chacun des problèmes de stabilité temporelle et spatiale.

D'un point de vue temporel, voici les conclusions que nous avons pu tirer des désagréments rencontrés. D'une part, les modulations temporelles du faisceau de pompe entraînent des modulations spectrales pour le faisceau amplifié ainsi que des instabilités en énergie tir à tir. D'autre part, le jitter interne de la pompe réduit quant à lui l'efficacité de l'amplification s'il est trop important. Dans notre cas, celui-ci atteint $\pm 2,5$ ns, ce qui est beaucoup trop important pour la durée de la pompe égale à 9 ns. Autrement dit, la

fenêtre temporelle d'amplification n'est pas stable. De plus, l'injection de notre pompe n'étant pas parfaite, le laser redevient parfois brusquement multimode, ce qui entraîne des sur-intensités et des modulations fortes de l'amplification.

En ce qui concerne les problèmes liés au profil spatial, nous pouvons conclure que celui-ci réduit fortement l'efficacité de l'amplification et la rend instable en présence de points chauds ou sur-intensités.

Enfin, l'angle de non-colinéarité est très critique dans ce type de configuration et de son réglage dépend la largeur de la courbe de gain et donc, du spectre amplifié.

Cependant, une pompe dédiée et adaptée permettrait d'effectuer une amplification beaucoup plus efficace. Il faudrait pour cela réaliser la mise en forme spatiale et temporelle du faisceau de pompe, ce qui représente un travail important et demande un investissement financier pour l'achat de matériel. Waxer *et al.* ont démontré que l'efficacité de conversion de la pompe vers le signal était considérablement augmentée en adaptant les profils spatial et temporel de la pompe [57]. Nous n'avons pas souhaité poursuivre dans cette voie.

Chapitre 4

Amplification paramétrique d'impulsions ultra-courtes en configuration quasi-dégénéré

Nous avons réalisé un amplificateur paramétrique dans le but d'amplifier des impulsions femtosecondes provenant d'un oscillateur peu énergétique jusqu'à une centaine de microJoules. La configuration d'interaction non colinéaire et proche de la dégénérescence utilisée est présentée en détail dans ce chapitre, ainsi que les expériences que nous avons réalisées. Ce type d'interaction permet une synchronisation naturelle entre les faisceaux pompe et signal, car ceux-ci sont générés par la même source. Le système sera décrit de façon générale en insistant plus particulièrement sur la mise en oeuvre expérimentale du faisceau de pompe, puis trois dispositifs d'amplification paramétrique seront présentés.

Le premier dispositif est un OPCPA de faible énergie (dit préamplificateur), tandis que le deuxième est constitué de deux amplificateurs paramétriques successifs, afin d'augmenter l'énergie des impulsions amplifiées. Le troisième dispositif est constitué d'un système d'amplification hybride associant un amplificateur paramétrique à un amplificateur traditionnel utilisant un cristal de Ti:Sa . De plus, un modèle simple permettant de prévoir le spectre amplifié en fonction des paramètres expérimentaux sera appliqué aux spectres obtenus dans les différents dispositifs.

4.1 Présentation générale du dispositif

Dans ce dispositif OPCPA, les faisceaux signal et pompe proviennent du même oscillateur. Ce dernier délivre un train d'impulsions d'énergie moyenne égale à 4 nJ à une cadence de 100 MHz . Le spectre à la sortie de l'oscillateur est gaussien, centré autour de 810 nm et possède une largeur à mi-hauteur (FWHM) de l'ordre de 60 nm , ce qui correspond à une durée limitée par transformée de Fourier de 15 femtosecondes . A la suite de l'oscillateur, une lame séparatrice divise le faisceau en deux chemins de propagation différents. La moitié de l'énergie est utilisée pour créer les impulsions du faisceau de pompe, tandis que la moitié restante constitue le faisceau signal que l'on souhaite amplifier par effet paramétrique.

4.1.1 Faisceau de pompe

Le faisceau de pompe provient d'un laser à la longueur d'onde 800 nm de type CPA (technique décrite dans le premier chapitre) qui est doublé en fréquence. Celui-ci est constitué d'un oscillateur, d'un pré-amplificateur femtoseconde, d'un étireur à réseau, d'un amplificateur régénératif, d'un amplificateur à quatre passages et d'un compresseur à réseaux, comme représenté sur les figures 4.1 et 4.2.

4.1.1.1 Description des éléments constituant le faisceau de pompe

Les impulsions réfléchies par la lame séparatrice située en sortie d'oscillateur sont pré-amplifiées (facteur 1000) avant d'être étirées temporellement. Cet élément sera décrit plus amplement dans le paragraphe intitulé "Méthode de réduction du spectre". La géométrie de l'étireur est celle décrite dans le chapitre 1. Le réseau de l'étireur est un réseau de diffraction gravé possédant un pas de 1200 tr/mm , l'angle d'incidence est égal à 36° et la distance d'étirement (c'est-à-dire la distance entre le miroir concave et le réseau) est de 780 mm . Le coefficient d'étirement de cet étireur, c'est-à-dire la valeur de la dispersion du deuxième ordre $\varphi^{(2)}$, est de $1,1 \cdot 10^6 \text{ fs}^2$. La durée des impulsions après étirement est alors égale à 200 ps , d'après l'équation (1.17).

Les impulsions ainsi étirées sont ensuite amplifiées dans deux étages d'amplification successifs dont les milieux à gain sont des cristaux de saphir dopé au titane. Le premier amplificateur est un amplificateur de type régénératif. Il est pompé par le second harmonique d'un laser Nd :YLF (527 nm) fonctionnant à une cadence de répétition égale à

1 kHz et lui-même pompé par flash. La puissance totale du laser de pompe peut atteindre 16 $Watts$ mais seuls 8 W sont prélevés par une lame séparatrice et utilisés pour pomper l'amplificateur régénératif. Les impulsions effectuent 25 tours dans la cavité laser et sont amplifiées dans un cristal de 10 mm de long, taillé à l'angle de Brewster. Le schéma de cet amplificateur est celui qui a été décrit précédemment (cf. figure 1.7). En fonctionnement optimal, l'énergie des impulsions après amplification est de 0,9 mJ .

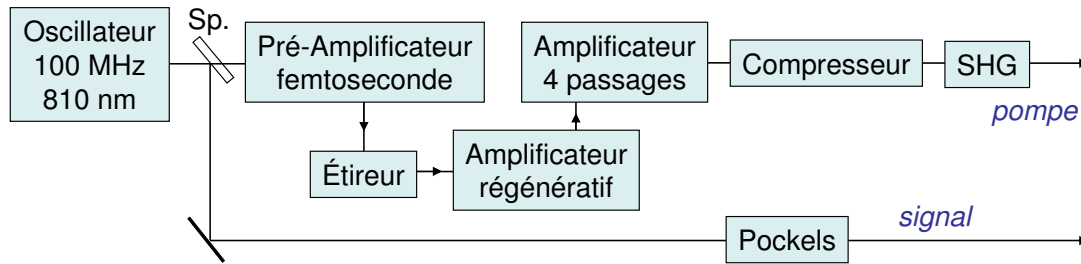


FIG. 4.1: Schéma simplifié du laser de pompe de l'OPCPA quasi-dégénéré (Sp. : lame séparatrice).

Le deuxième amplificateur est de type multipassages, basé sur la propagation d'un mode propre thermique. Dans ce type de fonctionnement, la lentille thermique induite dans le milieu à gain par la puissance de pompe est calculée et son influence au cours de la propagation est prise en compte. On dessine ainsi l'amplificateur pour que le diamètre du faisceau à amplifier reste toujours adapté au diamètre du faisceau de pompe dans le cristal. Dans notre cas, les diamètres des différents faisceaux sont de l'ordre de 1 mm sur le cristal de saphir dopé au titane. Le faisceau passe quatre fois dans celui-ci générant ainsi une énergie de 3,5 mJ en sortie de l'amplificateur. Le cristal de $Ti :Sa$ est pompé par le second harmonique d'un laser $Nd :YLF$ de puissance égale à 18 W . A de telles puissances de pompe, les cristaux des amplificateurs doivent être refroidis pour ne pas subir de dommages induits par la thermique et pour maîtriser la lentille thermique assurant le guidage du mode dans l'amplificateur. Ceci est réalisé à l'aide d'une circulation d'eau froide autour de chaque cristal. Il en est de même pour les cristaux de l'oscillateur et de l'amplificateur régénératif.

Les impulsions sont ensuite re-comprimées temporellement dans un compresseur à réseaux parallèles de 1200 tr/mm où les différents ordres de phase spectrales compensent ceux de l'étireur. L'efficacité de diffraction des réseaux étant de 85%, l'efficacité totale du compresseur n'est alors que de 52%. L'énergie des impulsions est ainsi fortement diminuée

après passage dans le compresseur et ne vaut plus que $1,75mJ$. La durée des impulsions comprimées est environ égale à $46 fs$ et, comme on peut le voir sur la mesure réalisée avec un "SPIDER" (figure 4.3), les défauts de phase sont limités.

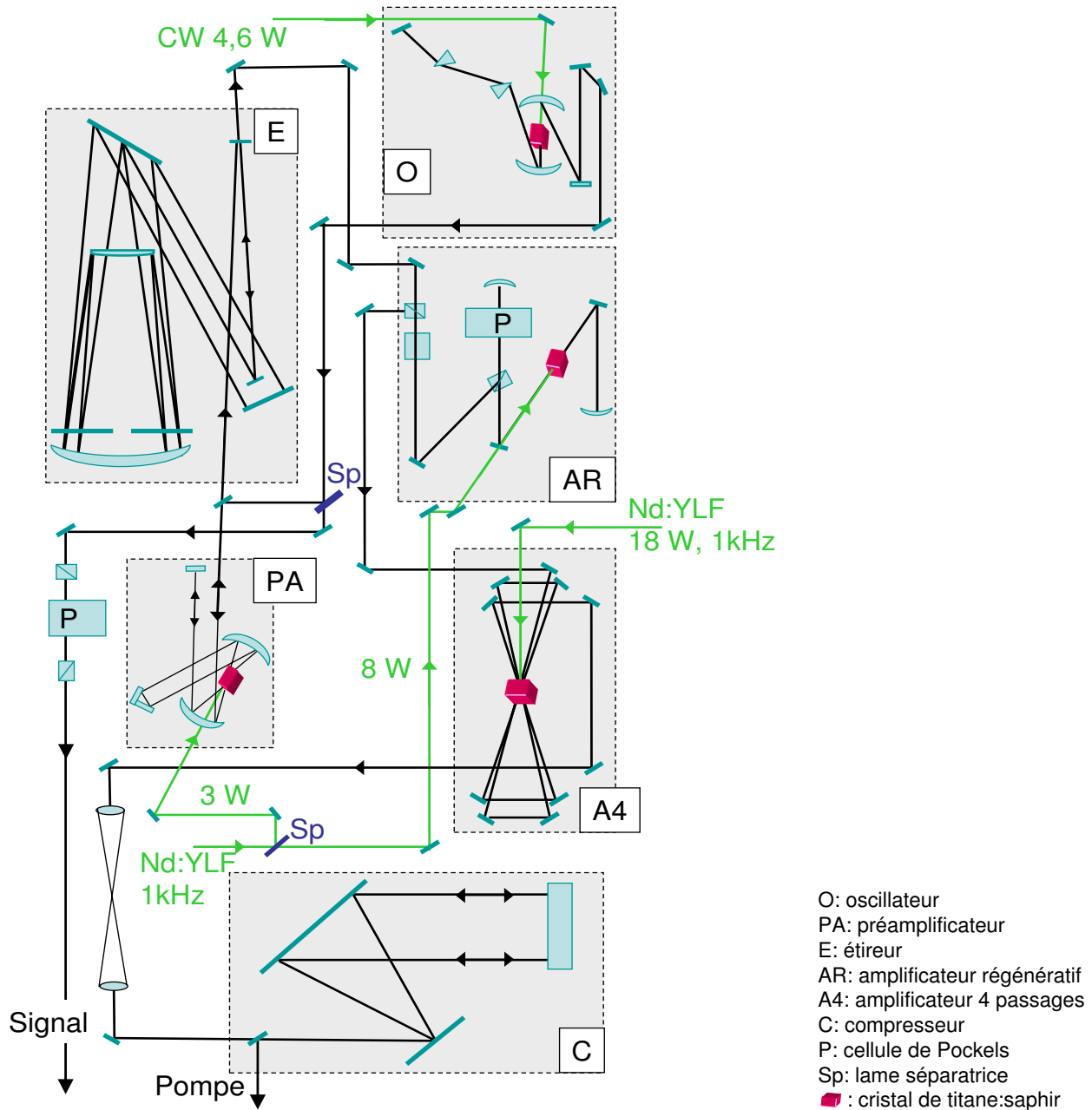


FIG. 4.2: Schéma du laser de pompe de l'OPCPA quasi-dégénéré.

Pour réaliser l'amplification paramétrique du signal généré par l'oscillateur, une configuration quasi-dégénérée a été choisie dans laquelle la longueur d'onde du faisceau de pompe est proche de la moitié de la longueur d'onde centrale du faisceau signal à am-

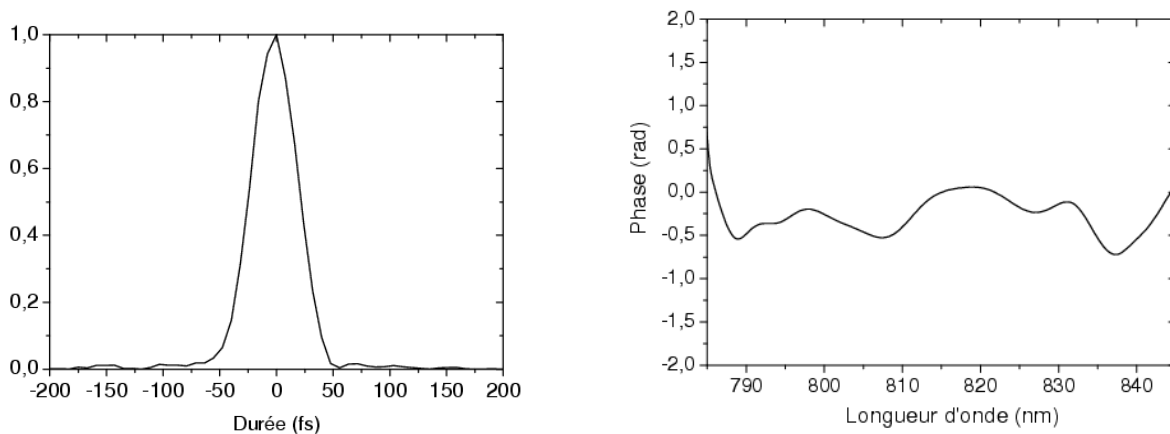


FIG. 4.3: Résultats de la mesure "SPIDER". Profil temporel (fig. de gauche) et phase spectrale (fig. de droite) de l'impulsion recomprimée

plifier, soit environ 400 nm . La longueur d'onde du faisceau généré par le laser décrit précédemment étant déterminée par la longueur d'onde centrale de la bande de gain des cristaux de saphir dopé au titane traversés par les impulsions, celle-ci est donc très proche de 800 nm . Il faut doubler en fréquence ce faisceau pour transférer sa longueur d'onde d'émission dans le domaine ultra violet à 400 nm . Nous désignerons parfois le faisceau de pompe ainsi obtenu par sa couleur, en le nommant "faisceau bleu".

Un cristal de BBO de 5 mm de long, taillé pour l'accord de phase de type I à un angle θ de $29,2^\circ$ est utilisé pour effectuer ce doublage de fréquence. L'énergie du faisceau bleu résultant dépend de l'énergie du faisceau après son passage dans le dernier élément du laser, c'est-à-dire le compresseur. L'efficacité de doublage dépend de la durée des impulsions. Dans nos expériences, l'énergie du faisceau doublé est de quelques centaines de micro Joules.

4.1.1.2 Méthode de réduction du spectre

Comme vu dans le paragraphe précédent, il est nécessaire pour la pompe d'avoir un spectre étroit, quasi-monochromatique, pour obtenir un doublage efficace et donc une énergie à 400 nm la plus élevée possible. De plus, le spectre de la pompe doit être étroit pour obtenir une durée d'impulsion longue dans le système OPA. Or, les impulsions de pompe étant créées à partir de l'oscillateur, leur spectre est large (environ 30 nm de largeur à mi-hauteur), bien que plus étroit que celui de l'oscillateur, notamment à cause du

rétrécissement spectral par le gain intervenant dans les amplificateurs. Il est donc nécessaire de réduire ce spectre à quelques nanomètres de large et de le rendre ainsi quasi-monochromatique. Différentes méthodes ont été expérimentées afin d'obtenir ce type de spectre. Cette partie est dédiée à leur description détaillée.

Dans la première méthode, le spectre est réduit directement dans l'étireur. Ceci est réalisé à l'aide de deux plaques noires non réfléchissantes placées contre le miroir concave de l'étireur, comme le montre les photos de la figure 4.4. Cette technique permet d'ajuster la largeur spectrale et la longueur d'onde centrale par simple translation des plaques perpendiculairement au faisceau. Dans un premier temps, le spectre choisi fait 1 nm de large. En contrepartie, l'énergie contenue de part et d'autre de la coupure spectrale est

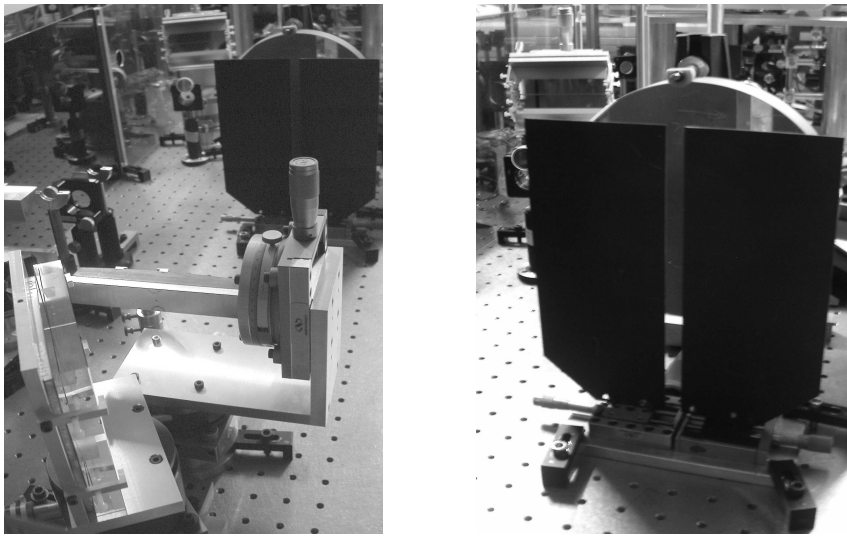


FIG. 4.4: Photos de l'étireur (fig. de gauche) et des plaques noires placées devant le miroir concave (fig. de droite)

perdue, ce qui réduit considérablement l'énergie du faisceau injecté dans l'amplificateur régénératif. Un fond parasite d'émission spontanée amplifiée apparaît alors dans ce dernier. Autrement dit, l'amplificateur régénératif amplifie presque autant de signal que de bruit et son efficacité est réduite. Pour éviter ce phénomène, nous avons introduit un élément supplémentaire entre la lame séparatrice et l'étireur que l'on nomme couramment un "pré-amplificateur femtoseconde" (voir fig. 4.5). Il s'agit en fait d'un amplificateur de type multipassages dans lequel le faisceau femtoseconde généré par l'oscillateur est amplifié sans étirement temporel préalable. Les impulsions laser effectuent quatre passages successifs dans un cristal de saphir dopé au titane qui constitue le milieu à gain de cet

amplificateur. Le cristal, long de 4 *mm*, est taillé à l'angle de Brewster pour éviter les pertes par réflexion sur ses faces et refroidi par circulation d'eau. Deux miroirs concaves de rayon de courbure égal à 100 *mm* ainsi que deux dièdres permettent les quatre passages du faisceau dans le cristal.

Le laser de pompe utilisé pour ce préamplificateur est le même que celui utilisé pour l'amplificateur régénératif. La puissance du faisceau de pompe dans le préamplificateur est égale à 3 *Watts*.

Cette technique d'amplification directe sans étirement ne crée pas de dommage optique car l'intensité crête des impulsions reste en-dessous du seuil de dommage des matériaux traversés ($I_c \simeq 8.5 \text{ GW/cm}^2 \ll 10^{11} \text{ W/cm}^2$, seuil d'ionisation de la plupart des matériaux [74]). Le coefficient de gain de ce pré-amplificateur est proche d'un facteur 1000, ce qui suffit à compenser les pertes d'énergie dues à la coupure spectrale du faisceau dans l'étireur et à retrouver un niveau d'énergie correct après l'amplificateur régénératif, tout en diminuant très nettement le niveau d'ASE parasite.

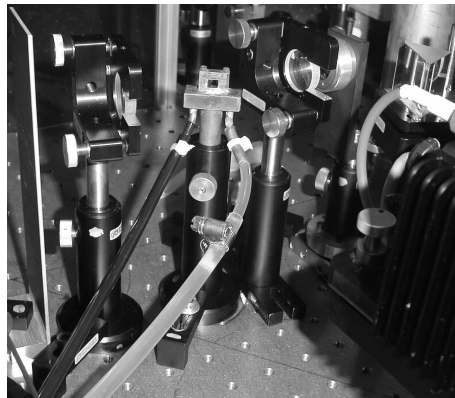


FIG. 4.5: Photo du pré-amplificateur femtoseconde

En dehors des problèmes d'énergie, la réduction du spectre pose un autre problème : l'étirement temporel. En effet, plus un spectre est étroit, moins l'impulsion est étirée. Une conséquence importante est que l'intensité crête des impulsions après amplification peut alors être au dessus du seuil de dommage des matériaux traversés. L'élément le plus fragile du système étant la cellule de Pockels (cristal de KD^*P), nous allons vérifier cette hypothèse en calculant l'intensité crête des impulsions dans le cristal de KD^*P .

