



Sources paramétriques optiques pour la détection de gaz à distance dans l'infrarouge lointain

Quentin Clément

► To cite this version:

Quentin Clément. Sources paramétriques optiques pour la détection de gaz à distance dans l'infrarouge lointain. Physique [physics]. Ecole Polytechnique, 2015. Français. NNT: . tel-01212919

HAL Id: tel-01212919

<https://pastel.hal.science/tel-01212919>

Submitted on 7 Oct 2015

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 présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE
Spécialité : Physique

par

Quentin CLÉMENT

**Sources paramétriques optiques
pour la détection de gaz à distance
dans l'infrarouge lointain**

soutenue le 23 septembre 2015 devant le jury composé de :

Giuseppe LEO	LMPQ, Paris	Rapporteur
Virginie ZENINARI	GSMA, Reims	Rapporteur
Manuel JOFFRE	LOB, Palaiseau	Président
Arnaud GRISARD	TRT, Palaiseau	Examineur
Philippe ADAM	DGA, Paris	Examineur
Benoît BOULANGER	Institut Néel, Grenoble	Directeur de thèse
Jean-Michel MELKONIAN	ONERA, Palaiseau	Encadrant ONERA

Remerciements

A la fin de ces trois années, je réalise à quel point la thèse était une belle aventure, tant sur le plan professionnel que sur le plan humain. Il est désormais temps pour moi d'adresser des remerciements bien mérités à l'ensemble des personnes qui m'ont permis de vivre cette expérience de façon très enrichissante. Dans un premier temps, je tiens à souligner la bonne humeur et la bonne ambiance qui règnent au quotidien au sein de l'unité Sources Lasers et Métrologie (SLM) du Département Mesures Physiques (DMPH) de l'Onera. Pouvoir travailler dans ces conditions avec des personnes très ouvertes a été un élément clé du bon déroulement de cette thèse et j'ai pu me rendre compte, en discutant avec d'autres doctorants, du fait que cet environnement était exceptionnel même dans le milieu de la recherche. Ainsi, je tiens à remercier grandement les ingénieurs de recherche de la section OPO : Jean-Michel Melkonian, Antoine Godard, Myriam Raybaut, Jean-Baptiste Dherbecourt et Guillaume Gorju. Vous avez toujours pris le temps de répondre de façon très pédagogue à mes différentes interrogations et de venir me porter assistance pour surmonter les difficultés que j'ai pu rencontrer. J'ai pu admirer l'étendue de vos connaissances, que ce soit en optique non linéaire ou en physique générale, et ce fut un vrai plaisir d'apprendre chaque jour un peu plus grâce à vos conseils. A ce titre, je remercie vivement Jean-Michel qui a dédié énormément de son temps à la réussite de ma thèse, aussi bien pour discuter de physique théorique que pour venir débloquer un code informatique, relire différentes versions d'un article ou suggérer une idée pour effectuer une mesure. J'ajoute que tu mérites une médaille pour m'avoir supporté pendant ces trois ans malgré mon tempérament très anxieux qui me rend parfois (souvent ?) agaçant. De plus, je vous remercie tous à nouveau pour m'avoir permis de participer à des conférences internationales, à propos desquelles je garde un très bon souvenir, quoi que j'ai pu dire au préalable sur le choix de certaines destinations (aller au soleil c'est quand même mieux pas vrai ?). En particulier, merci Antoine pour CLEO US : d'une part c'était exceptionnel d'aller en conférence en Californie, et d'autre part c'était vraiment sympa de t'avoir comme guide pour découvrir les restaurants et les bars de San José.

Je remercie très chaleureusement mon directeur de thèse Benoît Boulanger, qui a toujours suivi de façon très régulière l'avancée de mes travaux malgré la distance séparant Palaiseau et Grenoble. Bien que tu occupes de nombreuses fonctions au sein de la communauté scientifique,

tu as toujours pris le temps de t'impliquer dans ma thèse, notamment lors de la période clé de la rédaction qui demande un travail de relecture conséquent. Je te suis très reconnaissant de m'avoir invité dans ton laboratoire à l'Institut Néel pour effectuer des mesures sur le cristal de CdSe cylindrique : ton équipe de recherche, que je salue au passage, m'a réservé un excellent accueil et je garde un très bon souvenir de cette semaine grenobloise (terminée par une journée de ski, il ne faut pas oublier l'essentiel!).

J'adresse également mes remerciements à l'ensemble des membres du jury qui ont accepté d'évaluer cette thèse, en particulier mes deux rapporteurs Giuseppe Leo et Virginie Zéninari, ainsi que Manuel Joffre, Philippe Adam et Arnaud Grisard. Vos différents points de vue ainsi que vos regards critiques et les questions pertinentes que vous m'avez posé m'ont permis de prendre du recul sur mes travaux.

Si cette thèse s'est remarquablement bien déroulée, c'est aussi grâce aux deux techniciens hors pair de l'équipe SLM, Thomas Schmid et Jean-Pierre Faleni, qui m'ont apporté toute l'aide nécessaire (ainsi que Jean-Michel encore une fois!) pour la conception des pièces optomécaniques de mes différents montages optiques. J'ai eu la chance de bénéficier de votre expertise dans ce domaine où la précision et la patience sont de rigueur.

Tous mes remerciements vont à Michel Lefebvre et à Emmanuel Rosencher, qui malheureusement nous a quittés, pour m'avoir proposé dès le début de ma thèse de travailler sur le Sheet OPO. J'ai énormément appris lors de l'étude théorique et j'ai alors réalisé à quel point j'avais encore beaucoup de chemin à parcourir pour pouvoir comprendre en détail ce qu'est l'optique non linéaire.

Je remercie Florence Baumgartner, Hélène Meler et Sylvie Nicolle pour leur gentillesse et leur aide apportée dans les tâches administratives. J'adresse mes remerciements à Alexandre Bresson pour sa bonne humeur et ses conseils, j'espère ne pas t'avoir donné trop de travail concernant la validation de mes congés. J'ai également une pensée pour l'équipe CMT, à savoir Yannick Bidet, Nassim Zahzam, Malo Cadoret et Cédric Blanchard, ainsi que pour Ajmal Mohamed (tu as vu il oscille mon Sheet OPO!), Michael Scherman et Brigitte Attal-Trétout.

Durant ces trois années, j'ai eu la chance d'intervenir dans des expériences en collaboration avec différentes équipes de recherche. Je souhaiterais remercier ici les différentes personnes avec lesquelles j'ai eu l'opportunité de travailler, à commencer par Arnaud Grisard et Eric Lallier de Thales Research & Technology, ainsi que Basile Faure et Grégoire Souhaité de Teem Photonics, pour les expériences réalisées dans le cadre du Projet ASTRID MUSTARD. Je remercie également Valdas Pasiskevicius, Nicky Thilmann et Riian Coetzee de l'Institut Royal de Technologie de Stockholm (KTH), pour m'avoir accueilli une semaine dans leur laboratoire, où le fait d'échanger avec des personnes venant des quatre coins de l'Europe a été très enrichissant. Au sein de l'Onera, j'adresse mes remerciements à Julien Le Gouët, Guillaume Canat et Erik Lucas pour m'avoir permis de bénéficier d'un excellent laser de pompe dans le cadre du Projet

DROSOFIL, ainsi qu'à Johan Petit et Jérémy Rame pour les différents cristaux non linéaires qu'ils m'ont fourni. De plus, je remercie grandement Julien Jaeck et Benjamin Vest (dit Benji), qui m'ont plusieurs fois tiré d'affaire en me prêtant des détecteurs infrarouges pour mener à bien certaines expériences.

J'ai une immense pensée pour tous les doctorants et stagiaires des équipes SLM et CMT que j'ai cotoyé durant ma thèse et avec qui j'ai partagé de bons moments de rire. Le fait de plaisanter fréquemment avec vous m'a permis de rester motivé pour aller de l'avant. A ce titre, je remercie vivement Delphine Descloux, mon experte en stress attitrée, pour sa bonne humeur et toutes les discussions non scientifiques (musique, soirées, sport, voyages, mode etc.) que nous avons eu pendant la thèse. C'était agréable d'échanger avec toi et je suis sûr que dans un an tu seras prête à soutenir ! Par la même occasion, je remercie grandement Guillaume Aoust, également pour sa bonne humeur et toutes les discussions que nous avons eues ensemble. J'ai vite réalisé que tu étais un génie (c'est pas donné à tout le monde de faire l'équivalent de deux thèses en trois ans) et je reste impressionné par tout ce que tu connais à la fois en physique, en maths et ... en tout en fait. De plus, je remercie très amicalement Jessica Barrientos Barria, Cédric Laporte, Dominique Mammez, Erwan Cadiou, Fabien Theron, Alexis Bonnin (compère du RER B et de ses aléas), Robert George, Malik Nafa, Gautier Vilmart, Olivier Carrivain et Geoffrey Renon. Je souhaite également bon courage à Julie Armougom qui va reprendre la suite de ma thèse.

Pour finir, je tiens à remercier mes amis et ma famille, pour le soutien sans faille qu'ils m'ont apporté durant ces trois années. Vous m'avez toujours redonné confiance dans les moments difficiles (et il y en a eu énormément) et c'est aussi grâce à vous tous que j'ai pu aller au bout. J'ai toujours pris beaucoup de plaisir à faire des sorties avec vous pour mettre la thèse de côté le temps d'une soirée, d'un week-end ou d'une période de vacances, afin de revenir à chaque fois gonflé d'une motivation nouvelle et avec la certitude d'être capable de venir à bout des difficultés que je rencontrais. Parmi ces personnes, j'embrasse et je remercie infiniment mon frère Florent, qui m'a permis de comprendre qu'il n'y avait pas que la science dans la vie et à qui je souhaite bon courage pour ses études à Sciences Po, ainsi que mes parents qui m'ont énormément soutenu tout au long de ma scolarité et qui ont toujours tout fait pour que je réussisse. Ce travail, c'est aussi le vôtre.

Table des matières

Remerciements	3
Table des matières	9
Introduction	11
1 Optique non linéaire dans les oscillateurs paramétriques optiques	19
Objectifs	19
1.1 Généralités sur les processus d'optique non linéaire d'ordre 2	20
1.2 Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO)	23
1.2.1 Les OPO simplement résonnant (SRO)	25
1.2.2 Les OPO doublement résonnants (DRO)	26
1.2.3 Calcul de seuil en régime nanoseconde	27
1.2.4 Effets liés au retour de l'onde de pompe	29
1.3 Accord de phase par biréfringence dans ZnGeP_2 et CdSe	32
1.3.1 Comparaison des cristaux non linéaires biréfringents émettant dans la gamme spectrale 6-16 μm	35
1.3.2 Caractérisation des cristaux de ZGP et de CdSe	41
1.4 Le quasi-accord de phase	48
1.4.1 Principe de fonctionnement	48
1.4.2 Le cristal d'OP-GaAs	51
Synthèse	55
2 Oscillateurs paramétriques optiques doublement résonnant pour la détection d'espèces chimiques à distance	57
Objectifs	57
2.1 Sources cohérentes à spectre fin basées sur les cristaux non linéaires en bande III	58
2.2 Principe de fonctionnement des OPO à cavités imbriquées	59

2.3	Réalisation expérimentale d'un NesCOPO en ZGP/CdSe pompé par un laser à fibre monofréquence	65
2.3.1	Présentation du laser de pompe	66
2.3.2	Dimensionnement du NesCOPO	67
2.3.3	Mise en forme du faisceau de pompe	68
2.3.4	Calculs de seuil	70
2.3.5	Caractérisation du NesCOPO	72
2.3.6	Analyse du spectre du NesCOPO en ZGP	77
2.4	Réalisation expérimentale d'un NesCOPO en OP-GaAs pompé par un microlaser Tm ³⁺ :YAP monofréquence	82
2.4.1	Présentation du laser de pompe	82
2.4.2	Présentation des cristaux d'OP-GaAs	83
2.4.3	Dimensionnement du NesCOPO et mise en forme du faisceau de pompe	86
2.4.4	Caractérisation du NesCOPO	90
2.4.5	Analyse du spectre du NesCOPO en OP-GaAs	94
2.5	Détection à distance de vapeurs d'ammoniac	96
	Synthèse	101
3	Oscillateurs paramétriques optiques très largement accordables à condition d'accord de phase élargie	103
	Objectifs	103
3.1	Contexte	104
3.2	Longueur de cohérence	106
3.3	Conditions d'oscillation du Sheet OPO	109
3.3.1	Sheet OPO simplement résonnant et doublement résonnant	109
3.3.2	Effet du désaccord de phase sur le seuil d'oscillation	111
3.4	Contenu spectral du Sheet OPO	114
3.4.1	Sélection spectrale en cavité monolithique	115
3.4.2	Nouveau formalisme	117
3.5	Accordabilité en longueur d'onde du Sheet OPO	123
3.5.1	Accordabilité via la longueur d'onde de pompe	123
3.5.2	Accordabilité via la longueur de cavité	130
3.5.3	Accordabilité via la température	131
3.5.4	Accordabilité sans sauts de mode	134
3.6	Conception du Sheet OPO en ZGP	137
	Synthèse	140

4	Montée en énergie largement accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm	141
	Objectifs	141
4.1	Montée en énergie d'un laser à cascade quantique monofréquence par amplification paramétrique optique	143
4.1.1	Propriétés d'accordabilité des cristaux de ZGP utilisés pour l'amplification paramétrique optique	144
4.1.2	Expérience d'amplification du laser à cascade quantique, mesure du gain	146
4.2	Etude des propriétés d'accordabilité d'un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel	151
4.2.1	Différences de fréquences dans un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel	153
4.2.2	Oscillateur paramétrique optique muni d'un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel	156
	Synthèse	160
	Conclusion et perspectives	161
A	Equations de propagation non linéaires du champ électrique	165
B	Résolution des équations de propagation non linéaires	169
B.1	Résolution des équations à l'accord de phase	169
B.2	Résolution des équations hors accord de phase : calcul du gain du Sheet OPO .	171
B.2.1	Cas général	171
B.2.2	Approximation de non déplétion de la pompe	174
C	Détail des calculs d'accordabilité par sauts de modes dans le Sheet OPO	177
C.1	Accordabilité via la longueur de cavité	177
C.2	Accordabilité via la température du cristal	179
D	Liste des publications et des communications	183
D.1	Publications	183
D.2	Communications	183

Introduction

Les sources lasers sont de plus en plus employées pour leurs propriétés remarquables, bien différentes des autres sources lumineuses. Tirer parti de l'interaction du rayonnement laser avec les atomes et les molécules qu'il traverse a constitué un élément déclencheur du développement de nombreuses sources dans des gammes spectrales bien précises et variées. En particulier dans l'infrarouge, la présence de raies d'absorption caractéristiques de molécules simples a ouvert la voie à un immense champ d'applications scientifiques et technologiques, notamment pour la spectroscopie, la métrologie, le contrôle des processus industriels, la médecine, la photochimie ou la biologie. La gamme spectrale infrarouge 6-16 μm présente un fort intérêt en raison de la présence de raies d'absorption fondamentales de nombreuses espèces chimiques. Quelques exemples sont présentés ci-dessous pour illustrer ce propos. Il est par exemple possible de déterminer la présence ou non d'une molécule, d'obtenir des informations sur la cinétique des réactions chimiques [Rud13], ou bien mesurer la concentration des différents isotopes d'une même espèce chimique via l'utilisation d'un faisceau cohérent émettant dans ce domaine spectral. Des besoins existent également pour l'enrichissement isotopique par excitation sélective de molécules au-delà de 10 μm [Eer76]. En médecine, les sources lasers de l'infrarouge lointain ont permis de grandes avancées dans l'imagerie biomédicale et l'analyse de tissus biologiques [Kro14], en particulier pour le diagnostic précoce des cancers [Sed13], détecter des molécules spécifiques contenues dans le plasma sanguin [Mah12] [Bra13a] ou du glucose [Son13], et reconstituer des images précises de certains éléments du corps (dents, ligaments, tendons) tout en ayant accès à leur composition [Bel15]. De plus, elles peuvent être employées pour la chirurgie laser, comme en témoigne le projet européen MIRSURG portant sur l'ablation de tissus à 6,45 μm . Dans un autre registre, l'interaction entre le rayonnement laser et la matière peut également être mise à profit pour usiner et découper des pièces avec le laser CO_2 ou pour des applications militaires telles que les contre-mesures optiques entre 3 et 5 μm dans le but de brouiller les systèmes de guidage des missiles [Kie15], pour lesquelles des systèmes opérationnels ont déjà été réalisés par BAE Systems (US) et Northrop Grumman (US).

Ces dernières années, les sources lasers infrarouges ont connu un grand essor dans les domaines de la spectroscopie et de la spectrométrie pour répondre à des besoins civils et militaires,

que ce soit pour identifier la structure électronique de nouvelles molécules, déterminer les éléments constitutifs d'un minéral ou détecter des espèces chimiques gazeuses à l'état de trace dans l'air ambiant ou dans les couches de l'atmosphère, et peut-être même un jour sur une exoplanète. Les capacités de détection et d'identification à distance de gaz par mesures optiques ne nécessitent pas la collecte et le transport d'échantillons et sont donc très recherchées, tout en représentant de grands défis technologiques. Les méthodes les plus prometteuses pour répondre aux exigences d'une mesure à distance, tout en garantissant une interaction très faible non contaminante et non destructive avec la substance à analyser, sont celles basées sur la spectrométrie d'absorption différentielle du signal rétrodiffusé : LIDAR à absorption différentielle (DIAL) et imagerie active multi-spectrale de gaz. Idéalement, les sources cohérentes utilisées pour détecter des gaz à l'état de traces dans l'atmosphère requièrent à la fois un spectre fin ($< 0,1$ dans l'infrarouge moyen, $< 1 \text{ cm}^{-1}$ dans l'infrarouge lointain) ainsi qu'une grande accordabilité en longueur d'onde (plusieurs dizaines ou centaines de cm^{-1}) afin de pouvoir identifier de façon sélective les espèces chimiques, tout en ayant une bonne qualité spatiale de faisceau (proche de la limite par diffraction) et suffisamment d'énergie pour réaliser une mesure à longue distance. De ce fait, disposer de sources impulsionnelles, compactes et robustes, est fortement souhaitable. Notons qu'il est également possible de faire de la spectrométrie de gaz par peignes de fréquences et détection hétérodyne (donc cohérente). Pour la détection à distance, ces techniques sont pour l'instant limitées en terme de portée, sauf à utiliser une cible coopérative [Rie14], et il y a un risque de perte de cohérence sur de longs trajets lorsque l'atmosphère est turbulente [Gio15]. De plus, ces peignes de fréquence sont émis par des lasers à fibre femtosecondes relativement compacts et robustes, mais d'énergie limitée et émettant dans l'infrarouge proche.

Dans le domaine civil, de nombreux systèmes ont été développés dans la gamme spectrale 3-5 μm pour la détection de polluants atmosphériques ou de gaz à effets de serre, qui constitue un enjeu environnemental majeur [Edn93] [Bar14b]. Des systèmes similaires sont utilisés dans l'industrie entre 3 et 5 μm pour le contrôle de la qualité de l'air intérieur ou la détection de polluants [Rob95]. Ils sont également développés dans la gamme spectrale 6-16 μm pour la détection de SF_6 à l'état de traces, qui permet d'effectuer la maintenance des transformateurs électriques, la détection de HNO_3 qui intervient dans les pluies acides ou de H_2S qui peut être relâché en cas de fuite ou d'accident dans l'industrie pétrochimique de l'ammoniaque lors de la manipulation et le stockage des wafers pour l'industrie microélectronique. Dans le domaine militaire, les sources lasers infrarouges sont essentiellement employées, en plus des contre-mesures optiques, pour la détection d'espèces chimiques nocives dans l'infrarouge lointain, notamment les principaux explosifs, neurotoxiques et gaz de combat. Ces espèces chimiques présentent un grand nombre de raies d'absorption rovibrationnelles entre 6 et 16 μm comme le montre la Figure 1 [Web05]. Dans ce domaine spectral, ces raies d'absorption ont l'avantage de ne pas se

recouvrir, contrairement à celles qui se situent autour de 4 μm : il est donc possible de détecter sélectivement chacune d'entre elles. Dans la gamme spectrale 8-12 μm qui constitue la bande III de transmission de l'atmosphère, il est possible de les identifier à plusieurs kilomètres du fait de la faible atténuation atmosphérique qui permet à un faisceau cohérent de se propager sur de longues distances. Disposer d'une source infrarouge adaptée à la mesure sélective à distance d'espèces chimiques nocives est particulièrement important pour la défense : c'est pourquoi les travaux effectués dans cette thèse se focalisent sur le développement d'une telle source.

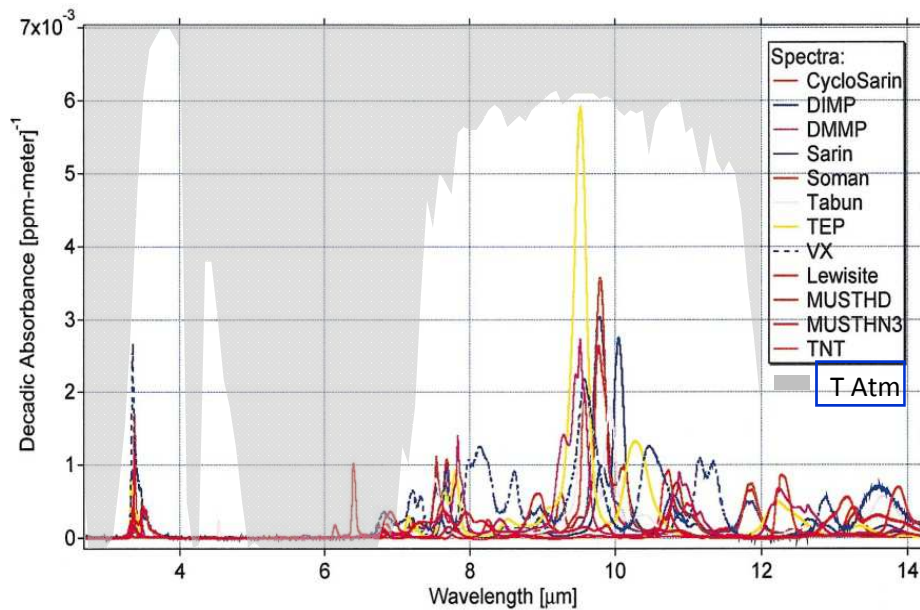


Figure 1 – Spectre d'absorption des principaux neurotoxiques, explosifs et gaz de combat dans l'infrarouge [Web05].

La Figure 2 donne un aperçu des plages d'émission des différentes sources cohérentes disponibles dans l'infrarouge. Aucun laser solide n'émet entre 6 et 16 μm mais le laser CO_2 a déjà démontré son potentiel en terme de détection de gaz en cellule ou dans l'atmosphère dans cette gamme spectrale [Gra86] [Pal09]. Avec ce laser, des mesures de SF_6 ont été effectuées jusqu'à la ligne d'horizon à une distance de 16 kilomètres [Car95]. Notons également l'existence de systèmes LIDAR DIAL très aboutis mais très encombrants tels que le Wildcat, permettant de mesurer des concentrations jusqu'à 20 kilomètres et d'effectuer des mesures résolues en distance sur 5 kilomètres via l'émission d'impulsions accordables de 1 J [Coh01]. Cependant, l'accordabilité du laser CO_2 est restreinte à des valeurs discrètes de longueurs d'onde dans les bandes 9,15-9,83 μm et 10,09-10,93 μm . Cette accordabilité limitée ne permet pas de couvrir l'ensemble des espèces d'intérêt présentes dans la gamme spectrale 6-16 μm , et rend plus difficile la discrimination entre plusieurs espèces présentes simultanément, ainsi que la discrimination entre une espèce d'intérêt et les interférents naturellement présents dans l'atmosphère (H_2O , CO_2 , CH_4 ,

N₂O ...).

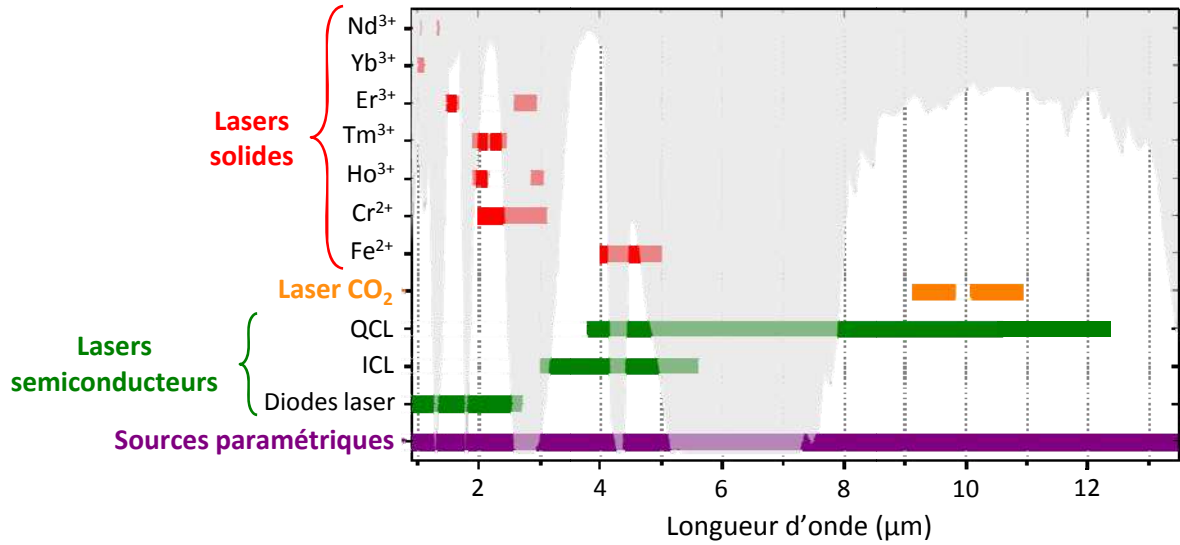


Figure 2 – Plages d'émission des différentes sources cohérentes disponibles dans l'infrarouge.

Depuis leur invention en 1994 [Fai94], les lasers à cascade quantique (QCL) sont des candidats potentiels pour la détection de gaz nocifs et d'explosifs entre 6 et 16 μm [Fai96] [Sir97] [Gma00] [Hug13]. En parallèle des expériences effectuées par des équipes de recherche, des systèmes commerciaux ont été développés, notamment par Daylight Solutions, Alpes Laser, Cascade Technologies, Pranalytica ou Aerovia. Les lasers à cascades quantiques ont par exemple été utilisés dans des expériences de détection locale basées sur l'effet photoacoustique [Pat08]. A ce titre, des mesures photoacoustiques ont été effectuées au GSMA (Groupe de Spectroscopie Moléculaire et Atmosphérique, Reims) pour détecter des gaz à effet de serre et des polluants atmosphériques, tels que le dioxyde carbone et le butane avec un QCL commercial émettant à 10,5 μm [Mam13], ou du méthane et du monoxyde d'azote respectivement à 7,9 μm et 5,4 μm [Zen10]. D'autres molécules ont également pu être sondées par mesure photoacoustique, notamment des traces d'acétone et d'acide acétique à l'état gazeux en utilisant un QCL accordable entre 8 et 10 μm [Hol10] ou bien des traces de TNT à 7,35 μm [Cho14]. Ces lasers peuvent également servir pour la détection locale d'explosifs (PETN, TNT, DNT, RBX, etc.) à l'état de traces présents dans l'air ambiant ou déposés sur des surfaces, à des distances typiques comprises entre 10 et 50 mètres [Cra13] [Fuc13] [Wag15], bien que certaines mesures réalisées sur le TNT par imagerie hyperspectrale atteignent 150 mètres de portée. De plus, ils peuvent être utilisés pour la détection à distance par détection hétérodyne [Mac13] [Mac15]. En parallèle de leur intégration dans des systèmes de mesures, l'accordabilité des sources à base de QCL n'a cessé de s'améliorer, comme en témoigne le système MIRcat développé récemment par Daylight Solutions. Ce système constitué de plusieurs modules QCL émet entre 6,5 et 12,4 μm ou 5,5 et

11 μm et délivre des impulsions de 40 à 500 ns avec une largeur spectrale inférieure à 1 cm^{-1} , lui permettant de prétendre à l'analyse des raies d'absorption présentes sur sa plage d'accordabilité, contenant notamment l'intégralité de la bande III. Cependant, la puissance crête délivrée par les lasers à base de semiconducteurs reste faible en raison du faible temps de vie des porteurs qui ne permet pas un régime impulsionnel énergétique. Ainsi, les puissances crêtes démontrées en bande III ne dépassent pas 10 W à température ambiante, ce qui limite le potentiel de ces sources pour les mesures de détection de gaz longue portée s'il n'y a pas d'amplification du faisceau.

La seule filière technologique capable de remplir toutes les exigences d'une source cohérente pour la détection à distance dans la gamme spectrale 6-16 μm est l'optique non linéaire d'ordre 2 sur laquelle reposent les sources paramétriques. Ces sources basées sur la conversion de fréquence émettent des faisceaux cohérents dont la longueur d'onde est accordable sur une plage spectrale uniquement limitée par le milieu non linéaire utilisé. Ainsi, il existe des matériaux non linéaires capables de couvrir l'intégralité de la gamme spectrale 6-16 μm ou 8-12 μm . La conversion de fréquence peut avoir lieu en simple passage dans un cristal non linéaire (différence de fréquences et amplification paramétrique), ou bien à l'intérieur d'une cavité optique résonante (oscillateur paramétrique optique, d'acronyme OPO). Les OPO sont naturellement efficaces en régime impulsionnel et délivrent naturellement de fortes puissances crêtes de l'ordre du kilowatt. Une source paramétrique permet donc potentiellement de détecter un grand nombre d'espèces chimiques dans la gamme spectrale 6-16 μm à une distance de plusieurs centaines de mètres. Pour accroître l'énergie du faisceau émis et ainsi la portée de mesure, il est possible de réaliser une chaîne d'amplification paramétrique. Cependant, nous verrons qu'obtenir un faisceau de grande finesse spectrale dans un oscillateur paramétrique sans injection d'une source annexe est difficile à mettre en oeuvre en régime impulsionnel et fait donc appel à un savoir faire spécifique, illustré par le faible nombre de publications sur le sujet.

Concernant les sources paramétriques, la très grande majorité des développements technologiques menés à ce jour ont été faits en bande II (3-5 μm), ce qui a permis d'aboutir à des démonstrateurs LIDAR quasiment opérationnels pour la détection de gaz. On peut citer à titres d'exemples un système à deux longueurs d'onde (DIAL) du National Physical Laboratory (UK) pour détecter le méthane à 3,4 μm à une distance de 0,5 km [Mil97], ou le développement d'une chaîne oscillateur amplificateur (MOPA) à Lund Institute of Technology (Suède), accordable entre 220 nm et 4,3 μm et émettant jusqu'à 10 mJ [Wei03], ainsi que les développements récemment réalisés à l'Onera dans le cadre de la détection des gaz à effets de serre [Bar14a]. Concernant l'imagerie hyperspectrale, les expériences menées par Kulp et al aux Laboratoires Sandia (US) restent une référence [Kul02]. Ces développements ont été rendus possibles grâce aux progrès réalisés sur les cristaux non linéaires à base d'oxydes et les lasers de pompe à 1 μm , qui trouvent d'autres applications en optronique (contre-mesures, endommagement laser,

hyperfréquences).

Dans la gamme spectrale 6-16 μm , la situation reste très défavorable en raison du faible nombre de cristaux non linéaires transparents et efficaces. Comme les cristaux à base d'oxydes absorbent au-delà de 5 μm , il faut avoir recours à des cristaux souvent moins matures qui ne peuvent souvent être pompés qu'à partir de 2 μm , restreignant par la même occasion le choix des lasers de pompe adaptés aux expériences. Pour contourner cette limitation, les équipes de recherche ont parfois utilisé des architectures non linéaires en cascade, présentant plusieurs inconvénients comme un faible rendement de conversion et un fort encombrement [Mou02]. Une autre solution envisagée pour la détection de gaz se base sur la différence de fréquences entre deux faisceaux dont la longueur d'onde peut éventuellement être inférieure à 2 μm [Bis06], ou sur l'insertion du cristal non linéaire directement dans la cavité du laser de pompe [Rob14]. Un état de l'art des sources paramétriques émettant au-delà de 6 μm sera effectué lors des deux premiers chapitres de ce manuscrit, en insistant sur leurs principales caractéristiques. Cependant, ces sources déjà existantes pèchent généralement en terme de finesse spectrale, de qualité spatiale ou bien d'encombrement.

Ainsi, pour couvrir la gamme spectrale 6-16 μm , il n'existe toujours pas de source paramétrique compacte en régime nanoseconde qui délivre un faisceau fin spectralement, largement accordable, de bonne qualité spatiale et énergétique car son développement se heurte à de nombreuses difficultés, aussi bien technologiques que scientifiques. Cette thèse a pour but principal la réalisation de telles sources infrarouges adaptées à la détection de gaz à distance, reposant sur l'optique non linéaire d'ordre 2, sans concevoir une architecture en cascade. Afin de réduire l'encombrement de la source et obtenir un fort rendement, nous nous orientons vers la conception d'oscillateurs paramétriques optiques (OPO) éventuellement suivis d'étages d'amplification plutôt que sur la différence de fréquences. Pour faire face à la difficulté d'obtenir une source de pompe adaptée à 2 μm , qui soit notamment fine spectralement, des collaborations avec des équipes de recherche spécialisées dans le développement des sources lasers à 2 μm ont été établies afin de mener à bien les expériences majeures.

Au chapitre 1, nous étudions le fonctionnement général des OPO puis, nous identifions les cristaux non linéaires les plus adaptés pour effectuer la conversion de longueurs d'onde dans la gamme spectrale 6-16 μm . Les cristaux que nous utilisons sont difficiles à se procurer, parfois non disponibles commercialement et bénéficient des derniers développements menés par des équipes de recherche spécialisées dans les matériaux infrarouges pour l'optique non linéaire, avec lesquelles nous avons collaboré. Nous présentons ensuite le coeur du travail de cette thèse, qui a consisté à déterminer des solutions pour générer en régime impulsionnel un faisceau fin spectralement, idéalement monomode longitudinal et sans avoir recours à une source d'injection annexe, tout en étant largement accordable et de bonne qualité spatiale. Ceci nous a amenés à développer de nouveaux oscillateurs paramétriques optiques et de nouveaux cristaux en se

basant sur le savoir faire de l'Onera, sur lesquels reposent les expériences présentées au chapitre 2, mais également à concevoir une nouvelle sorte d'OPO innovant encore plus compact aux propriétés d'accordabilité inédites, dont les principes de fonctionnement théoriques et les étapes de conception sont détaillés au chapitre 3. Nous étudions enfin au chapitre 4 la montée en énergie par amplification paramétrique des faisceaux fin spectralement générés entre 6 et 16 μm .

Chapitre 1

Optique non linéaire dans les oscillateurs paramétriques optiques

Objectifs

Le but de ce chapitre est de présenter les concepts d'optique non linéaire qui seront utilisés tout au long de ce manuscrit. Dans un premier temps, des rappels seront faits sur les processus non linéaires d'ordre 2 et le mélange à trois ondes. Puis, nous présenterons différents cristaux non linéaires dans lesquels ces processus donnent lieu à la génération de longueurs d'ondes dans la bande III élargie (6-16 μm). La génération de longueurs d'onde s'appuiera sur deux méthodes différentes suivant les cristaux utilisés : l'accord de phase par biréfringence ou le quasi-accord de phase. Enfin, nous expliquerons le fonctionnement général d'un oscillateur paramétrique optique (OPO), constitué d'une cavité optique dans laquelle est inséré un cristal non linéaire. Nous verrons quelles sont les différentes architectures possibles, telles que l'OPO simplement résonnant ou doublement résonnant et quelles sont leurs avantages et inconvénients respectifs. Nous discuterons également de la maîtrise du contenu spectral de l'OPO, problématique essentielle de cette thèse afin de générer un faisceau à la fois monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm .

1.1 Généralités sur les processus d'optique non linéaire d'ordre 2

Les processus non linéaires apparaissent dans certains milieux diélectriques lorsqu'ils sont en présence d'une onde lumineuse incidente de forte intensité, appelée onde de pompe et caractérisée par une longueur d'onde λ_p , une pulsation ω_p et une phase φ_p . Supposons que nous éclairons un matériau non linéaire avec cette onde de pompe. Une polarisation non linéaire d'ordre 2 proportionnelle au carré du champ électrique incident $P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t)$ est rayonnée par le matériau. En général, la susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$ est un tenseur dont les éléments donnent la "force" et la polarisation de la réponse du milieu en régime non linéaire. La polarisation non linéaire $P^{(2)}(t)$ va engendrer 2 nouvelles ondes, appelées respectivement signal et complémentaire, de longueurs d'ondes respectives λ_s et λ_c . Historiquement, la théorie classique de l'optique non linéaire a été établie en 1962 par Armstrong et al [Arm62], soit deux ans après l'invention du premier laser par Maiman [Mai60] et un an après la première observation de génération de second harmonique optique par Franken [Fra61], expérience fondatrice de l'optique non linéaire. Les trois ondes, pompe, signal et complémentaire, sont liées par la relation de conservation de l'énergie $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c$ [Blo80] où $\hbar = h/2\pi$ est la constante de Planck réduite. Notons que ces relations se généralisent à des non linéarités d'ordre supérieur, notamment celles d'ordre 3 qui rendent compte de plusieurs phénomènes physiques tels que l'effet Kerr optique, l'absorption à deux photons, l'effet Raman, l'effet Brillouin, etc. et qu'il est possible de générer des harmoniques plus élevés grâce à des interactions non linéaires extrêmement fortes.

Pour avoir un processus non linéaire efficace, les ondes signal et complémentaire doivent interférer constructivement avec la polarisation non linéaire qui les a rayonnées. Pour cela, les trois ondes doivent se propager à la même vitesse dans le cristal et respecter la condition d'accord de phase traduisant la conservation de l'impulsion $\hbar\vec{k}$ [Blo80] : $\Delta\vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c = \vec{0}$ où $k_i = n(\omega_i)\omega_i/c$ est le module du vecteur d'onde de l'onde considérée, n l'indice de réfraction du milieu et c la vitesse de la lumière dans le vide. Cette condition n'est pas stricte et une interaction non linéaire efficace est quand même possible pour Δk très faible mais non nul. Cette tolérance permet de définir la bande de gain du processus non linéaire, que nous retrouverons tout au long de ce manuscrit. Dans toute la suite, nous nous placerons dans le cas d'un accord de phase colinéaire, où les vecteurs d'onde des trois ondes sont colinéaires à l'axe de propagation. Remarquons dès maintenant que dans un matériau isotrope, la dispersion de l'indice de réfraction rend impossible la réalisation de la condition $\Delta k = 0$, sauf dans quelques situations très particulières peu favorables à une interaction non linéaire efficace et non traitées dans ce manuscrit (au voisinage d'une résonance, dans certains métamatériaux, dans le domaine térahertz, etc.).

Ecrivons l'enveloppe du champ électrique d'une onde de porteuse ω_i se propageant selon l'axe de propagation z sous la forme suivante :

$$E_i(z) = \sqrt{\frac{\omega_i}{n_i}} u_i(z) \exp(i(\varphi_i + k_i z)), \quad (1.1)$$

où l'indice i peut être remplacé par p, s, c pour la pompe, le signal ou le complémentaire et où $u(z)$ correspond à l'amplitude normalisée du champ électrique. Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable et en négligeant la dispersion de $\chi^{(2)}(\omega)$, les équations de propagation non linéaires des champs et des phases des différentes ondes sont données par les équations différentielles couplées suivantes pour un milieu sans pertes [Ros02] :

$$\begin{aligned} \frac{du_s}{dz} &= -\kappa u_c(z) u_p(z) \sin(\varphi + \Delta k z) \\ \frac{du_c}{dz} &= -\kappa u_s(z) u_p(z) \sin(\varphi + \Delta k z) \\ \frac{du_p}{dz} &= \kappa u_s(z) u_c(z) \sin(\varphi + \Delta k z) \quad , \end{aligned} \quad (1.2)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\varphi_s}{dz} &= \kappa \frac{u_c(z) u_p(z)}{u_s(z)} \cos(\varphi + \Delta k z) \\ \frac{d\varphi_c}{dz} &= \kappa \frac{u_s(z) u_p(z)}{u_c(z)} \cos(\varphi + \Delta k z) \\ \frac{d\varphi_p}{dz} &= \kappa \frac{u_s(z) u_c(z)}{u_p(z)} \cos(\varphi + \Delta k z) \quad , \end{aligned} \quad (1.3)$$

où $\varphi = \varphi_p - \varphi_s - \varphi_c$ désigne la phase relative entre les trois ondes et où κ est un coefficient non linéaire généralisé défini par :

$$\kappa = \frac{d_{\text{eff}}}{c} \sqrt{\frac{\omega_p \omega_s \omega_c}{n_p n_s n_c}}. \quad (1.4)$$

Le coefficient $d_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \chi_{\text{eff}}$, défini en Annexe A, correspond au coefficient non linéaire effectif qui détermine en partie l'efficacité de l'interaction non linéaire dans la direction étudiée. Son calcul s'effectue à l'aide du tenseur de susceptibilité, en projetant les différents éléments du tenseur sur les directions de polarisation des trois ondes. Un exemple de calcul sera donné ultérieurement. Quand la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ est vérifiée, les équations 1.2 montrent que la phase relative prend la valeur $\varphi = -\frac{\pi}{2}$ pour avoir un transfert d'énergie efficace de la pompe vers les ondes signal et complémentaire. Cette phase relative a de nombreuses conséquences sur l'efficacité des processus non linéaires, notamment en cavité, dont nous discuterons au chapitre 2. Les calculs permettant d'établir ces équations à partir des équations

de Maxwell ainsi que les différentes approximations et hypothèses utilisées pour les écrire sous cette forme sont détaillés en Annexe A. Pour obtenir une équation plus commode sur l'évolution de la phase, nous pouvons poser $\phi = \varphi + \Delta k z$. En calculant $\frac{d\varphi_p}{dz} - \frac{d\varphi_s}{dz} - \frac{d\varphi_c}{dz}$ à partir des équations 1.3 on trouve finalement :

$$\frac{d\phi}{dz} = \Delta k + \kappa \left(\frac{u_s(z) u_c(z)}{u_p(z)} - \frac{u_c(z) u_p(z)}{u_s(z)} - \frac{u_s(z) u_p(z)}{u_c(z)} \right) \cos(\phi). \quad (1.5)$$

L'intensité de chaque onde est proportionnelle à $|E|^2$ et donc à u^2 . A partir des équations différentielles portant sur u , il est possible de montrer que l'intensité totale $I = I_p + I_s + I_c$ est conservée lors de la propagation soit $\frac{dI}{dz} = 0$. Ceci est l'expression des relations de Manley-Rowe [Blo80], fondamentales en optique linéaire. Ces relations permettent d'identifier quatre quantités invariantes :

$$\begin{aligned} m_1 &= u_c^2(z) + u_p^2(z) = u_c^2(0) + u_p^2(0) \\ m_2 &= u_s^2(z) + u_p^2(z) = u_s^2(0) + u_p^2(0) \\ m_3 &= u_s^2(z) - u_c^2(z) = u_s^2(0) - u_c^2(0) \quad , \end{aligned} \quad (1.6)$$

$$\Gamma = u_s u_c u_p \cos(\phi) + \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)}. \quad (1.7)$$

Ces relations indiquent que tout photon de pompe converti donne instantanément lieu à la création d'un photon signal et complémentaire. De la même façon, la destruction d'un photon signal et complémentaire s'accompagne instantanément de la création d'un photon de pompe [Boi11]. Dans ce cas, on parle de reconversion des ondes générées vers la pompe, ce qui arrive fréquemment lorsque l'intensité des ondes signal et complémentaire devient comparable à celle de la pompe incidente tandis que l'intensité de la pompe après conversion s'approche de zéro. Les relations de Manley-Rowe et la constante Γ facilitent grandement la résolution des équations couplées 1.2 et permettent de trouver des solutions analytiques, comme ceci est présenté dans l'Annexe B. A noter que la constante Γ peut être perçue comme le hamiltonien du système, soit la densité volumique d'énergie des trois ondes dans le cristal non linéaire, et qu'il est possible de réécrire les équations 1.2 en fonction des dérivées partielles de Γ par rapport aux amplitudes normalisées $u(z)$ [For05].

De façon générale, tout couple de longueurs d'onde (λ_s, λ_c) permettant de vérifier la condition d'accord de phase et la conservation de l'énergie est susceptible d'être émis par interaction non linéaire. L'avantage de l'optique non linéaire vis-à-vis du laser est de permettre la génération

de tout un continuum de longueurs d'onde grâce à ces propriétés, car les longueurs d'onde générées ne sont plus dépendantes des transitions atomiques du cristal. Il est possible de faire varier la longueur d'onde de pompe pour y parvenir. Lorsque la longueur d'onde et la direction du faisceau de pompe sont fixes, ce qui correspond au cas traité dans ce manuscrit, son vecteur d'onde $\vec{k}_p$ est également fixé : il faut alors jouer sur les propriétés de dispersion du cristal pour effectuer l'accordabilité.

Nous avons présenté les principes de base de l'optique non linéaire d'ordre 2. Nous allons maintenant nous intéresser à l'un des composants fondamentaux des expériences d'optique non linéaire, l'oscillateur paramétrique optique, dont nous allons expliquer le principe de fonctionnement et présenter les différentes architectures possibles.

1.2 Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO)

Les OPO sont l'une des briques de bases de l'optique non linéaire d'ordre 2. Ils partagent avec les lasers un certain nombre de points communs comme les notions de seuil d'oscillation, de gain, pertes, résonances optiques, modes longitudinaux et transverses, etc. Cependant, il existe plusieurs différences majeures entre ces deux dispositifs. En particulier car l'émission d'un OPO est caractérisée par une interaction non linéaire non résonnante entre la pompe et le cristal, et n'est pas dépendante des transitions atomiques des éléments qui constituent le cristal. Ceci permet d'avoir une accordabilité sur une très grande gamme spectrale, bien supérieure à celle des lasers. De plus, contrairement à la majeure partie des lasers (excepté les lasers bifréquences), deux ondes de longueurs d'ondes différentes sont émises à tout instant par l'OPO.

Nous distinguons alors deux types d'OPO, les OPO simplement résonnants (SRO) pour lesquels le signal ou le complémentaire résonne dans la cavité, et les OPO doublement résonnant (DRO) pour lesquels les deux ondes sont résonnantes. Nous n'aborderons pas le cas des OPO triplement résonnant où la pompe est également résonnante dans la cavité, ce type d'OPO ayant une émission très instable. Ils sont réservés à des problématiques spécifiques telles que le chaos et la génération d'états quantiques de bruit comprimés. De plus, un OPO peut être conçu de façon monolithique, c'est-à-dire en déposant les miroirs directement sur les faces du cristal. Nous présenterons dans le chapitre 3 un nouveau type d'OPO monolithique, et nous verrons comment il est possible d'y obtenir une émission monomode.