Dans la cellule de Pockels, le diamètre du faisceau laser est d'environ 1 mm , et l'énergie après amplification dans le pré-amplificateur régénératif est de 0.7 mJ , ce qui signifie que l'énergie maximale des impulsions au niveau du cristal de la cellule est elle aussi de 0.7 mJ . La durée des impulsions après l'étireur n'est plus égale à 200 ps car le spectre de départ ne possède plus la même largeur. Les plaques ont réduit le spectre à 1 nm de large. Pour une impulsion gaussienne, la durée limitée par transformée de Fourier correspondant à ce spectre est :

$$\Delta t_0 = \frac{2\pi \cdot 0,441}{\Delta\omega_o} = \frac{0,441 \cdot \lambda^2}{c \cdot \Delta\lambda_o} \quad (4.1)$$

avec $\Delta\lambda_o = 1\text{ nm}$.

soit $\Delta t_0 = 941\text{ fs}$.

La durée des impulsions après étirement est donc :

$$\Delta t = \Delta t_0 \cdot \sqrt{1 + \frac{16 \cdot [\ln 2]^2 \cdot [\varphi^{(2)}]^2}{\Delta t_0^4}} \quad (4.2)$$

soit $\Delta t = 3,4\text{ ps}$.

L'intensité crête correspondant à ces caractéristiques de faisceau est alors :

$$\begin{aligned} I_c &= \frac{E}{S \cdot \Delta t} \\ &= 26\text{ GW/cm}^2 \end{aligned} \quad (4.3)$$

Le seuil de dommage donné dans la littérature pour le cristal de KD^*P varie d'une publication à l'autre. En effet, celui-ci dépend de la longueur d'onde, de la durée des impulsions et du taux de répétition. A titre d'exemple, Koechner[75] donne une densité d'énergie surfacique ("fluence") de 10 J/cm^2 à 800 nm , pour une durée d'impulsion de 3 ns , ce qui correspond à une intensité de 3 GW/cm^2 , tandis que les mesures effectuées par Nakatani[44] à 532 nm montrent un seuil limite de 17 GW/cm^2 pour une durée de 8 ns .

L'intensité que nous venons de calculer étant supérieure à ces valeurs théoriques, nous avons choisi de travailler avec un spectre un peu plus large pour la pompe (2 nm) et un diamètre de faisceau plus gros dans l'amplificateur régénératif afin de réduire les risques de dommages. Pour cela, nous avons modifié l'amplificateur régénératif en réalisant une cavité asymétrique, comme le montrent les figures 4.6 et 4.7.

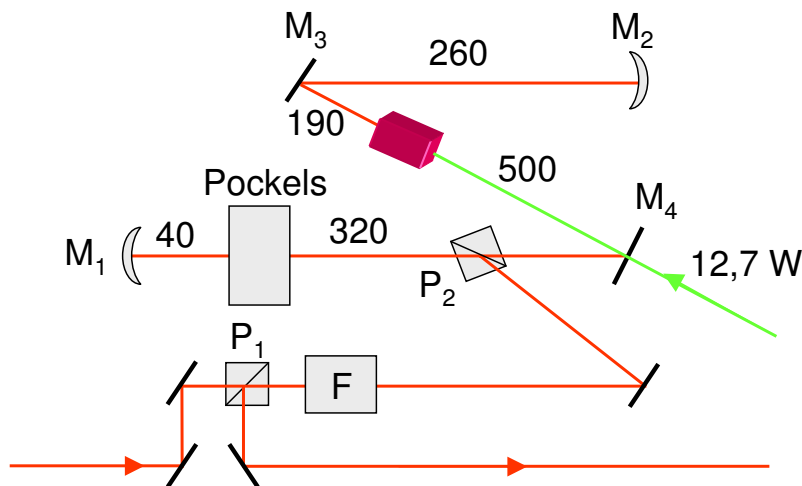


FIG. 4.6: Schéma de l'amplificateur régénératif modifié. (Les longueurs des bras de la cavité sont indiquées en mm).

L'énergie du système laser n'étant pas suffisante pour réaliser une amplification paramétrique efficace, nous avons augmenté les puissances de pompe dans les deux amplificateurs en veillant à ne pas augmenter la valeur de l'intensité. Le principe de fonctionnement de l'amplificateur régénératif modifié pour amplifier des impulsions de largeur spectrale égale à quelques nanomètres est le même que celui du régénératif classique décrit dans le chapitre 1. Nous avons remplacé le cristal amplificateur très dopé de la cavité régénérative précédente par un cristal plus long (20 mm) et moins dopé, ce qui nous permet d'augmenter la puissance de pompe du YLF jusqu'à $12,7\text{ W}$ sans créer d'effets thermiques. Les impulsions effectuent alors 14 tours dans la cavité laser. L'énergie optimale des impulsions après amplification est désormais de $1,75\text{ mJ}$.

La puissance de pompe sur le cristal de $\text{Ti}:\text{Sa}$ du deuxième amplificateur multipassage est augmentée en utilisant un deuxième laser de pompe. Les puissances des lasers YLF sont respectivement égales à 10 W et 16 W . Les impulsions effectuent toujours 4 passages dans le milieu à gain, mais l'énergie est désormais égale à $5,5\text{ mJ}$ en sortie de l'amplificateur. L'énergie des impulsions après passage dans le compresseur n'est plus que de $2,9\text{ mJ}$.

La modification principale de l'amplificateur régénératif réside dans la dissymétrie de la cavité laser. Cela signifie que les deux bras de la cavité ne sont pas de la même longueur, comme on peut le constater sur le schéma de la figure 4.6. Pour garder un système

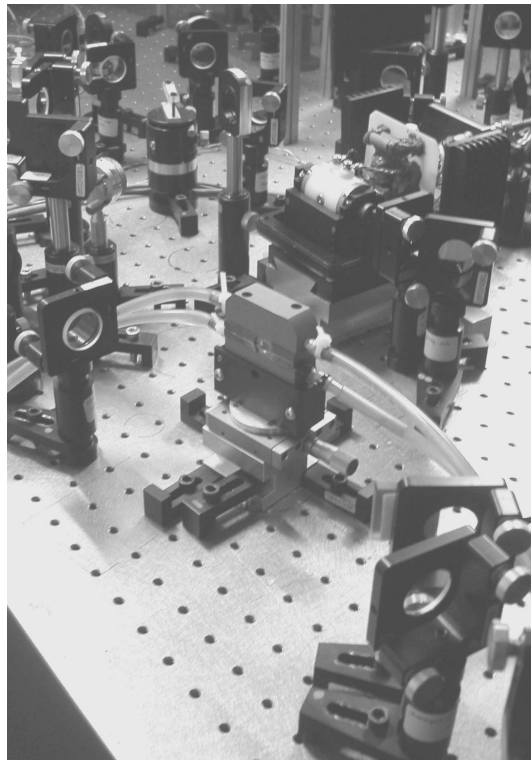


FIG. 4.7: Photo de l'amplificateur régénératif modifié.

compact, nous avons introduit dans chaque bras un miroir à incidence nulle (ou miroir à 0°) qui sert à replier la cavité. Ces derniers sont notés M_3 et M_4 sur le schéma. Le premier bras de l'amplificateur modifié mesure 860 mm de long, tandis que le deuxième bras mesure seulement 450 mm de long. Les miroirs de fond de cavité notés $M1$ et $M2$ sur la figure 4.6 sont concaves et ont pour rayon de courbure 1500 mm . Le diamètre du faisceau dans la cellule de Pockels est de $1,5\text{ mm}$ et l'énergie des impulsions après amplification est égale à $1,2\text{ mJ}$ pour une largeur spectrale de 2 nm . L'intensité crête est alors égale à 10 GW/cm^2 . Les valeurs des intensités crêtes pour différentes largeurs spectrales sont regroupées dans le tableau 4.1 ci-après. Il est également indiqué la valeur de l'énergie des impulsions après amplification ainsi que la durée des impulsions au niveau de la cellule de Pockels. La figure 4.8 montre un exemple de spectre expérimental obtenu après réduction par des plaques introduites dans l'étireur jusqu'à $2,65\text{ nm}$.

Cependant, même si les calculs d'intensité crête effectués pour l'amplificateur régénératif picoseconde prédisent une utilisation sans danger pour la cellule de Pockels avec un spectre de 2 nm , nous avons constaté qu'en dessous d'une largeur de $3,5\text{ nm}$ à 4 nm ,

| Largeur spectrale | Durée après étirement (ps) | Énergie (mJ) | Intensité crête (GW/cm^2) |
|-------------------|----------------------------|------------------|-------------------------------|
| non injecté | – | 1,75 | – |
| 10 nm | 32 | 1,5 | 2,65 |
| 3 nm | 9,7 | 1,3 | 7,58 |
| 2 nm | 6,5 | 1,2 | 10,4 |
| 1 nm | 3,4 | 1,2 | 20 |

TAB. 4.1: Tableau des énergies obtenues en sortie d’amplificateur régénératif pour différentes largeurs spectrales et intensités crête correspondante, le spectre étant coupé par deux plaques noires situées dans l’étireur.

la surface de la cellule de Pockels se dégrade. Il semble donc qu’augmenter la taille du faisceau dans la cellule de Pockels ne soit pas suffisant pour obtenir un spectre quasi-monochromatique, car celui-ci ne peut être inférieur à la valeur expérimentale de $3,5 \text{ nm}$ sans causer de dommage optique.

Cette largeur spectrale n’est pas suffisamment faible pour réaliser nos expériences d’amplification paramétrique dans les meilleures conditions, mais suffisante pour réaliser des expériences préliminaires, comme nous le verrons plus tard dans les parties 2 et 3 de ce chapitre. Une autre solution permettant de diminuer la largeur spectrale du faisceau de pompe consiste à réduire le spectre à l’intérieur de la cavité régénérative au lieu d’effectuer une coupure nette de celui-ci dans l’étireur. A cet effet, un filtre de Lyot est introduit dans la cavité de l’amplificateur régénératif, juste avant le miroir de fond de cavité. Les filtres de Lyot sont constitués d’une superposition de cristaux biréfringents et de filtres polarisants et possèdent une bande passante spectrale pouvant être très étroite. Le filtre que nous avons à notre disposition a une bande spectrale de $2,5 \text{ nm}$. Les plaques étant enlevées de l’étireur, la totalité du spectre est envoyé dans la cavité régénérative et la durée des impulsions est alors de l’ordre de 200 ps dans la cellule de Pockels. L’énergie des impulsions amplifiées par l’amplificateur régénératif est plus faible qu’auparavant en raison des pertes introduites par le filtre et vaut 1 mJ . L’intensité crête des impulsions dans la cellule de Pockels est alors égale à $I_c = 2,8 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$, ce qui est bien en-dessous des valeurs d’intensités précédemment calculées. Bien que la baisse d’énergie en sortie d’amplificateur régénératif puisse être compensée par l’amplificateur à multipassages et

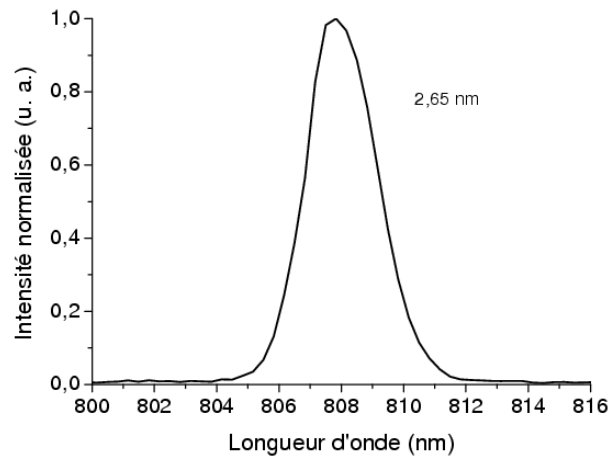


FIG. 4.8: Exemple de spectre expérimental réduit à 2,65 nm de large dans l'étireur, mesuré après les deux amplificateurs.

ne soit donc pas pénalisante pour nos expériences, l'utilisation du filtre de Lyot n'a pas donné les résultats espérés. En effet, l'introduction du filtre dans la cavité génère des modulations dans le spectre des impulsions en sortie de l'amplificateur. Ces modulations spectrales se traduisent par l'apparition de modulations temporelles et de pré et post impulsions après compression. L'énergie disponible dans l'impulsion principale n'a alors plus le niveau suffisant, après doublage en fréquence, pour pomper le système OPA. De plus, nous sommes encore loin de la largeur spectrale optimale pour le faisceau de pompe qui est de 1 nm.

La troisième et dernière solution que nous avons testée afin de réduire le spectre des impulsions de pompe est de modifier le système d'étirement-compression pour augmenter l'étirement d'un facteur 1000 par rapport à la configuration précédente. On peut alors obtenir des impulsions suffisamment longues et rester en-dessous du seuil de dommage dans la cellule de Pockels. Dans cette optique, nous avons remplacé les réseaux de 1200 *tr/mm* utilisés auparavant par des réseaux holographiques de même dimensions et de 2200 *tr/mm*, tout en conservant les miroirs concaves initiaux.

Pour un angle d'incidence sur le réseau de l'étireur de 70° et une distance d'étirement égale à 600 mm entre le miroir concave et le réseau, le coefficient d'étirement φ^2 est alors égale à $21,5 \cdot 10^6 \text{ fs}^2$. Une impulsion possédant une largeur spectrale de 10 nm, ce qui correspond à une durée d'impulsion d'environ 100 fs limitée par transformée de Fourier, est

ainsi étirée jusqu'à 596 ps. Avec ces caractéristiques, le spectre peut être réduit à 1 nm car la durée de l'impulsion correspondante après étirement est alors de 60 picosecondes dans l'amplificateur régénératif, ce qui diminue considérablement l'intensité crête dans la cellule de Pockels (par exemple, $I_c = 1.2 \text{ GW/cm}^2$ pour une énergie de 1,3 mJ en sortie d'amplificateur régénératif).

4.1.1.3 Influence de la coupure spectrale sur le profil temporel de l'impulsion

La perte d'énergie due à la coupure du spectre par des plaques placées dans l'étireur peut être, comme on vient de le voir, compensée par la pré-amplification des impulsions avant leur passage dans l'étireur. Mais la coupure spectrale ainsi réalisée engendre également une diminution du contraste des impulsions. En effet, certaines composantes situées de part et d'autre de cette "fenêtre spectrale" sont perdues. Le profil du spectre est alors proche d'une fonction rectangle et le profil temporel correspondant est la convolution du profil initial de l'impulsion par une fonction sinus cardinal. Bien que ce profil soit lissé au cours des amplifications successives dans les deux amplificateurs, ces effets peuvent être gênants si on souhaite utiliser le faisceau laser pour des expériences d'interaction sur cible, comme on l'a vu dans le chapitre 1. Cependant, ils ne sont pas gênants pour nos expériences. En effet, l'énergie contenue dans les rebonds temporels de l'impulsion reste très modeste et ces rebonds sont ainsi éliminés lors du doublage de fréquence.

4.1.2 Faisceau signal

Les impulsions transmises par la lame séparatrice située en sortie de l'oscillateur (voir figure 4.2) constituent le faisceau signal que l'on souhaite amplifier. Celui-ci est collimaté à l'aide d'une lentille convergente qui supprime la divergence du faisceau à la sortie de l'oscillateur. Le signal est envoyé dans une cellule de Pockels utilisée en porte optique ("pulse peaker") qui prélève une seule impulsion parmi toutes celles du train produit par l'oscillateur. En théorie, l'utilisation d'une telle cellule n'est pas nécessaire. En effet, l'amplification paramétrique étant un processus instantané, il agit déjà lui-même comme une porte optique. Toutefois, l'emploi de la cellule de Pockels permet de faciliter les étapes de synchronisation et d'analyse des résultats.

La cellule de Pockels est constituée d'un cristal de KD^*P de 2 cm de long qui possède un terme de dispersion de vitesse de groupe égal à 551 fs^2 . De part et d'autre de la

cellule de Pockels, nous avons placé des polariseurs croisés pour réaliser la sélection de l'impulsion de façon efficace. Le coefficient d'extinction de la cellule est de l'ordre de 1000, ce qui permet une bonne séparation entre l'impulsion sélectionnée par la cellule et le reste du train d'impulsions. Au cours de sa traversée de la lentille de collimation (5 mm d'épaisseur), de la lame séparatrice (5 mm d'épaisseur), de la cellule de Pockels et des polariseurs (1 cm d'épaisseur chacun), l'impulsion est dispersée et étirée temporellement jusqu'à la durée Δt_s calculée par l'équation (1.17) rappelée ci-dessous :

$$\Delta t_s = \Delta t_{0s} \cdot \sqrt{1 + \frac{16 \cdot [\ln 2]^2 \cdot [\varphi^{(2)}]^2}{\Delta t_{0s}^4}} \simeq \frac{4 \ln 2 \cdot |\varphi^{(2)}|}{\Delta t_{0s}} \quad (4.4)$$

Celle-ci peut se simplifier car $\varphi^{(2)}$ est très grand devant le terme Δt_{0s}^2 . La valeur de $\varphi^{(2)}$ est la somme des coefficients de dispersion du deuxième ordre des différents matériaux traversés. Ceux-ci sont calculés à partir du tableau 1.1 donné dans le premier chapitre. La lentille et la lame séparatrice sont en BK7 et les polariseurs en Quartz.

$$\varphi^{(2)} = 1 \times 445 + 2 \times 465,8 + 551 = 1927,6 \text{ fs}^2 \quad (4.5)$$

La durée du signal est alors de 357 fs.

4.1.3 Synchronisation temporelle

L'effet paramétrique étant un phénomène instantané, les impulsions signal et pompe focalisées sur le cristal doivent être synchrones l'une de l'autre pour garantir une amplification efficace. Pour assurer cette synchronisation, nous avons disposé une ligne à retard sur le trajet du signal avant l'OPA. La ligne à retard est un coin de cube fixé sur une platine de translation, elle-même pouvant effectuer de plus amples déplacements sur un rail métallique fixé à la table d'expérimentation (cf. figure 4.9). Le rail fait 50 cm de long, ce qui correspond à une durée de 3,4 ns aller-retour. Cette ligne à retard est en fait utilisée pour un réglage fin, la durée séparant le signal et la pompe pouvant être bien plus grande que 3,4 ns. Il faut alors utiliser une méthode de synchronisation électronique, comme nous le verrons par la suite.

Dans le processus d'amplification paramétrique, les impulsions signal et pompe sont superposées dans un cristal non linéaire (dans notre cas, un cristal de BBO taillé pour l'accord de phase de type I). Pour effectuer le réglage de la synchronisation, on remplace le

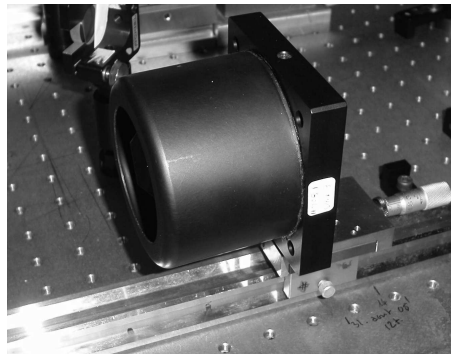


FIG. 4.9: Photo du coin de cube positionné sur une platine et un rail de translation

crystal par une photodiode reliée à un oscilloscope au point de recouvrement des faisceaux pompe et signal. Sur l'écran de l'oscilloscope, on visualise les deux impulsions correspondant chacune à un des deux faisceaux.

Deux générateurs de délai (DG535, SRS Stanford Research Systems) et (BME-SG05P1 BME-G05P2, Bergman Messgeräte Entwicklung) permettent de synchroniser l'ensemble des éléments de la chaîne avec le train d'impulsions de l'oscillateur. Le câblage est schématisé dans la figure 4.10.

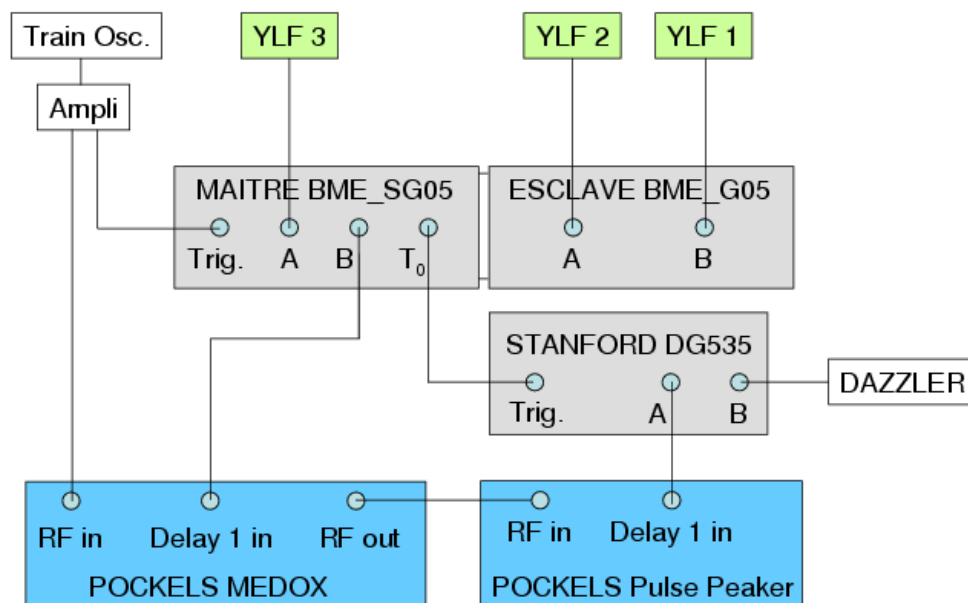


FIG. 4.10: Schéma du câblage électrique

Une photodiode située sur une fuite de l'oscillateur détecte le train d'impulsions mé-

gahertz. Le niveau de signal reçu par la photodiode est amplifié pour donner une référence de cadence (signal RF) à la cellule de Pockels de l'amplificateur régénératif d'une part et déclencher le générateur de délai BME d'autre part. Les deux cartes (maître et esclave) électroniques du générateur de délai BME servent à déclencher les trois lasers de pompe Nd :YLF du système laser (sorties A de la carte maître, A et B de la carte esclave), la cellule de Pockels de l'amplificateur régénératif (sortie B de la carte maître), ainsi qu'un deuxième générateur de délai (Stanford, sortie To de la carte maître). Ce dernier sert à déclencher la deuxième cellule de Pockels (porte optique sélectionnant une impulsion du train signal). Les deux cellules de Pockels sont reliées l'une à l'autre par l'intermédiaire de leur signal RF.