Le premier OPO a été réalisé par Giordmaine et Miller en 1965 [Gio65]. Peu à peu, de nombreux OPO sont conçus grâce à l'utilisation des différents cristaux non linéaires connus [Har69] à la fois en architecture SRO et DRO [Bjo68a]. Afin d'approfondir la compréhension de l'oscillation paramétrique, des études théoriques portant sur le seuil d'oscillation [Bro79], le contenu spectral [Bjo68b] [Bar76], les lois de conservation de l'optique non linéaire [Blo80], la

compensation du walk-off [Arm97] [Smi98], la prise en compte des modes transverses [Sch98b], et sur l'influence de la focalisation de la pompe sur l'interaction paramétrique [Boy68] [Guh82] [Zon98] sont menées en parallèle des réalisations expérimentales. Par ailleurs, ces expériences sont enrichies à la fois par l'apparition de nouveaux cristaux non linéaires, tels que les cristaux fonctionnant en quasi-accord de phase [Fej92] [Pas12], grâce aux progrès réalisés en ingénierie des cristaux. De plus, la qualité des cristaux déjà existants s'améliore sans cesse. Tous ces facteurs contribuent, depuis 50 ans maintenant, à l'invention continue de nouvelles architectures d'OPO pour des applications spécifiques et à leur miniaturisation.

Les OPO peuvent être pompés en régime continu ou en régime impulsionnel. Le régime continu permet d'atteindre naturellement un état stationnaire. Ce régime est privilégié pour les applications de métrologie et de spectroscopie fine, où une très grande stabilité de la longueur d'onde et une très grande finesse spectrale sont requises [Bre11]. L'état stationnaire s'obtient également en régime impulsionnel microseconde (régime quasi-continu), très similaire au régime continu mais qui permet l'emploi de lasers de pompe de plus forte puissance crête. En régime continu et quasi-continu, le mode longitudinal qui a le plus de gain "écrase" progressivement tous les autres pendant le régime transitoire, et le spectre émis par l'OPO est donc naturellement monomode. Le gain paramétrique est à ce titre analogue au gain homogène d'un laser. À noter que le pompage synchrone des OPO, généralement requis en régime picoseconde et femtoseconde, est un autre cas de fonctionnement en régime stationnaire, mais conduit à un spectre nécessairement multimode [Des15].

En revanche, pour le régime impulsionnel nanoseconde, certaines propriétés comme le spectre n'ont pas le temps de s'établir définitivement. Tir à tir, l'OPO redémarre sur la fluorescence paramétrique spontanée [Kle68], et la faible compétition de modes longitudinaux implique que plusieurs longueurs d'ondes sont émises simultanément. Ces longueurs d'onde d'émission ne sont jamais les mêmes tir à tir, et l'OPO rencontre également de fortes fluctuations de puissance. Ainsi, le spectre d'émission en régime nanoseconde est naturellement multimode : certaines techniques particulières sont donc requises si l'on souhaite obtenir un faisceau monomode longitudinal.

Dans le cadre de cette thèse, nous allons nous focaliser sur le régime nanoseconde, qui permet d'atteindre des puissances crêtes supérieures à celles du régime continu ou quasi-continu, et qui est favorable pour détecter des gaz à distance dans l'atmosphère par mesure LIDAR. Nous allons à présent voir quel type d'OPO est le plus adapté pour atteindre cet objectif portant sur la maîtrise du contenu spectral.

1.2.1 Les OPO simplement résonnant (SRO)

Il s'agit des OPO les plus simples à concevoir et nous en présenterons un exemple typique dans la section 1.3 pour caractériser des cristaux non linéaires. Pour émettre un rayonnement au delà de 6 μm tout en extrayant un maximum d'énergie sur le complémentaire, l'onde signal est résonnante. La cavité est donc conçue avec des miroirs hautement réfléchissants à la longueur d'onde signal et qui transmettent totalement la pompe et le complémentaire. Pendant l'oscillation, l'onde complémentaire qui s'établit est telle que sa longueur d'onde et sa phase maximisent le gain paramétrique. Ce type d'OPO est réputé avoir un seuil d'oscillation assez élevé, même si un seuil de 2 μJ a déjà été démontré pour un SRO muni d'un cristal de ZGP de 24 mm de long, émettant à 6,6 μm et pompé à 3,1 μm (20 ns, 1-10 kHz) [Vod03]. Lorsque la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ est vérifiée, l'intensité de la pompe au seuil en régime continu dans l'approximation des ondes planes est donnée par [Ros02] :

$$I_{th} = \frac{\omega_p}{2Z_0} \left(\frac{\cosh^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{R}} \right)}{\kappa L} \right)^2, \quad (1.8)$$

où $Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \approx 377\Omega$ est l'impédance du vide, κ est le coefficient défini par la relation 1.4, L est la longueur du cristal et R est le coefficient de réflexion des miroirs (supposés identiques) pour l'onde signal.

Dans un SRO, l'intensité du signal peut être très élevée dans la cavité, ce qui permet d'extraire une onde complémentaire de forte énergie. L'onde signal résonnante peut avoir une très faible largeur spectrale, les impuretés spectrales étant transmises à l'onde complémentaire qui est libre (*idler* en anglais). De plus, en régime nanoseconde, la compétition de modes est faible au sein de la cavité, et la condition d'accord de phase n'est pas une condition stricte. Par ailleurs, comme l'OPO redémarre à chaque tir sur le bruit quantique de fluorescence paramétrique, qui est un processus spontané, les modes de l'onde signal qui oscillent sont variables tir à tir. Le contenu spectral est alors difficilement maîtrisable, et le spectre émis par l'OPO est en général multimode. L'utilisation d'une cavité instable, composée par exemple de deux miroirs plan, aggrave ce phénomène car des modes transverses constituant de nouvelles fréquences de résonances ont tendance à osciller en plus des modes longitudinaux. Ceci conduit à un spectre très large comme nous le verrons dans la section 1.3. Des éléments optiques peuvent néanmoins être ajoutés à l'intérieur ou à l'extérieur de la cavité, tels que des réseaux, des étalons ou des miroirs de Bragg volumiques, afin d'affiner le spectre en régime impulsif. Ceci conduit néanmoins à une forte perte d'énergie ou à une forte augmentation du seuil et ne rend pas nécessairement l'émission monomode, en particulier près de la dégénérescence. En conclusion, un OPO simplement résonnant sera principalement utilisé pour produire un faisceau complé-

mentaire énergétique mais pas pour obtenir un faisceau fin spectralement. Dans les sections 1.3 et 1.4, nous évoquerons des expériences intéressantes réalisées avec des SRO permettant d'obtenir un rayonnement complémentaire très énergétique au-delà de 6 μm . De même, la génération de longueurs d'onde entre 6 et 16 μm à haute énergie par mélange de fréquences se fera le plus souvent grâce à deux faisceaux très énergétiques issus de deux OPO simplement résonnants.

1.2.2 Les OPO doublement résonnants (DRO)

Dans le cas de ces OPO, l'onde signal et l'onde complémentaire sont toutes les deux résonnantes dans la cavité. Nous présentons ici quelques généralités sur les DRO et nous reviendrons en détail sur leur principe de fonctionnement spécifique au chapitre 2, notamment sur le principe de sélection spectrale pouvant conduire à une émission monomode longitudinale. À $\Delta k = 0$, et supposant un même coefficient de réflexion R pour le signal et le complémentaire, l'intensité au seuil en régime continu dans l'approximation des ondes planes est donnée par la relation [Ros02] :

$$I_{th} = \frac{\omega_p}{2Z_0} \left(\frac{\ln\left(\frac{1}{\sqrt{R}}\right)}{\kappa L} \right)^2. \quad (1.9)$$

La Figure 1.1 compare l'évolution du seuil dans le cas du SRO et du DRO en fonction du coefficient de réflexion R des miroirs supposé identique dans chaque cas, et montre que le DRO permet d'avoir un seuil bien plus faible, d'autant plus que les coefficients de réflexion sont proches de 1. À titre d'exemple, le seuil du DRO est 100 fois plus faible que celui du SRO quand le coefficient de réflexion des miroirs dépasse 95 %, et restera au moins 20 fois plus faible pour des coefficients de réflexion supérieurs à 80 %.

De plus, le fait d'avoir des peignes de modes à la fois sur l'onde signal et l'onde complémentaire limite fortement le nombre de modes qui peuvent osciller dans la cavité. En effet, l'oscillation est possible uniquement lorsqu'un mode signal et un mode complémentaire liés par la conservation de l'énergie coïncident via une double résonance, et ce n'est généralement pas le cas à cause de la dispersion. Ceci affine naturellement le spectre d'émission de l'OPO mais peut rendre l'intensité et la longueur d'onde d'émission beaucoup plus instables [Fal71]. En effet, une légère fluctuation de la longueur optique de la cavité peut entraîner un mauvais recouvrement entre le mode signal et le mode complémentaire doublement résonnant, voire induire un saut de modes de l'OPO sur une autre double résonance. Il est possible de réduire ces fluctuations via un asservissement électronique afin de bloquer la cavité sur une double résonance précise. Cependant, l'émission monomode est rarement garantie et nécessite une conception particulière telle que l'OPO doublement résonnant à cavités imbriquées (NesCOPO) dont nous parlerons

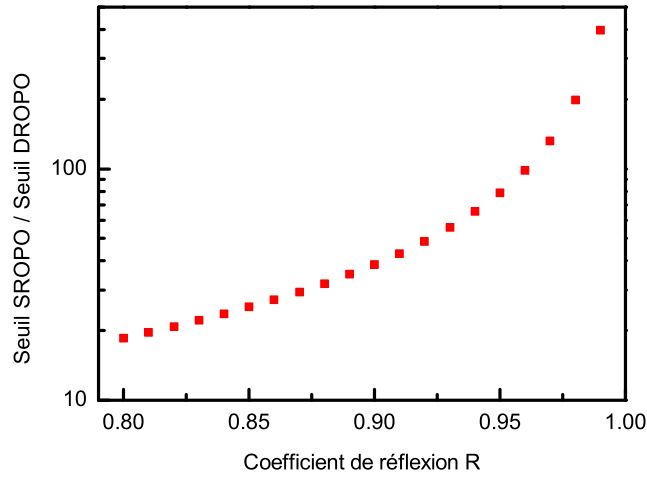


Figure 1.1 – Rapport entre le seuil d’oscillation en régime continu du SRO et du DRO équilibré (miroirs de mêmes coefficients de réflexion pour le signal et le complémentaire) en fonction de la valeur du coefficient de réflexion.

en détail au chapitre 2. Ce sont ces fameux NesCOPO que nous allons concevoir pour obtenir un rayonnement monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm .

Lorsqu’un OPO est pompé fortement au dessus du seuil, des phénomènes de saturation de puissance liés à la reconversion des ondes signal et complémentaire vers la pompe apparaissent, ce qui n’aurait jamais lieu dans un laser, les photons laser ne pouvant pas recréer des photons de pompe. Or, le seuil d’oscillation des DRO est relativement bas : il est donc difficile d’extraire beaucoup d’énergie d’un DRO tout en conservant une oscillation monomode longitudinale. De plus, les cycles de conversion/reconversion créent de nouvelles fréquences par mélanges croisés, ce qui entraîne un spectre multimode. Nous utiliserons donc les DRO pour travailler à faible puissance et pour affiner le spectre en vue d’obtenir un faisceau complémentaire monomode. Ils peuvent ensuite être insérés dans des architectures MOPA afin d’augmenter l’énergie du faisceau complémentaire tout en conservant un spectre fin. Ce système associant un NesCOPO suivis de cristaux amplificateurs a déjà été réalisé autour de 2 μm pour la détection de gaz à effet de serre, tels que le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4) ainsi que pour détecter l’eau (H_2O) [Ray09]. Dans les sections 1.3 et 1.4, nous verrons que des architectures MOPA ont également été réalisées pour émettre un faisceau énergétique dans la gamme spectrale 6-16 μm , mais que le ou les oscillateurs maîtres de ces systèmes n’ont jamais émis de faisceau monomode longitudinal.

1.2.3 Calcul de seuil en régime nanoseconde

Nous avons présenté dans la sous-section précédente des formules permettant d’estimer le seuil du SRO et du DRO en régime continu. Nous allons maintenant étudier le seuil en

régime impulsionnel, qui fait intervenir la notion de temps de construction des ondes signal et complémentaire, illustrée sur la Figure 1.2.

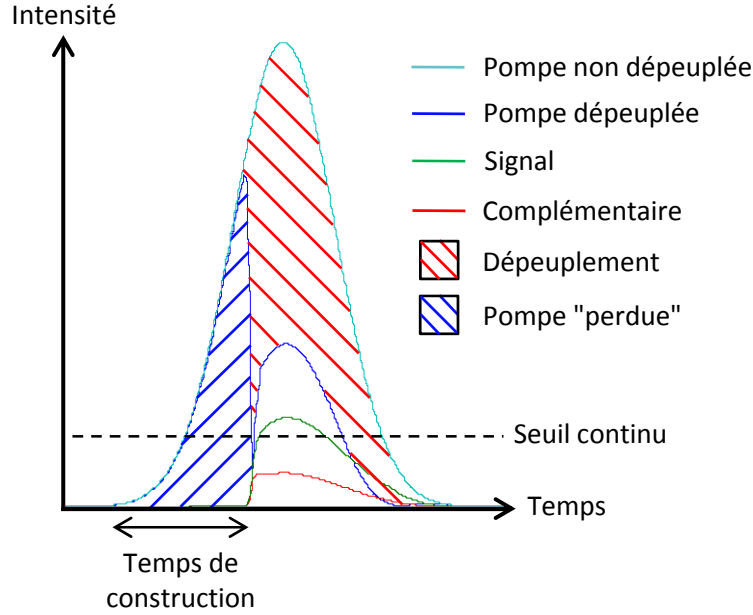


Figure 1.2 – Schéma illustrant la notion de temps de construction des impulsions signal et complémentaire lors de l'interaction non linéaire en régime nanoseconde.

Contrairement au régime continu, l'impulsion de pompe a une durée finie : l'intensité des ondes signal et complémentaire ne peut donc augmenter que lorsque la pompe est encore présente dans le cristal non linéaire. De plus, bien que l'interaction non linéaire soit un processus instantané, les impulsions signal et complémentaire mettent un certain temps à se construire à partir du bruit quantique de fluorescence paramétrique lorsque l'impulsion de pompe pénètre dans le cristal non linéaire. Durant ce temps, qui correspond au temps de construction des impulsions signal et complémentaire, la pompe atteint une forte puissance crête dans le cristal, ce qui induit un gain fort mais un faible dépeuplement : seule une faible quantité de pompe va donc créer des photons signal et complémentaire. Ainsi, en régime impulsionnel, le temps de construction a une grande influence sur le seuil d'oscillation, qui est en général bien plus élevé qu'en régime continu. Ce paramètre peut être estimé par la relation [God04] :

$$\Delta t = \beta \tau t_{AR}, \quad (1.10)$$

où $t_{AR} = \frac{2nL}{c}$ est le temps d'aller-retour dans la cavité. β est un facteur empirique qui détermine la puissance à partir de laquelle les ondes générées sont détectables et sortent donc du bruit quantique de fluorescence paramétrique. Nous supposons que la densité de puissance de la fluorescence paramétrique multipliée par un facteur $\exp(\beta)$ permet d'atteindre une puissance

suffisante pour que l'onde signal et complémentaire soit détectée. Le calcul exact de β est compliqué et dépend énormément de la cavité, en particulier de la valeur des coefficients de réflexion des miroirs. En pratique, nous choisirons $\beta = 15$ lorsque nous ferons des calculs de seuil en régime impulsionnel [Aou14].

Enfin, le paramètre τ caractérise le temps de construction des impulsions. Son calcul peut être effectué à partir de la résolution des équations de propagation non linéaires 1.2 [God04]. Des formules simples permettent de l'évaluer pour le SRO et le DRO équilibré, dont les miroirs ont les mêmes coefficients de réflexion pour le signal et le complémentaire :

$$\tau_{SRO} = \frac{1}{R \cosh^2 \left(\cosh^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{R}} \right) \sqrt{X} \right) - 1}, \quad (1.11)$$

$$\tau_{DRO} = \frac{1}{2 \left(R^{\frac{1-\sqrt{X}}{2}} - 1 \right)}, \quad (1.12)$$

où $X = \frac{I_{in}}{I_{th}^{cw}}$ est le rapport entre l'intensité de la pompe incidente en régime impulsionnel et l'intensité de la pompe au seuil en régime continu. Au seuil d'oscillation en régime impulsionnel, on a l'égalité $\tau = \tau_p$ où τ_p est la durée des impulsions de pompe. Ainsi, en remplaçant τ par τ_p dans l'équation 1.11 ou 1.12, on a directement accès au rapport X_{th} entre les intensités de seuil en régime impulsionnel et en régime continu. Pour évaluer le seuil d'un OPO en régime impulsionnel, on calculera donc dans un premier temps le seuil en régime continu, ce qui se fait en résolvant les équations de propagation non linéaires 1.2, puis on évaluera le paramètre X_{th} à l'aide de l'équation 1.11 ou 1.12, suivant le type d'OPO choisi. Ceci sera effectué dans des codes de simulation intégrant directement cette démarche, et nous reprendrons le calcul étape par étape avec des valeurs numériques au chapitre 3.

1.2.4 Effets liés au retour de l'onde de pompe

En DRO (comme en SRO) il est possible d'effectuer un double passage de la pompe dans le cristal non linéaire sans que celle-ci soit résonnante dans la cavité. Dans ce cas, il est primordial de contrôler précisément la phase non linéaire $\Delta\varphi$ qui s'additionne au déphasage relatif φ des trois ondes au retour pour minimiser le seuil et maximiser la conversion non linéaire. Bjorkholm et al. ont défini dès 1970 l'expression théorique du gain d'un DRO à double passage de pompe [Bjo70] :

$$G = K^{-1} \left(1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi + \Delta kL) \right) \sin^2 \left(\frac{\Delta kL}{2} \right), \quad (1.13)$$

où R_p désigne le coefficient de réflexion du miroir de renvoi de la pompe, L la longueur du

cristal, et K une constante définie par :

$$K = 128\pi^3 d_{\text{eff}}^2 L^2 \frac{\omega_s \omega_c}{n_p n_s n_c^3}. \quad (1.14)$$

Le terme dépendant de R_p et $\Delta\varphi$ dans la relation 1.13 permet de prendre en compte le retour de la pompe. Ainsi, la forme de la bande de gain dépend directement de R_p , soit du pourcentage de pompe réfléchi vers le DRO comme illustré sur la Figure 1.3 dans le cas optimal $\Delta\varphi = 0$. Le cas $R_p = 0$ correspond au simple passage.

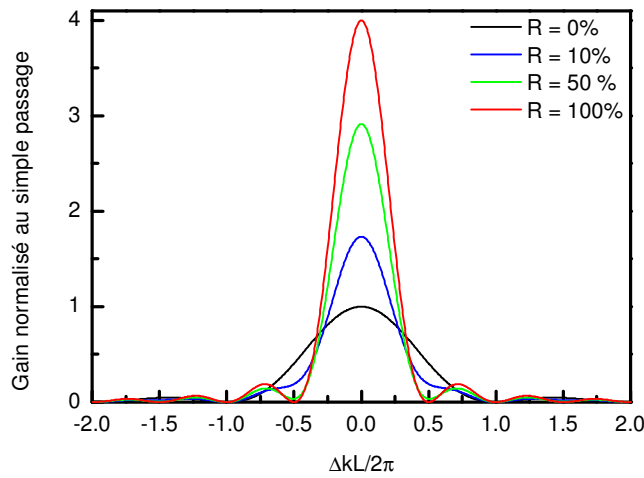


Figure 1.3 – Effet du retour de pompe sur le gain du DRO pour une phase non linéaire $\Delta\varphi = 0$.

Un retour total de la pompe permet un gain d'un facteur 4 par rapport au simple passage dans le cas d'un déphasage non linéaire nul (la phase relative φ reste égale à $-\frac{\pi}{2}$ au retour), et donc une diminution d'un facteur 4 du seuil d'oscillation. De plus, le retour de pompe affine la largeur de la bande de gain, ce qui pourra être utile pour obtenir une oscillation monomode.

Intéressons nous maintenant à l'effet de la phase non linéaire $\Delta\varphi$. La relation 1.13 montre qu'un déphasage relatif non nul entraîne le changement des zéros du cosinus et module donc la forme de la bande de gain. En particulier pour $\Delta\varphi = \pi$, les ondes sont en opposition de phase au retour lorsque $\Delta k = 0$. L'effet de la phase relative sur la forme de la bande de gain est illustré sur la Figure 1.4 dans le cas d'un retour de pompe maximal $R_p = 1$. Nous voyons progressivement apparaître une bande de gain à deux lobes quand $\Delta\varphi$ n'est plus nulle.

En pratique, les effets cumulés du déphasage relatif au retour et du coefficient de réflexion du miroir de renvoi de la pompe modulent fortement la forme de la bande de gain vis à vis du simple passage. Le gain peut alors s'annuler pour les couples de longueurs d'onde signal et complémentaire qu'on souhaite générer. De plus, l'apparition de lobes peut rendre difficile (mais pas impossible) la maîtrise de l'émission monomode longitudinale. Il est donc important de contrôler précisément la phase relative au retour, car elle est a priori aléatoire. Une lame

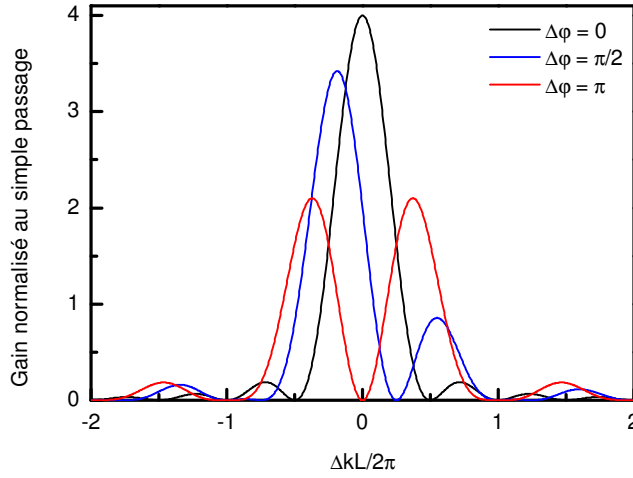


Figure 1.4 – Effet de la phase non linéaire $\Delta\varphi$ sur le gain du DRO pour un retour de pompe maximal ($R_p = 1$).

de phase prismatique montée sur une translation transverse à l'axe de propagation permet par exemple d'ajuster la phase relative sans désaligner la cavité. Une autre option consiste à tailler l'une des faces du cristal non linéaire en prisme et de translater transversalement le cristal jusqu'à obtenir une efficacité de conversion paramétrique optimale. Lorsque aucun élément n'est inséré pour contrôler la phase relative, celle-ci s'adapte avec le désaccord de phase Δk pour maximiser le gain de l'OPO. Le retour de pompe peut donc être bénéfique pour diminuer le seuil de l'OPO et augmenter l'efficacité du processus d'interaction paramétrique, mais un contrôle fin de la phase relative des ondes au retour est nécessaire pour assurer une utilisation optimale et le contrôle du spectre.

Dans cette section, nous avons présenté le principe de fonctionnement des OPO dans les configurations simplement résonnante et doublement résonnante, en nous intéressant spécifiquement au régime nanoseconde. Nous avons également vu comment calculer le seuil en régime impulsif et quels étaient les effets d'un retour de pompe dans l'OPO. Nous allons maintenant présenter deux méthodes très largement répandues permettant de réaliser la condition d'accord de phase. La première s'appuie sur des cristaux biréfringents tandis que la seconde utilise le concept de quasi-accord de phase. Ces deux méthodes seront illustrées à travers des cristaux non linéaires qui permettent d'effectuer la conversion de longueurs d'onde vers la gamme spectrale 6-16 μm et qui seront utilisés dans les expériences menées dans cette thèse : ZnGeP₂ (ZGP), CdSe et OP-GaAs.

1.3 Accord de phase par biréfringence dans ZnGeP_2 et CdSe

Principe de l'accord de phase par biréfringence

La condition d'accord de phase revient à annuler la quantité suivante :

$$\Delta k = 2\pi \left(\frac{n_p(\omega_p)}{\lambda_p} - \frac{n_s(\omega_s)}{\lambda_s} - \frac{n_c(\omega_c)}{\lambda_c} \right). \quad (1.15)$$

A travers cette relation, la première possibilité pour y parvenir consiste à modifier l'indice de réfraction n vu par les trois ondes. L'accord de phase exact est possible dans un matériau anisotrope lorsque la biréfringence compense la dispersion en longueur d'onde de l'indice de réfraction. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons essentiellement aux matériaux anisotropes dits uniaxes, comme présentés sur la Figure 1.5, dans lesquels nous identifions deux directions de propagation propres, orthogonales l'une par rapport à l'autre, appelées direction ordinaire et extraordinaire auxquelles sont associées les indices respectifs n_o et n_e . L'indice extraordinaire dépend de l'angle θ entre la direction de propagation et l'axe optique du cristal selon la relation :

$$\frac{1}{n_e^2(\theta, \lambda)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\lambda)}. \quad (1.16)$$

Ainsi, il est possible de changer l'indice "vu" par une onde en faisant tourner le cristal dans le plan contenant la direction extraordinaire. Ceci permet d'obtenir la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ pour différents couples de longueurs d'onde signal et complémentaire, et donc d'obtenir une accordabilité continue en longueur d'onde.

Nous distinguons deux types d'accord de phase selon les polarisations des trois ondes pour reprendre la classification la plus simple. L'accord de phase de Type I correspond à des ondes signal et complémentaire ayant la même polarisation :

$$\text{Pompe (o)} \rightarrow \text{Signal (e)} + \text{Complémentaire (e)}$$

$$\text{Pompe (e)} \rightarrow \text{Signal (o)} + \text{Complémentaire (o)}$$

Inversement, l'onde signal et l'onde complémentaire auront des polarisations croisées en accord de phase de Type II, donnant lieu à quatre configurations possibles :

$$\text{Pompe (o)} \rightarrow \text{Signal (o)} + \text{Complémentaire (e)}$$

$$\text{Pompe (o)} \rightarrow \text{Signal (e)} + \text{Complémentaire (o)}$$

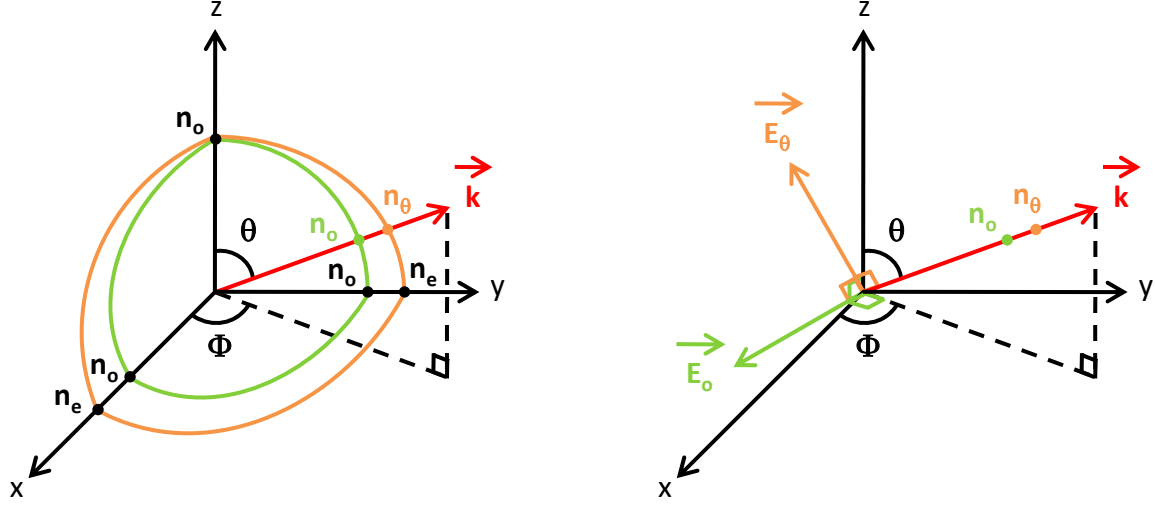


Figure 1.5 – Schéma d'un cristal uniaxe dans le repère diélectrique pour $n_x = n_y = n_o$ et $n_z = n_e$. L'axe z correspond aussi à l'axe optique qui est l'axe passant par les deux ombilics de la surface des indices.

Pompe (e) $\rightarrow$ Signal (o) + Complémentaire (e)

Pompe (e) $\rightarrow$ Signal (e) + Complémentaire (o)

L'accord de phase en Type I et/ou en Type II, ainsi que le choix des polarisations pour réaliser l'accord de phase par biréfringence dépendent du cristal choisi. Ceci sera illustré dans le cas du ZnGeP_2 et du CdSe lors des différents chapitres. À noter qu'il existe d'autres conventions pour classer les différents types d'accord de phase [Bou91] [Kem13a] [Rob92]. Au premier ordre, la bande de gain de l'OPO s'écrit dans le domaine fréquentiel

$$\Delta\nu = \frac{c}{L(n_{gs} - n_{gc})}, \quad (1.17)$$

où n_g désigne l'indice de groupe défini par

$$n_g = n + \omega \frac{dn}{d\omega}. \quad (1.18)$$

Dans les domaines de longueurs d'onde étudiés dans cette thèse, l'indice de réfraction n est généralement prépondérant devant le terme dépendant de la dérivée de l'indice par rapport à la pulsation. Ainsi, en première approximation, $n_{gs} - n_{gc} \approx n_s - n_c$. La bande de gain est donc d'autant plus étroite que les indices de réfraction signal et complémentaire sont différents, ce qui correspond à un cas de forte biréfringence. De ce fait, la bande de gain sera plus étroite en Type II (polarisations croisées) qu'en Type I ou Type 0 (polarisations identiques). En pratique, l'accord de phase de Type II permettra donc naturellement d'affiner la bande de gain, ce qui

favorisera de base l'obtention d'un spectre monomode longitudinal vis-à-vis du Type I. À ce titre, les cristaux non linéaires utilisés dans le chapitre 2 et 3 seront taillés dans une direction permettant un accord de phase de Type II.

Walk-off

Les matériaux diélectriques sont souvent caractérisés par la relation $\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E}$ où ε_r est la permittivité diélectrique relative du milieu. ε_r est un tenseur, ce qui entraîne que $\vec{D}$ n'est pas parallèle au champ électrique $\vec{E}$ dans le cas des milieux anisotropes, pour lesquels au moins deux des trois indices principaux sont différents. L'angle formé entre ces deux vecteurs est appelé angle de biréfringence (ou de walk-off spatial en anglais) et sera noté α , comme illustré sur le schéma de la Figure 1.6. De la même façon, le vecteur de Poynting $\vec{S}$ n'est pas parallèle à $\vec{k}$ et l'angle formé entre ces deux vecteurs correspond lui aussi à l'angle de walk-off spatial. Cet angle, d'autant plus important que la biréfringence est élevée, peut fortement diminuer l'efficacité des processus non linéaires car il altère le recouvrement spatial des faisceaux des trois ondes en interaction. Il sera donc primordial d'en tenir compte pour les expériences faisant appel à de longs cristaux. Pour certaines longueurs d'onde, il peut exister un accord de phase non critique à $\theta = 90^\circ$, pour lequel l'angle de walk-off est nul. Les faisceaux pompe, signal et complémentaire sont alors superposés en sortie du cristal, et ce quelle que soit sa longueur. Ainsi, lorsqu'un cristal taillé à l'accord de phase non critique est inséré dans un OPO, l'absence de walk-off permet de conserver l'alignement de la cavité tout en accordant la longueur d'onde d'émission par un changement de la longueur d'onde de pompe.

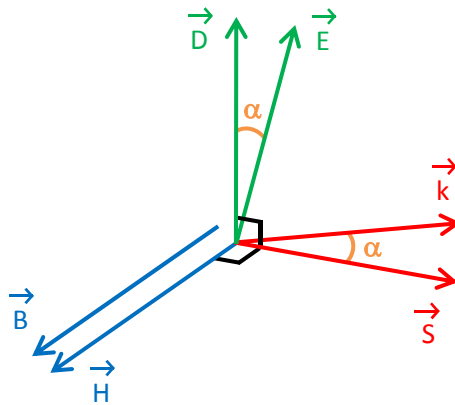


Figure 1.6 – Schéma représentant l'angle de walk-off.

Nous allons maintenant nous intéresser aux cristaux non linéaires biréfringents utilisés en optique non linéaire pour émettre un rayonnement complémentaire entre 6 et 16 μm . Nous allons essentiellement nous concentrer sur deux cristaux : le ZnGeP_2 (ZGP) et le CdSe , et nous

parlerons brièvement des autres cristaux biréfringents existants en expliquant pourquoi nous ne les avons pas retenus pour nos expériences.

1.3.1 Comparaison des cristaux non linéaires biréfringents émettant dans la gamme spectrale 6-16 μm

Le cristal de ZnGeP_2 (ZGP)

Le ZGP est un cristal non linéaire semiconducteur qui transmet dans l'infrarouge entre 2 et 12 μm , bien que sa transmission diminue dès 8 μm à cause de l'absorption multi-phonons, et chute considérablement à partir de 10 μm . Pour nos applications, il sera donc préférentiellement utilisé pour émettre des longueurs d'onde situées entre 8 et 10 μm bien que l'accordabilité sur toute la gamme spectrale 8-12 μm ait déjà été démontrée [Vod00]. Grâce à son coefficient non linéaire très élevé, $d_{\text{eff}} = 75 \text{ pm/V}$ [Boy71], ce cristal est très fréquemment employé pour les expériences d'optique non linéaire en bande III. De plus, son coefficient thermo-optique relativement élevé ($1,5 \cdot 10^{-4}/^\circ\text{C}$) est compensé par son excellente conductivité thermique (36 W/m.K) [Bea94] permettant le pompage à haute cadence. À cause d'un phénomène d'absorption résiduelle dans le proche infrarouge attribué à des défauts ou des impuretés, les cristaux disponibles de ZGP ne transmettent bien qu'à partir de 2 μm environ [Med05], ce qui nécessite d'ailleurs souvent un post-traitement par irradiation de faisceaux d'électrons [Lei14]. Désormais, la remontée brutale d'absorption se fait plutôt en dessous de 1,8 μm dans les cristaux commerciaux, ce qui permet notamment le pompage direct par des cristaux laser dopés au Thulium autour de 1,9 μm . Cependant, l'absorption reste plus faible à 2 μm et nous utiliserons dans nos expériences des lasers de pompe dont la longueur d'onde est supérieure à 2 μm . À noter que l'ONERA a récemment développé une technique de croissance innovante dans le cadre de la thèse de Jérémy Rame [Ram14a] pour réduire encore davantage cette absorption résiduelle à 2 μm . Enfin, le ZGP peut être taillé avec des ouvertures centimétriques (jusqu'à 30 x 30 x 22 mm chez BAE Systems), permettant un pompage par des faisceaux de grandes dimensions spatiales et énergétiques, compte tenu de son seuil de dommage qui peut atteindre 2 J/cm^2 à 2 μm [Zaw06].

Dans ZGP, l'accord de phase peut être réalisé en Type I (Pompe (o) $\rightarrow$ Signal (e) + Complémentaire (e)), ou en Type II (Pompe (o) $\rightarrow$ Signal (e) + Complémentaire (o)). À titre d'exemple, nous traçons en Figure 1.7 les courbes d'accord de phase de Types I et II d'un cristal de ZGP pompé à 2051 nm, en utilisant le logiciel SNLO avec les relations de Sellmeier pour l'indice établies par Zelmon et al [Zel01]. La longueur d'onde de pompe de 2051 nm est celle utilisée lors de certaines expériences du chapitre 2 et pour les simulations numériques du chapitre 3. Dans chaque cas, la courbe d'accord de phase présente un point de rebroussement, situé autour

de 9,8 μm en Type I et autour de 11,5 μm en Type II. Près de ce point de rebroussement, dont l'origine est liée à la dispersion des indices de réfraction, une légère modification de l'angle du cristal entraîne une forte variation de la longueur d'onde d'émission. De plus, l'acceptance spectrale du cristal se retrouve fortement élargie, ce qui conduit à l'émission d'un spectre large sur le signal et le complémentaire.

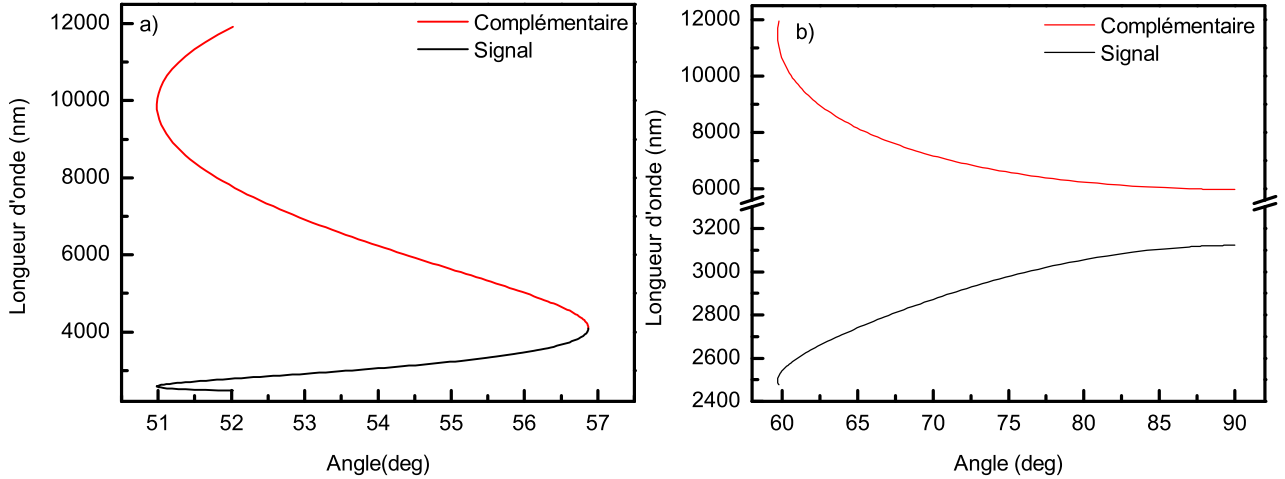


Figure 1.7 – Courbes d'accord de phase d'un cristal de ZGP pompé à 2051 nm calculées à partir des relations de Sellmeier établies par Zelmon et al [Zel01]. a) Type I. b) Type II.

L'angle de walk-off du ZGP est relativement faible : environ 9 mrad en Type I et 12 mrad en Type II, ce qui permet d'utiliser des cristaux relativement longs dans les oscillateurs paramétriques optiques. Nous allons maintenant mentionner quelques expériences d'optique non linéaire réalisées avec ZGP. En particulier, nous présentons des records de puissance obtenus sur des plages de longueurs d'onde indisponibles par émission directe d'un laser.

Parmi les réalisations intéressantes en bande II (3-5 μm), on peut relever des OPO à base de ZGP émettant des impulsions de presque 30 mJ à basse cadence (10 Hz) à partir de pompage direct par laser $\text{Er}^{3+}:\text{YAG}$ à 2936 nm converti à 4,8 μm [Sho04], ou par un OPO muni d'un cristal de KTiOPO_4 (KTP) à 2,1 μm converti sur la plage 3,7-4,7 μm [Nic05]. Des impulsions de 20 mJ ont également été obtenues à l'Institut Saint-Louis (ISL, France) entre 3 et 5 μm , avec une très bonne qualité spatiale caractérisée par un facteur $M^2 < 2$, en pompant avec un laser $\text{Ho}^{3+}:\text{LLF}$ à 2053 nm (30 ns, 100 Hz) [Sch13]. Des niveaux de puissance moyenne bien plus importants qu'avec les autres cristaux ont également été démontrés à haute cadence. Il a ainsi été possible de réaliser un système OPO ZGP émettant jusqu'à 22 W de puissance moyenne en bande II, tout en conservant une bonne qualité spatiale sur le faisceau complémentaire avec un facteur $M^2 = 1,4$ [Lip10]. En 2013, des performances impressionnantes ont été démontrées par le DSTO (Defence Science and Technology Organisation, Australie) avec un système basé sur un OPO ZGP pompé par un laser $\text{Ho}^{3+}:\text{YAG}$, lui-même pompé par un laser $\text{Tm}^{3+}:\text{fibre}$. Une

puissance moyenne de 27 W (50 ns, 35 kHz) dans la bande 3-5 μm a été obtenue avec un facteur $M^2 = 4$ [Hem13]. Enfin, une puissance crête totale de 27,9 kW a récemment été émise par un OPO en ZGP entre 3,3 et 4,7 μm pompé à 1980 nm par un système MOPA fibré dopé Thulium (7 ns, 4 kHz) [Geb14]. À noter qu’aucun OPO en ZGP n’a été pompé en régime continu, et que des impulsions accordables ont déjà pu être obtenues en régime picoseconde [Dhe10] [Pet97] et femtoseconde [Pet99].

Concernant les expériences d’optique non linéaire entre 6 et 16 μm , l’énergie du faisceau complémentaire décroît très rapidement à partir de 8 μm à cause des propriétés de transmission mentionnées précédemment. Par conséquent, peu de travaux ont été publiés sur ZGP au-delà de 8 μm . En terme d’énergie, la meilleure performance à ce jour est la démonstration de laboratoire réalisée par le FFI en Norvège, avec 10 mJ à 8090 nm à la cadence de 10 Hz, un facteur $M^2 < 3$ et un rendement optique de 2,7 % [Haa08]. Le rayonnement de 108 mJ à 2080 nm issu d’un MOPA KTP est mélangé avec le rayonnement d’un OPO KTA faiblement énergétique de 0,1 mJ à 2,8 μm dans un amplificateur paramétrique optique (OPA) en ZGP. Cette même équipe est potentiellement en passe d’améliorer ses résultats [Haa14] et a également publié des résultats prometteurs en terme de puissance moyenne avec un OPO émettant jusqu’à 1 W moyen à 8 μm [Lip10]. D’autres expériences intéressantes à des énergies moindres ont été réalisées par ailleurs, notamment le pompage direct d’un OPO en ZGP par un laser Q-switch $\text{Ho}^{3+}, \text{Tm}^{3+}:\text{LLF}$ à 2050 nm, permettant d’obtenir jusqu’à 5 mJ à 8 μm [Lee04]. Enfin, la conception d’OPO s’est parfois basée sur une géométrie particulière telle que l’architecture RISTRA protégée par un brevet ou l’architecture FIRE [Big14]. Dans la configuration RISTRA, une longueur d’onde complémentaire accordable entre 6270 et 8120 nm a été émise par un OPO en ZGP, grâce à un accord de phase non colinéaire en faisant tourner la cavité de l’OPO [Sto12].

La plupart des expériences décrites précédemment témoignent des performances élevées pouvant être atteintes avec des cristaux de ZGP en régime nanoseconde, et démontrent son fort potentiel pour la génération de longueurs d’onde en bande II et III. En revanche, l’analyse du contenu spectral n’a jamais été abordée dans ces différentes expériences, encore moins les conditions permettant d’obtenir un spectre d’émission monomode longitudinal. À ce titre, nous présenterons dans ce manuscrit de nouvelles expériences, qui n’ont pas la prétention d’atteindre des énergies ou des puissances moyennes très élevées dans la gamme spectrale 6-16 μm , mais qui seront principalement focalisées sur la maîtrise du contenu spectral. Nous reviendrons en détail sur cette problématique essentielle pour les applications de détection de gaz à distance.

Le cristal de CdSe

Le CdSe est un autre cristal non linéaire semiconducteur très employé pour générer des longueurs d’onde dans l’infrarouge moyen. Les configurations d’accord de phase disponibles

sont les mêmes que celles du ZGP et le seuil de dommage à 2 μm en régime nanoseconde est de 1 J/cm² [And77]. Il présente l'avantage de transmettre à partir de 800 nm jusqu'à 23 μm , avec une absorption qui augmente progressivement au-delà de 16 μm . Cependant, cette large bande de transparence est contrebalancée par un coefficient non linéaire relativement faible $d_{\text{eff}} = 18$ pm/V [Rob92] et une très faible biréfringence, deux fois moins importante que celle du ZGP à 2 μm (0,02 contre 0,04). Cette faible biréfringence ne permet de vérifier la condition d'accord de phase qu'en pompant au-delà de 1,8 μm où la dispersion en longueur d'onde devient faible. Ainsi, bien que le CdSe soit transparent à 1064 nm, il n'est pas possible d'effectuer le pompage d'un OPO par un laser Nd³⁺:YAG.

Il est possible de couvrir théoriquement l'intégralité de la gamme spectrale 6-16 μm avec CdSe. En pratique, en raison de sa faible biréfringence, il sera nécessaire de tourner le cristal sur des angles de plusieurs dizaines de degrés pour y parvenir. Ceci n'est généralement pas possible en raison de l'ouverture limitée des cristaux et de l'acceptance angulaire des traitements anti-reflets, sans compter les problèmes de désalignement de faisceau et la noncolinéarité des vecteurs d'onde du fait de l'incidence oblique. Il faut alors utiliser plusieurs cristaux pour couvrir toute la gamme spectrale 6-16 μm .

Une méthode pour contourner cette difficulté est d'utiliser une source de pompe accordable en longueur d'onde. Dans ce cas, l'accordabilité en longueur d'onde signal et complémentaire se fait en changeant simplement la longueur d'onde de la pompe. Ce cas est très intéressant en pratique lorsque le CdSe est taillé à l'angle d'accord de phase non critique angulairement. La problématique consiste alors à trouver une source cohérente efficace à température ambiante dans l'infrarouge moyen et ayant une accordabilité suffisante. Une première solution serait d'utiliser un OPO de pompe [Isy99], mais ceci conduit à un fort encombrement du montage global et le rendement énergétique est alors très faible à cause des différentes architectures d'optique non linéaire mises en cascade. Concernant les lasers, le Cr²⁺:ZnSe (et les lasers de la même famille comme Cr²⁺:ZnS ou Cr²⁺:YSGG) est à notre connaissance le seul laser répondant à notre besoin. Il peut être accordé sur 500 nm [Sor10] (soit 20 % de la longueur d'onde centrale). Même avec un tel laser, le cristal doit tout de même être tourné de $\pm 15^\circ$ pour couvrir seulement la plage 8,2 – 8,8 μm , ce qui nécessite une ouverture importante d'au moins 1 cm pour le cristal. Ainsi, malgré sa très bonne accordabilité, le laser Cr²⁺:ZnSe ne permet pas de couvrir toute la gamme 6-16 μm avec un seul cristal de CdSe parallélépipédique.

Pour palier cette difficulté, nous présenterons dans le chapitre 4 un cristal de CdSe à géométrie innovante taillé en forme de cylindre partiel, permettant de tourner le cristal sur de grands angles sans désaligner le faisceau de pompe et en attaquant toujours le cristal selon l'incidence normale. Cette technique de taille et d'accord de phase est brevetée par l'Institut Néel et a déjà été démontrée expérimentalement sur KTP [Fev02] et sur LiNbO₃ [Kem13b].