Pour effectuer la synchronisation du faisceau de pompe et du faisceau signal, on fait varier le délai du générateur Stanford ce qui permet de sélectionner dans le train d'impulsions de l'oscillateur l'impulsion signal la plus proche temporellement de l'impulsion de pompe. La ligne à retard nous permet ensuite d'ajuster le délai temporel entre ces deux impulsions, d'abord grossièrement en déplaçant le coin de cube sur son rail, puis de façon plus fine en fixant le coin de cube sur son rail et en jouant sur la platine de translation sur laquelle le coin de cube est fixé. On obtient ainsi la position pour la ligne à retard du "zéro temporel" du signal par rapport à la pompe.

La position du coin de cube sur son rail dépend des délais fixés par les Pockels intervenant l'une sur le chemin optique du faisceau de pompe dans l'amplificateur régénératif, l'autre sur le chemin du faisceau signal. A chaque tour supplémentaire dans l'amplificateur régénératif, le coin de cube est déplacé sur son rail. Une fois cette position déterminée, on peut remplacer la photodiode par le cristal non linéaire de BBO et ajuster la position permettant l'effet paramétrique le plus efficace, en agissant uniquement sur la platine de translation.

4.1.4 Présentation des dispositifs réalisés

Différents dispositifs d'amplification paramétrique en configuration quasi dégénérée ont été réalisés, chacun apportant des informations différentes et complémentaires sur la technique OPCPA et permettant ainsi d'en cerner les avantages et les limites. Trois dispositifs ont été retenus, en raison des informations qu'ils pouvaient nous apporter et du matériel expérimental à notre disposition :

- ★ un système de pré-amplification utilisant un seul cristal non linéaire.
- ★ un système à deux cristaux non linéaires comprenant un pré-amplificateur et un amplificateur de puissance.
- ★ un système hybride associant un amplificateur OPCPA et un amplificateur à multipassages dans un cristal de saphir dopé au titane.

4.2 Pré-amplificateur paramétrique d'impulsions ultra-courtes

Cette section est consacrée à la description du premier dispositif d'amplification paramétrique d'impulsions courtes en configuration quasi-dégénérée et quasi-colinéaire que nous avons réalisé. Dans un premier temps, le schéma expérimental sera exposé, ainsi que les caractéristiques des faisceaux avant amplification. Dans un deuxième temps nous présenterons les spectres et les énergies du signal obtenus après amplification. Enfin nous ferons la comparaison entre le calcul de la forme spectrale du signal amplifié et les courbes expérimentales mesurées.

4.2.1 Schéma expérimental

Comme vu dans la section précédente, le faisceau infrarouge à amplifier et le faisceau de pompe (à 400 nm) sont produits par la même source, à un taux de répétition kilohertz. Le tableau 4.2 ci-dessous résume les principales caractéristiques du système laser utilisé pour cette expérience. L'énergie du faisceau de pompe après doublage de fréquence dans le cristal de BBO (cf. partie 4.1.1.1) est de $400\ \mu\text{J}$, celle du faisceau signal est de $1\ \text{nJ}$ après passage dans la cellule de Pockels.

| Élément du laser | Puissance de pompe | Énergie |
|---------------------------|--------------------|-------------------|
| Oscillateur | Milennia 4,6 W | 4 nJ |
| Ampli. régénératif | YLF 8 W (1 kHz) | 0,7 mJ |
| Ampli. 4 passages | YLF 18 W (1 kHz) | 3,5 mJ |
| Compresseur | -- | 1,75 mJ |
| Cristal doubleur BBO 5 mm | -- | 400 μJ |

TAB. 4.2: Résumé des puissances et des énergies de la chaîne laser générant le faisceau de pompe.

Le système d'amplification paramétrique (OPA) est constitué d'un cristal de BBO de $3\ \text{mm}$ de long, sur lequel sont focalisés les deux faisceaux, dans un premier temps par l'intermédiaire du même miroir concave de $600\ \text{mm}$ de focale. Un angle α compris entre 1° et 2° est introduit entre les faisceaux pour réaliser le bon accord de phase dans le

cristal amplificateur. Le schéma de la figure 4.11 illustre les trajets des faisceaux signal et pompe dans le système OPA. Comme nous l'avons calculé précédemment, le signal, suite à la dispersion subie à la traversée des différentes optiques, a une durée de 350 fs et est synchrone de la pompe au niveau du cristal de BBO. Cette dernière possède une durée de 400 fs pour un spectre réduit à $2,5 \text{ nm}$ dans l'étireur, ou de 250 fs si le spectre est réduit à 4 nm , ces durées étant obtenues par transformée de Fourier.

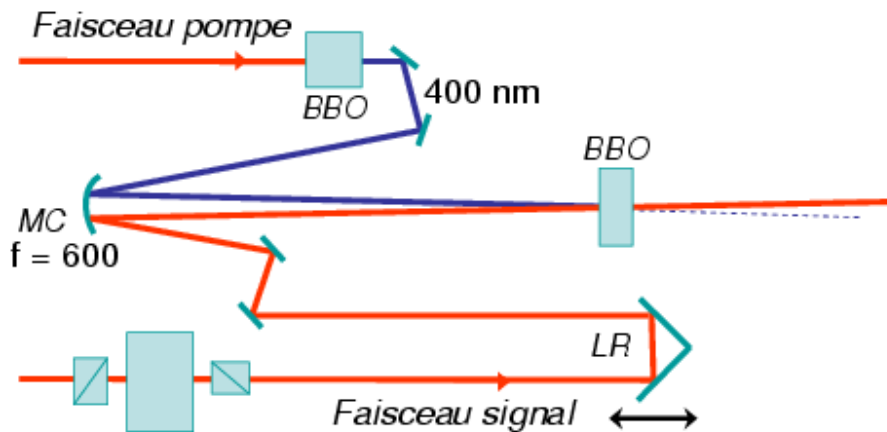


FIG. 4.11: Schéma du pré-amplificateur paramétrique en configuration quasi-dégénérée et quasi-colinéaire. LR : ligne à retard, MC : miroir concave

Sur la face d'entrée du cristal, le faisceau de pompe est plus gros que le faisceau signal, afin de garantir un bon recouvrement du signal et donc une amplification efficace. Les profils des deux faisceaux sont approximativement gaussiens. Le faisceau de pompe est asymétrique car il présente de l'astigmatisme. Il a pour dimensions $1,2 \text{ mm} \times 800 \mu\text{m}$ à mi-hauteur, contre $800 \mu\text{m} \times 750 \mu\text{m}$ de diamètre à mi-hauteur pour le signal, comme on peut le voir sur la figure 4.12.

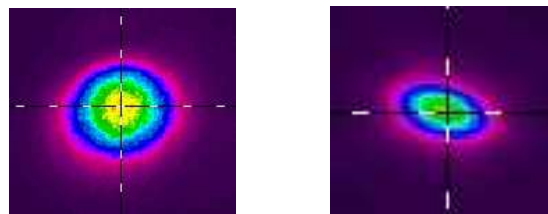


FIG. 4.12: Profils spatiaux du signal avant focalisation (à gauche) et de la pompe (à droite) au niveau du cristal de BBO

4.2.2 Spectres et énergies après amplification

Le spectre de l'oscillateur est centré à la longueur d'onde $\lambda_s = 815 \text{ nm}$ et possède une largeur spectrale de 56 nm . Afin d'étudier le comportement de l'amplificateur OPCPA en fonction de la puissance de pompe, nous avons mené trois séries d'expériences.

Dans un premier temps, le spectre de la pompe a été réduit dans l'étireur à $2,5 \text{ nm}$, ce qui correspond à une durée théorique Δ_p des impulsions de 400 fs . On notera que cette durée est légèrement supérieure à celle des impulsions signal estimée à 350 fs . L'énergie E_p du faisceau de pompe à 400 nm est limitée à $300 \mu\text{J}$ afin de rester en dessous de la saturation du gain pendant le processus d'amplification paramétrique. L'intensité de pompe sur le cristal est alors égale à 90 GW/cm^2 . Dans cette configuration, le faisceau signal dont l'énergie initiale est égale à 1 nJ est amplifié jusqu'à une énergie de $2,5 \mu\text{J}$, ce qui représente un gain de $2,5 \cdot 10^3$ en un seul passage dans le cristal. La figure 4.14 présente les photos des faisceaux complémentaire, pompe et signal obtenus en sortie du cristal, après l'amplification. Par ailleurs, au cours de l'amplification, le spectre est entièrement conservé voire même légèrement élargi (environ 6 nm d'élargissement, soit une largeur totale à mi-hauteur de 62 nm) comme on peut le voir sur les deux exemples de la figure 4.13.

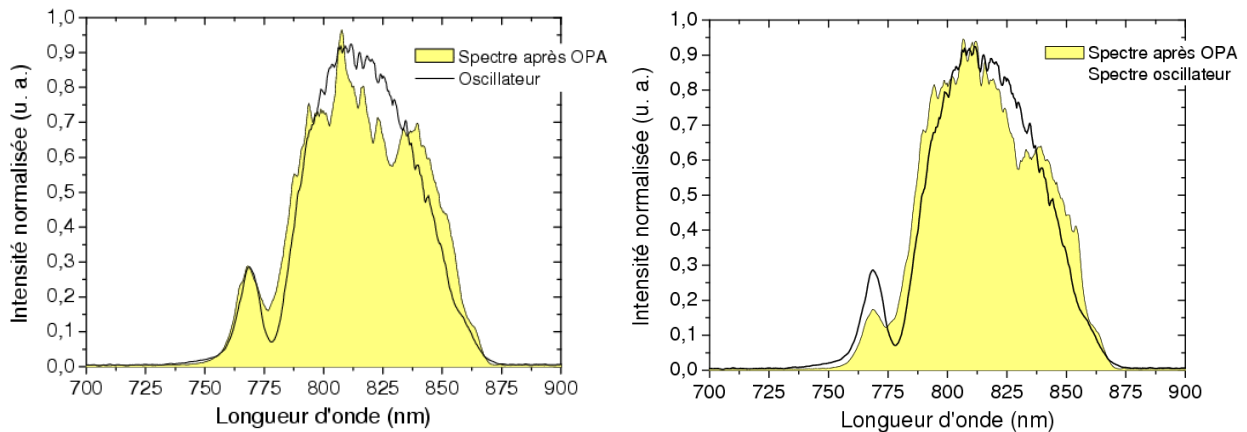


FIG. 4.13: Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 300 \mu\text{J}$ et $\Delta_p = 400 \text{ fs}$

Dans un deuxième temps, nous avons augmenté l'énergie de pompe jusqu'à $400 \mu\text{J}$ tout en conservant la même durée afin d'atteindre la saturation, avec une intensité de pompe égale à 130 GW/cm^2 . Dans ce régime de fonctionnement, l'énergie du signal am-

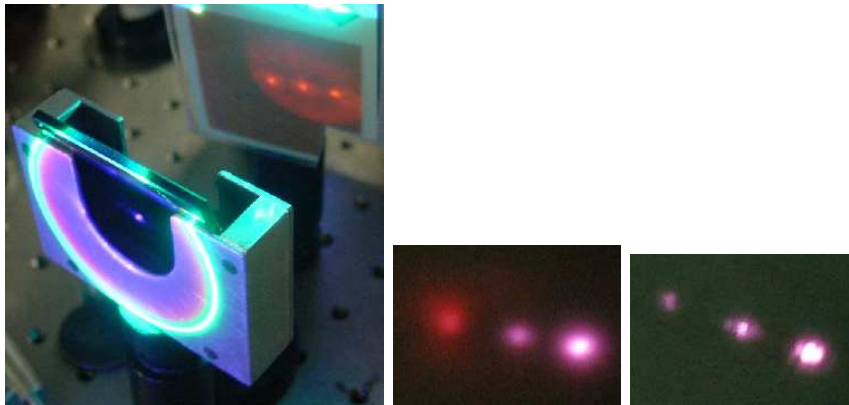


FIG. 4.14: Photos des faisceaux du signal amplifié (à gauche), de la pompe restant après amplification (au centre) et du complémentaire (à droite) sur une carte infra-rouge (figures de gauche) et sur un écran blanc (fig. de droite)

plifié est très peu augmentée, puisqu'elle atteint $3 \mu J$ (au lieu de $2,5 \mu J$ dans le cas précédent). L'effet de la saturation s'observe en revanche très nettement sur le spectre, avec un élargissement conséquent. La largeur spectrale passe de 56 nm avant amplification à 120 nm après amplification, comme le montre la figure 4.15.

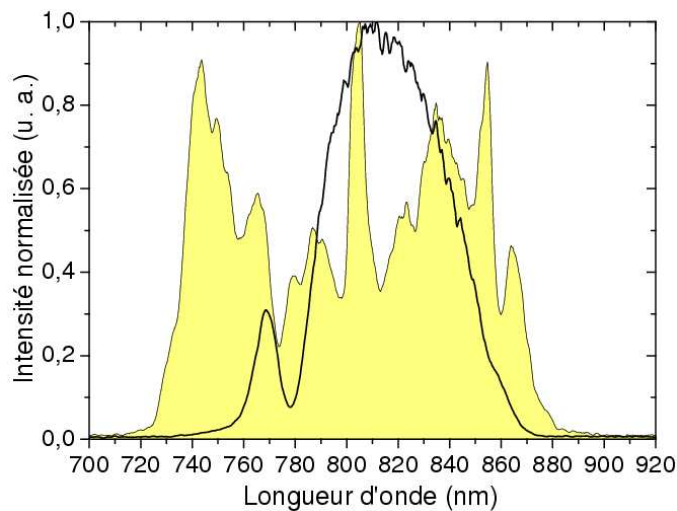


FIG. 4.15: Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 400 \mu J$ et $\Delta_p = 400 \text{ fs}$

La saturation s'accompagne de modulations très importantes dans le spectre du signal amplifié paramétriquement. Ces modulations ressemblent à un effet d'automodulation de phase. C'est pourquoi nous pensons qu'elles sont liées à l'apparition d'effets non linéaires

due à une augmentation de l'intensité de pompe (130 GW/cm^2 contre 90 GW/cm^2 précédemment) qui rentrent en compétition avec l'amplification paramétrique. Il ne s'agit donc pas d'une "vraie" saturation due à une limitation du gain paramétrique, mais plutôt d'une saturation liée à la prédominance d'effets non linéaires différents de l'amplification paramétrique.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons saturé d'avantage l'amplificateur paramétrique en augmentant la largeur spectrale des impulsions de pompe jusqu'à 4 nm ce qui revient à réduire leur durée à 250 fs . Dans cette configuration, la durée des impulsions pompe est donc légèrement inférieure à celle des impulsions signal et l'intensité de pompe vaut 200 GW/cm^2 . L'énergie obtenue après amplification est égale à $8 \mu\text{J}$, ce qui représente le gain le plus important que nous ayons pu atteindre avec ce schéma d'amplificateur. Comme dans le cas précédent, le spectre est fortement élargi après amplification mais à un niveau moindre (90 nm de largeur à mi-hauteur au lieu de 120 nm précédemment) comme on peut le voir sur la figure 4.16.

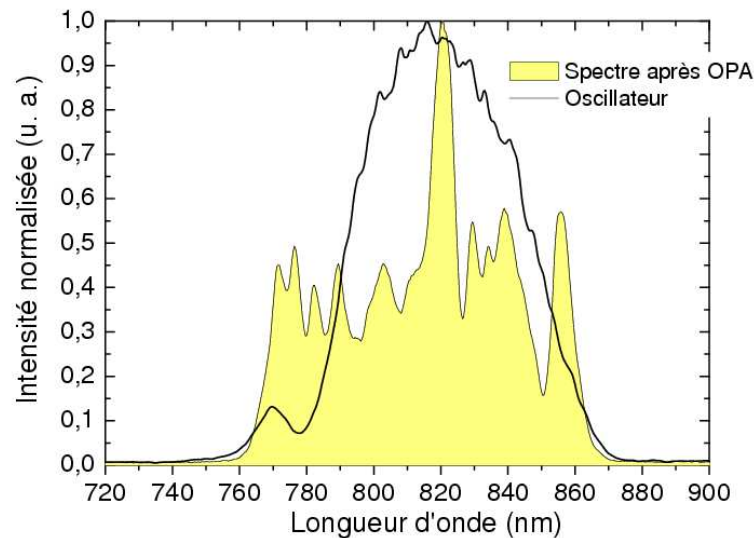


FIG. 4.16: Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 400 \mu\text{J}$ et $\Delta_p = 250 \text{ fs}$

Cette différence peut s'expliquer par la mauvaise adaptation des durées d'impulsions signal et pompe. En effet, les impulsions du signal sont étirées, ce qui signifie que les différentes longueurs d'onde qui le composent arrivent à des instants différents sur le cristal OPA. Si la durée de la pompe est supérieure à celle du signal, l'ensemble des composantes

spectrales du signal pourront interagir avec la pompe et seront amplifiées. Si par contre la durée de la pompe est inférieure à celle du signal, certaines composantes spectrales ne verront pas l'impulsion pompe et ne pourront pas être amplifiées. Le nombre de longueurs d'onde amplifiées avec efficacité sera ainsi réduit. Nous reviendrons par la suite sur ce phénomène et sur l'importance d'avoir une bonne adaptation des durées du signal et de la pompe.

On remarquera sur les spectres présentés figures 4.15 et 4.16 la présence d'un pic aux longueurs d'onde 800 nm et 820 nm respectivement. Ce pic ne correspond pas à de l'amplification paramétrique. Il s'agit en fait d'une impulsion parasite générée par un retour de l'amplificateur régénératif. Bien que nous n'ayons pas réussi à nous en affranchir pour les mesures spectrales, il est important de préciser qu'elle ne perturbe en rien le processus d'amplification paramétrique car elle n'est pas synchronisée avec les impulsions signal et pompe. Des mesures temporelles ont montré que cette impulsion arrivait sur le cristal de BBO 2 ns après les impulsions signal et pompe.

Les mesures de profil spatial du signal amplifié et du complémentaire généré lors de l'amplification paramétrique présentées dans la figure 4.17 montrent que les caractéristiques des faisceaux sont conservées.

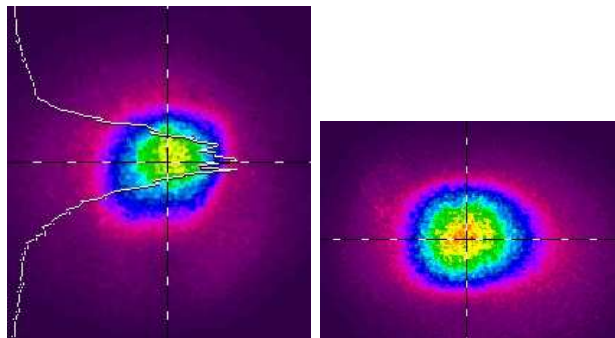


FIG. 4.17: Profils spatiaux du signal (à gauche) et du complémentaire (à droite) après pré-amplification

4.2.3 Simulations des spectres amplifiés

Afin de prévoir les spectres amplifiés en fonction des paramètres de l'amplificateur OPCPA, un programme a été écrit avec le logiciel Matlab. Celui-ci calcule le spectre

théorique à partir du produit entre le spectre de l'oscillateur et la courbe de gain. Ce programme n'a de sens que dans le cas d'un régime de non dépeuplement de la pompe, c'est-à-dire dans un régime hors saturation. Nous avons donc effectué les comparaisons entre le calcul et la mesure uniquement dans le cas de spectres très peu élargis et très peu modulés. Les courbes présentées dans l'exemple ci après (figure 4.18) correspondent au spectre de l'oscillateur, à la courbe de gain calculée à partir des paramètres expérimentaux (longueurs d'onde, type de cristal, angles, énergies, etc...), au spectre amplifié théorique calculé en faisant le produit du spectre de l'oscillateur et de la courbe de gain, et enfin, au spectre amplifié mesuré. Les valeurs des largeurs spectrales théoriques et expérimentales sont regroupées dans le tableau 4.3.

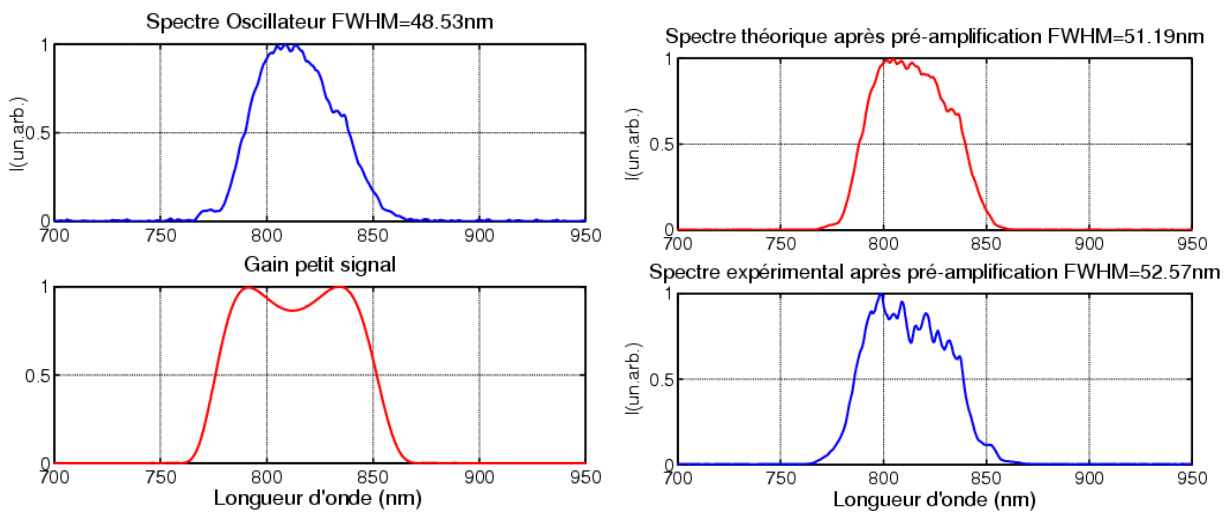


FIG. 4.18: Comparaison entre le spectre expérimental après amplification et le spectre calculé. Les courbes bleues correspondent aux spectres mesurés, les courbes rouges proviennent du calcul.