Nous présentons en Figure 1.8 la courbe d'accord de phase d'un cristal de CdSe pompé à

2051 nm, en Type I et en Type II, avec le logiciel SNLO utilisant les relations de Sellmeier de Bhar et al [Bha76].

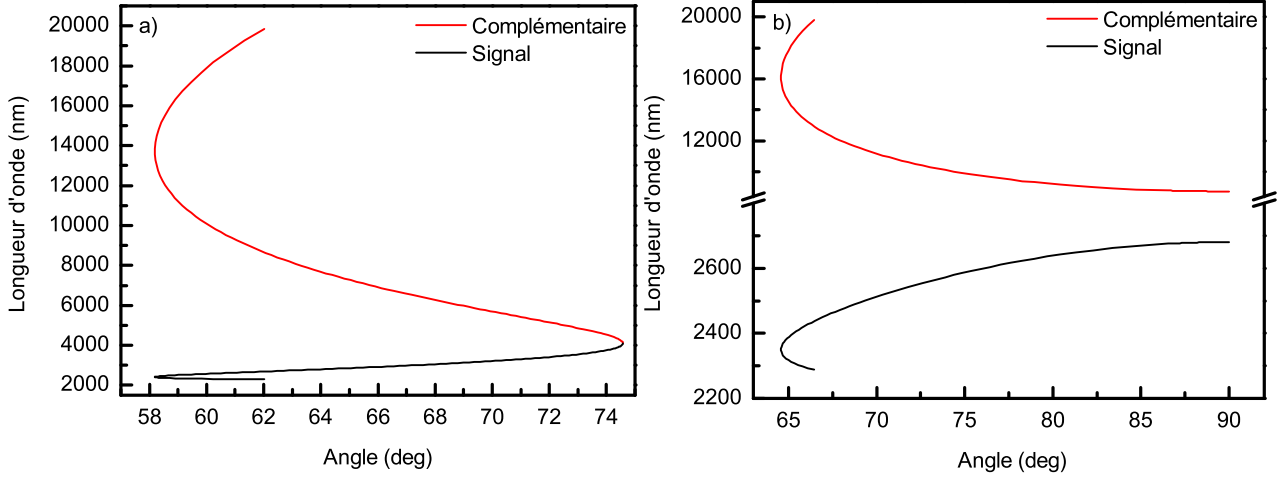


Figure 1.8 – Courbes d'accord de phase d'un cristal de CdSe pompé à 2051 nm calculées à partir des relations de Sellmeier établies par Bhar et al [Bha76]. a) Type I. b) Type II.

La première démonstration d'un OPO CdSe remonte à 1972 par Herbst et Byer avec la production d'un rayonnement accordable entre 9,8 et 10,4 μm [Her72]. Depuis, des systèmes accordables sur de plus larges plages et délivrant plus du millijoule à basse cadence sur presque toute la plage 8-12 μm ont été démontrés, en utilisant comme source de pompe un laser $\text{Cr}^{3+}, \text{Er}^{3+}:\text{YSGG}$ émettant à 2790 nm, avec une émission de l'OPO sur la plage 8,5-12,3 μm [All97], ou bien un OPO KTA accordable entre 2990 et 3450 nm conduisant à une émission complémentaire sur la plage 8310-10580 nm par différence de fréquences avec une énergie de 4,5 mJ (signal + complémentaire à 8,3 μm) [Isy99].

Le record en énergie par impulsion issu d'une expérience d'optique non linéaire utilisant CdSe a été obtenu par Mennerat et Kupecek [Men98]. Un laser $\text{Nd}:\text{YAG}$ délivrant des impulsions de 950 mJ (15 ns, 10 Hz) pompe un OPO LiNbO_3 , dont le spectre est affiné par un réseau de diffraction monté en configuration Littrow. Ce premier OPO délivre une énergie de 310 mJ (signal + complémentaire) autour de 2 μm avec une largeur de raie inférieure à $0,5 \text{ cm}^{-1}$ et une qualité de faisceau caractérisée par $M^2 \approx 2,5$. Les faisceaux signal et complémentaire issus de cet OPO sont ensuite envoyés vers un étage de différence de fréquences à base de CdSe . L'énergie émise est alors comprise dans l'intervalle 5 – 10 mJ pour des longueurs d'onde dans la gamme 10 – 17 μm .

CdSe est également l'un des seuls matériaux avec ZGP ayant permis d'obtenir plus d'un watt moyen au-delà de 8 μm en raison de ses bonnes propriétés thermo-mécaniques. Cette performance a été démontrée à partir d'un dispositif quasi commercial de la société Coherent Technologies comprenant un OPO CdSe placé intracavité dans un laser $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ pompé lui-

même par un laser $\text{Tm}^{3+}:\text{YALO}$ d'une puissance de 20 W fonctionnant à une cadence de 5 kHz [Zak05]. La puissance moyenne maximale de 1,1 W est obtenue à 8250 nm avec un facteur $M^2 = 2,5$. Ces performances démontrent la robustesse de CdSe pour les applications entre 6 et 16 μm .

Les autres cristaux non linéaires biréfringents de l'infrarouge moyen

Outre ZGP et CdSe, il existe quelques autres cristaux non linéaires biréfringents suffisamment matures pour réaliser la conversion de longueurs d'onde en bande III, à travers des expériences de mélange de fréquences ou dans des oscillateurs paramétriques optiques. La plupart des données sur ces cristaux peuvent être trouvées dans les références [Nik05], [Pet12] et [Men00].

Pour les cristaux à base de cadmium, nous identifions CdSiP_2 (CSP) et CdGeAs_2 (CGA). CdSiP_2 est un cristal de plus en plus employé [Cha10] [Mar10] [Zha13] [Kem11] de part son fort coefficient non linéaire $d_{\text{eff}} = 84 \text{ pm/V}$ légèrement plus élevé que celui de ZGP. De plus, il peut être pompé à 1064 nm par un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$. Son seuil de dommage autour de 2 μm est de 1 J/cm^2 (comparable à CdSe) mais seulement de $0,25 \text{ J/cm}^2$ à 1064 nm. Son principal inconvénient pour les applications visées dans cette thèse est sa transmission dans l'infrarouge, qui décroît fortement au-delà de 6500 nm. À partir de 8 μm , la transmission sur un centimètre n'est plus que de 50 %, rendant très difficile la conversion de fréquences au-delà de 8 μm et ajoutant des contraintes thermiques non négligeables pour les applications à forte puissance moyenne.

CGA est très peu employé [Vod98] [Zak02] malgré son immense coefficient non linéaire $d_{\text{eff}} = 236 \text{ pm/V}$ et sa très bonne transmission sur toute la plage 8-12 μm car il ne peut être pompé efficacement qu'à partir de 4 μm . Comme il existe très peu de lasers émettant à ces longueurs d'ondes, ceci impose de s'appuyer sur une autre source non linéaire en amont pour pomper le cristal, ce qui multiplie les problématiques vis à vis de l'énergie de pompe disponible et de la maîtrise de son spectre.

D'autres cristaux potentiellement utilisables sont les cristaux à base de gallium tels que AgGaGeS_4 (AGGS), AgGaS_2 (AGS), AgGaSe_2 et GaSe . AGGS et AGS possèdent l'avantage de pouvoir être pompés à 1064 nm. Ces cristaux ont des propriétés de transmission similaires au ZGP en bande III, à savoir une bonne transmission entre 8 et 10 μm suivi d'une chute progressive entre 10 et 12 μm , mais leurs coefficients non linéaires d_{eff} sont bien plus faibles, respectivement 8 pm/V et 13 pm/V ou 18 pm/V. Ainsi, bien que des expériences concluantes aient déjà été réalisées avec des cristaux d'AGGS [Pet04a] [Miy07a] [Ram14b] et d'AGS [Dou98] [Cha97] [Vod99], ils n'ont jamais remplacé ZGP en terme de puissance émise.

En revanche, AgGaSe_2 transmet parfaitement dans l'infrarouge de 800 nm à 18 μm , peut être pompé à partir de 1,3 μm , possède un coefficient non linéaire assez élevé, $d_{\text{eff}} = 33 \text{ pm/V}$,

et son seuil de dommage est d'environ 1 J/cm² à 2 µm en régime nanoseconde. Ses propriétés thermo-mécaniques moins intéressantes que celles de CdSe et ZGP sont toutefois un frein à son utilisation, notamment en régime haute cadence, bien qu'il ait été employé de nombreuses fois à basse cadence [Eck86] [Cha97] [Abe98]. Ce cristal n'a pas pu être étudié dans le cadre de cette thèse mais il n'est pas à exclure pour l'amplification à basse cadence en bande III à partir d'un laser de pompe à 2 µm.

GaSe possède des qualités similaires à celle d'AgGaSe₂ (large plage de transmission dans l'infrarouge, $d_{\text{eff}} = 54$ pm/V) et peut être pompé à 1064 nm, mais ses principaux inconvénients sont son faible seuil de dommage d'environ 0,2 J/cm² à 2 µm et sa très grande fragilité mécanique liée à sa structure lamellaire. En particulier, GaSe ne peut pas être poli mais uniquement clivé avec des faces toujours orientées perpendiculairement à l'axe c, et son caractère malléable est fortement pénalisant pour le dépôt de traitements antireflet. Ainsi, bien qu'il soit fréquemment utilisé en laboratoire pour le mélange de fréquences [Vod93] et ce depuis 1972 [Abd72], aucun OPO en GaSe n'est référencé dans la littérature.

Enfin, mentionnons l'existence de cristaux biréfringents supplémentaires pour les applications entre 6 et 16 µm mais qui manquent de maturité. Jusqu'à présent, ces cristaux ont été assez peu utilisés dans des expériences d'optique non linéaire car de nombreux travaux de recherche sont encore en cours à leur sujet. Il s'agit principalement de cristaux cherchant des alternatives à AGS, tels que les cristaux à base de Barium (BaGa₄S₇ [Tya12], BaGa₄Se₇ [Yan13]), Mercure (HgGa₂S₄ [Tya13a], Hg_{1-x}Cd_xGa₂S₄ [Bad05]), Lithium (LiGaS₂ [Tya13b], LiGaSe₂ [Pet04c], LiGaTe₂ [Zon07], LiInS₂ [Che05], LiInSe₂ [Mar09]) et GaS_{0,4}Se_{0,6} [Miy11]. Il existe également des cristaux alternatifs à AgGaSe₂, dont plusieurs alliages d'Argent et de Gallium (AgGaGe₃Se₈ [Knu10], AgGaGe₅Se₁₂ [Pet04b], AgGa_{1-x}In_xSe₂ [Ji07], AgGa(Se_{1-x}Te_x)₂, AgGa(S_{1-x}Te_x)₂), des cristaux à base de Plomb (PbIn₆Te₁₀ [Ava11], PbGa₆Te₁₀) ou encore Na₂Ge₂Se₅.

En conclusion, il n'existe pas de cristal non linéaire biréfringent idéal pour faire de la conversion de longueurs d'onde entre 6 et 16 µm, en particulier au-delà de 8 µm. Nous avons donc sélectionné les deux cristaux les plus pertinents et les plus matures aux avantages complémentaires pour nos expériences : ZGP et CdSe. Ils seront largement utilisés dans cette thèse, dans des oscillateurs paramétriques optiques ou en tant qu'amplificateurs. Nous allons maintenant présenter quelques expériences de caractérisation de ces cristaux.

1.3.2 Caractérisation des cristaux de ZGP et de CdSe

Caractérisation des cristaux de ZGP

Les expériences de caractérisation ont pour but de vérifier la bonne qualité des cristaux dont nous disposons, afin de les utiliser par la suite comme amplificateurs ou dans une cavité OPO. Nous disposons de plusieurs cristaux de ZGP fournis par Eksma Optics (Lituanie). Leurs

caractéristiques sont données dans le Tableau 1.1.

Table 1.1 – Caractéristiques des cristaux de ZGP fournis par Eksma.

Grandeur	ZGP long x 2	ZGP court x 2
Longueur (mm)	15	5
Ouverture (mm x mm)	4 x 5	3 x 4
Accord de phase	Type I	Type II
Angle θ (degrés)	49	64,4
Angle ϕ (degrés)	0 ou 180	45
Traitements anti-reflets	Eksma et Twinstar	Twinstar
Longueur d'onde de pompe spécifiée (nm)	2210	2051

Les deux cristaux de 15 mm de long seront préférentiellement utilisés dans des expériences d'amplification paramétrique optique (OPA, chapitre 4) tandis que les deux cristaux de 5 mm de long seront plutôt utilisés dans des OPO doublement résonnants (chapitre 2). Sur 5 mm de propagation dans le ZGP inséré dans un OPO, le walk-off spatial sera suffisamment faible pour ne pas trop perturber l'oscillation, ce qui ne serait pas le cas avec un cristal de 15 mm de long. De plus, chaque cristal possède sur chaque face des traitements anti-reflets spécifiques, permettant alors de transmettre efficacement la pompe, le signal et le complémentaire sur toute une plage spectrale sans subir des pertes liées à la réflexion de Fresnel. Rappelons que l'indice très élevé du ZGP, $n \approx 3,14$, entraîne une perte par réflexion de Fresnel $R = \left(\frac{1-n}{1+n}\right)^2 \approx 27\%$, ce qui est considérable : de bons traitements anti-reflets sont donc indispensables. À la base, les deux cristaux de 15 mm étaient munis de traitements anti-reflets réalisés par un sous-traitant de Eksma. Toutes les caractérisations présentées par la suite sur ces cristaux ont donc été effectuées dans cette configuration. Cependant, l'endommagement de l'un d'entre eux a conduit à un nouveau traitement réalisé par Twinstar (USA). Pour comparer la qualité des traitements anti-reflets de Eksma et de Twinstar, nous avons mesuré la transmission de chaque cristal grâce à un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). Les résultats sont donnés en Figure 1.9. La valeur absolue de la transmission a été recalée à l'aide de quelques mesures complémentaires effectuées avec différentes sources cohérentes disponibles dans notre laboratoire.

Dans l'absolu, le traitement anti-reflet Twinstar (courbe bleue) est meilleur que le traitement Eksma (courbe rouge), notamment autour de $8\ \mu\text{m}$ où sont situées les longueurs d'onde complémentaire d'intérêt et à $\lambda_p = 2210\ \text{nm}$. De ce fait, les cristaux courts de 5 mm de long ont été traités seulement par Twinstar. Ils sont traités anti-reflets à 2051 nm, sur la gamme

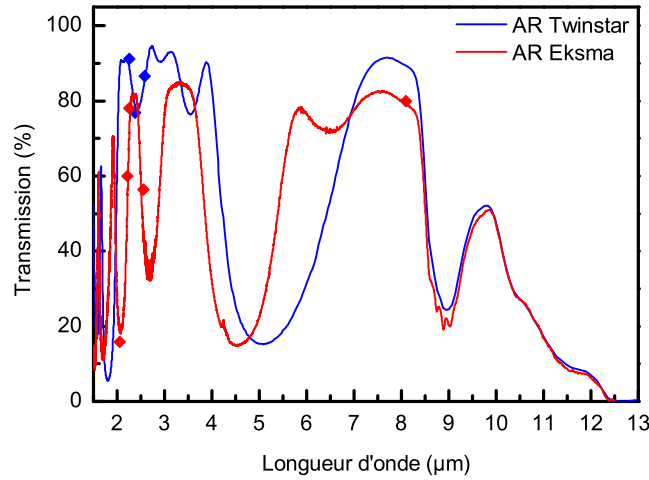


Figure 1.9 – Spectres de transmission des cristaux de ZGP de 15 mm de long traités anti-reflet par Eksma ou Twinstar. Les quelques points de mesure effectués à des longueurs d'onde précises permettent de recaler les courbes issues du FTIR en transmission absolue selon l'échelle verticale.

spectrale 2,6-2,9 μm pour le signal, et 7-9 μm pour le complémentaire. La mesure de la transmission au FTIR n'a pas été effectuée pour ces cristaux, et nous faisons confiance aux données du fournisseur sur ces traitements, qui transmettent au moins 90 % sur les plages spectrales spécifiées.

Nous avons ensuite vérifié la qualité cristalline des cristaux de ZGP entre 2 et 2,5 μm à travers des expériences d'ombroscopie et d'interférométrie. Le schéma de principe de l'ombroscopie est détaillé en Figure 1.10. Cette technique consiste à éclairer le cristal avec un faisceau collimaté de diamètre supérieur à son ouverture et à imager directement sur une caméra un plan situé derrière la face de sortie du cristal. Elle permet de visualiser les défauts suffisamment importants pour perturber significativement la propagation du faisceau dans le cristal (défauts absorbants, perturbations importantes du front d'onde...).

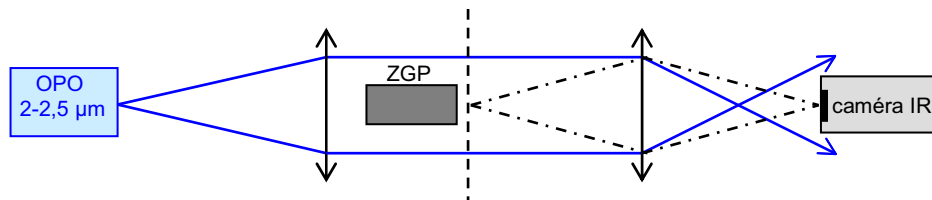


Figure 1.10 – Schéma de principe de l'ombroscopie.

Le montage de l'expérience d'interférométrie est quant à lui exposé en Figure 1.11. Cette expérience consiste à placer le cristal dans l'un des bras d'un interféromètre de Michelson éclairé par un faisceau collimaté. Dans notre cas, ce faisceau est issu d'un OPO accordable dans la

gamme 2–2,5 μm , collimaté avec un diamètre d'environ 20 mm afin d'éclairer de manière homogène l'ouverture du cristal caractérisé. La longueur optique du bras de référence est ensuite ajustée afin d'être à différence de marche nulle. On image alors sur la caméra la figure d'interférence (franges d'égale épaisseur) entre le faisceau réfléchi par le bras de l'interféromètre contenant le cristal et celui réfléchi dans le bras de référence. Ceci permet d'observer des déformations du front d'onde moins importantes qui ne seraient pas décelables par ombroscopie. De plus, il est possible de masquer le bras de référence pour supprimer les interférences et ainsi réaliser une caractérisation par ombroscopie en double passage dans le cristal. Cela présente l'avantage d'augmenter la sensibilité de la technique d'ombroscopie et de ne pas avoir à reconfigurer le banc lorsque l'on souhaite passer d'une méthode de caractérisation à l'autre.

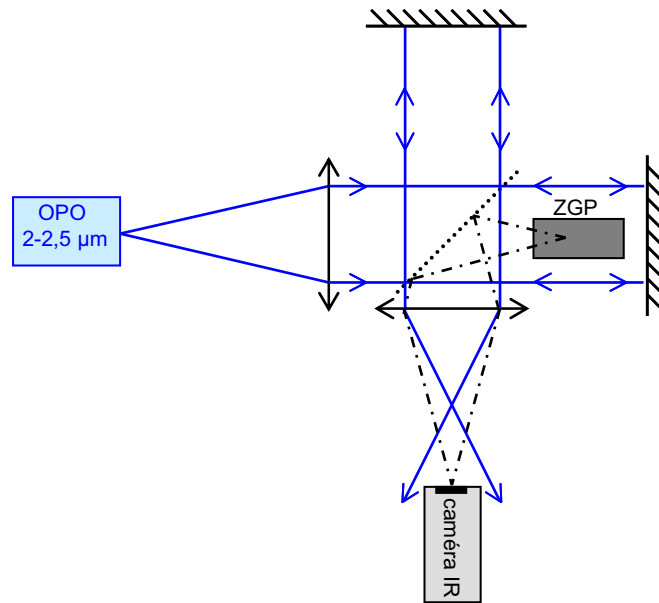


Figure 1.11 – Schéma de principe de l'expérience d'interférométrie.

La Figure 1.12 présente l'image d'ombroscopie double passage de deux cristaux de ZGP (un court et un long) dans le cas d'une polarisation incidente verticale, ce qui correspond à une polarisation ordinaire de pompe, celle-là même pouvant permettre de réaliser l'accord de phase. Le ZGP long est celui traité par Eksma. Aucun défaut notable n'est relevé, et les principales inhomogénéités observables sont en fait attribuables au profil d'éclairement du faisceau incident et à la présence de densités optiques. À noter que ces inhomogénéités d'éclairement sont plus marquées dans le cas du cristal long, car la mesure a été effectuée avec un éclairement de référence plus inhomogène. On note également une insensibilité en fonction de la polarisation. De plus, une extinction complète de l'image est observée derrière un polariseur croisé. On peut donc en conclure que le faisceau ne subit aucun effet de dépolarisation en traversant les cristaux.

Pour ces cristaux, une analyse plus sensible effectuée par interférométrie est donc néces-

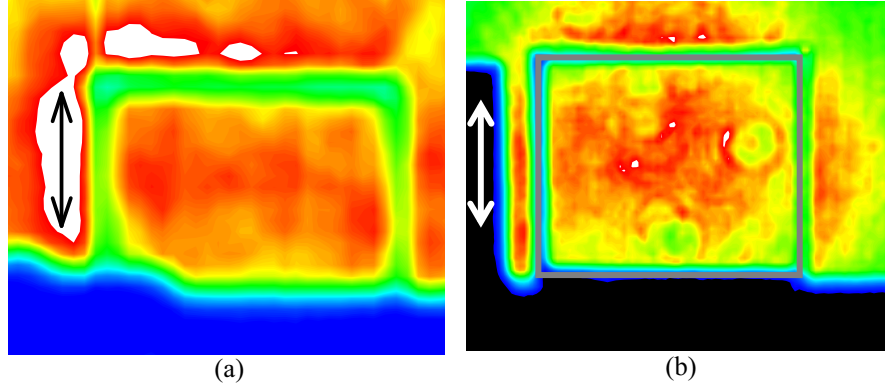


Figure 1.12 – Images d’ombroscopie double passage à 2250 nm en polarisation ordinaire. La double flèche indique la direction de polarisation du faisceau. (a) Cristal de ZGP de 5 mm traité Twinstar. (b) Cristal de ZGP de 15 mm traité Eksma. Les deux ronds inhomogènes visibles sur le profil d’éclairement à l’intérieur du cristal sont dus à des défauts présents sur une densité optique placée sur le trajet du faisceau incident.

saire pour confirmer leur bonne homogénéité. Les résultats de cette expérience sont présentés en Figure 1.13 avec une polarisation de pompe ordinaire. Dans le cas des ZGP courts, nous effectuons l’analyse pour trois réglages de l’interféromètre : teinte plate, coin vertical et coin horizontal. Aucun défaut d’homogénéité n’est décelable sur les interférogrammes, et ce quelle que soit la direction de polarisation. L’épaisseur optique des cristaux présente une très bonne uniformité : ils pourront donc être insérés dans un OPO. Précisons que la ligne visible sur le haut de l’image est due à un défaut de la caméra. Dans le cas des ZGP longs, nous effectuons seulement une analyse en recherche de teinte plate, qui révèle une homogénéité satisfaisante de l’épaisseur optique du cristal. Ces expériences démontrent la grande qualité optique de nos cristaux de ZGP.