L'angle entre la pompe et le signal est fixé à la même valeur que dans l'expérience, c'est-à-dire entre 1° et 2° . La courbe de gain possède alors un creux à la longueur centrale du spectre de l'oscillateur, ce qui entraîne un léger élargissement du spectre amplifié, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2.

Pour quantifier le degré de similitude entre le spectre calculé et le spectre mesuré, on définit un écart à la valeur théorique comme suit :

$$Ecart = \frac{|\text{Spectre mesuré} - \text{Spectre calculé}|}{\text{Spectre calculé}} \quad (4.6)$$

Le pourcentage de similitude entre ces courbes est alors défini ainsi :

$$\text{Pourcentage} = 100 - 100 \times \text{Ecart} \quad (4.7)$$

| Spectre Oscillateur | Spectre Calculé | Spectre Mesuré | Similitude |
|---------------------|-----------------|----------------|------------|
| 48,53 nm | 51,19 nm | 52,57 nm | 89% |

TAB. 4.3: Tableau résumé des largeurs spectrales calculées et mesurées

L'énergie du faisceau de pompe subie des variations au cours du temps, ce qui entraîne des modulations dans la courbe de gain expérimentale. C'est pourquoi le profil du spectre amplifié expérimental présente des modulations qui n'apparaissent pas dans le spectre théorique qui est, lui, calculé avec une courbe de gain parfaite.

Le spectre calculé est très proche du spectre expérimental et le pourcentage de similitude est élevé. Nous disposons ainsi d'un outil capable de prévoir la forme du spectre après amplification et sa largeur à mi-hauteur approximative, en fonction des paramètres expérimentaux.

4.2.4 Conclusion

Ces différentes expériences nous ont permis de voir les effets de la saturation sur le comportement de l'amplificateur OPCPA. En particulier, nous avons mis en évidence le fait que cette technique permet de conserver le spectre initial lors de la phase d'amplification, voire de l'élargir plus ou moins fortement en cas de saturation. Dans le cas d'un fort élargissement se pose cependant le problème de la forte modulation du spectre. Ce type de modulation se traduit généralement par des rebonds temporels lors de la recompression, qui entraînent une forte diminution du contraste temporel.

Dans les expériences de physique les plus poussées qui se mènent actuellement, le contraste temporel est un élément tout aussi critique que la durée des impulsions. Élargir aussi fortement le spectre n'est alors pas une très bonne manipulation ce qui explique que nous n'ayons pas retenu cette possibilité pour la suite de nos expériences.

Quelque soit le régime choisi, on soulignera également que, bien que le gain soit non négligeable, le niveau d'énergie en sortie d'amplificateur reste trop modeste pour être exploitable dans une chaîne laser de puissance. Il est nécessaire de l'augmenter si l'on veut disposer d'un niveau d'énergie suffisant pour injecter un amplificateur de puissance. Dans ce but, nous avons conçu un schéma d'amplification composé d'un préamplificateur et d'un amplificateur de puissance, tous deux basés sur la technique OPCPA.

4.3 Deux amplificateurs paramétriques successifs

Dans cette seconde configuration, le schéma d'amplification paramétrique se compose de deux étages, un premier étage de pré-amplification dont le but est d'augmenter l'énergie des impulsions signal au niveau du microjoule sans déformation du spectre d'origine et un deuxième étage dit amplificateur de puissance prévu pour porter l'énergie à quelques dizaines de microjoules en limitant la déformation du spectre.

4.3.1 Présentation générale du schéma expérimental

Dans un tel schéma d'amplification, l'énergie du faisceau à 400 nm utilisée précédemment, à savoir 400 μJ , est insuffisante. Les expériences préliminaires que nous avons effectuées avec le pré-amplificateur OPCPA nous ont permis d'évaluer la puissance de pompe nécessaire au nouveau dispositif à une centaine de microjoule dans le nouveau pré-amplificateur et 700 μJ dans l'amplificateur de puissance. Pour atteindre ces énergies, nous avons dû modifier la chaîne laser produisant le faisceau de pompe en changeant la configuration de l'amplificateur régénératif et en augmentant la puissance de pompe dans l'amplificateur à multipassages. La figure 4.19 présente le schéma de l'expérience. Dans le tableau 4.4 sont résumées les nouvelles valeurs des puissances de pompe et des énergies pour les différents éléments du système laser. Le spectre est réduit à 2 nm dans l'étireur, pour que la durée de la pompe soit supérieure à celle du signal. La durée limitée par transformée de Fourier correspondant à ce spectre est de 470 fs .

| Élément du laser | Puissance de pompe | Énergie |
|------------------------------|---------------------|----------|
| Oscillateur (49 nm) | Milennia 4,6 W | 4 nJ |
| Ampli. régénératif (2 nm) | YLF 12,7 W | 1,2 mJ |
| Ampli. 4 passages | YLF 10 W + 16 W | 5,5 mJ |
| Compresseur | – | 2,9 mJ |
| Cristal doubleur BBO 5 mm | – | 1 mJ |

TAB. 4.4: Résumé des puissances et des énergies de la chaîne laser réalisée pour la pompe.

Les faisceaux bleus nécessaires pour pomper les deux OPA sont obtenus par doublage de fréquence dans deux cristaux de BBO placés comme indiqué sur la figure 4.20. Un

premier cristal de BBO de 5 mm de long permet de générer le faisceau de pompe de l'amplificateur de puissance à partir du faisceau infrarouge d'énergie égale à 2,9 mJ. Une lame dichroïque (MD) 400/800 (réfléchissant les longueurs d'onde situées autour de 400 nm et transmettant celles proches de 800 nm) répartit ensuite dans deux bras de propagation différents (notés I et II sur le schéma de la figure 4.20) la partie du faisceau de pompe doublée en fréquence et la partie non convertie dans le premier cristal de BBO. Un deuxième cristal de BBO, plus fin (1 mm), est placé derrière la lame dichroïque pour doubler en fréquence le faisceau infrarouge non-converti. On obtient ainsi un deuxième faisceau bleu d'énergie plus faible, environ égale à 110 μ J, suffisante pour une pré-amplification. Les deux cristaux de BBO utilisés pour générer les faisceaux à 400 nm sont tous deux taillés à l'accord de phase de type I avec un angle de 29,2°.

Les milieux utilisés pour réaliser les amplifications paramétriques sont des cristaux de BBO de 2 mm et 3 mm d'épaisseur dans le pré-amplificateur et l'amplificateur de puissance respectivement, taillés eux aussi pour l'accord de phase de type I avec un angle de 29,2°.

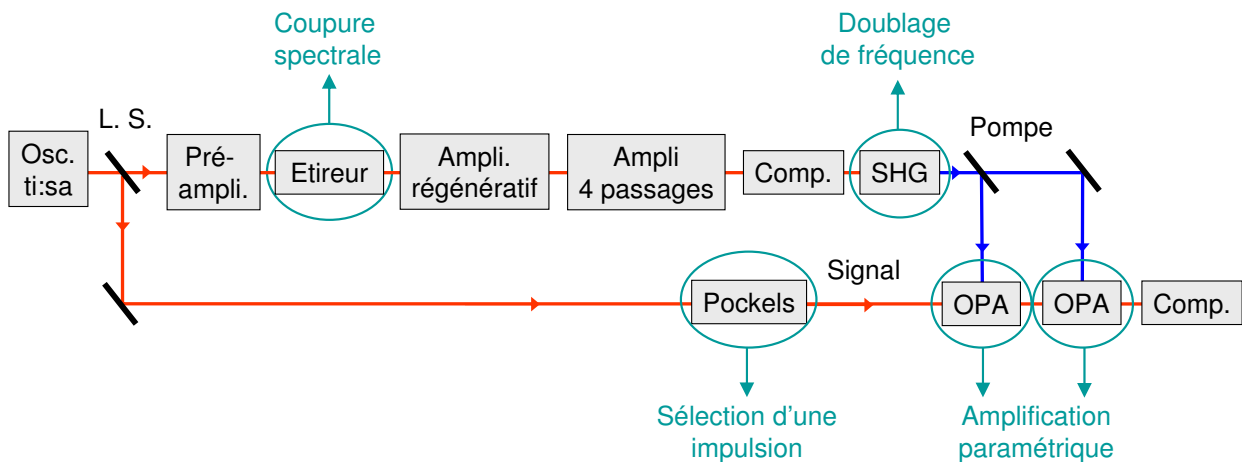


FIG. 4.19: Schéma simplifié de l'ensemble de l'expérience réalisée avec deux amplificateurs paramétriques successifs. Osc. : oscillateur, Ampli. : amplificateur, Comp. : compresseur., L.S. : lame séparatrice.

4.3.2 Pré-amplificateur OPCPA

Dans le dispositif précédent (voir la section 4.2.1), le même miroir concave focalisait le faisceau signal et le faisceau de pompe. Dans cette nouvelle configuration illustrée par le schéma de la figure 4.20, pour plus de flexibilité, deux miroirs concaves (MC) distincts sont utilisés. Le faisceau de pompe est focalisé par un miroir concave diélectrique (MC 1) de 3 m de rayon de courbure situé à 1 m du cristal de BBO. Après son passage dans la première ligne à retard (LR 1), le faisceau signal est quant à lui réfléchi sur un miroir concave diélectrique (MC 2) de rayon de courbure 2 m qui le focalise sur le cristal de BBO du préamplificateur.

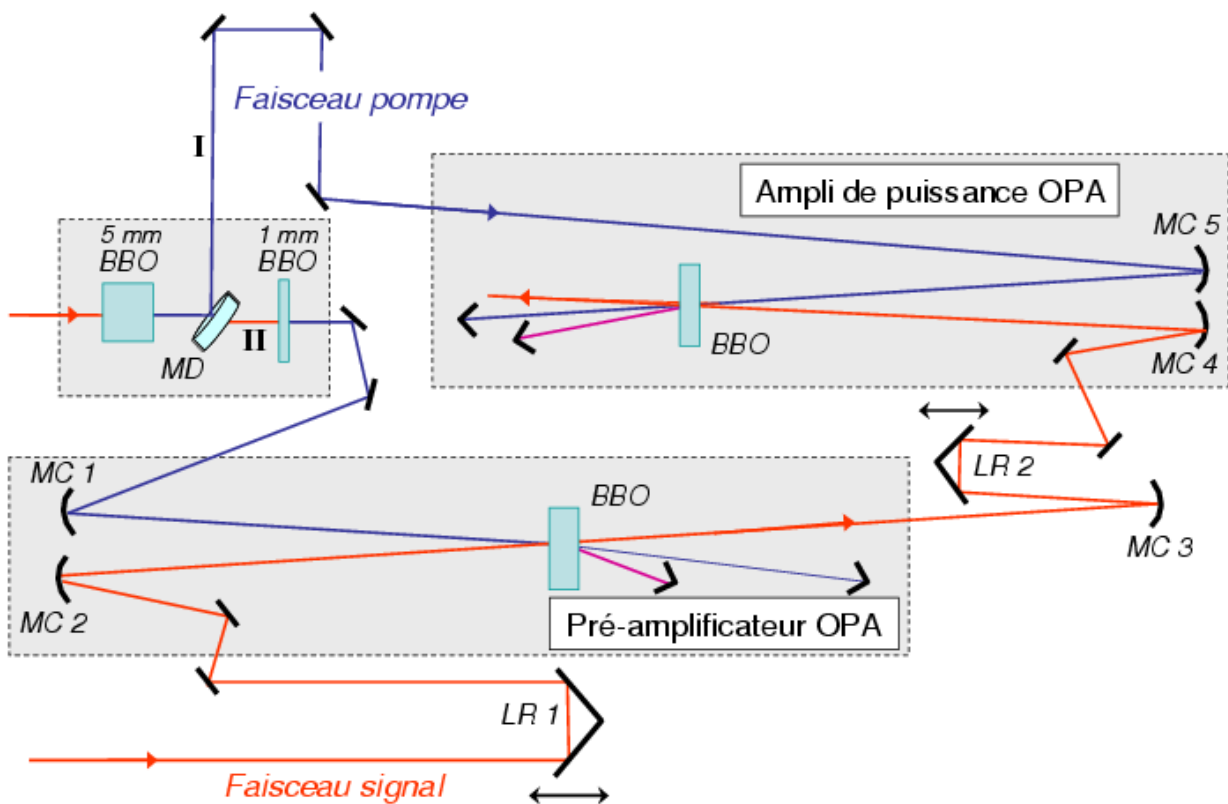


FIG. 4.20: Schéma du pré-amplificateur suivi d'un deuxième amplificateur paramétrique (MD : miroir dichroïque, MC : miroir concave, LR : ligne à retard)

La répartition d'intensité des deux faisceaux est proche de celle d'un profil gaussien. Le faisceau de pompe est asymétrique car il présente de l'astigmatisme qui n'a pas pu être corrigé. Celui-ci a pour diamètre $1.1\text{ mm} \times 400\ \mu\text{m}$ à mi-hauteur, contre $670\ \mu\text{m} \times 480\ \mu\text{m}$ à mi-hauteur pour le signal, au niveau du cristal de BBO, comme on peut le voir sur la

figure 4.21. Ces caractéristiques situent le processus d'amplification paramétrique dans un régime hors saturation, entraînant peu de déformations sur les spectres amplifiés.

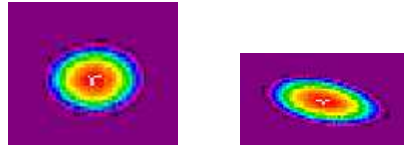


FIG. 4.21: Profils spatiaux du signal après pré-amplification (à gauche) et de la pompe (à droite) au niveau du premier cristal de BBO

Après superposition spatiale et temporelle des faisceaux pompe et signal, ce dernier est amplifié jusqu'à une énergie de $1 \mu J$ ce qui correspond à un gain de 1000 en un unique passage dans le cristal amplificateur. Comme le montre la figure 4.22, le spectre du signal après amplification dans le pré-amplificateur est semblable au spectre d'origine et sa largeur à mi-hauteur est conservée.

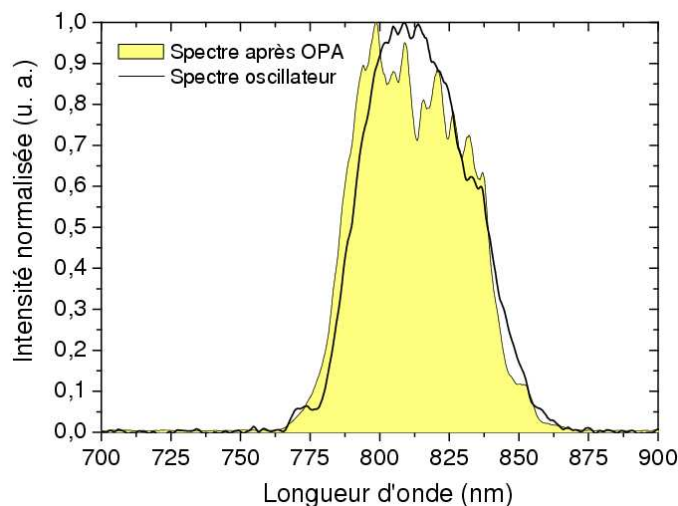


FIG. 4.22: Spectre avant (trait noir) et après (courbe pleine) amplification dans le pré-amplificateur paramétrique

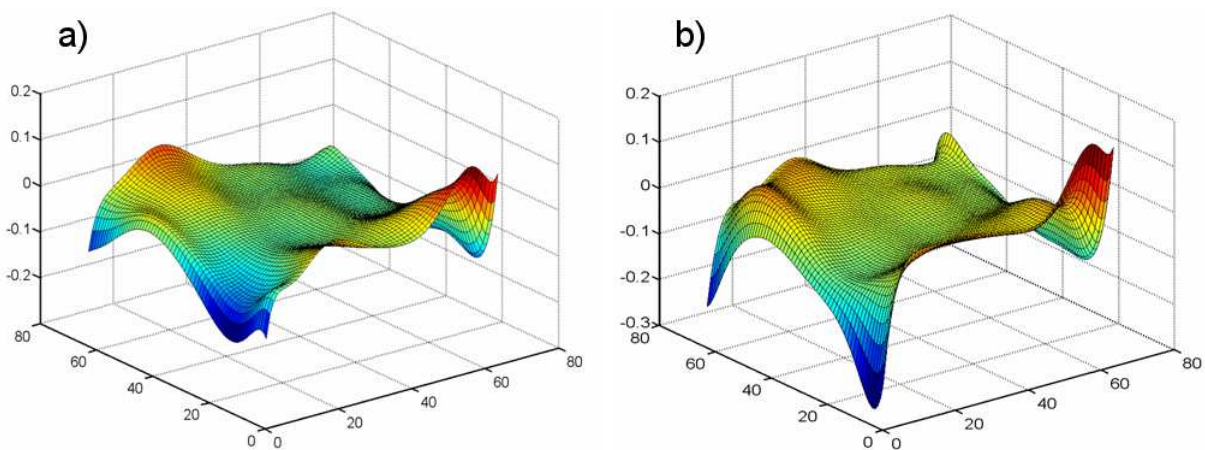


FIG. 4.23: Front d'onde du signal avant (a) et après (b) le pré-amplificateur. La phase spatiale, exprimée en μm , vaut $\lambda/5$ avant OPA et $\lambda/4$ après.

Par ailleurs, afin de s'assurer qu'il serait possible de travailler avec le faisceau amplifié pour des expériences de physique ultérieures, nous avons effectué des mesures du front d'onde du faisceau signal amplifié avec un analyseur de type Shack-Hartmann (cf. figure 4.23). Le processus d'amplification paramétrique ne détériore pas les caractéristiques spatiales du faisceau initial. En effet, la phase spatiale moyenne du faisceau à 800 nm vaut $\lambda/5$ avant amplification et est égale à $\lambda/4$ après amplification, ce qui représente une très légère diminution de la qualité du front d'onde. Pour faire cette moyenne, nous n'avons pas pris en compte les valeurs de la phase sur les bords de la figure qui sont liées à la forme carrée du détecteur. Nous nous sommes ainsi assurés que la propagation et l'imagerie du faisceau amplifié ne poseront pas de problèmes lors de sa ré-amplification dans l'amplificateur de puissance.

La propagation du faisceau complémentaire ainsi que celle du faisceau de pompe sont bloquées par une plaque absorbante située juste derrière le cristal de BBO afin d'éviter tout risque et interactions parasites qui pourraient nuire à l'expérience.

4.3.3 Deux amplificateurs paramétriques

Le faisceau signal diverge après avoir été focalisé sur le premier cristal de BBO du pré-amplificateur. Pour le re-collimer, un miroir concave (MC3) de rayon de courbure égal à 2 m est placé un mètre après le cristal. Le signal ainsi pré-amplifié et collimaté est

ensuite réfléchi vers une deuxième ligne à retard (LR 2) pour s'accorder temporellement avec le faisceau de pompe plus intense qui a été réfléchi par la lame dichroïque. Celui-ci doit parcourir un long chemin optique dans l'air avant d'être focalisé dans le deuxième amplificateur, pour effectuer la même distance que le faisceau signal.

Le rayon de courbure du miroir concave (MC5) réfléchissant le faisceau de pompe est égal à 3 m et est placé à 47 cm du cristal de BBO. Cette distance permet d'ajuster la taille de la pompe sur le deuxième cristal à une valeur adaptée pour rester en-dessous du seuil de dommage de ce dernier. Le miroir concave (MC4) réfléchissant le signal après passage dans la ligne à retard est situé à un mètre du cristal et possède un rayon de courbure égal à 2 m .

Les faisceaux pompe et signal ont un profil proche d'un profil gaussien au niveau du cristal, comme l'illustre la figure 4.24. Les faisceaux sont plus gros que sur le premier cristal ($2\text{ mm} \times 1,5\text{ mm}$ de diamètre pour la pompe et 1 mm pour le signal), afin de réduire la densité de puissance pour ne pas détériorer le cristal de BBO.

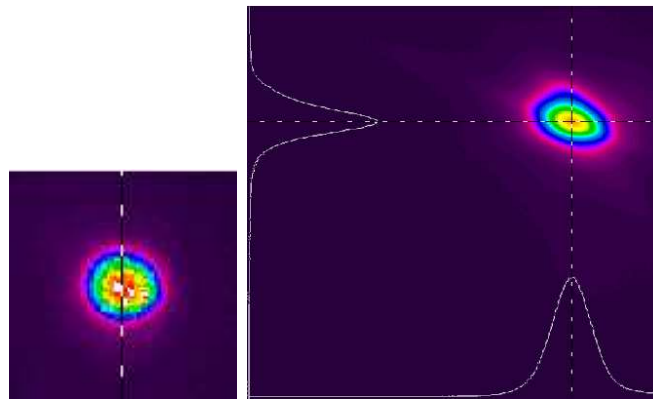


FIG. 4.24: Profils spatiaux du signal (à gauche) et de la pompe (à droite) sur le cristal de l'amplificateur de puissance

On ajuste le délai entre les deux faisceaux en translatant la ligne à retard et on superpose les faisceaux sur le cristal de BBO. Le signal est de nouveau amplifié et un nouveau faisceau complémentaire est créé. Comme dans le pré-amplificateur, complémentaire et pompe sont bloqués par des plaques absorbantes situées derrière le deuxième cristal de BBO. Après passage dans les deux amplificateurs, le signal est amplifié jusqu'à un énergie de $49\ \mu\text{J}$, soit un gain total de $4,9 \cdot 10^4$. Notons ici que le gain n'est pas très élevé, malgré la quantité d'énergie de pompe dont nous disposons pour effectuer cette deuxième ampli-

fication. Nous pensons que ceci est dû à la mauvaise adaptation de la taille des faisceaux. En effet, pour éviter les dommages sur le deuxième cristal de BBO, nous avons augmenté la taille du faisceau de pompe. Le faisceau du signal est alors deux fois plus petit que la pompe, et une grande partie de son énergie n'est pas utilisée pendant l'amplification.

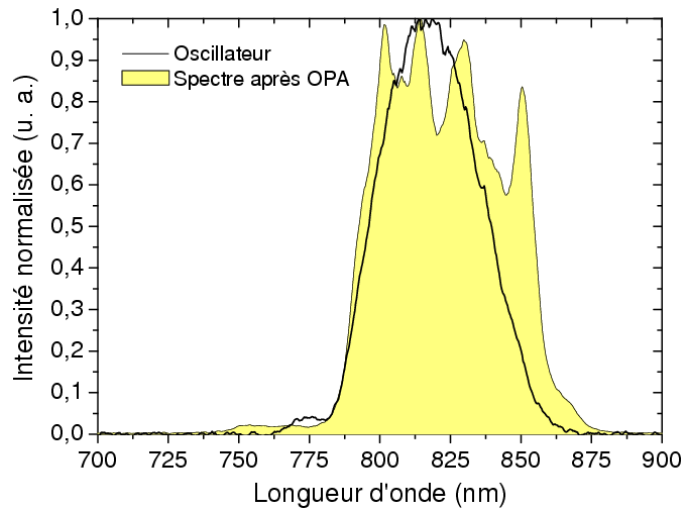


FIG. 4.25: Spectre avant (trait noir) et après (courbe pleine) amplification dans les deux amplificateurs paramétriques

Comme nous avons travaillé proche de la saturation, le spectre du signal amplifié est légèrement modulé, ce qui conduit à une augmentation de la largeur spectrale, comme le montre l'exemple de la figure 4.25 dans laquelle l'oscillateur a pour largeur spectrale 44 nm et le spectre amplifié 63 nm , ce qui correspond à un élargissement de 19 nm . Les modulations sont cependant d'un niveau suffisamment raisonnable pour ne pas influencer le contraste temporel.

On peut rapprocher la forme du spectre d'un profil supergaussien d'ordre 6 qui donne une durée recomprimée d'une vingtaine de femtosecondes, ce qui est très proche de la durée initiale des impulsions générées par l'oscillateur. Nous avons calculé la transformée de Fourier inverse du spectre obtenu après amplification pour définir la durée temporelle théorique du signal amplifié et l'avons ainsi comparé avec une impulsion de forme spectrale supergaussienne d'ordre 6. Les résultats indiqués dans la figure 4.26 ($I(t)$, au centre) montrent des durées très proches l'une de l'autre, égales à $18,47 \text{ fs}$ dans le cas de la supergaussienne et $22,73 \text{ fs}$ dans le cas de notre signal. Nous avons également calculé les autocorrélations pour les deux formes spectrales. Les durées calculées diffèrent de seulement 2 fs . Cependant, il faut souligner que les modulations du spectre OPA ne sont

pas négligeables et créeront des modulations temporelles après recompression.

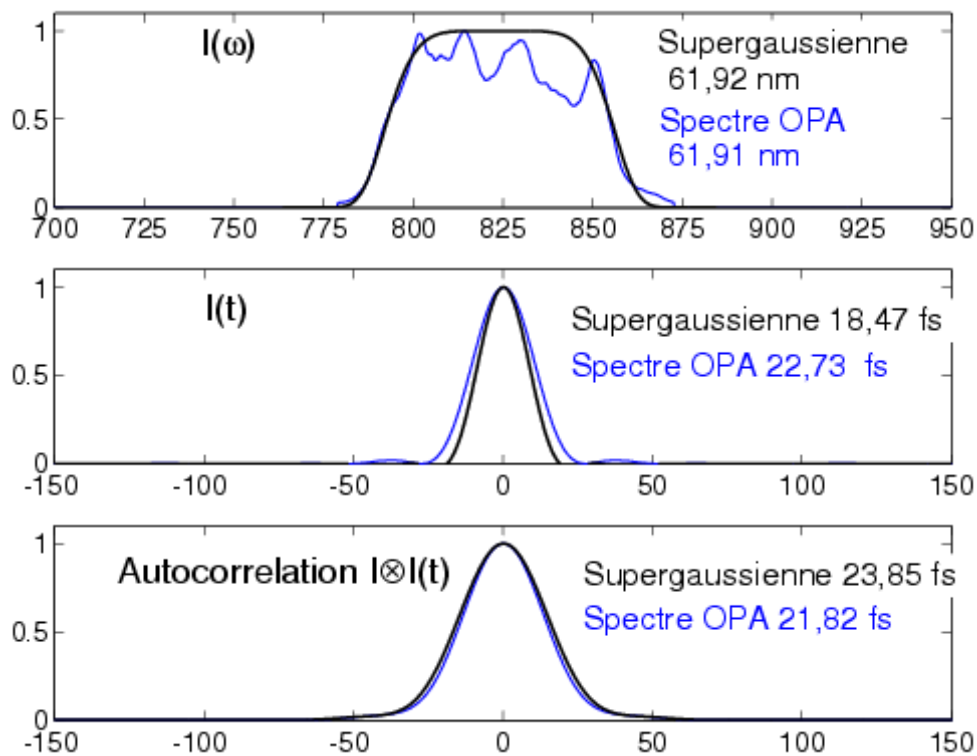


FIG. 4.26: Comparaison de la TF d'une supergaussienne d'ordre 6 avec le spectre du signal amplifié

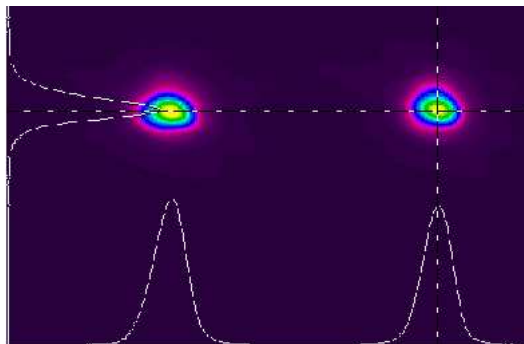


FIG. 4.27: Profils spatiaux du faisceau complémentaire (à gauche) et du faisceau signal (à droite) après l'amplificateur de puissance

Les mesures de profil spatial du faisceau après amplification montrent que celui-ci est bien conservé (cf. figure 4.27) comme dans le cas d'un seul amplificateur OPA. Le second

profil spatial à gauche de la figure correspond à celui du faisceau complémentaire généré au cours de l'amplification.

4.3.4 Conclusion

Les expériences d'amplification paramétriques réalisées avec un amplificateur de puissance précédé d'un pré-amplificateur nous ont permis d'atteindre un gain global plus important et de multiplier par 50000 l'énergie du signal étiré incident, jusqu'à $50 \mu J$. Nous avons pu constater que le spectre était toujours conservé et que le profil spatial du faisceau signal était de très bonne qualité. Les mesures de front d'onde ont montré que la phase spatiale n'était pas détériorée par le processus d'amplification paramétrique. Le niveau d'énergie est certes plus important mais n'est encore pas suffisant. Pour atteindre quelques centaines de microJoules afin de valider l'utilisation de l'amplification paramétrique pour l'injection des chaîne laser de puissance, nous avons réalisé un système hybride combinant les technologies OPCPA et titane saphir. Ce système est décrit dans le chapitre suivant.

4.4 OPCPA Hybride

Le dispositif précédent ne fournit pas suffisamment d'énergie pour être utilisé comme un pré-amplificateur dans une chaîne laser de puissance. L'énergie minimale nécessaire doit être de quelques centaines de μJ . De plus, son efficacité par rapport à la puissance des lasers de pompe Nd :YLF est faible. Pour augmenter l'énergie, nous avons réalisé un dispositif d'amplification hybride composé d'un seul amplificateur OPA suivi d'un amplificateur à 4 passages dans lequel le milieu à gain est un cristal de saphir dopé titane (cf. figure 4.28).

Un tel système hybride tire ainsi profit des avantages des deux techniques d'amplification, d'un côté le gain élevé présent sur une large gamme de longueurs d'onde obtenu par interaction paramétrique en un seul passage dans un cristal non linéaire, et de l'autre côté, la grande bande passante qu'un amplificateur basé sur la technologie saphir dopé au titane permet d'obtenir dans le cas d'un gain relativement faible.

Le système expérimental constituant le faisceau de pompe de l'amplificateur paramétrique n'étant que très légèrement modifié par rapport aux dispositifs déjà présentés, celui-ci est exposé rapidement dans une première partie. Les modifications principales concernent l'utilisation de réseaux de diffraction possédant un nombre de traits par millimètre plus élevé et la mise en place d'un filtre acousto-optique à dispersion programmable (AOPDF) sur la voie du faisceau signal. Après une deuxième partie présentant les spectres et les énergies des impulsions amplifiées par ce système hybride, la troisième partie de cette section est ainsi consacrée à la description de cet élément et de son utilisation dans le cadre de nos expériences. Enfin, la re-compression temporelle des impulsions par un système de prismes est présentée, ainsi que sa mesure effectuée avec un interféromètre spectral ("Spider").

4.4.1 Dispositif

La chaîne laser permettant la génération du faisceau de pompe de l'OPA est semblable à celle réalisée dans les expériences précédentes. En effet, elle est toujours constituée d'un oscillateur, d'un pré-amplificateur femtoseconde, d'un étireur à réseau, d'un amplificateur régénératif, d'un amplificateur à quatre passages et d'un compresseur à réseaux. Cependant, les réseaux de diffraction de l'étireur et du compresseur ont désormais 2200 tr/mm . Ce nouveau système d'étirement/compression, présenté dans la section 4.1, nous permet

de réduire le spectre de la pompe à une largeur de $1,5 \text{ nm}$ sans créer de dommage optique dans la cellule de Pockels de l'amplificateur régénératif, car le coefficient d'étirement est élevé ($21,5 \cdot 10^6 \text{ fs}^2$). La durée des impulsions correspondantes est ainsi égale à 630 fs . Par ailleurs, les puissances de pompe des amplificateurs régénératif et à multipassages sont diminuées. Leurs valeurs ainsi que celles des énergies obtenues en différents niveaux de la chaîne laser sont résumées dans le tableau 4.5 ci-dessous.

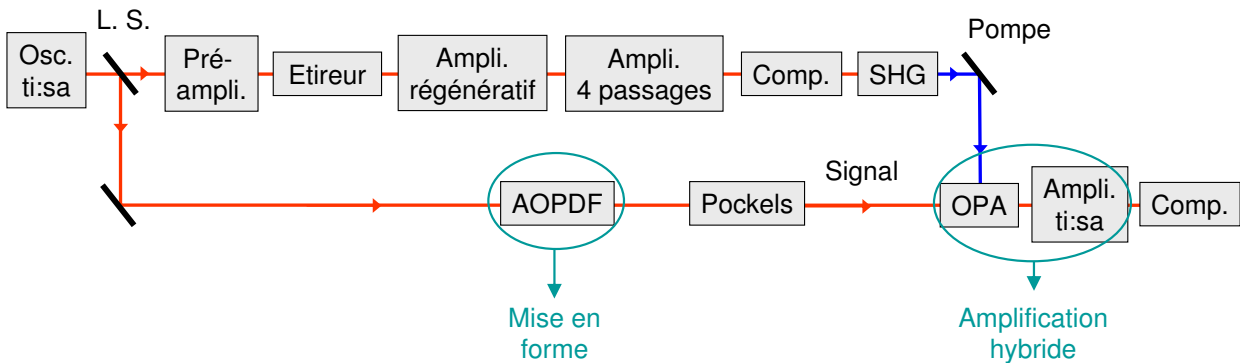


FIG. 4.28: Schéma simplifié de l'ensemble de l'expérience réalisée avec l'amplificateur hybride. Osc. : oscillateur, Ampli. : amplificateur, Comp. : compresseur., L.S. : lame séparatrice.

| Élément du laser | Puissance de pompe | Énergie |
|---|--------------------|-------------------|
| Oscillateur (60 nm) | Milennia 4,6 W | 4 nJ |
| Ampli. régénératif ($1,5 \text{ nm}$) | YLF 12,2 W | 1 mJ injecté |
| Ampli. 4 passages | YLF 16 W | 2,35 mJ |
| Compresseur | – | 1,1 mJ |
| Cristal doubleur BBO 5 mm | – | $470 \mu\text{J}$ |

TAB. 4.5: Résumé des puissances et des énergies de la chaîne laser réalisée pour la pompe.

Pour effectuer le doublage de fréquence du faisceau signal, on utilise de nouveau un cristal de BBO type I de 5 mm de long taillé à un angle de $29,2^\circ$. L'efficacité de doublage dans cette configuration est plus élevée qu'auparavant et vaut 43%. La perte d'énergie en sortie de la chaîne laser due à une puissance de pompe plus faible dans l'amplificateur

multipassages est ainsi compensée.

Le dispositif d'amplification du signal provenant de l'oscillateur est présenté dans la figure 4.29. L'amplificateur paramétrique est constitué d'un seul cristal de BBO, de 3 mm d'épaisseur, taillé pour un accord de phase de type I à un angle de $29,2^\circ$, comme auparavant. Les miroirs concaves (MC1) et (MC2) sont les mêmes que précédemment et ont pour rayon de courbure 3 m et 2 m respectivement. Le cristal est placé à 1 m de ces miroirs, au point focal du miroir (MC2) réfléchissant le faisceau infrarouge à amplifier. Après amplification paramétrique, le signal est envoyé dans un amplificateur conventionnel où le milieu à gain est un cristal de saphir dopé au titane de 10 mm d'épaisseur. Le faisceau, pompé par le second harmonique d'un laser Nd :YLF de 10 Watts de puissance, effectue 4 passages dans le cristal avant d'être re-comprimé temporellement.

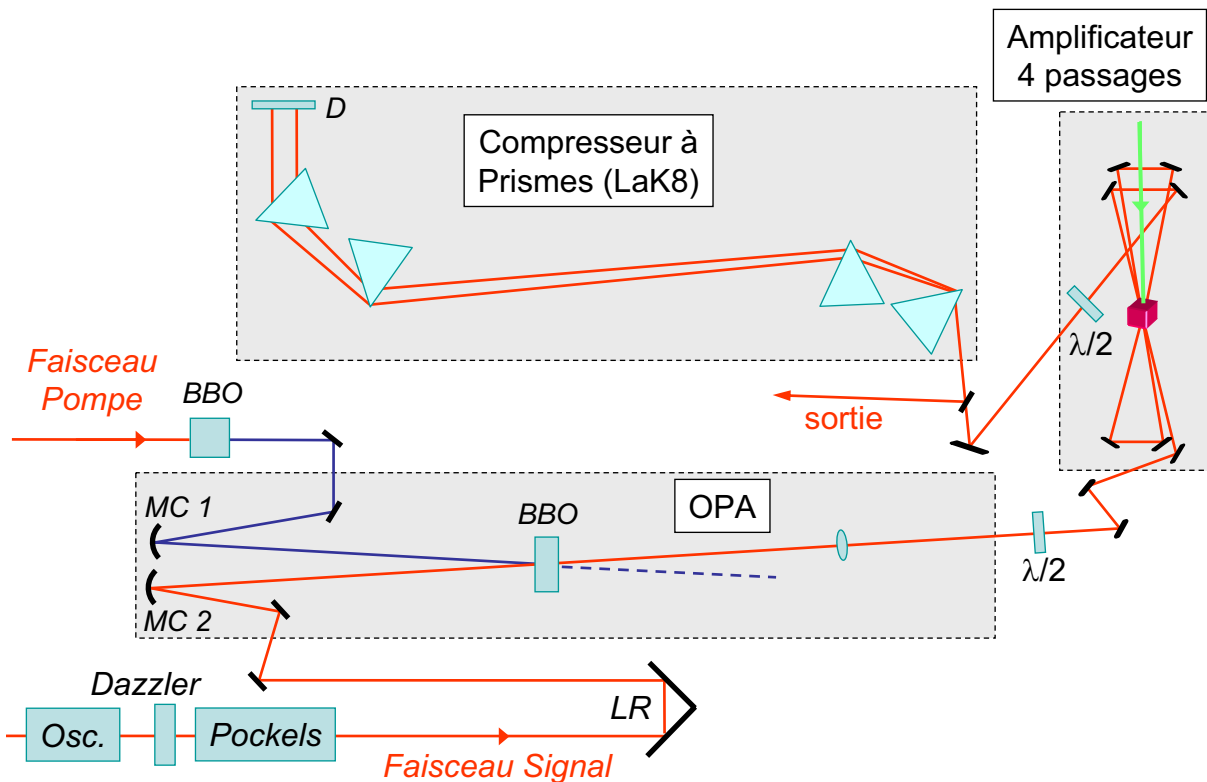


FIG. 4.29: Dispositif expérimental du système d'amplification hybride OPCPA + CPA

Le compresseur est un système à 4 prismes en LaK8 utilisé en double passage grâce à un dièdre (noté D sur le schéma). Ce type de compresseur a été présenté dans le premier chapitre. Le choix du matériau constituant les prismes et de leur nombre s'est fait en fonction des conclusions présentées dans la section 1.5.2 (compresseur à prismes). Un filtre

AOPDF est installé sur la voie du faisceau signal afin de corriger les déficits de phase du système de prismes pour la re-compression des impulsions, comme nous le verrons par la suite. La démonstration de la re-compression d'impulsions femtosecondes avec un Dazzler a été faite par Verluise *et al.* [76] en 2000.

4.4.2 Spectres et énergies obtenues

L'énergie de pompe nécessaire à une amplification paramétrique sans saturation est inférieure à l'énergie disponible après doublage de fréquence. Nous avons ainsi utilisé seulement $400 \mu J$ du faisceau bleu pour pomper l'OPA. L'énergie des impulsions amplifiées vaut alors $35 \mu J$, ce qui représente une efficacité de 9%, la plus importante que nous ayons atteint. Cette meilleure efficacité est due au meilleur accord temporel entre le signal et la pompe. Le faisceau est ensuite amplifié jusqu'à $300 \mu J$ dans l'amplificateur multipassages où il effectue 4 passages dans le cristal de titane saphir.

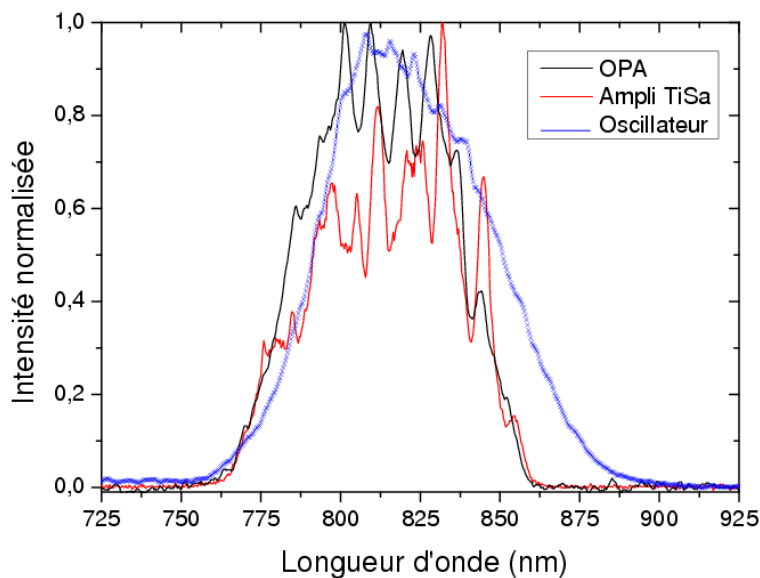


FIG. 4.30: Comparaison du spectre de l'oscillateur avec les spectres obtenus derrière l'OPA et derrière l'amplificateur à 4 passages

Le spectre des impulsions générées par l'oscillateur est gaussien, centré à la longueur d'onde de 820 nm et possède une largeur à mi-hauteur de 60 nm . En ajustant les différents ordres de phase spectrale du Dazzler, le spectre initial est conservé après son passage dans le système d'amplification composé de l'OPA et du multipass. En effet, un trou inséré dans le spectre à la longueur d'onde de 775 nm sur une largeur de 58 nm avec le

logiciel du Dazzler permet de compenser le rétrécissement spectral dans l'amplificateur multipassages.

Les spectres mesurés en sortie de l'oscillateur, de l'OPA et du multipass sont représentés dans la figure 4.30. Le spectre des impulsions amplifiées possède une largeur à mi-hauteur de 55 *nm* derrière chacun des amplificateurs. Le spectre mesuré derrière l'ensemble constitué de l'OPA et du multipass est décalé de 8 *nm* vers les longueurs d'onde infrarouges par rapport au spectre mesuré derrière l'OPA seul.

4.4.3 Compression des impulsions amplifiées

4.4.3.1 Le Dazzler

Pour re-comprimer efficacement une impulsion, il est préférable d'avoir un contrôle actif de la phase, par l'intermédiaire d'un filtre acousto-optique programmable par exemple. Nous avons utilisé un "DazzlerTM" développé par la société Fastlite. Ce filtre linéaire a été inventé par Pierre Tournois [77] en 1997 et fut ensuite développé par Verluise *et al.*

Le fonctionnement d'un AOPDF est basé sur l'interaction colinéaire entre une onde acoustique générée dans un cristal de T_eO_2 et une onde optique. L'impulsion optique incidente est polarisée suivant l'axe ordinaire du cristal et l'interaction entre les deux ondes est longitudinale, c'est-à-dire que l'onde acoustique se propage dans la même direction que l'onde optique [78]. L'onde acoustique crée un réseau qui diffracte la fréquence ω de l'onde optique qui est en accord de phase avec l'onde acoustique, en une position $z(\omega)$. L'impulsion sortant du dispositif est constituée de l'ensemble des composantes spectrales qui ont été diffractées en différentes positions. Le principe de fonctionnement d'un AOPDF est indiqué dans la figure 4.31.

Les modulations en amplitude de l'onde acoustique crée des modulations dans le spectre de l'onde optique. La fréquence de modulation de l'onde acoustique crée des modulations de la phase spectrale. On peut introduire des termes de dispersion d'ordre 2, 3 et 4 dans le logiciel du Dazzler qui permettent de mettre en forme le spectre du signal à amplifier.