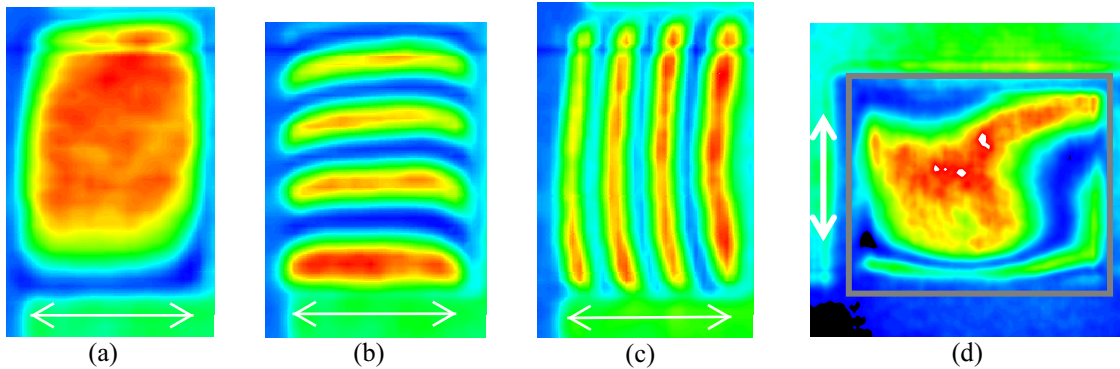


Figure 1.13 – Images d’interférométrie à 2250 nm en polarisation ordinaire. Analyse d’un cristal de ZGP de 5 mm de long traité Twinstar en (a) recherche de teinte plate, (b) coin vertical, (c) coin horizontal. (d) Analyse d’un cristal de ZGP de 15 mm de long traité Eksma en recherche de teinte plate.

Caractérisation des cristaux de CdSe

Nous avons également à notre disposition trois cristaux de CdSe, dont les caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 1.2. Le premier cristal de 40 mm de long est fourni par Moltech, tandis que les cristaux de 15 mm de long sont respectivement fournis par Moltech et Eksma. Ils sont tous taillés en accord de phase non critique angulairement selon l'angle $\theta = 90^\circ$ pour lequel il n'y a pas de walk-off.

Table 1.2 – Caractéristiques des cristaux de CdSe.

Grandeur	CdSe long	CdSe court x 2
Longueur (mm)	40	15
Ouverture (mm x mm)	4 x 5	2 x 3
Accord de phase	Type II	Type II
Angle θ (degrés)	90	90
Traitements anti-reflets	Twinstar	Eksma et Twinstar
Longueur d'onde de pompe spécifiée (nm)	2210	2051

Pour avoir un gain comparable au ZGP dans les expériences d'amplification paramétrique optique (OPA) ou en OPO, les cristaux de CdSe sont beaucoup plus longs afin de compenser le plus faible coefficient non linéaire d_{eff} . Ces cristaux sont eux aussi munis de traitements anti-reflets, qui sont tout aussi indispensables que pour ZGP. En effet, l'indice moyen $n \approx 2,45$ induit un coefficient de réflexion $R = \left(\frac{1-n}{1+n}\right)^2 \approx 18\%$. Pour s'en assurer, nous mesurons au FTIR la transmission du cristal de CdSe de 40 mm de long, avant et après traitement par Twinstar. Nous mesurons également au FTIR la transmission des deux cristaux de 15 mm de long, respectivement traités par Eksma et Twinstar. Les résultats sont présentés sur la Figure 1.14.

Nous constatons qu'après traitement, la transmission du CdSe de 40 mm est bien meilleure pour les longueurs d'onde de pompe, signal et complémentaire d'intérêt, passant de 60 % à 86 % entre 2 et 3 μm et entre 8 et 12 μm . De plus, nous constatons à nouveau la bien meilleure qualité des traitements Twinstar sur les cristaux de 15 mm. Avec ces traitements, la transmission est d'au moins 92 % sur la plage 2-2,5 μm et au moins 96 % entre 8 et 10 μm .

Nous avons ensuite analysé par ombroscopie et interférométrie le CdSe de 15 mm traité par Twinstar, qui pourra être utilisé dans un OPO. Les différents profils d'éclairement enregistrés avec une polarisation de pompe ordinaire sont présentés en Figure 1.15. Nous effectuons tout d'abord une ombroscopie double passage à 2250 nm et nous constatons qu'aucun défaut n'est

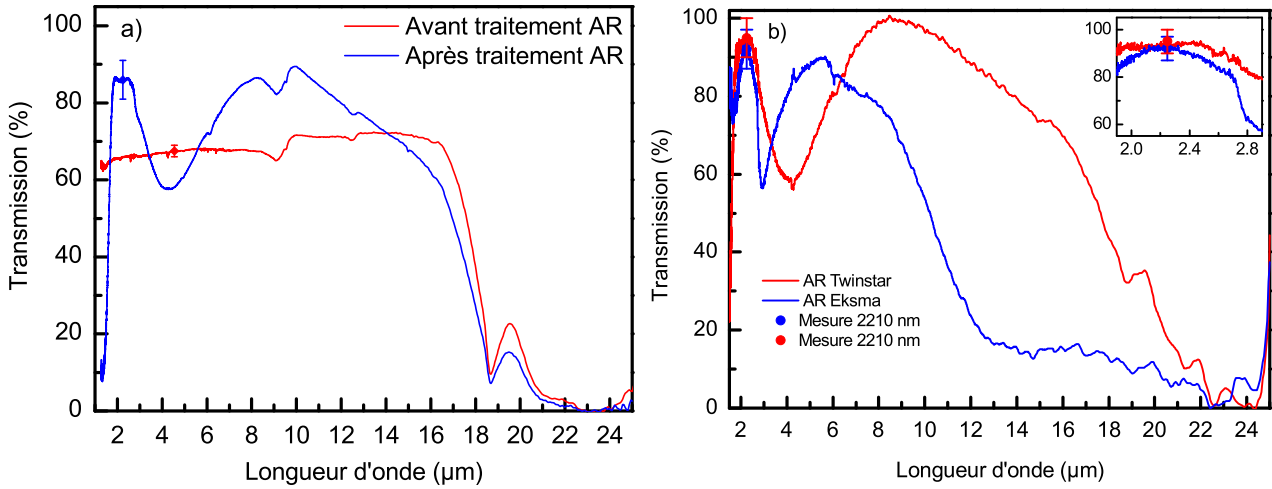


Figure 1.14 – a) Spectres de transmission du cristal de CdSe de 40 mm mesurés au FTIR. Les points de mesure permettent de recalibrer la transmission absolue des courbes. b) Comparaison des traitements anti-reflets des cristaux de CdSe de 15 mm. La qualité des traitements Twinstar est bien meilleure que celle des traitements Eksma sur la gamme spectrale 6-16 μm .

décelable quelle que soit la direction de polarisation. L'analyse par interférométrie confirme ces résultats et démontre la très bonne qualité optique du cristal.

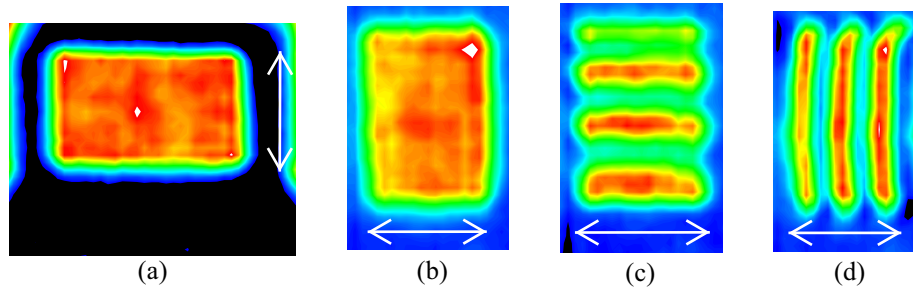


Figure 1.15 – Images d'ombroscopie double passage et d'interférométrie du cristal de CdSe de 15 mm traité Twinstar en polarisation ordinaire. (a) Ombroscopie double passage, (b) Interférométrie en recherche de teinte plate, (c) Interférométrie en coin vertical, (d) Interférométrie en coin horizontal.

Ces premiers tests nous ont permis de valider les performances et de vérifier la qualité de nos cristaux de ZGP et CdSe pour les expériences d'optique non linéaire dans la gamme spectrale 6-16 μm . Même si les traitements anti-reflets sont loin d'être parfaits, ils sont suffisamment bons pour réaliser un OPO avec un seuil d'oscillation raisonnable, c'est-à-dire avec une marge confortable vis à vis du seuil de dommage. Comme nous l'avons mentionné, ces deux cristaux possèdent des avantages complémentaires pour nos expériences. Ainsi, si nous voulons en tirer parti, chaque expérience devra être réalisée avec les deux cristaux. Or, nous avons vu qu'il n'existait pas de cristal non linéaire idéal. À ce titre, nous allons présenter dans la section

suivante le concept plus subtil de quasi-accord de phase. Nous allons exposer ses avantages et ses inconvénients vis à vis de l'accord de phase par biréfringence, et nous illustrerons ensuite ce concept dans un cristal réunissant à la fois les avantages du ZGP et du CdSe : l'OP-GaAs.

1.4 Le quasi-accord de phase

1.4.1 Principe de fonctionnement

Lors d'un processus non linéaire, l'interaction entre la polarisation non linéaire et les ondes qu'elle rayonne donne alternativement lieu à des interférences constructives et destructives. Considérons un cristal non linéaire (isotrope ou anisotrope) et plaçons nous loin de l'accord de phase à $\Delta k \neq 0$. La résolution des équations non linéaires 1.2 montre que dans ce cas, l'amplitude normalisée du signal et du complémentaire $u_{s,c}(z)$ a un comportement oscillant dû à une succession d'interférences constructives puis destructives. Ainsi, l'intensité des ondes générées oscille tout au long de la propagation à une fréquence d'autant plus grande que le désaccord de phase Δk est grand. Le maximum d'intensité est atteint quand les ondes ont parcouru la distance $L_{\text{coh}} = \frac{\pi}{\Delta k}$, appelée longueur de cohérence, et se répète tous les $(2n+1)L_{\text{coh}}$ où n est un entier naturel non nul. De la même façon, l'intensité devient périodiquement nulle au bout d'une distance de propagation $2nL_{\text{coh}}$ égale à un multiple pair de la longueur de cohérence. L'ordre de grandeur typique est $L_{\text{coh}} = 10 - 100 \mu\text{m}$.

La technique de quasi-accord de phase s'appuie sur la remise en phase périodique des ondes dans le cristal [Fej92] [Pas12], via un changement du signe de la susceptibilité non linéaire effective χ_{eff} quand l'intensité des ondes générées se met à décroître, c'est-à-dire après avoir parcouru une distance égale à la longueur de cohérence. Au lieu d'être en opposition de phase, les trois ondes se retrouvent alors en phase et interfèrent à nouveau constructivement comme le montre la Figure 1.16. À noter que Armstrong et al avaient déjà imaginé les prémices de ce concept dès 1962 [Arm62].

Pour compenser efficacement le déphasage relatif entre les ondes, la période du réseau de quasi-accord de phase Λ_{QPM} doit être égale à deux fois la longueur de cohérence, soit $\Lambda_{\text{QPM}} = 2L_{\text{coh}}$. Il est alors possible de montrer que le matériau se comporte comme un cristal non linéaire massif standard caractérisé par un coefficient non linéaire χ_{eff} divisé par $\frac{\pi}{2}$. Le vecteur de désaccord de phase s'écrit alors $\Delta k_{\text{QPM}} = \Delta k - \frac{2\pi}{\Lambda_{\text{QPM}}}$ et la condition d'accord de phase est donnée par :

$$\frac{n(\lambda_p)}{\lambda_p} - \frac{n(\lambda_s)}{\lambda_s} - \frac{n(\lambda_c)}{\lambda_c} = \frac{1}{\Lambda_{\text{QPM}}}. \quad (1.19)$$

Nous venons de présenter le quasi-accord de phase dit d'ordre 1, qui est le plus couramment

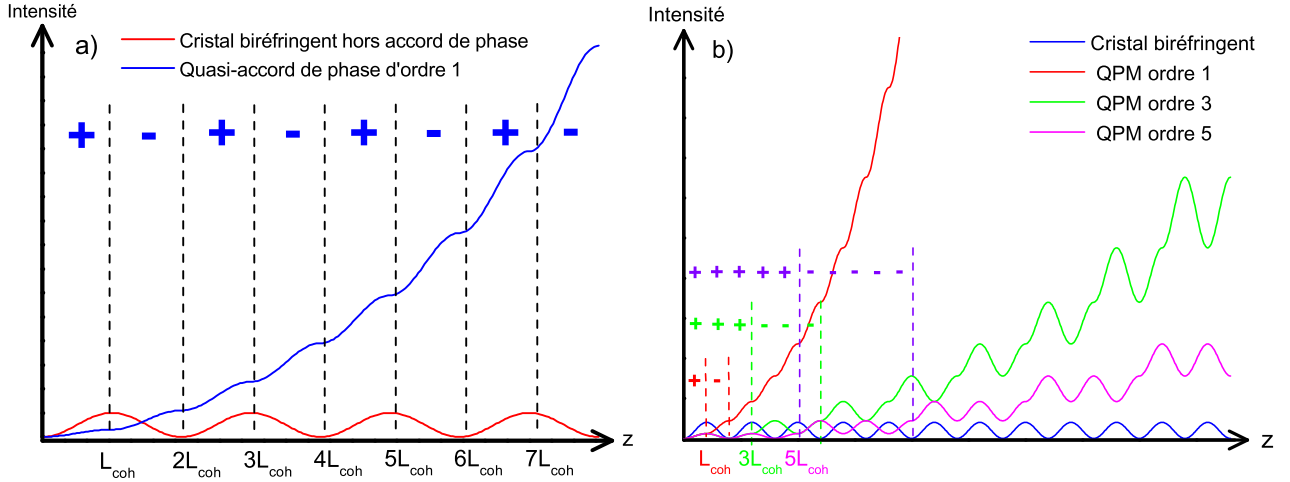


Figure 1.16 – a) Evolution de l'intensité de l'onde signal ou complémentaire lors de la propagation dans un cristal biréfringent hors accord de phase et dans un cristal fonctionnant en quasi-accord de phase d'ordre 1. b) Comparaison de l'efficacité des processus de quasi-accord de phase d'ordre 1, 3 et 5.

utilisé. Ce concept peut toutefois se généraliser à des ordres impairs supérieurs, par exemple en faisant croître successivement $2n+1$ domaines de signe $+\chi_{\text{eff}}$ suivis de $2n+1$ domaines de signe $-\chi_{\text{eff}}$ et ainsi de suite. De façon générale, le coefficient non linéaire effectif de quasi-accord de phase s'écrit donc

$$\chi_{2n+1} = \frac{2}{(2n+1)\pi} \chi_{\text{eff}}, \quad (1.20)$$

et la période de quasi-accord de phase correspondante s'écrit $\Lambda_{2n+1} = (2n+1) \Lambda_{\text{QPM}}$. Le quasi-accord de phase d'ordre supérieur est cependant moins efficace que celui d'ordre 1 car le coefficient non linéaire effectif est fortement diminué. La Figure 1.16 présente également l'évolution de l'intensité des ondes générées dans la cavité pour du quasi-accord de phase d'ordre 3 et 5.

Une façon d'obtenir de l'accordabilité en quasi-accord de phase consiste à faire varier la température du cristal. En effet, comme l'indice de réfraction dépend de la température (effet thermo-optique), une modification de celle-ci revient à changer le couple de longueur d'onde signal et complémentaire permettant de vérifier la condition d'accord de phase. En pratique, l'accord de phase par température peut être effectué en insérant le cristal dans un four sur lequel est monté un module Peltier ou une résistance chauffante. D'autres façons consistent à travailler à température constante mais en faisant varier le pas du réseau. Trois configurations existent : translation d'un échantillon comportant plusieurs réseaux de pas différents [Fej92], translation d'un échantillon présentant une structure d'inversion de domaines en éventail [Pow98], rotation d'un échantillon cylindrique présentant un seul réseau [Fev01].

Il existe deux applications essentielles du quasi-accord de phase. La première concerne les cristaux biréfringents dont l'un des éléments du tenseur de susceptibilité non linéaire est extrêmement élevé comparé aux autres coefficients, mais correspond à trois ondes ayant la même polarisation. De ce fait, l'accord de phase par biréfringence est impossible compte tenu de la dispersion. Le quasi-accord de phase permet alors d'obtenir un processus non linéaire efficace avec trois ondes identiquement polarisées dans la direction utilisant le fort coefficient non linéaire non disponible pour l'accord de phase par biréfringence. Dans ce cas, on parle de quasi-accord de phase de Type 0. Ce phénomène est illustré dans des cristaux tels que LiNbO_3 [Mye95] et KTiOPO_4 (KTP) [Edw00], dont les tenseurs de susceptibilité non linéaires d'ordre 2, donnés par le logiciel SNLO avec la convention de notation de la piézoélectricité sont les suivants :

$$d_{\text{LiNbO}_3} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & -4,6 & -2,6 \\ -2,6 & 2,6 & 0 & -4,6 & 0 & 0 \\ -4,6 & -4,6 & -25 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix},$$

$$d_{\text{KTP}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 1,95 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 3,9 & 0 & 0 \\ 1,95 & 3,9 & 15,3 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}.$$

Dans ces deux matériaux, le quasi-accord de phase de Type 0 est employé pour tirer parti de l'élément de tenseur qui vaut $d_{33} = 25$ pm/V pour le LiNbO_3 [Rob92] et $d_{33} = 15,3$ pm/V pour le KTP [Pac04]. Pour illustrer ce point, calculons la polarisation non linéaire rayonnée par le niobate de lithium :

$$\vec{P}_{NL} = \varepsilon_0 \chi_{\text{LiNbO}_3}^{(2)} \vec{E}_s \vec{E}_c = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} d_{15} E_{sx} E_{cz} + d_{15} E_{sz} E_{cx} + d_{16} E_{sx} E_{cy} + d_{16} E_{sy} E_{cx} \\ d_{16} E_{sx} E_{cx} + d_{16} E_{sy} E_{cy} + d_{15} E_{sy} E_{cz} + d_{15} E_{sz} E_{cy} \\ d_{15} E_{sx} E_{cx} + d_{15} E_{sy} E_{cy} + d_{33} E_{sz} E_{cz} \end{pmatrix} \quad (1.21)$$

Pour une onde de pompe polarisée selon l'axe z , la polarisation non linéaire s'écrit : $P_{NL} = \varepsilon_0 (d_{15} E_{sx} E_{cx} + d_{15} E_{sy} E_{cy} + d_{33} E_{sz} E_{cz})$. Ainsi, lorsque les ondes signal et complémentaire sont également polarisées selon z (Type 0), on obtient finalement $P_{NL} = \varepsilon_0 d_{33} E_{sz} E_{cz}$. Dans le ré-

seau de quasi-accord de phase, la susceptibilité non linéaire effective est alors $d_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi}d_{33} = 15,9$ pm/V : cette valeur est bien supérieure à n'importe quel élément du tenseur de susceptibilité d'ordre 2 autre que d_{33} . De plus, le niobate de lithium et le KTP ont l'avantage d'être ferro-électriques : l'inversion du signe de la susceptibilité non linéaire se fait en changeant le signe d'une tension appliquée entre deux électrodes branchées sur un domaine de longueur L_{coh} . En changeant le signe de la tension un domaine sur deux, on obtient un cristal fonctionnant en quasi-accord de phase.

Le quasi-accord de phase de Type I et de Type II est également possible, mais les avantages par rapport au cristal biréfringent classique sont alors d'ordre pratique : utilisation de cristaux à réseaux chirpés pour augmenter la bande de gain, accordabilité en changeant la température du cristal, etc. De plus, pour la réalisation d'OPO monofréquences, le quasi-accord de phase de Type II permet d'affiner naturellement la bande de gain ce qui sera bénéfique comme nous le verrons au chapitre 2. Un autre intérêt d'utiliser ces types d'accord de phase est d'augmenter l'acceptance spectrale par rapport au Type 0 [Bra09].

En conclusion, le quasi-accord de phase apparaît moins contraignant que l'accord de phase par biréfringence car il permet l'utilisation de n'importe quel élément du tenseur de susceptibilité non linéaire du cristal. En revanche, l'inversion du signe de χ_{eff} n'est pas toujours aisée, c'est pourquoi cette technique reste réservée à très peu de cristaux. En particulier, il est très difficile d'obtenir des échantillons dont la fenêtre d'entrée dépasse quelques mm², ce qui limite l'énergie de pompe utilisable compte tenu du seuil de dommage optique en intensité.

La seconde application d'intérêt du quasi-accord de phase concerne les cristaux non linéaires isotropes tels que le GaAs, du fait de l'absence de biréfringence. Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter les caractéristiques de l'OP-GaAs, cristal que nous utiliserons lors des expériences du chapitre 2.

1.4.2 Le cristal d'OP-GaAs

L'arseniure de gallium GaAs est un matériau semiconducteur très utilisé en micro-électronique et présentant des propriétés remarquables pour l'optique non linéaire. Non centrosymétrique, son tenseur de susceptibilité électrique de second ordre est donné par :

$$d_{\text{OP-GaAs}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix}, \quad (1.22)$$

avec $d_{14} = 94$ pm/V [Ska02]. Sa bande de transmission dans l'infrarouge moyen est très

large, allant de 1 à 17 μm avec une transmission presque parfaite entre 2 et 12 μm et un seuil de dommage d'environ 1 J/cm^2 à 2 μm en régime nanoseconde. Même s'il présente une absorption à deux photons rendant difficile son pompage à 1 μm [Hur06], son absorption linéaire à 2 μm est beaucoup plus faible que celle du ZGP et il possède une bonne conductivité thermique (52 W/m.K). Ce cristal est donc un candidat idéal pour l'optique non linéaire entre 6 et 16 μm car il possède les avantages respectifs de ZGP et CdSe. En revanche, son isotropie lui impose un fonctionnement en quasi-accord de phase ou en guide d'onde avec une biréfringence modale, cette dernière technique pouvant déboucher sur la réalisation d'un OPO intégré [Sav11][Oza14]. Comme ce matériau n'est pas polaire (il ne présente pas de polarisation spontanée), l'inversion du signe de la susceptibilité non linéaire ne peut pas se faire par application d'un champ électrique. La solution technologique qui s'est imposée depuis quelques années est celle de la croissance directe par épitaxie de GaAs périodiquement orienté (OP-GaAs) présenté sur la Figure 1.17. Elle permet d'obtenir un cristal d'OP-GaAs, dont le coefficient non linéaire est d'environ $d_{\text{eff}} = 60 \text{ pm/V}$. Cette croissance, réalisée pour la première fois en 1999 [Ebe99], reste à ce jour extrêmement difficile, en particulier pour obtenir des réseaux d'épaisseur suffisante (plusieurs centaines de μm) pour les expériences d'optique non linéaire [Fay07]. C'est pourquoi seuls quelques laboratoires dans le monde sont capables de produire des cristaux de qualité suffisante pour les expériences d'optique non linéaire, et que l'OP-GaAs était non disponible commercialement jusqu'à très récemment (BAE Systems a mis en vente les premiers échantillons en 2015).

Des alternatives ont également été proposées dans GaN et GaP [Sch15] pour s'affranchir de la limitation de pompage au-delà de 1,8 μm imposée par l'absorption à deux photons dans GaAs, mais ce dernier reste à ce jour le cristal le plus mûr pour le quasi-accord de phase au delà de 6 μm . Nous allons maintenant présenter quelques expériences d'intérêt réalisées avec ce cristal.

Après une première démonstration de principe en 2001 [Eyr01] et des expériences de génération de longueurs d'onde à 8 μm par différence de fréquences en 2002 [Lev02], la première réalisation marquante a eu lieu en 2004 lorsque le premier OPO basé sur ce matériau a été démontré et publié dans un article co-signé par l'Université de Stanford (USA) et Thales Research and Technologies (TRT, France) [Vod04]. La source de pompe utilisée était un OPO PPLN (LiNbO_3 périodiquement polarisé) émettant jusqu'à 60 μJ accordable entre 1,8 et 2 μm , lui-même pompé par un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ miniature à 1064 nm émettant des impulsions de 13 ns à une cadence de 10 Hz. L'énergie maximale générée par l'OPO OP-GaAs pour cette première démonstration était de 3 μJ par impulsion à 7,9 μm et la plage d'accord en longueur d'onde était 5,78-9,14 μm . Depuis, la démonstration d'un OPO OP-GaAs directement pompé par un laser $\text{Tm}^{3+}, \text{Ho}^{3+}:\text{YLF}$ émettant à 2050 nm a été réalisée par BAE [Sch05]. Il a été possible, avec ce montage, de générer jusqu'à 443 mW (3,5 μm + 4,98 μm) à partir de 2,6 W de pompe à 10

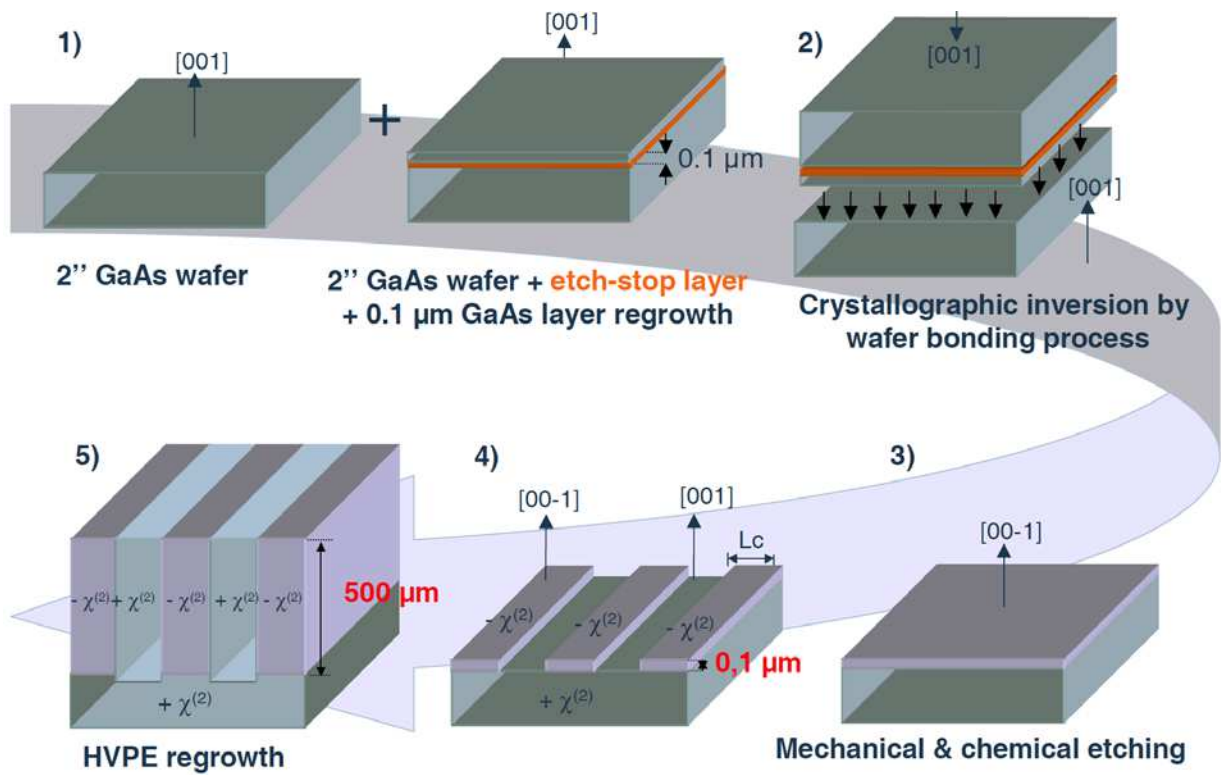


Figure 1.17 – Etapes du processus de croissance directe par épitaxie d'un cristal d'OP-GaAs, image fournie par TRT.

kHz. Plus récemment, une puissance moyenne en bande II (3-5 μm), de 2,85 W à 20 kHz (soit 142 μJ /impulsion) à partir de 6 W de pompe, a été démontrée dans le cadre d'une collaboration entre TRT et l'ISL [Kie09]. Un niveau de puissance de 3 W en bande II à 50 kHz a également été obtenu indépendamment par TRT [Gri10]. Par ailleurs, nous pouvons mentionner la réalisation récente d'un OPO en OP-GaAs fonctionnant en régime continu et émettant jusqu'à 4 W moyen à 4,7 μm après pompage par un laser Ho^{3+} :YAG à 2090 nm [Pom12]. Une source continue émettant entre 6,4 et 7,5 μm a également été démontrée par différence de fréquences dans OP-GaAs [Dev14] ainsi qu'un OPO continu [Pom12].

OP-GaAs a également été utilisé par TRT pour amplifier le rayonnement issu d'un laser à cascade quantique (QCL) émettant en bande II [Blo10]. La puissance crête maximale en sortie est alors de 580 W à 4,5 μm (soit environ 17 μJ par impulsion de 30 ns de durée) pour une puissance moyenne pompe de 2,8 W à 20 kHz. Dans le chapitre 4, nous proposerons une expérience similaire, en amplifiant un laser à cascade quantique accordable autour de 8 μm dans un cristal de ZGP [Cle13]. En conclusion, les performances démontrées avec OP-GaAs sont identiques à celles de ZGP dans la bande II s'étendant entre 3 et 5 μm .

Pour des longueurs d'onde complémentaires plus éloignées dans le spectre infrarouge, la meilleure transparence de l'OP-GaAs au-delà de 8 μm vis à vis du ZGP et son coefficient non linéaire plus élevé que celui de CdSe devraient permettre d'atteindre des performances élevées sur l'intégralité de la gamme spectrale 6-16 μm . En 2013, un rayonnement complémentaire accordable entre 8,8 et 11,5 μm a été obtenu à partir d'un OPO en OP-GaAs [Fea13]. Suite à ces résultats, une autre expérience en 2014 a permis d'obtenir une accordabilité sur une plage spectrale bien plus importante entre 4 et 14 μm [Vod14], avec un spectre relativement fin. Cependant, en régime nanoseconde, l'obtention d'un spectre monomode longitudinal dans un OPO en OP-GaAs n'a toujours pas été démontrée. La faible épaisseur des échantillons restreint actuellement l'utilisation d'OP-GaAs à la réalisation d'OPO pompés avec des faisceaux de faibles diamètres. Pour la montée en énergie au-delà de 8 μm via les expériences d'OPA, ZGP et de CdSe resteront donc privilégiés car il est possible de les tailler avec une grande ouverture.

Synthèse

Nous avons présenté les bases théoriques fondamentales de l'optique non linéaire d'ordre 2 : accordabilité en longueur d'onde, conservation de l'énergie, conservation de l'impulsion via la condition d'accord de phase, équations de propagation non linéaire des champs et des phases, relations de Manley-Rowe. Nous avons ensuite détaillé le principe de fonctionnement des oscillateurs paramétriques optiques afin de choisir l'architecture la plus adaptée pour en maîtriser le contenu spectral. Nous avons mis en évidence le fait qu'il n'existe pas à l'heure actuelle de sources nanosecondes ayant à la fois une forte énergie et un spectre monomode longitudinal dans la gamme spectrale 6-16 μm . Puis, nous avons vu que l'accord de phase par biréfringence et le quasi-accord de phase constituaient deux techniques envisageables pour émettre des longueurs d'onde dans cette gamme spectrale. Nous avons présenté les propriétés de base des cristaux non linéaires que nous utiliserons dans cette thèse à savoir ZGP, CdSe (accord de phase par biréfringence) et OP-GaAs (quasi-accord de phase), et des expériences notables réalisées avec ces cristaux. L'étude simultanée de la montée en énergie et de la maîtrise du spectre, débouchant sur l'élaboration d'un système MOPA monomode émettant entre 6 et 16 μm , nécessite une source de pompe à la fois de forte énergie et monomode autour de 2 μm , non disponible commercialement à l'heure actuelle. Les travaux présentés dans les chapitres suivants portent sur la génération d'un faisceau accordable et monomode dans la gamme spectrale 6-16 μm (chapitre 2 et 3), puis sur la montée en énergie par amplification paramétrique (chapitre 4).

Chapitre 2

Oscillateurs paramétriques optiques doublement résonnant pour la détection d'espèces chimiques à distance

Objectifs

Après avoir présenté les bases du fonctionnement d'un OPO, nous allons nous intéresser à la mise en oeuvre expérimentale d'OPO doublement résonnants, émettant un rayonnement complémentaire à la fois monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm . Dans un premier temps, nous présenterons les mécanismes de sélection spectrale permettant d'obtenir un faisceau complémentaire monomode dans les OPO à cavités imbriquées (NesCOPO). Nous exposerons ensuite les expériences réalisées dans le cadre du projet DROSOFIL, dans lequel un NesCOPO en ZGP ou CdSe est pompé à haute cadence par un laser à fibre émettant à 2051 nm. Nous comparerons les résultats avec ceux obtenus dans le cadre du projet MUSTARD, comprenant un NesCOPO en OP-GaAs pompé à basse cadence par un microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ à 1940 nm, pour valider les qualités spectrales. Nous effectuerons enfin une première expérience de détection de gaz à distance avec le faisceau complémentaire issu du NesCOPO en OP-GaAs, sur un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac gazeux situées autour de 10,4 μm .

2.1 Sources cohérentes à spectre fin basées sur les cristaux non linéaires en bande III

Comme nous l'avons mentionné lors de l'introduction, les OPO possèdent de nombreux avantages pour détecter des espèces chimiques à distance dans l'atmosphère en permettant d'identifier leurs raies d'absorption. Dès lors se pose la question de l'optimisation des performances des OPO pour des applications en spectroscopie [Hau95] et de l'analyse de leur contenu spectral [Fix96]. Afin de détecter spécifiquement une espèce chimique, il est préférable d'avoir un faisceau fin spectralement, sinon plusieurs espèces peuvent être détectées simultanément, ce qui pose des difficultés pour les discriminer. Ceci est naturellement le cas dans les OPO fonctionnant en régime continu, mais ils ne sont pas adaptés à la détection à distance, en détection directe ou résolue en distance, car ils délivrent une trop faible puissance crête. En revanche, les OPO fonctionnant en régime nanoseconde émettent des puissances crêtes élevées mais la compétition de modes est faible dans ces OPO, et aléatoire d'un tir à l'autre, ce qui rend l'affinage du spectre (et notamment l'émission monomode) beaucoup plus difficile à obtenir.

Des techniques basées sur l'ajout d'éléments optiques visant à affiner le spectre, tels que des réseaux et/ou des étalons, ont déjà permis d'obtenir un faisceau monomode en sortie d'OPO dans le proche infrarouge. Dès 1969, l'émission monomode a été démontrée dans un SRO muni d'un cristal de LiNbO_3 grâce à l'ajout d'un étalon Fabry-Perot intracavité [Kre69]. Elle a ensuite été prouvée via l'utilisation d'un réseau de diffraction dans un OPO en KTP émettant jusqu'à $2,2 \mu\text{m}$ [Bos92] et en PPLN émettant jusqu'à $3,8 \mu\text{m}$ [Sch00b]. Plus récemment, l'émission monomode a également été obtenue à $2,5 \mu\text{m}$ dans un OPO en PPLN conçu avec des réseaux de Bragg volumiques [Bla08].

Ces méthodes d'affinage de spectre ont également été appliquées à des OPO émettant dans la gamme spectrale $6\text{-}16 \mu\text{m}$, basés sur des cristaux de ZGP, CdSe ou OP-GaAs. L'une des expériences marquantes a été réalisée avec un SRO en ZGP, dans lequel un réseau de diffraction en configuration Littrow et un étalon en silicium sont insérés dans la cavité afin de réduire la largeur spectrale du faisceau complémentaire, accordable entre $3,7$ et $8 \mu\text{m}$ (ou $10,5 \mu\text{m}$ suivant le réseau) [Gan01]. Cet OPO est pompé à basse cadence (15 ns , 10 Hz) à 2550 nm par un autre OPO en LiNbO_3 , lui-même pompé à 1064 nm par un laser Nd:YAG Q-switché. La largeur spectrale du complémentaire a été évaluée à $0,1 \text{ cm}^{-1}$, correspondant à environ trois modes longitudinaux. Ceci serait suffisant pour détecter des espèces chimiques lourdes telles que des gaz de combat dans l'atmosphère en bande III ($8\text{-}12 \mu\text{m}$), pour lesquelles il est estimé qu'une largeur spectrale de $1\text{-}2 \text{ cm}^{-1}$ permettrait de les identifier spécifiquement. Cependant, l'émission monomode n'a pu être obtenue bien que les auteurs aient suggéré qu'elle aurait été possible avec un étalon silicium de plus grande finesse.

Plus récemment, un faisceau accordable entre 4 et 14 μm a été obtenu grâce à un SRO en OP-GaAs pompé autour de 3 μm à haute cadence (20 ns, 1-2 kHz), avec une largeur spectrale comprise entre 2 et 6 cm^{-1} [Vod14]. L’affinage du spectre a été effectué sur le signal résonnant, également grâce à un réseau de diffraction en configuration Littrow. Ceci a conduit à des impulsions dont la largeur spectrale a été estimée à 2,2 cm^{-1} à 6 μm , et 4,6 cm^{-1} autour de 11,5 μm . Sans être monomode, le faisceau complémentaire a donc une faible largeur spectrale, qui reste toutefois un peu trop élevée pour une détection d’espèces chimiques sélective en bande III.

En conclusion, il n’existe pas à l’heure actuelle d’OPO monomode longitudinal émettant directement un rayonnement complémentaire au-delà de 8 μm en régime nanoseconde. Ce chapitre va présenter les expériences qui ont conduit à leur première mise en oeuvre avec des cristaux de ZGP, CdSe et OP-GaAs. Pour ce faire, nous allons concevoir des OPO doublement résonnants à cavités imbriquées (NesCOPO), qui ne nécessitent aucun élément optique supplémentaire pour affiner le spectre. Nous allons expliquer dans la section suivante quels sont les mécanismes de sélection spectrale leur permettant d’émettre un faisceau signal et complémentaire monomode longitudinal.

2.2 Principe de fonctionnement des OPO à cavités imbriquées

Les NesCOPO (Nested Cavities OPO) sont des OPO doublement résonnants dont la cavité signal et complémentaire sont physiquement dissociées. L’un des miroirs peut être commun aux deux cavités, tandis que le second est distinct, et réfléchit soit le signal soit le complémentaire. Ainsi, nous obtenons deux cavités imbriquées l’une dans l’autre. La Figure 2.1 montre le schéma du NesCOPO tel que nous l’utiliserons dans les expériences de ce chapitre. Un miroir doré placé au fond de la cavité permet de réfléchir à la fois le signal et le complémentaire, et d’effectuer un retour de pompe dans l’OPO pour diminuer le seuil d’oscillation.

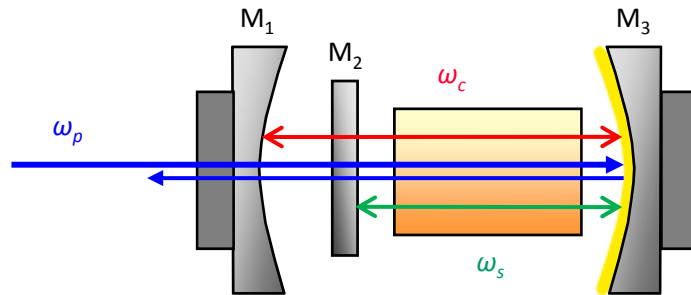


Figure 2.1 – Schéma de principe du NesCOPO.

Pour comprendre le mécanisme de sélection spectrale dans le NesCOPO, il est utile d'introduire le diagramme de Giordmaine et Miller [Gio66] qui permet de représenter la répartition des doubles coïncidences dans n'importe quel DRO. Dans ce diagramme, les modes résonnants du signal et du complémentaire sont placés sur deux axes de direction opposée. Pour respecter la conservation de l'énergie, l'origine de l'axe des fréquences signal coïncide avec la fin de l'axe des fréquences complémentaire : à la dégénérescence, $\omega_s = \omega_c = \frac{\omega_p}{2}$. Pour que l'oscillation ait lieu, un mode signal et un mode complémentaire liés par la conservation de l'énergie doivent pouvoir se recouvrir dans la bande de gain du DRO définie par l'accord de phase. Lorsque le recouvrement est parfait, nous parlerons de coïncidence exacte, ce qui correspond à des modes alignés verticalement sur la Figure 2.2. Dans les autres cas, où un recouvrement est possible mais non optimal, nous parlerons de coïncidence partielle.

Plusieurs situations sont donc possibles. Dans le premier cas, il n'y a aucune double coïncidence dans la bande de gain : l'OPO ne peut donc pas osciller. Dans le second cas, un unique couple de mode signal et complémentaire forme une coïncidence exacte dans la bande de gain, conduisant à une émission monomode, comme illustré dans la Figure 2.2. Enfin, dans le dernier cas, plusieurs coïncidences exactes sont présentes dans la bande de gain, entraînant une émission multimode de l'OPO.

La finesse de la cavité joue un rôle déterminant sur le contenu spectral des DRO. Comme cette finesse est finie, les fréquences qui oscillent dans la cavité peuvent être légèrement décalées par rapport aux fréquences de résonance exactes du signal et du complémentaire. C'est particulièrement le cas durant le régime impulsionnel transitoire, où le gain instantané est beaucoup plus élevé que les pertes passives de la cavité. Le gain peut alors dépasser les pertes additionnelles induites par les interférences destructives quand la phase de l'onde signal et complémentaire après un aller-retour diffère légèrement de 2π . Ceci a deux conséquences importantes. D'un point de vue théorique tout d'abord, il ne devrait y avoir qu'une seule coïncidence exacte dans la bande de gain si la finesse était infinie, car les modes signal et complémentaire seraient alors des pics de Dirac dont le recouvrement serait parfait pour la coïncidence exacte sélectionnée et nul ailleurs à cause de la dispersion. En pratique, le coefficient de réflexion des miroirs ne vaut jamais 1 et la finesse est donc finie. De ce fait, les modes ont une certaine largeur spectrale, d'autant plus faible que la finesse est élevée, et plusieurs quasi-coïncidences exactes peuvent être présentes dans la bande de gain. C'est pourquoi nous les assimilons à des coïncidences exactes.

D'autre part, compte tenu de la valeur finie de la finesse, des coïncidences partielles peuvent également exister de part et d'autre d'une coïncidence exacte comme le montre la Figure 2.3. Elles peuvent osciller si le recouvrement entre le mode signal et le mode complémentaire qui les composent est suffisant pour obtenir un gain supérieur aux pertes. L'OPO émet alors des paquets de modes appelés clusters. En pratique, la valeur exacte du recouvrement minimal permettant l'oscillation d'une coïncidence partielle peut être déterminée soit par un critère

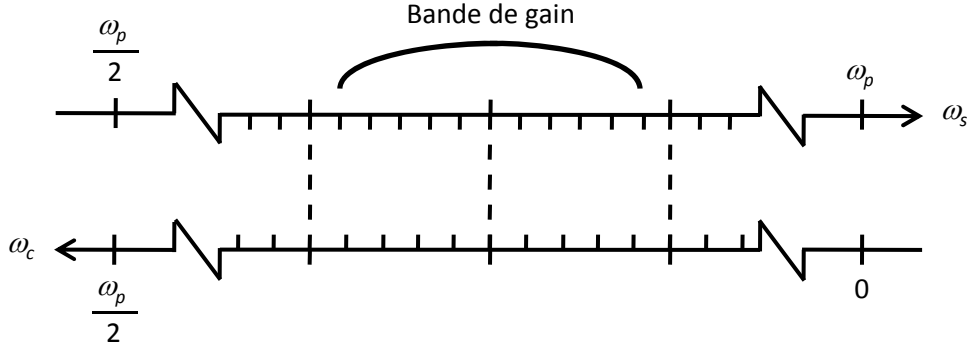


Figure 2.2 – Représentation des doubles coïncidences dans le diagramme de Giordmaine et Miller.

empirique [Rib01], soit par une simulation numérique complète du DRO prenant en compte les profils temporels et spatiaux exacts de chaque faisceau. Si le recouvrement est suffisant, le spectre d'émission n'est pas monomode longitudinal et des clusters de modes sont émis par l'OPO.

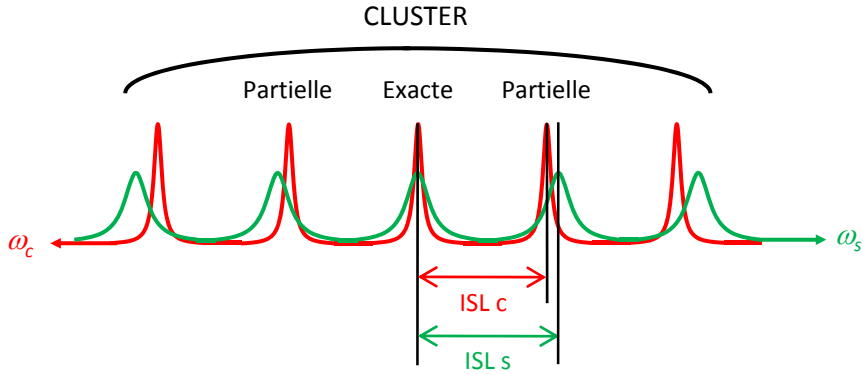


Figure 2.3 – Coïncidences partielles au voisinage d'une coïncidence exacte. L'ensemble forme un cluster de modes.

Dans la plupart des DRO, il est donc difficile d'obtenir une émission monomode car plusieurs clusters coexistent au sein de la bande de gain, et les fluctuations de longueur optique des cavités rendent difficile le contrôle du recouvrement entre les modes, induisant de nombreux sauts de modes. Le NesCOPO permet de lever ces problèmes grâce à la dissociation des cavités signal et complémentaire [Sch00a]. Comme les cavités signal et complémentaire sont distinctes, l'intervalle spectral libre de chaque onde est différent, et les modes signal et complémentaire pourront donc être bien espacés dans le domaine spectral. Le recouvrement spectral des modes est alors contrôlé en ajustant la longueur physique relative des deux cavités. Faire varier la longueur physique d'une des deux cavités en déplaçant le miroir signal ou complémentaire revient, dans le diagramme de Giordmaine et Miller, à faire glisser un peigne de modes par rapport à l'autre. Cette analogie avec l'effet Vernier permet d'accorder la longueur d'onde

d'émission de l'OPO en sélectionnant spécifiquement une coïncidence exacte dans la bande de gain. Il est alors utile d'introduire le paramètre de dissociation des cavités [Sch00a], défini par :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{L_s - L_c}{L_s}, \quad (2.1)$$

où $L_{s,c}$ désigne ici la longueur optique des cavités signal et complémentaire. En négligeant les effets de dispersion d'ordre 2, on montre que deux coïncidences exactes sont séparées dans le domaine spectral du signal par :

$$\Delta\nu_{s,c} = \left(\frac{L_s - L_c}{L_s} \right)^{-1} \frac{c}{2n_{gs,c}L}, \quad (2.2)$$

où $n_{gs,c}$ désigne respectivement l'indice de groupe du signal et du complémentaire. Ainsi, l'écart en fréquence entre deux coïncidences exactes est simplement donné par le produit entre l'inverse de la dissociation et l'intervalle spectral libre.