4.4.3.2 Compression

Nous avons utilisé une nouvelle génération de DAZZLER large bande. Il permet de contrôler l'amplitude et la phase du spectre incident sur une bande spectrale qui peut

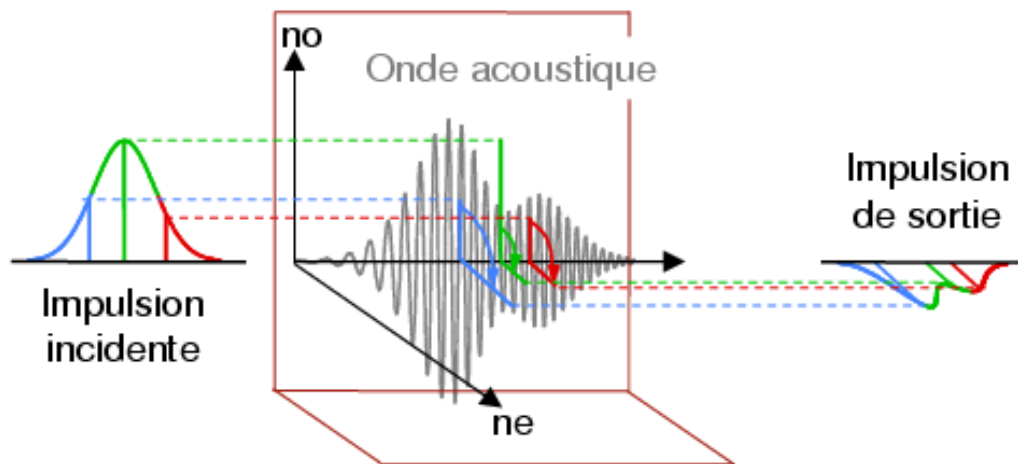


FIG. 4.31: Principe de fonctionnement du filtre acousto-optique dispersif programmable "DazzlerTM"

s'étendre jusqu'à 350 nm , avec une efficacité de diffraction plus importante qu'avec les modèles précédents égale à 40% [22]. Nous avons installé ce dispositif sur le chemin de propagation du faisceau signal, avant amplification paramétrique. Pour re-comprimer efficacement les impulsions, il faut tenir compte de la dispersion des matériaux traversés par le faisceau, y compris celle du matériau constituant le Dazzler. Le logiciel du Dazzler permet d'auto-compenser cette dispersion interne. Le calcul de dispersion, déjà effectué dans la section 1.5.2, donne les valeurs suivantes pour les ordres deux et trois de la phase spectrale :

| | Matériau Dazzler | Autres matériaux | BBO + Ti : Sa | Total |
|-------------------|---------------------|---------------------|------------------|-------|
| $\varphi^2(fs^2)$ | +12172 compensés | 2838 | 2545 | 5383 |
| $\varphi^3(fs^3)$ | +7979 compensés | 2122 | 1852 | 3974 |

TAB. 4.6: Résumé des différentes dispersions intervenant sur le trajet du signal. Par "autres matériaux" nous entendons la cellule de Pockels, les polariseurs, les lentilles et les lames d'onde.

L'optimisation de la compression temporelle n'a pas pu se faire en ajustant les paramètres du Dazzler en temps réel, en raison des instabilités du faisceau amplifié. Nous avons

donc choisi de maximiser la largeur spectrale des impulsions en sortie de l'amplificateur à multipassages en agissant sur les termes de dispersion du deuxième et du troisième ordres introduits par le Dazzler. En agissant ainsi, étant donnée la relation entre le spectre et la forme temporelle, on minimise la durée des impulsions après passage dans les prismes. D'autre part, on améliore également l'accord temporel entre le signal et la pompe, ce qui permet d'amplifier la totalité du spectre signal.

La distance entre les prismes centraux du compresseur est de 900 mm et la distance séparant deux prismes du même paire est de 100 mm . Nous avons optimisé la compression en faisant varier la distance entre les prismes internes. La forme temporelle mesurée avec le Spider est indiquée dans la figure 4.32 et possède une largeur à mi-hauteur de 35 fs . Le profil de la phase restant après compression est quant à lui indiqué en figure 4.33, ainsi que le spectre infrarouge correspondant. L'énergie des impulsions ainsi re-comprimée est égale à $150\text{ }\mu\text{J}$.

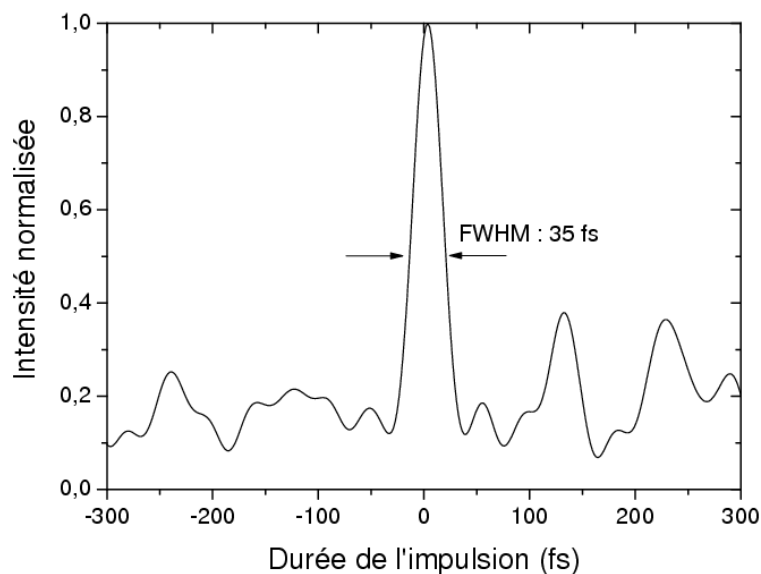


FIG. 4.32: Intensité Spider après recompression par les prismes

La forme de la phase restant après compression correspond à une dispersion du troisième ordre. Elle est due à la dispersion introduite par les prismes en LaK8 eux-mêmes et que le Dazzler n'a pas pu compenser. Elle s'étend de -30 radians à $+30\text{ radians}$ sur la zone spectrale correspondant au signal amplifié et est comprise entre -7 rad à 12 rad sur la partie centrale du spectre. Il s'agit des valeurs les plus faibles que nous ayons mesurées.

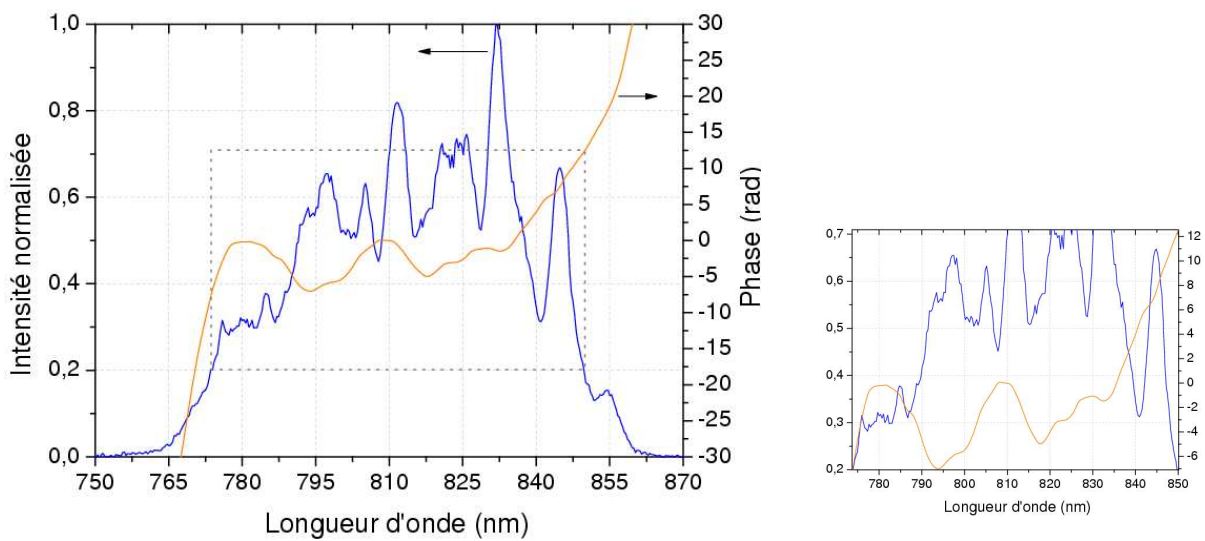


FIG. 4.33: Spectre du signal amplifié par l'OPCA et l'amplificateur 4 passages après recompression par les prismes et profil de phase restant après compression. A droite, zoom sur la partie centrale du spectre.

4.4.4 Conclusion

Nous avons démontré que ce système d'amplification hybride permet d'obtenir une énergie plus importante que les systèmes utilisant uniquement l'amplification paramétrique. La largeur spectrale des impulsions obtenue en sortie d'amplificateur paramétrique peut être conservée dans l'amplificateur titane saphir, grâce à un filtre à dispersion programmable qui compense le rétrécissement par le gain pouvant intervenir dans celui-ci. La re-compression des impulsions autour de leur durée initiale montre que la phase spectrale peut être compensée.

Afin de mieux comprimer les impulsions amplifiées par ce dispositif hybride, en réduisant notamment le troisième ordre de dispersion restant après compression, il faudrait utiliser des miroirs possédant une dispersion du troisième ordre compensant celle introduite par les prismes en LaK8 [71].

Afin de vérifier si un tel système d'amplification pouvait être utilisé avec des impulsions plus courtes, j'ai modifié la position des prismes de l'oscillateur et augmenter sa largeur à mi-hauteur jusqu'à 86 *nm*. La figure 4.34 montre l'évolution du spectre au cours de son passage dans l'OPCA et dans l'amplificateur à multipassages. En faisant varier les

paramètres du Dazzler, j'ai pu amplifier le signal sur une largeur de 71 nm . Cette mesure laisse penser qu'il serait possible d'obtenir des impulsions plus courtes que 35 fs avec ce dispositif.

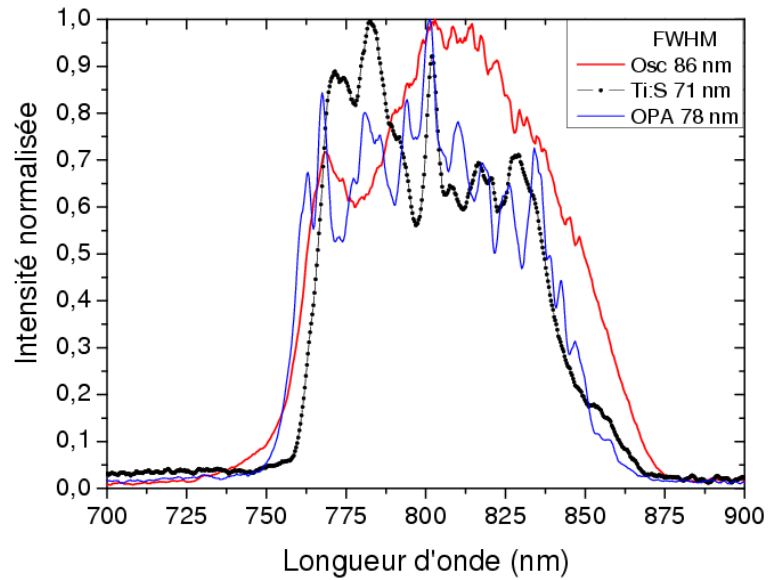


FIG. 4.34: Comparaison du spectre de l'oscillateur large bande avec les spectres obtenus derrière l'OPA et l'amplificateur à 4 passages

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

L'amplification paramétrique d'impulsions à dérive de fréquence est une technique prometteuse qui permet de générer des impulsions courtes énergétiques. La réalisation de différents systèmes d'amplification paramétrique m'a permis d'étudier la possibilité de l'utiliser en tant que pré-amplificateur pour des chaînes laser de puissance.

Le premier dispositif, un OPCPA non dégénéré et non colinéaire pompé par un laser commercial fonctionnant à 20 Hz , m'a permis de mettre en évidence la nécessité d'une grande qualité spatiale et temporelle du faisceau de pompe pour obtenir des impulsions amplifiées stables et propres. D'une part, les modulations temporelles du faisceau de pompe entraînent des modulations spectrales du faisceau amplifié ainsi que des instabilités en énergie tir à tir. D'autre part, la gigue temporelle interne de la pompe réduit l'efficacité de l'amplification si elle est trop importante par rapport à la durée des impulsions. La présence de sur-intensités dans le profil spatial de la pompe réduit elle aussi l'efficacité de l'amplification et la rend instable. Enfin, le réglage expérimental de l'angle de non-colinéarité est très critique dans ce type de configuration et la largeur du spectre amplifié peut être fortement réduite dans le cas d'un angle mal adapté. Pour toutes ces raisons, les expériences n'ont pas été prolongées avec ce dispositif d'amplification.

Le deuxième dispositif d'amplification paramétrique est semblable à un système NOPA, à ceci près que le faisceau signal ne provient pas d'un continuum de lumière blanche, mais d'un oscillateur étiré temporellement. Lors de l'amplification paramétrique, les effets de la saturation sur le comportement du spectre amplifié ont été observés. En particulier, cette technique permet de conserver le spectre initial lors de la phase d'amplification,

voire de l'élargir plus ou moins fortement en cas de saturation. Nous avons ainsi amplifié des spectres de largeur égale à 60 nm et obtenu un élargissement jusqu'à 120 nm .

Un programme de simulation numérique a par ailleurs été développé et appliqué au cas d'un OPCPA fonctionnant dans un régime de pompe non dépeuplée afin de le paramétrer et de calculer la forme du spectre amplifié correspondante. Les spectres calculés s'accordent bien aux spectres mesurés. Ce programme permet par ailleurs de calculer l'angle d'accord de phase, l'angle à insérer entre le signal et la pompe, les courbes de gain et de phase d'un amplificateur paramétrique. Le gain paramétrique atteint avec ce dispositif est de 10^5 dans des cristaux non linéaires de BBO longs de quelques millimètres seulement utilisés en un seul passage, avec une intégrale B 10 fois plus faible que pour un laser CPA traditionnel. D'autre part, les mesures de front d'onde ont montré que la phase spatiale du faisceau amplifié n'était pas détériorée par le processus d'amplification paramétrique. Les informations apportées par ce système nous ont permis de valider le fonctionnement d'un amplificateur paramétrique OPCPA-NOPA en régime quasi-dégénéré avec un faisceau de pompe de longueur d'onde égale à 400 nm . Cependant, l'énergie transférée aux impulsions ($50 \mu\text{J}$) n'est pas suffisante pour l'injection d'une chaîne laser de puissance, c'est ce qui explique que nous n'ayons pas poursuivi dans cette voie.

Le troisième dispositif m'as permis de réaliser une source infrarouge produisant des impulsions de $150 \mu\text{J}$ d'énergie et de durée égale à 35 fs en utilisant un amplificateur hybride constitué d'un amplificateur paramétrique utilisant un cristal non linéaire de BBO et d'un amplificateur à multipassages utilisant un cristal de titane saphir. La compression des impulsions est réalisée grâce à une ligne à prismes en LaK8 et un filtre acousto-optique à dispersion programmable (DAZZLER).

Le Dazzler permet de conserver le spectre pendant toute la phase d'amplification, en pré-compensant le rétrécissement par le gain qui intervient dans l'amplificateur à multipassages par l'application d'une courbe spectrale avec un trou.

Ce système d'amplification hybride permet d'obtenir une énergie plus importante qu'avec les systèmes utilisant uniquement l'amplification paramétrique, tout en conservant le spectre des impulsions initiales. Il s'agit ainsi du dispositif le plus adapté à la pré-amplification de systèmes laser intenses. Par contre, afin d'utiliser cette source, il est nécessaire d'améliorer certains paramètres. En effet, l'intérêt de ce dispositif est limité par la complexité du laser de pompe générant les impulsions à 400 nm .

Dans l'optique d'utiliser un jour ce genre d'amplificateur pour injecter une chaîne laser de puissance, il serait intéressant d'utiliser un système plus compact et plus stable pour la réalisation du faisceau de pompe intense, afin d'obtenir une amplification plus efficace. En particulier, il existe des amplificateurs régénératifs commerciaux [24] générant des impulsions d'une durée de plusieurs picosecondes directement à partir d'un oscillateur femtoseconde, ce qui évite d'avoir recours à la méthode de réduction du spectre que j'ai utilisé dans mes expériences, fortement consommatrice d'énergie de pompe.

L'intérêt des amplificateurs paramétriques tels que celui présenté dans les deux derniers dispositifs est sa capacité à conserver la phase des impulsions générées par un oscillateur à modes bloqués en phase. Ainsi, le décalage de phase existant entre la porteuse du champ électromagnétique et son enveloppe peut être conservé tout au long de l'amplification paramétrique, ce qui est très important pour l'utilisation des impulsions dans la génération d'harmoniques d'ordre élevés et dans le cas d'impulsions ultra-courtes. Il est envisagé de remplacer l'oscillateur utilisé pendant ce travail de thèse par un oscillateur commercial stabilisé en phase, de durée égale à 10 *fs* afin d'utiliser le faisceau pour générer des impulsions de durée attoseconde (10^{-18} s).

Annexe A

Effet non linéaire en cascade

Les effets que je présente ici sont parasites pour l'amplification paramétrique. Ils en diminuent l'efficacité en apparaissant en même temps ou en se substituant à celle-ci.

A.1 Mélange de fréquences en cascade

L'effet de mélange de fréquences en cascade est une conséquence de l'interaction entre le signal et le complémentaire lors du processus d'amplification paramétrique [79].

En effet, en se propageant dans le cristal le signal de fréquence ω_s génère une onde à la fréquence double $2\omega_s$, si l'angle d'accord de phase du cristal permet la génération de seconde harmonique, c'est-à-dire si les angles d'accord de phase pour l'amplification paramétrique et la génération de second harmonique sont très proches (c'est le cas dans l'exemple que nous décrivons ici, puisque l'angle $\theta = 29,2^\circ$ optimise à la fois le doublage de fréquence et l'OPA dans un cristal de BBO). Le second harmonique va interagir avec le complémentaire de fréquence ω_c , en produisant une onde à la fréquence $\omega_{s1} = 2\omega_s - \omega_c$. Cette onde est alors amplifiée par la pompe et crée un complémentaire à la fréquence $\omega_{c1} = \omega_p - \omega_{s1}$. Le processus se répète ensuite avec $\omega_{s2} = 2\omega_{s1} - \omega_c$ et $\omega_{c2} = \omega_p - \omega_{s2}$, et ainsi de suite tant que les nouvelles longueurs d'onde restent comprises dans la bande d'amplification du cristal.

A.2 Observations

J'ai observé ce phénomène dans la phase d'alignement de mes amplificateurs paramétriques dans le cas quasi dégénéré quasi colinéaire utilisant un cristal de BBO (cf. chapitre 4). L'angle entre le signal et la pompe était faible (inférieur à 1°) et l'intensité de pompe élevée. Étant donné que le système n'est pas totalement dégénéré, les longueurs d'onde signal et complémentaire sont différentes et les nouvelles fréquences générées par le processus de mélange de fréquences en cascade sont différentes de part et d'autre de la direction de propagation de la pompe.

Voici résumé ci-dessous les nouvelles fréquences générées, avec leur correspondance en longueur d'onde et couleur.

| Fréquences générées | Longueur d'onde (nm) | Couleur |
|---|----------------------|-------------------|
| ω_s | 810 | proche Infrarouge |
| $\omega_{s1} = 2\omega_s - \omega_c$ | 831 | proche Infrarouge |
| $\omega_{s2} = 2\omega_{s1} - \omega_c$ | 876.5 | proche Infrarouge |
| $\omega_{s3} = 2\omega_{s2} - \omega_c$ | 984.3 | proche Infrarouge |
| $\omega_{s4} = 2\omega_{s3} - \omega_c$ | 1305.5 | proche Infrarouge |
| $\omega_c = \omega_p - \omega_s$ | 790 | proche Infrarouge |
| $\omega_{c1} = \omega_p - \omega_{s1}$ | 771.2 | Rouge |
| $\omega_{c2} = \omega_p - \omega_{s2}$ | 735.8 | Rouge |
| $\omega_{c3} = \omega_p - \omega_{s3}$ | 673.8 | Rouge |
| $\omega_{c4} = \omega_p - \omega_{s4}$ | 576.7 | Jaune |
| $\omega_{c5} = \omega_p - \omega_{s5}$ | 447.7 | Indigo |

TAB. A.1: Nouvelles fréquences générées dans l'expérience $810 + 790 = 400nm$

La figure A.1 donne la direction des différents faisceaux générés de part et d'autre de la direction de la pompe notée p et tracée en bleu sur le schéma. En tenant compte du fait que dans mes expériences $\lambda_s > \lambda_c$, on a $\|\vec{k}_s\| < \|\vec{k}_c\|$. Les rayons sont alors plus diffractés du côté des longueurs d'onde complémentaires, comme cela est représenté sur la figure A.2, où j'ai tracé les vecteurs d'onde à l'aide d'une grille.

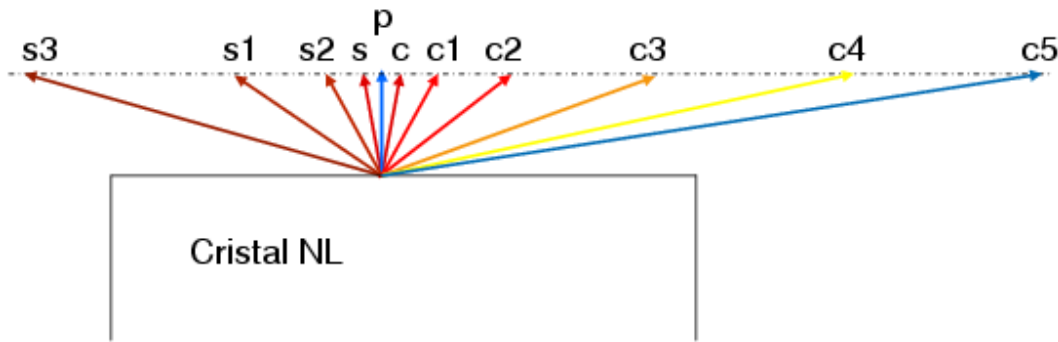


FIG. A.1: Direction des faisceaux générés par effet de cascade

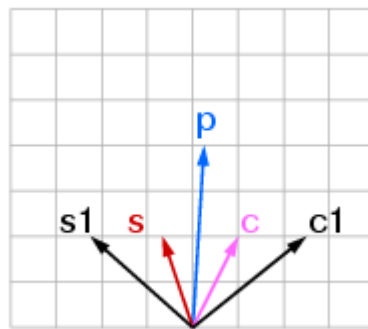


FIG. A.2: Tracé géométrique des vecteurs d'onde signal, pompe, complémentaire et diffractés.

Ce processus d'effets non linéaires en cascade qui apparaît lorsque le signal et la pompe interagissent dans le cristal non linéaire de BBO entraîne un phénomène d'auto-diffraction des faisceaux signal, complémentaire et pompe. Une description théorique de cet effet a été faite par Danielius *et al.* [80] en 1993.

Bien que ce phénomène puisse être utile à la génération de nouvelles fréquences et à la transformation linéaire du chirp des impulsions signal [81, 82], il représente un handicap pour une amplification paramétrique efficace. En effet, comme les faisceaux diffractés sont amplifiés par la pompe intense, leurs énergies sont comparables à celles des faisceaux signal et complémentaires amplifiés par effet paramétrique. La génération de faisceaux diffractés est donc un effet parasite qui diminue l'efficacité de l'OPA. La figure A.3 ci-après illustre le phénomène en montrant une photographie des points lumineux observés sur un écran et en indiquant la direction des faisceaux signal et pompe en provenance du cristal de BBO. La figure A.4 montre une autre photographie du phénomène, dans laquelle on voit

la totalité de l'anneau de diffraction, le faisceau de pompe bleu au centre et les points lumineux correspondant à la diffraction du faisceau complémentaire.

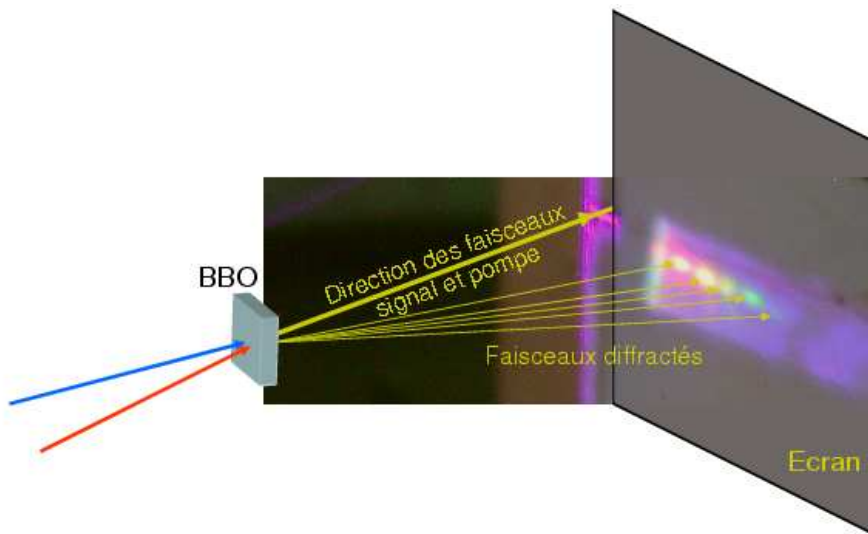


FIG. A.3: Photographie des points lumineux observés lors d'un effet de cascade



FIG. A.4: Photographie de l'anneau de fluorescence et des points lumineux observés lors d'un effet de cascade

Les couleurs observées sont successivement, en partant de la gauche, le rouge, l'orange, le jaune, le vert et le bleu. Nous avons donc un petit décalage par rapport aux longueurs d'onde calculées, qui peut s'expliquer par le fait que le faisceau signal possède un spectre large, et n'est pas composé d'une unique fréquence ω_s . Pour éviter ce phénomène, il faut augmenter l'angle entre les faisceaux incidents pompe et signal.

Annexe B

Programmes Matlab

B.1 Programme Matlab Calcul du gain

```
c=2.99792458*10^8; epsilon0=8.85418*10^(-12);

Ep=50e-6;          % puissance de pompe, en Joule
wo1=0.75;         % rayon tache avant focalisation sur le cristal, en mm
dt=1000;          % durée pompe en femtoseconde
foc=4;            % focale M concave avant cristal
lp=400;           % longueur d'onde pompe
z1=3e-3;          % longueur cristal
ls=linspace(700,900,2048); lc=1./(1/lp-1./ls);

d31=0.16*10^(-12); d22=2.3*10^(-12);

alpha=0; a_ext=alpha*1.6605;

npe=sqrt(2.3753+(0.01224/((lp*10^(-3))^2-0.01667))-(0.01516*(lp*10^(-3))^2))
npo=sqrt(2.7359+(0.01878/((lp*10^(-3))^2-0.01822))-(0.01354*(lp*10^(-3))^2))
ns=sqrt(2.7359+(0.01878./((ls.*10^(-3)).^2-0.01822))-(0.01354.*(ls.*10^(-3)).^2))
nc=sqrt(2.7359+(0.01878./((lc.*10^(-3)).^2-0.01822))-(0.01354.*(lc.*10^(-3)).^2))

a=alpha*pi/180; b=asin(ns.*lc.*sin(a)./(ls.*nc)); phi=90;
npt2=(lp)^2*((nc./lc).^2+(ns./ls).^2+(2*(cos(a+b)).*ns.*nc)./(lc.*ls));
```



```

npt= sqrt(npt2);

theta=(acos(sqrt((1./npt2-1/npe^2)/(1./npo^2-1./npe^2)))).*180/pi;
t=theta*pi/180;

deff=((d31)*sin(t)-(d22*cos(t)*sin(3*(phi*pi/180))));

ks=2*pi*(ns./(ls.*10^(-9))); kc=2*pi*(nc./(lc.*10^(-9)));
kp=K_P(lp,800,alpha);
-----

function vect_onde_pompe=K_P(LP,LS,ALPHA)

A1=ALPHA*pi/180; LC=1./(1/LP-1./LS);
NPE=sqrt(2.3753+(0.01224/((LP*1e-3)^2-0.01667))-(0.01516*(LP*1e-3)^2))
NPO=sqrt(2.7359+(0.01878/((LP*1e-3)^2-0.01822))-(0.01354*(LP*1e-3)^2))
NS=sqrt(2.7359+(0.01878./((LS.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354*(LS.*1e-3).^2))
NC=sqrt(2.7359+(0.01878./((LC.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354*(LC.*1e-3).^2))
B1=asin(NS.*LC.*sin(A1)/(LS.*NC)); BETA=B1*180/pi; CS1=cos(A1+B1);
NPT2=(LP)^2*((NC./LC).^2+(NS./LS).^2+(2*CS1*NS.*NC)/(LC.*LS));
NPT=sqrt(NPT2); vect_onde_pompe=2*pi*(NPT/(LP*10^(-9)));

function I=intensite(E,wo1,f,dt,longonde)

wo2=(longonde*1e-9*f)/(pi*wo1*1e-3); wop=w02*(1e6)
I=((E)/(pi*(wo2^2)*dt*1e-15));
-----

desaccord=(kp-kc.*cos(b)-ks.*cos(a));
Ip=intensite(Ep,wo1,foc,dt,lp); Ipu=Ip.*1e-10;

gamma0=4*pi*deff.*sqrt(Ip./(2*epsilon0*npt.*ns.*nc.*
(ls.*10^(-9)).*(lc.*10^(-9)).*c))
gamma=sqrt((gamma0.^2-(desaccord./2).^2));
G1=1+((gamma0./gamma).^2.*(sinh(gamma.*z1)).^2);

```

```

num=gamma.*sin(desaccord.*(z1/2)).*cosh(gamma.*z1)
-(desaccord./2).*cos(desaccord.*(z1/2)).*sinh(gamma.*z1);
den=gamma.*cos(desaccord.*(z1/2)).*cosh(gamma.*z1)
+(desaccord./2).*sin(desaccord.*(z1/2)).*sinh(gamma.*z1);
PHi=(atan(num./den));

figure(1) plot(ls,desaccord) title('Désaccord de phase') grid;
figure(2) plot(ls,theta) title('Angle d accord de phase') grid;
figure(3) plot(ls,G1) title('Gain petit signal') grid;
figure(4)plot(ls,PHi) title('Phase') grid;

```

B.2 Programme Matlab Calcul du gain par tranches

```

c=2.99792458*1e8; epsilon0=8.85418*1e-12; L=7e-3; d31=0.16*1e-12;
d22=2.3*1e-12; ls=800; lp=532; lc=1./(1/lp-1./ls);

npe=sqrt(2.3753+(0.01224/((lp*1e-3)^2-0.01667))-(0.01516*(lp*1e-3)^2));
npo=sqrt(2.7359+(0.01878/((lp*1e-3)^2-0.01822))-(0.01354*(lp*1e-3)^2));
ns=sqrt(2.7359+(0.01878./((ls.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354.*(ls.*1e-3).^2));
nc=sqrt(2.7359+(0.01878./((lc.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354.*(lc.*1e-3).^2));

alpha=3.91/1.6605; a=alpha*pi/180; b=asin(ns.*lc.*sin(a)./(ls.*nc));
phi=90;
npt2=(lp)^2*((nc./lc).^2+(ns./ls).^2+(2*(cos(a+b)).*ns.*nc)./(lc.*ls));
npt= sqrt(npt2);
theta=(acos(sqrt((1./npt2-1/npe^2)/(1./npo^2-1./npe^2)))).*180/pi;
t=theta*pi/180;
deff=((d31)*sin(t)-(d22*cos(t)*sin(3*(phi*pi/180))));
ks=2*pi*(ns./ls); kc=2*pi*(nc./lc);
kp=K_P(lp,ls,alpha); desaccord=(kp-kc.*cos(b)-ks.*cos(a));

A=4*pi*deff; B=2*epsilon0*npe.*ns.*nc.*(ls.*1e-9).*(lc.*1e-9).*c;

```

```

n=22;      %nombre de pas
Dz=L/n;    %tranche de calcul

Ep0=zeros(1,n); gamma0=zeros(1,n); gamma=zeros(1,n); G=zeros(1,n);
Is=zeros(1,n); Ic=zeros(1,n); Ip=zeros(1,n);

Ep0(1,1)=100e-6; Ip(1,1)=Ep0(1,1)/(pi*(wop^2)*dtp); gamma0(1,1)=0;
gamma(1,1)=0; G(1,1)=1; Is(1,1)=(Es0)/(pi*(wos^2)*dts); Ic(1,1)=0;

for i=2:n

gamma0(1,i)= A*sqrt(Ip(1,i-1)./B);
gamma(1,i)=sqrt((gamma0(1,i).^2-desaccord^2));
G(1,i)=1+((gamma0(1,i)./gamma(1,i)).^2*(sinh(gamma(1,i).*Dz)).^2);

Is(1,i) = Is(1,i-1).*G(1,i)
Ic(1,i)=Is(1,i)*((ls/lp)-1)+Is(1,i-1)*(1-(ls/lp))
Ip(1,i)=Ip(1,i-1)-Is(1,i)-Ic(1,i)+Is(1,i-1) f=1-Ip(1,i)/Ip(1,i-1);

Ep(1,i)=Ip(1,i)*(pi*(wop^2)*dtp); Es(1,i)=Is(1,i)*(pi*(wos^2)*dts);
Ec(1,i)=Ic(1,i)*(pi*(wos^2)*dts);

figure(1)
plot(i*Dz*1000,Ep(1,i)/Ep(1,1),'*k',i*Dz*1000,Es(1,i)/Ep(1,1),'*r')
hold on;

end

```

B.3 Programme Matlab Angle d'accord de phase

```

function angle=T(lp,ls,alpha);

a=alpha*pi/180; a_ext_BB0=alpha*1.6605; a_ext_KDP=alpha*1.5009;
lc=1./(1/lp-1./ls);

npe=sqrt(2.3753+(0.01224/((lp*1e-3)^2-0.01667))-(0.01516*(lp*1e-3)^2));

```

```
np0=sqrt(2.7359+(0.01878/((lp*1e-3)^2-0.01822))-(0.01354*(lp*1e-3)^2));
ns=sqrt(2.7359+(0.01878/((ls.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354*(ls.*1e-3).^2));
nc=sqrt(2.7359+(0.01878/((lc.*1e-3).^2-0.01822))-(0.01354*(lc.*1e-3).^2));

b=asin(ns.*lc*sin(a)/(ls.*nc));

npt2=(lp)^2*((nc./lc).^2+(ns./ls).^2+(2*cos(a+b)*ns.*nc)/(lc.*ls));
npt= sqrt(npt2)

ks=2*pi*(ns./(ls.*1e-9)); kc=2*pi*(nc./(lc.*1e-9));
kp=2*pi*(npt/(lp*1e-9));

angle=(acos(sqrt((1./npt2-1/npe.^2)/(1/np0.^2-1/npe.^2)))).*180/pi

desaccord=(kp-kc.*cos(b)-ks.*cos(a))
```


Bibliographie

- [1] J. A. Giordmaine and R. C. Miller, "Tunable coherent oscillation in LiNbO_3 at optical frequencies," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 14, no. 24, p. 973, (1965).
- [2] A. Dubietis, G. Jonusauskas, and A. Piskarkas, "Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal," *Opt. Commun.*, vol. 88, p. 437, (1992).
- [3] Y. Leng, Z. Xu, X. Yang, H. Lu, L. Lin, Z. Zhang, S. Jin, J. Peng, W. Zhang, D. Yin, B. Tang, and R. Li, "16.7 TW laser system based on optical parametric chirped pulse amplification," in *Optical Society of America*, p. 169, *Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO)*, (2003).
- [4] I. N. Ross, P. Matousek, G. H. C. New, and K. Osvay, "Analysis and optimization of optical parametric chirped pulse amplification," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, no. 12, p. 2945, (2002).
- [5] X. Yang, Z. Xu, Y. Leng, H. Lu, L. Lin, Z. Zhang, R. Li, W. Zhang, D. Yin, and B. Tang, "Multiterawatt laser system based on optical parametric chirped pulse amplification," *Opt. Lett.*, vol. 27, no. 13, p. 1135, (2002).
- [6] A. Shirakawa, I. Sakane, M. Takasaka, and T. Kobayashi, "Sub-5-fs visible pulse generation by pulse-front-matched noncollinear optical parametric amplification," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, p. 2268, (1998).
- [7] T. H. Maiman, "Stimulated optical emission in fluorescent solids. I. theoretical considerations," *Phys. Rev.*, vol. 123, no. 4, p. 1145, (1961).
- [8] T. H. Maiman, R. H. Hoskins, I. J. D'Haenens, C. K. Asawa, and V. Evtuhov, "Stimulated optical emission in fluorescent solids. II. spectroscopy and stimulated emission in ruby," *Phys. Rev.*, vol. 123, no. 4, p. 1151, (1961).
- [9] C. Delsart, *Cours de physique des lasers*. DEA Lasers et Matière.
- [10] J.-C. Diels and W. Rudolph, *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, (1996).

- [11] P. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of Ti :Al₂O₃," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 3, p. 125, (1986).
- [12] C. Leblanc, *Principes et réalisation d'une source laser terawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de 10¹⁸W/cm²*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, (1993).
- [13] D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses," *Opt. Commun.*, vol. 56, no. 3, p. 219, (1985).
- [14] O. E. Martinez, "Design of high-power ultrashort pulse amplifiers by expansion and recompression," *IEEE J. Quantum Elect.*, vol. QE-23, no. 8, p. 1385, (1987).
- [15] E. B. Treacy, "Optical pulse compression with diffraction gratings," *IEEE J. Quantum Elect.*, vol. QE-5, no. 9, p. 454, (1969).
- [16] A. Öffner, "New concepts in projection mask aligners," *Opt. Eng.*, vol. 14, no. 2, p. 130, (1975).
- [17] G. Chériaux, *Influences des distortions de phase sur le profil d'impulsions femtoseconde dans l'amplification à dérive de fréquence*. PhD thesis, Univ. Paris Sud, (1997).
- [18] G. Chériaux, P. Rousseau, F. Salin, J. Chambaret, B. Walker, and L. F. Dimmauro, "Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification," *Opt. Lett.*, vol. 21, no. 6, p. 414, (1996).
- [19] O. E. Martinez, "3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion : application to fiber compensation in 1.3-1.6 μ m region," *IEEE J. Quantum Elect.*, vol. QE-23, no. 1, p. 59, (1987).
- [20] Z. Cheng, F. Krausz, and C. Spielmann, "Compression of 2 mJ kilohertz laser pulses to 17.5 fs by pairing double-prism compressor : analysis and performance," *Opt. Commun.*, vol. 201, p. 145, (2002).
- [21] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, and A. S. Chirkin, *Optics of femtosecond laser pulses*. American institute of physics, (1992).
- [22] E. Seres, R. Herzog, J. Seres, D. Kaplan, and C. Spielmann, "Generation of intense 8 fs laser pulses," *Opt. Express*, vol. 11, no. 3, p. 240, (2003).
- [23] J. Seres, A. Müller, E. Seres, K. O'Keeffe, M. Lenner, R. F. Herzog, D. Kaplan, C. Spielmann, and F. Krausz, "Sub-10-fs, terawatt-scale Ti :sapphire laser system," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 19, p. 1832, (2003).

- [24] C. P. Hauri, P. Schlup, G. Arisholm, J. Biegert, and U. Keller, "Phase-preserving chirped-pulse optical parametric amplification to 17.3 fs directly from a Ti:sapphire oscillator," *Opt. Lett.*, vol. 29, no. 12, p. 1369, (2004).
- [25] A. V. Smith, "SNLO nonlinear optics code," tech. rep., Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423.
- [26] C. Rullière, *Femtosecond laser pulses, principles and experiments*. Springer-Verlag, (1998).
- [27] A. Renault, F. Augé-Rochereau, T. Planchon, P. D'Oliveira, T. Auguste, G. Chériaux, and J.-P. Chambaret, "ASE contrast improvement with a non-linear filtering sagnac interferometer," *Opt. Commun.*, vol. 248, p. 535, (2005).
- [28] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J.-P. Rousseau, J.-P. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, and S. M. Satiel, "10⁻¹⁰ temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 8, p. 920, (2005).
- [29] M. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel, and W. Sandner, "Double chirped-pulse-amplification laser : a way to clean pulses temporally," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 8, p. 923, (2005).
- [30] T. Planchon, *Modélisation des processus liés à l'amplification et à la propagation d'impulsions étirées dans des chaînes laser de très haute intensité*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, (2003).
- [31] M. Pittman, S. Ferré, J. P. Rousseau, L. Notebaert, J. P. Chambaret, and G. Chériaux, "Design and characterization of a near-diffraction-limited femtosecond 100-TW 10-Hz high-intensity laser system," *Appl. Phys. B*, vol. 74, p. 529, (2002).
- [32] M. Kalashnikov, K. Osvay, I. Lachko, H. Schönnagel, and W. Sandner, "Suppression of gain narrowing in multi-TW lasers with negatively and positively chirped pulse amplification," *Appl. Phys. B*, vol. 81, p. 1059, (2005).
- [33] A. E. Siegman, *Lasers*. University science books, (1986).
- [34] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, "Generation of optical harmonics," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 7, no. 4, p. 118, (1961).
- [35] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*. Academic press, (1992).
- [36] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," *Phys. Rev.*, vol. 127, no. 6, p. 1918, (1962).

- [37] D. A. Kleinman, "Nonlinear dielectric polarization in optical media," *Phys. Rev.*, vol. 126, no. 6, p. 1977, (1962).
- [38] J. Midwinter and J. Warner, "Effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on polar distribution of second-order non-linear optical polarization," *Br. J. Appl. Phys.*, vol. 16, p. 1135, (1965).
- [39] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*. Springer-Verlag, (1991).
- [40] H. Vanherzeele and C. Chen, "Widely tunable parametric generation in beta barium borate," *Appl. Opt.*, vol. 27, no. 13, p. 2634, (1988).
- [41] C. Chen, B. Wu, A. Jiang, and G. You, "A new-type ultraviolet SHG crystal $-\beta$ -BaB₂O₄," *Sci. Sin. Ser. B*, vol. 28, no. 3, p. 235, (1985).
- [42] R. S. Klein, G. E. Kugel, A. Maillard, A. Sifi, and K. Polgár, "Absolute non-linear optical coefficients measurements of BBO single crystal and determination of angular acceptance by second harmonic generation," *Opt. Mater.*, vol. 22, p. 163, (2003).
- [43] K. Kato, "Second-harmonic generation to 2048 Å in β -BaB₂O₄," *IEEE J. Quantum Elect.*, vol. QE-22, no. 7, p. 1013, (1986).
- [44] H. Nakatani, W. R. Bosenberg, L. K. Cheng, and C. L. Tang, "Laser-induced damage in beta-barium metaborate," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 53, no. 26, p. 2587, (1988).
- [45] P. D. Trapani, A. Andreoni, G. P. Banfi, C. Solcia, R. Danielius, A. Piskarkas, P. Foggi, M. Monguzzi, and C. Sozzi, "Group-velocity self-matching of femtosecond pulses in noncollinear parametric generation," *Phys. Rev. A*, vol. 51, no. 4, p. 3164, (1995).
- [46] D. A. Kleinman, "Theory of second harmonic generation of light," *Phys. Rev.*, vol. 128, no. 4, p. 1761, (1962).
- [47] C. Flytzanis, "Optics, nonlinear," *Encyclopedia of Appl. Phys.*, vol. 12, p. 487, (1995).
- [48] Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics*. John Wiley and Sons, (1984).
- [49] R. A. Baumgartner and R. L. Byer, "Optical parametric amplification," *IEEE J. Quantum Elect.*, vol. QE-15, no. 6, p. 432, (1979).
- [50] I. N. Ross, P. Matousek, M. Towrie, A. Langley, and J. Collier, "The prospects for ultrashort pulse duration and ultrahigh intensity using optical parametric chirped pulse amplifiers," *Opt. Commun.*, vol. 144, p. 125, (1997).

- [51] I. Jovanovic, *Optical parametric amplification for high peak and average power*. PhD thesis, University of California, Berkeley, (2001).
- [52] N. Ishii, L. Turi, V. S. Yakovlev, T. Fuji, F. Krausz, A. Baltuska, R. Butkus, G. Veitas, V. Smilgevicius, R. Danielius, and A. Piskarskas, "Multimillijoule chirped parametric amplification of few-cycle pulses," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 5, p. 567, (2005).
- [53] R. Zinkstok, S. Witte, W. Hogervorst, and K. Eikema, "High-power parametric amplification of 11.8-fs laser pulses with carrier-envelope phase control," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 1, p. 78, (2005).
- [54] V. Bagnoud, I. A. Begishev, M. J. Guardalben, J. Puth, and J. D. Zuegel, "5 Hz, >250 mJ optical parametric chirped-pulse amplifier at 1053 nm," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 14, p. 1843, (2005).
- [55] I. Jovanovic, B. Comaskey, C. Ebbers, R. Bonner, D. Pennington, and E. Morse, "Optical parametric chirped-pulse amplifier as an alternative to Ti:sapphire regenerative amplifiers," *Appl. Optics*, vol. 41, no. 15, p. 2923, (2002).
- [56] H. Yoshida, E. Ishii, R. Kodama, H. Fujita, Y. Kitagawa, Y. Izawa, and T. Yamanaka, "High-power and high-contrast optical parametric chirped pulse amplification in β -BaB₂O₄ crystal," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 4, p. 257, (2003).
- [57] L. J. Waxer, V. Bagnoud, I. A. Begishev, M. J. Guardalben, J. Puth, and J. D. Zuegel, "High-conversion-efficiency optical parametric chirped-pulse amplification system using spatiotemporally shaped pump pulses," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 14, p. 1245, (2003).
- [58] I. N. Ross, J. L. Collier, P. Matousek, C. N. Danson, D. Nelly, R. M. Allott, D. A. Pepler, C. Hernandez-Gomez, and K. Osvay, "Generation of terawatt pulses by use of optical parametric chirped pulse amplification," *Appl. Opt.*, vol. 39, no. 15, p. 2422, (2000).
- [59] I. Jovanovic, J. R. Schmidt, and C. A. Ebbers, "Optical parametric chirped-pulse amplification in periodically poled KTiOPO₄ at 1053 nm," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, p. 4125, (2003).
- [60] S. Witte, R. Zinkstok, W. Hogervorst, and K. Eikema, "Generation of few-cycle terawatt light pulses using optical parametric chirped pulse amplification," *Opt. Express*, vol. 13, no. 13, p. 4903, (2005).

- [61] X. Yang, Z. Xu, Z. Zhang, Y. Leng, J. Peng, J. Wang, S. Jin, W. Zhang, and R. Li, "Dependence of spectrum on pump-signal angle in bbo-I noncollinear optical-parametric chirped-pulse amplification," *Appl. Phys. B*, vol. 73, p. 219, (2001).
- [62] S. K. Zhang, M. Fujita, M. Yamanaka, M. Nakatsuka, Y. Isawa, and C. Yamanaka, "Study of the stability of optical parametric amplification," *Opt. Commun.*, vol. 184, p. 451, (2000).
- [63] D. A. Kleinman, "Theory of optical parametric noise," *Phys. Rev.*, vol. 174, no. 3, p. 1027, (1968).
- [64] R. Frey, *Electromagnétisme non-linéaire, cours du DEA Lasers et Matière*. Ecole Polytechnique.
- [65] F. Tavella, K. Schmid, N. Ishii, A. Marcinkevičius, L. Veisz, and F. Krausz, "High-dynamic range pulse-contrast measurements of a broadband optical parametric chirped-pulse amplifier," *Appl. Phys. B*, vol. 81, p. 753, (2005).
- [66] V. Bagnoud, J. Puth, I. Begishev, M. Guardalben, J. D. Zuegel, N. Forget, C. L. Blanc, and J. Bromage, "A multiterawatt laser using a high-contrast, optical parametric chirped-pulse preamplifier," *Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO)*, Optical Society of America, (2005).
- [67] I. Jovanovic, C. G. Brown, C. A. Ebberts, C. P. J. Barty, N. Forget, and C. L. Blanc, "Generation of high-contrast millijoule pulses by optical parametric chirped-pulse amplification in periodically poled KTiOPO₄," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 9, p. 1036, (2005).
- [68] M. Sheik-Bahae and M. Ebrahimzadeh, "Measurements of nonlinear refraction in the second-order $\chi^{(2)}$ materials KTiOPO₄, KNbO₃, β -BaB₂O₄, and LiB₃O₅," *Opt. Commun.*, vol. 142, p. 294, (1997).
- [69] R. A. Ganeev, I. A. Kulagin, A. I. Ryasnyansky, R. I. Tugushev, and T. Usmanov, "Characterization of nonlinear optical parameters of KDP, LiNbO₃ and BBO crystals," *Opt. Commun.*, vol. 229, p. 403, (2004).
- [70] L. Xu, C. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, and T. W. Hänsch, "Route to phase control of ultrashort light pulses," *Opt. Lett.*, vol. 21, no. 24, p. 2008, (1996).
- [71] P. Schlup, J. Biegert, C. Hauri, G. Arisholm, and U. Keller, "Design of a sub-13-fs multi-gigawatt chirped pulse optical parametric amplification system," *Appl. Phys. B*, vol. 79, p. 285, (2004).

- [72] R. Butkus, R. Danielius, A. Dubietis, A. Piskarkas, and A. Stabinis, "Progress in chirped pulse optical parametric amplifiers," *Appl. Phys. B*, vol. 79, p. 693, (2004).
- [73] N. Forget, A. Cotel, E. Brambrink, P. Audebert, C. L. Blanc, A. Jullien, O. Albert, and G. Chériaux, "Pump-noise transfer in optical parametric chirped-pulse amplification," *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 21, p. 2921, (2005).
- [74] B. C. Stuart, M. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, "Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, no. 12, p. 2248, (1995).
- [75] W. Koechner, *Solid-state laser engineering*. Springer, p. 683, 5th ed., (1999).
- [76] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, "Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping," *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 8, p. 575, (2000).
- [77] P. Tournois, "Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptative compensation of group delay time dispersion in laser system," *Opt. Commun.*, vol. 140, p. 245, (1997).
- [78] T. Oksenhendler, *Mesures et contrôles temporels dans le domaine des lasers ultrabrefs*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, (2004).
- [79] A. Varanavičius, A. Dubietis, A. Beržanskis, R. Danielius, and A. Piskarskas, "Near-degenerate cascaded four-wave mixing in an optical parametric amplifier," *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 21, p. 1603, (1997).
- [80] R. Danielius, P. D. Trapani, A. Dubietis, A. Piskarkas, D. Podenas, and G. P. Banfi, "Self-diffraction through cascaded second-order frequency-mixing effects in Bêta-barium borate," *Opt. Lett.*, vol. 18, no. 8, p. 574, (1993).
- [81] R. Danielius, A. Dubietis, and A. Piskarkas, "Linear transformation of pulse chirp through a cascaded optical second-order process," *Opt. Lett.*, vol. 20, no. 14, p. 1521, (1995).
- [82] R. Danielius, A. Dubietis, and A. Piskarkas, "Transformation of pulse characteristics via cascaded second-order effects in an optical parametric amplifier," *Opt. Commun.*, vol. 133, p. 277, (1997).

Table des figures

| | | |
|------|--|----|
| 1.1 | Profils temporels en intensité gaussien (courbe verte) et sécante hyperbolique (courbe rouge) | 4 |
| 1.2 | Schéma d'un système CPA | 10 |
| 1.3 | Schéma de principe de la technique CPA | 11 |
| 1.4 | Schéma d'un étireur à réseaux de type Öffner. Les fréquences "bleues" se retrouvent derrière les fréquences "rouges" | 12 |
| 1.5 | Schéma d'un compresseur à réseaux | 13 |
| 1.6 | Compresseur à quatre prismes. i est l'angle d'incidence et α l'angle au sommet | 14 |
| 1.7 | Schéma de principe d'un amplificateur régénératif | 19 |
| 1.8 | Principe de fonctionnement d'une cavité régénérative | 20 |
| 1.9 | État de polarisation de la cellule de Pockels | 21 |
| 1.10 | Illustration du rétrécissement par le gain observé dans une chaîne laser CPA | 25 |
| 2.1 | Définition des angles θ et φ par rapport au vecteur d'onde k | 35 |
| 2.2 | Direction des vecteurs caractéristiques dans le cas d'un milieu anisotrope . | 38 |
| 2.3 | Ellipsoïde des indices dans le cas général | 39 |
| 2.4 | Ellipse d'intersection | 40 |
| 2.5 | Ellipsoïde des indices dans le cas d'un milieu uniaxe positif | 41 |
| 2.6 | Zone de transparence du BBO en fonction de la longueur d'onde [25] . . . | 43 |
| 2.7 | Angles φ , θ et ρ | 48 |
| 2.8 | Longueur de Walk off pour le faisceau de pompe | 50 |
| 2.9 | Effets non linéaires du deuxième ordre : a) Somme de fréquences (SFG), b) Différence de fréquences (DFG), c) Doublage de fréquence (SHG). . . . | 51 |
| 2.10 | Diagramme des échanges d'énergie dans le doublage de fréquence | 56 |

| | |
|---|----|
| 2.11 Exemple de courbe des indices ordinaire et extraordinaire permettant l'accord de phase pour le doublage de fréquence dans le cas d'un cristal uniaxe négatif | 59 |
| 2.12 Schéma de principe de l'amplification paramétrique optique | 61 |
| 2.13 Angle d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde pour différentes longueur d'onde de pompe, dans le cas colinéaire | 63 |
| 2.14 Schéma d'accord de phase en régime colinéaire | 63 |
| 2.15 Courbe d'accord de phase dans le cas dégénéré et colinéaire ($\lambda_s = 800nm$, $\lambda_p = 400nm$) | 65 |
| 2.16 Schéma d'accord de phase en régime non colinéaire | 66 |
| 2.17 Évolution du désaccord de phase en fonction de la longueur d'onde signal pour différentes valeurs de l'angle entre les ondes signal et pompe | 67 |
| 2.18 Courbe d'accord de phase dans le cas non dégénéré et non colinéaire ($\lambda_s = 800nm$, $\lambda_p = 532nm$, $\alpha = 3.9^\circ$) | 68 |
| 2.19 Schéma de principe d'un OPCPA | 69 |
| 2.20 Evolution des amplitudes des ondes signal et complémentaire au cours de la propagation dans le cas d'un accord de phase parfait. | 74 |
| 2.21 Evolution du gain en fonction de l'intensité de pompe dans le cas d'un accord de phase parfait. $\lambda_s = 800 nm$, $\lambda_p = 532 nm$, longueur du BBO = $12 mm$ | 75 |
| 2.22 Courbe de gain de l'OPA non dégénéré non colinéaire. $\lambda_p=532 nm$, $\lambda_s=800 nm$, $\theta = 23.8^\circ$ et $\alpha_{externe} = 3.9^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 500 MW/cm^2$ | 76 |
| 2.23 Evolution de la courbe de gain d'un OPA non dégénéré et non colinéaire en fonction de la valeur de l'angle alpha, tous les autres paramètres étant constants. | 77 |
| 2.24 Courbe de gain de l'OPA dégénéré et colinéaire avec $\lambda_p=400 nm$, $\lambda_s=800 nm$ $\theta = 29,2^\circ$ et $\alpha = 0^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,45 GW/cm^2$ | 77 |
| 2.25 Courbe de gain de l'OPA quasi-dégénéré et quasi-colinéaire avec $\lambda_p=400 nm$, $\lambda_s=810 nm$ $\theta = 29,2^\circ$ et $\alpha_{exterieur} = 2^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,45 GW/cm^2$ | 78 |
| 2.26 Phase spectrale d'un OPA non dégénéré et non colinéaire avec $\lambda_p=532 nm$, $\lambda_s=800 nm$ et $\alpha = 3.9^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 500 MW/cm^2$ | 80 |
| 2.27 Phase spectrale d'un OPA non dégénéré et non colinéaire avec $\lambda_p=400 nm$, $\lambda_s=800 nm$ et $\alpha = 0^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,4 GW/cm^2$ | 80 |

| | | |
|------|---|-----|
| 2.28 | Phase spectrale d'un OPA quasi dégénéré et quasi colinéaire avec $\lambda_p=400$ nm, $\lambda_s=810$ nm et $\alpha = 2^\circ$ pour une intensité de pompe $I_p = 3,4$ GW/cm^2 . | 81 |
| 2.29 | Evolution de l'efficacité de conversion de la pompe vers le signal | 83 |
| 2.30 | Synchronisation du signal de pompe (en bleu) avec l'impulsion principale dans le cristal. | 84 |
| 2.31 | Photo de l'anneau de fluorescence apparaissant autour du faisceau de pompe bleu (à 400 nm) pour une intensité de quelques GW/cm^2 | 85 |
| 2.32 | Exemple de méthodes de synchronisation électronique externe. a : entre un oscillateur et un laser de pompe, b : entre deux oscillateurs | 90 |
| 2.33 | Exemple de méthodes de synchronisation naturelle. c : un oscillateur injecte un laser de pompe, d : un oscillateur injecte un oscillateur | 90 |
| 3.1 | Dispositif expérimental utilisé pour l'amplification paramétrique non dégénérée. λ : lame demi-onde, P : Polariseur, T1 et T2 : Télescopes | 94 |
| 3.2 | Photo du premier amplificateur et trajet des faisceaux. | 95 |
| 3.3 | Spectre du signal en sortie de l'oscillateur et de l'étireur. | 96 |
| 3.4 | Profil spatial du signal avant amplification. Les coupes horizontale et verticale correspondantes ainsi que leurs approximations gaussiennes sont indiquées à droite de la figure. | 96 |
| 3.5 | Profil temporel du laser de pompe commercial Nd :YAG en mode injecté et non injecté. | 97 |
| 3.6 | Profil spatial du laser de pompe doublé (532 nm) entre les deux amplificateurs paramétriques. | 98 |
| 3.7 | Profil spatial d'un laser de pompe Nd :YAG fonctionnant à 10 Hz, société Amplitude Technologies. Les lignes horizontales sont liées à l'acquisition de la caméra. | 99 |
| 3.8 | Schéma de principe de la synchronisation temporelle entre le signal et la pompe. | 100 |
| 3.9 | Câblage électrique permettant la synchronisation temporelle. | 101 |
| 3.10 | Observation du pic amplifié sur un oscilloscope, pour un gain inférieur à 10. | 102 |
| 3.11 | Profils spatiaux du faisceau signal avant (à gauche) et après (à droite) amplification dans les deux cristaux de BBO. | 103 |
| 3.12 | Spectre de l'oscillateur (en noir), courbes de gain total (fig. du haut) et spectres calculés après les 2 OPAs (fig. du bas) en fonction de l'angle α entre le signal et la pompe du premier cristal | 104 |

| | | |
|------|---|-----|
| 3.13 | Spectres de l'oscillateur, du signal après un seul amplificateur et après les deux amplificateurs paramétriques | 105 |
| 4.1 | Schéma simplifié du laser de pompe de l'OPCPA quasi-dégénéré (Sp. : lame séparatrice). | 109 |
| 4.2 | Schéma du laser de pompe de l'OPCPA quasi-dégénéré. | 110 |
| 4.3 | Résultats de la mesure "SPIDER". Profil temporel (fig. de gauche) et phase spectrale (fig. de droite) de l'impulsion recomprimée | 111 |
| 4.4 | Photos de l'étireur (fig. de gauche) et des plaques noires placées devant le miroir concave (fig. de droite) | 112 |
| 4.5 | Photo du pré-amplificateur femtoseconde | 113 |
| 4.6 | Schéma de l'amplificateur régénératif modifié. (Les longueurs des bras de la cavité sont indiquées en <i>mm</i>). | 115 |
| 4.7 | Photo de l'amplificateur régénératif modifié. | 116 |
| 4.8 | Exemple de spectre expérimental réduit à 2,65 <i>nm</i> de large dans l'étireur, mesuré après les deux amplificateurs. | 118 |
| 4.9 | Photo du coin de cube positionné sur une platine et un rail de translation . | 121 |
| 4.10 | Schéma du câblage électrique | 121 |
| 4.11 | Schéma du pré-amplificateur paramétrique en configuration quasi-dégénérée et quasi-colinéaire. LR : ligne à retard, MC : miroir concave | 125 |
| 4.12 | Profils spatiaux du signal avant focalisation (à gauche) et de la pompe (à droite) au niveau du cristal de BBO | 125 |
| 4.13 | Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 300 \mu J$ et $\Delta_p = 400 fs$ | 126 |
| 4.14 | Photos des faisceaux du signal amplifié (à gauche), de la pompe restant après amplification (au centre) et du complémentaire (à droite) sur une carte infrarouge (figures de gauche) et sur un écran blanc (fig. de droite) . | 127 |
| 4.15 | Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 400 \mu J$ et $\Delta_p = 400 fs$ | 127 |
| 4.16 | Spectres de l'oscillateur et du signal amplifié, avec $E_p = 400 \mu J$ et $\Delta_p = 250 fs$ | 128 |
| 4.17 | Profils spatiaux du signal (à gauche) et du complémentaire (à droite) après pré-amplification | 129 |

| | | |
|------|--|-----|
| 4.18 | Comparaison entre le spectre expérimental après amplification et le spectre calculé. Les courbes bleues correspondent aux spectres mesurés, les courbes rouges proviennent du calcul. | 130 |
| 4.19 | Schéma simplifié de l'ensemble de l'expérience réalisée avec deux amplificateurs paramétriques successifs. Osc. : oscillateur, Ampli. : amplificateur, Comp. : compresseur., L.S. : lame séparatrice. | 134 |
| 4.20 | Schéma du pré-amplificateur suivi d'un deuxième amplificateur paramétrique (MD : miroir dichroïque, MC : miroir concave, LR : ligne à retard) . | 135 |
| 4.21 | Profils spatiaux du signal après pré-amplification (à gauche) et de la pompe (à droite) au niveau du premier cristal de BBO | 136 |
| 4.22 | Spectre avant (trait noir) et après (courbe pleine) amplification dans le pré-amplificateur paramétrique | 136 |
| 4.23 | Front d'onde du signal avant (a) et après (b) le pré-amplificateur. La phase spatiale, exprimée en μm , vaut $\lambda/5$ avant OPA et $\lambda/4$ après. | 137 |
| 4.24 | Profils spatiaux du signal (à gauche) et de la pompe (à droite) sur le cristal de l'amplificateur de puissance | 138 |
| 4.25 | Spectre avant (trait noir) et après (courbe pleine) amplification dans les deux amplificateurs paramétriques | 139 |
| 4.26 | Comparaison de la TF d'une supergaussienne d'ordre 6 avec le spectre du signal amplifié | 140 |
| 4.27 | Profils spatiaux du faisceau complémentaire (à gauche) et du faisceau signal (à droite) après l'amplificateur de puissance | 140 |
| 4.28 | Schéma simplifié de l'ensemble de l'expérience réalisée avec l'amplificateur hybride. Osc. : oscillateur, Ampli. : amplificateur, Comp. : compresseur., L.S. : lame séparatrice. | 143 |
| 4.29 | Dispositif expérimental du système d'amplification hybride OPCPA + CPA | 144 |
| 4.30 | Comparaison du spectre de l'oscillateur avec les spectres obtenus derrière l'OPA et derrière l'amplificateur à 4 passages | 145 |
| 4.31 | Principe de fonctionnement du filtre acousto-optique dispersif programmable "Dazzler TM " | 147 |
| 4.32 | Intensité Spider après recompression par les prismes | 148 |
| 4.33 | Spectre du signal amplifié par l'OPA et l'amplificateur 4 passages après recompression par les prismes et profil de phase restant après compression. A droite, zoom sur la partie centrale du spectre. | 149 |

| | | |
|------|--|-----|
| 4.34 | Comparaison du spectre de l'oscillateur large bande avec les spectres obtenus derrière l'OPA et l'amplificateur à 4 passages | 150 |
| A.1 | Direction des faisceaux générés par effet de cascade | 157 |
| A.2 | Tracé géométrique des vecteurs d'onde signal, pompe, complémentaire et diffractés. | 157 |
| A.3 | Photographie des points lumineux observés lors d'un effet de cascade . . . | 158 |
| A.4 | Photographie de l'anneau de fluorescence et des points lumineux observés lors d'un effet de cascade | 158 |

Index

- Accord de phase, 62
- Alpha, 65
- Angle detuning, 79
- Approximation de l'enveloppe lentement variable, 54
- Approximation paramétrique, 58
- Auto-focalisation, 9

- Biréfringence, 38, 41

- Cascade, 155
- Cellule de Pockels, 20
- Champ électrique atomique, 29
- Chirp, 10
- Conservation de l'énergie, 62
- Conservation du moment, 58

- Doublage de fréquence, 56
- Dégénérescence, 62
- Dépeuplement, 71, 82

- Ecart des vitesses de groupe (GVM), 46
- Emission spontanée amplifiée, 22
- Equations de Maxwell, 28
- Equations de Sellmeier, 44

- Femtoseconde, 1
- Filtre de Lyot, 117
- Fluence, 114
- Fluorescence paramétrique, 84
- FWHM, 3

- Gaussienne, 3
- GVD, 6

- Idler, 60
- Indice de réfraction non linéaire, 9
- Induction électrique, 28
- Injection, 97
- Intensité crête, 9, 114

- Jitter, 89

- Lignes neutres, 38

- Matériau centrosymétrique, 34
- Milieu anisotrope, 36

- OPCPA, 69
- Oscillateur, 8

- Permittivité du vide, 28
- Phase spectrale, 2, 79
- Pré-amplificateur femtoseconde, 112
- Pré-impulsions, 23

- Rectification optique, 51
- Relations constitutives, 28

- Superfluorescence, 85
- Susceptibilité non linéaire, 30
- Symétries de Kleinman, 33
- Sécante hyperbolique, 3

- Top-hat, 98

Transformée de Fourier, 2, 4

Type I, 35

Type II, 35

Vecteur d'onde, 63

Vitesse de groupe, 6

Walkoff, 38, 49

Zéro temporel, 122