La relation 2.2 met en évidence le fait qu'une dissociation élevée tend à rapprocher les coïncidences exactes, au risque que plusieurs d'entre elles puissent osciller dans la bande de gain ce qui conduit à une émission multimode. Inversement, une dissociation faible sépare grandement les coïncidences exactes les unes des autres, mais va augmenter le recouvrement entre les modes des coïncidences partielles. Ceci va favoriser l'oscillation des modes voisins à la coïncidence exacte et augmenter le nombre de modes présents dans un cluster, donnant également lieu à une émission multimode. Remarquons qu'à dissociation fixée, augmenter la finesse de la cavité en utilisant des miroirs davantage réfléchissants permet naturellement d'affiner la largeur spectrale des modes et va donc réduire la probabilité d'obtenir des coïncidences partielles. La Figure 2.4 présente différentes situations possibles pour le contenu spectral de l'OPO suivant la valeur de la dissociation.

Ainsi, pour avoir une émission monomode, la dissociation doit être astucieusement choisie afin de n'avoir qu'une seule coïncidence exacte dans la bande de gain, tout en s'assurant que les coïncidences partielles du cluster ne puissent pas osciller. Le grand intérêt du NesCOPO est de pouvoir l'ajuster manuellement, en déplaçant par exemple le miroir d'entrée de la Figure 2.1, ce qui permet de se placer dans une configuration où le spectre sera monomode.

Les premiers NesCOPO ont été développés à l'ONERA avec un simple passage de pompe dans un cristal de PPLN pendant les thèses de B. Scherrer [Sch98a] et I. Ribet [Rib01]. Cette première architecture à 4 miroirs a ensuite évolué : un miroir signal (M_3) et un miroir complémentaire (M_2) sont déposés respectivement sur la face avant et la face arrière du cristal [Dra02] [Des04]. Ceci permet de réduire les espaces d'air dans la cavité et donc les fluctuations associées aux variations des chemins optiques des ondes résonnantes, tout en diminuant ΔL . Les miroirs M_1 et M_4 qui ferment respectivement la cavité signal et complémentaire sont quant à eux montés

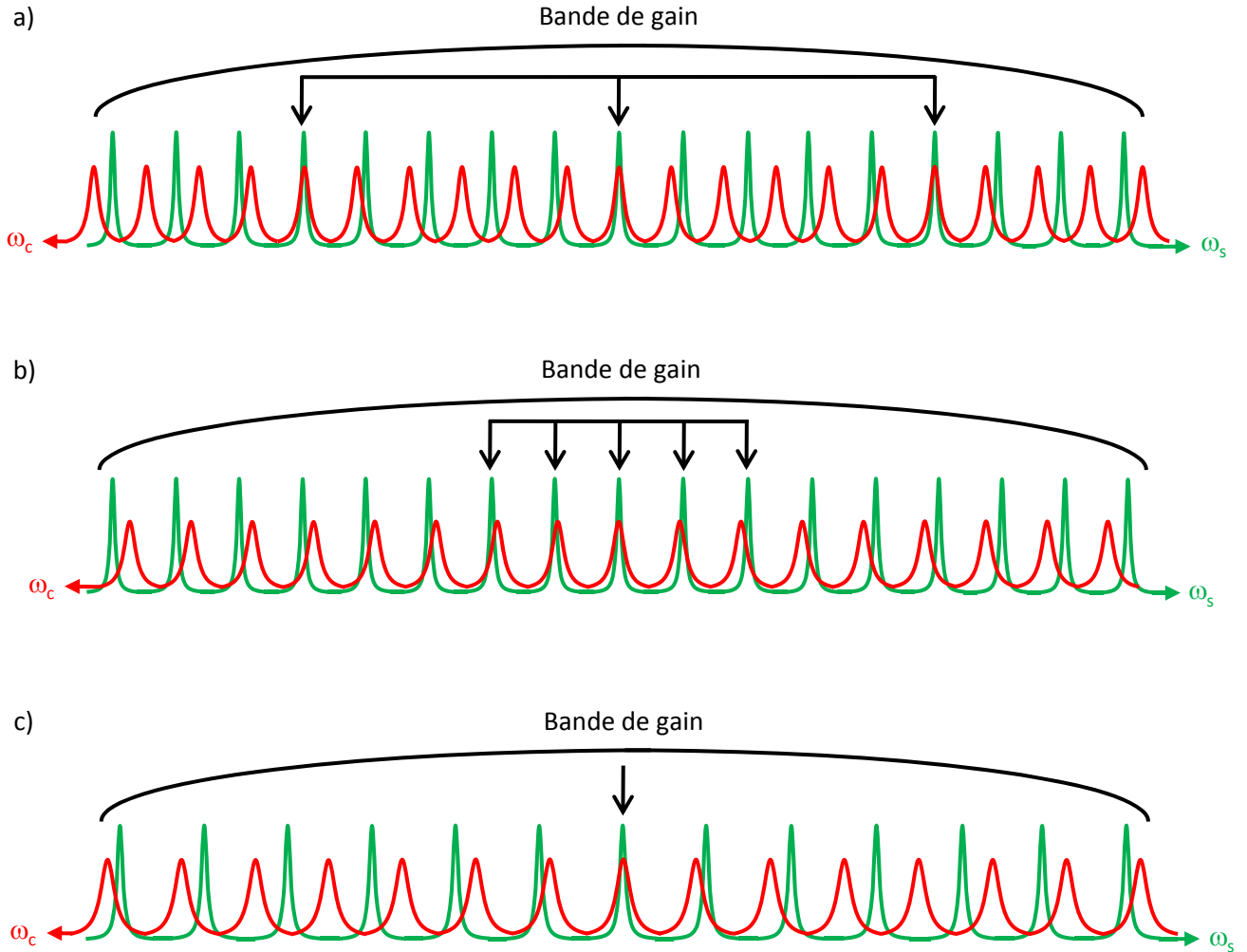


Figure 2.4 – Effet de la dissociation sur le spectre d’émission d’un NesCOPO. a) Dissociation élevée, plusieurs coïncidences exactes coexistent dans la bande de gain : spectre multimode. b) Dissociation faible, un cluster de modes comprenant plusieurs coïncidences partielles est émis : spectre multimode. c) Dissociation intermédiaire, la bande de gain ne contient qu’une seule coïncidence exacte : spectre monomode longitudinal.

sur des transducteurs piézoélectriques (PZT). Changer la tension appliquée aux transducteurs fait varier la longueur relative des cavités signal et complémentaire et permet donc d'ajuster la dissociation. Cette première génération d'OPO a permis de mettre en évidence l'intérêt de la dissociation des cavités pour avoir un spectre monomode longitudinal en régime nanoseconde.

Par la suite, l'architecture des NesCOPO en PPLN a encore évolué afin d'implémenter un double passage de la pompe dans la cavité conduisant à une baisse du seuil d'oscillation. Comme mentionné au chapitre 1, il faut alors tenir compte de la phase relative des trois ondes au retour pour optimiser les performances de l'OPO. Le retour de pompe réduit également l'influence des Fabry-Perot parasites sur le spectre [Des05] [Ber08]. La technique développée pour ces NesCOPO de seconde génération consiste à ajouter un nouveau miroir M_5 en dehors de la cavité, permettant de renvoyer la pompe dans le cristal [Ber07]. Par ailleurs, en ajustant finement la position de ce miroir à l'aide d'une cale piézoélectrique, la phase relative entre les trois ondes est maintenue de manière à conduire à un transfert d'énergie de l'onde de pompe vers les ondes signal et complémentaire au retour. L'utilisation d'un miroir doré ou d'un miroir diélectrique large bande est importante pour que le maintien de la phase relative soit achromatique. De plus, ce NesCOPO a été automatisé et utilisé pour des mesures de spectrométrie d'absorption en cellule de différents gaz [Ber10]. Il a également ouvert la voie à un pompage par microlaser, et donc vers la conception d'instruments compacts pour la détection de gaz avec un seuil de quelques μJ .

Enfin, une dernière génération de NesCOPO a vu le jour afin de réaliser des systèmes encore plus compacts. Ces NesCOPO sont basés sur une architecture innovante permettant un contrôle de la phase relative sur toute la bande de gain [Gui09] [Har11], en taillant l'une des faces du cristal de manière prismatique. Cette configuration intègre directement dans la cavité le retour de pompe et le contrôle de la phase relative des ondes au retour, en utilisant seulement trois miroirs comme ce qui est présenté en Figure 2.1. Comme le miroir de fond est désormais commun aux deux cavités, son déplacement fait glisser simultanément les peignes de modes signal et complémentaire : un très léger déplacement modifie donc la coïncidence exacte sélectionnée dans la bande de gain.

Ces travaux ont été poursuivis en utilisant un NesCOPO PPLN de dernière génération comme oscillateur maître, permettant ainsi d'émettre un rayonnement accordable et monomode longitudinal dans un système MOPA [Ray09] intégré dans un LIDAR. Contrairement aux cristaux de PPLN utilisés auparavant en Type 0, le PPLN de ce NesCOPO est conçu en Type II afin de réduire la bande de gain et conserver une oscillation monomode près de la dégénérescence. La source MOPA peut directement effectuer la détection de plusieurs espèces autour de $2\text{ }\mu\text{m}$, telles que le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4) et l'eau (H_2O) [Bar14c]

Des expériences similaires ont été effectuées en parallèle pour détecter le méthane en bande

II. Une source MOPA accordable entre 3,3 et 3,5 μm , basée sur un NesCOPO PPLN pompé par un laser à fibre en régime microseconde à 1064 nm avec un taux de répétition compris en 40 et 100 kHz, a été réalisée pour détecter du méthane atmosphérique par détection photoacoustique en cellule [Bar13]. Une source similaire plus compacte via le pompage du NesCOPO PPLN par un microlaser a également été montée pour réaliser un système LIDAR accordable entre 3,3 et 3,7 μm . Ce LIDAR a permis de mesurer la concentration du méthane et de l'eau présents dans l'atmosphère, en configuration IP-DIAL, sur une distance de 30 mètres [Bar14b]. Ces expériences montrent que le NesCOPO peut être la brique de base d'une source cohérente robuste permettant de détecter des gaz à effets de serre dans l'atmosphère en bande II. Ces concepts pourraient être facilement appliqués au domaine visible ou proche infrarouge (pompage à 532 nm) pour des applications de spectroscopie telles que le photodétachement.

Dans le cadre de cette thèse, nous proposons plutôt de les étendre à la gamme spectrale 6-16 μm qui inclut la bande III (8-12 μm), en mettant en place des NesCOPO à base de ZGP, CdSe puis OP-GaAs. Le manque de maturité technologique dans cette gamme spectrale et la rareté de ces cristaux d'un point de vue commercial rend cette entreprise particulièrement difficile. Ces NesCOPO seront pompés autour de 2 μm pour plusieurs raisons. Tout d'abord, comme nous l'avons expliqué au chapitre 1, les cristaux que nous utilisons sont transparents à 2 μm et ne présentent pas d'inconvénients majeurs à cette longueur d'onde (absorption résiduelle faible, pas d'absorption à deux photons, accord de phase par biréfringence possible). De plus, en terme d'énergie, le défaut quantique sur l'onde complémentaire sera plus favorable qu'avec un pompage à 1 μm ou 1,5 μm (qui nécessiterait l'emploi d'autres cristaux). Enfin, les lasers de pompe (à cristaux massifs ou à fibre) dopés thulium et/ou holmium qui émettent à 2 μm possèdent une grande efficacité et une grande maturité technologique. En revanche, de tels lasers monofréquences sont rares. De ce fait, des lasers de pompe monofréquences à 2 μm ont été développés spécialement pour les expériences que nous allons présenter, qui s'inscrivent dans le cadre de deux projets : le projet DROSOFIL et le projet MUSTARD.

2.3 Réalisation expérimentale d'un NesCOPO en ZGP/CdSe pompé par un laser à fibre monofréquence

Le projet DROSOFIL a pour objet le développement de sources laser innovantes dans les bandes spectrales infrarouges 3-4 μm et 6-12 μm , critiques pour les applications de détection et d'analyse de gaz. Les travaux présentés dans cette section sont focalisés sur la gamme spectrale 6-12 μm , via le développement d'un NesCOPO en ZGP ou CdSe émettant en bande III, et pompé par un laser à fibre monofréquence à 2051 nm. Cette approche permet de concilier la souplesse temporelle des lasers à fibre et la très large accordabilité spectrale des OPO pour

obtenir des performances uniques. L'expérience en elle-même représente un défi scientifique et technologique situé au delà de l'état de l'art en laboratoire.

2.3.1 Présentation du laser de pompe

Le laser de pompe du NesCOPO est un laser à fibre silice dopée Thulium, développée par l'équipe Sources Lasers et Systèmes (SLS) du Département d'Optique Théorique et Appliquée (DOTA) de l'ONERA dans le cadre de la thèse d'Erik Lucas en partenariat avec Keopsys [Luc14]. Il s'agit d'une architecture MOPA comprenant un oscillateur maître et trois étages d'amplification. Cette architecture permet une grande souplesse d'utilisation. Par exemple, le choix de la longueur d'onde dépend de l'oscillateur maître, de la durée d'impulsion, des capacités du modulateur acousto-optique et du nombre d'étages d'amplifications. L'oscillateur maître est une diode laser continue à 2051 nm monofréquence. Il est injecté dans un amplificateur fibré continu avant d'être découpé temporellement par le modulateur acousto-optique, qui met ainsi en forme les impulsions. Ces impulsions sont ensuite amplifiées dans un second amplificateur fibré, puis un troisième permettant d'atteindre une puissance conséquente en sortie. Les différents éléments qui constituent le laser de pompe sont présentés en Figure 2.5.

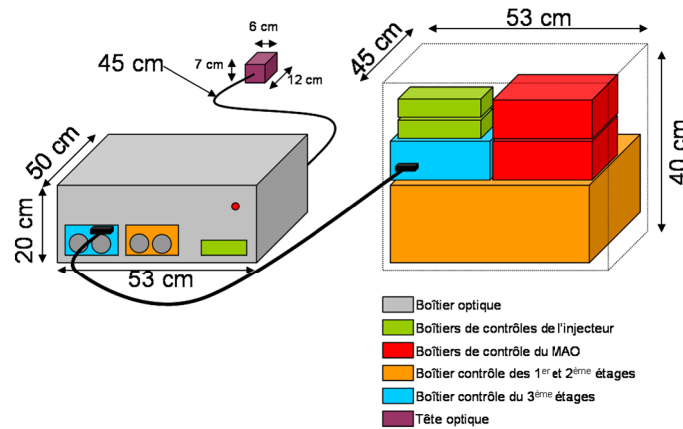


Figure 2.5 – Présentation des différents éléments constituant le laser de pompe du NesCOPO en ZGP/CdSe.

L'une des caractéristiques fondamentales de ce laser est qu'il délivre des impulsions monofréquences, ce qui est essentiel pour espérer obtenir un faisceau complémentaire monomode longitudinal dans le NesCOPO. Le faisceau émis en sortie de tête optique est quasiment limité par la diffraction ($M^2 < 1,2$), linéairement polarisé et son profil spatial est monomode transverse TEM_{00} . Le laser peut émettre des impulsions d'une durée de 100 à 500 ns, à une cadence comprise entre 20 et 50 kHz, dont la puissance crête peut atteindre jusqu'à 1 kW. Au delà, l'effet Brillouin vient limiter les performances du laser. Ceci permet de pomper le NesCOPO avec

une puissance moyenne de plusieurs watts, et donc d'obtenir une puissance moyenne élevée sur le faisceau complémentaire. La durée d'impulsion et la cadence sont ensuite choisies suivant un compromis pour maximiser la puissance moyenne de pompe sans avoir d'effet Brillouin. Nous imposons pour cela une durée de 270 ns à la cadence de 20 kHz, ce qui permet d'obtenir des impulsions de 1 kW crête avec la puissance moyenne la plus grande possible, qui est alors de 5,4 W.

2.3.2 Dimensionnement du NesCOPO

Nous concevons une cavité identique quel que soit le cristal utilisé dans le NesCOPO, suivant le schéma de la Figure 2.1. Les caractéristiques des différents miroirs sont répertoriées dans le Tableau 2.1

Table 2.1 – Caractéristiques des miroirs du NesCOPO en ZGP/CdSe.

Miroir	M ₁	M ₂	M ₃
Rayon de courbure (mm)	20	+∞	50
Transmission à 2051 nm	~ 60 %	> 96 %	0 %
Réflexion entre 2,4 et 2,7 μm (signal)	< 4 %	> 95 %	> 98 %
Réflexion entre 8 et 11 μm (complémentaire)	> 80 %	< 3 %	> 98 %

Le miroir d'entrée noté M₁ est un miroir en ZnSe qui ferme la cavité complémentaire et fait office de coupleur. En revanche, il ne transmet que 60 % de la pompe à 2051 nm car il avait été spécifié à la base pour une autre longueur d'onde de pompe. Ceci n'aura pas d'incidence en terme de puissance de pompe disponible car nous aurons largement assez pour pomper l'OPO. Ceci aura toutefois tendance à créer un Fabry-Perot parasite non négligeable comme nous allons le voir par la suite. Le miroir M₂ est un miroir plan en ZnSe, inséré après M₁, et qui constitue le premier miroir de la cavité signal. La face réfléchissante de ce miroir sera placée vers M₁. De ce fait, le substrat en ZnSe sera traversé à la fois par l'onde signal et l'onde complémentaire. Cette astuce permettra de mieux contrôler la dissociation entre les deux cavités du NesCOPO et notamment de ne pas trop rallonger le chemin optique du complémentaire par rapport à celui du signal. Le cristal de ZGP ou CdSe est placé après M₂. Enfin, le miroir de fond M₃ est un miroir doré qui réfléchit toutes les ondes dans la cavité. Nous laissons entre 1 et 2 mm d'air entre le cristal et les miroirs afin de pouvoir tourner le cristal sur une plage angulaire suffisante et ainsi démontrer la plus grande accordabilité possible. Pour cette première expérience, aucun élément ne permet de contrôler la phase relative au retour (telle qu'une lame de phase prismatique). En effet, nous nous sommes d'abord concentrés sur le fait de pouvoir faire osciller l'OPO avec

un faisceau monomode longitudinal (ce qui constituerait une grande première au-delà de 8 μm en régime nanoseconde) avant d'ajouter d'éventuelles améliorations. Les miroirs M_1 et M_3 sont montés sur des cales piézoélectriques ayant un déplacement maximal de 10 μm . En changeant la tension appliquée sur ces cales, nous pouvons choisir la coïncidence exacte sur laquelle l'OPO oscille. La dissociation est réglée à l'aide de platine micrométriques et peut donc être ajustée finement afin d'obtenir l'oscillation monomode longitudinale recherchée. La Figure 2.6 présente une photo du NesCOPO où sont visibles les différents pièces optomécaniques qui composent la cavité.

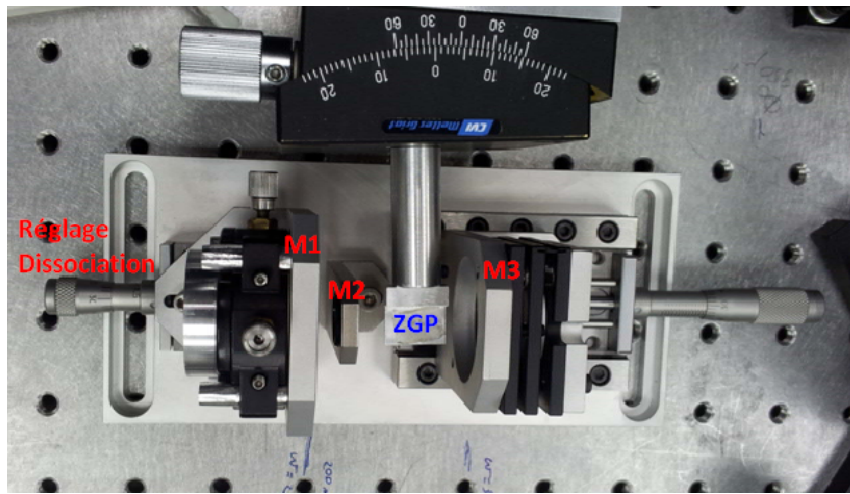


Figure 2.6 – Photo de la cavité NesCOPO sans cristal.

Les calculs de zones de stabilité montrent que les cavités signal et complémentaire sont stables pour les deux cristaux. Les espaces d'air de la cavité signal permettant de conserver une cavité stable sont de 6 mm pour la cavité avec CdSe et de 8 mm avec ZGP : nous aurons donc plusieurs millimètres de marge lorsque nous placerons les cristaux dans la cavité, qui devrait dans tous les cas rester stable. Avec un espacement de 1-2 mm d'air entre le cristal et les miroirs, nous calculons un rayon au waist du signal $w_{0s} = 90 - 100 \mu\text{m}$ avec ZGP et $w_{0s} \approx 130 \mu\text{m}$ avec CdSe. De même, le rayon au waist du faisceau complémentaire vaut $w_{0c} = 135 - 145 \mu\text{m}$ avec ZGP et $w_{0c} \approx 160 \mu\text{m}$ avec CdSe.

2.3.3 Mise en forme du faisceau de pompe

Pour pomper efficacement le NesCOPO, il est nécessaire de mettre en forme le faisceau de pompe issu du laser à fibre. Tout d'abord, un isolateur est placé dès la sortie du laser en plus de celui placé dans la tête optique. Ceci permettra d'éviter les retours de pompe, qui ont nécessairement lieu lorsque le NesCOPO est monté car le miroir doré de fond de cavité réfléchit presque toute la pompe. Une lame demi-onde permet de contrôler la polarisation de la pompe.

L'accord de phase dans ZGP et CdSe se fait en Type II selon la configuration suivante : Pompe (o) $\rightarrow$ Signal (e) + Complémentaire (o). La lame demi-onde est donc réglée afin d'avoir une polarisation de pompe ordinaire, que nous choisissons de mettre dans la direction horizontale. Enfin, une lentille en CaF_2 traitée anti-reflet autour de $2\text{ }\mu\text{m}$ permet de focaliser la pompe avec le waist souhaité suivant sa position et sa focale.

En imposant l'égalité des zones de Rayleigh de la pompe et du signal dans la cavité pour avoir un excellent recouvrement spatial sur toute la longueur du cristal, nous déterminons le rayon au waist de la pompe (à $1/e^2$) optimal dans le NesCOPO. Il est de $86\text{ }\mu\text{m}$ avec ZGP et de $113\text{ }\mu\text{m}$ avec CdSe. Pour être certain de passer le seuil avec CdSe, nous allons chercher à obtenir un waist de pompe image $w'_{0p} \approx 80\text{ }\mu\text{m}$. Dans ZGP, le décalage transverse des faisceaux dû au walk-off sera d'environ un demi rayon de faisceau après propagation dans le cristal, ce qui reste raisonnable. Compte tenu des contraintes de place sur la table optique, nous utilisons une lentille de focale $f' = 100\text{ mm}$ pour focaliser la pompe. Le waist objet $w_{0p} = 185\text{ }\mu\text{m}$ est situé dans le premier isolateur, 52 mm avant la sortie du laser. Les formules de conjugaison et de grandissement de l'optique gaussienne permettent de placer la lentille de façon adéquate sur le trajet du faisceau :

$$zz' = ff' + z_R z'_R, \quad (2.3)$$

$$\frac{z}{z_R} = -\frac{z'}{z'_R}. \quad (2.4)$$

À partir de ces relations, nous cherchons la position théorique de la lentille nous permettant d'obtenir un rayon image $w'_{0p} \approx 80\text{ }\mu\text{m}$. D'après les calculs, ce waist sera situé une quinzaine de centimètres après la lentille, ce qui laisse suffisamment d'espace pour placer le NesCOPO.

Comme un léger changement des paramètres peut rapidement modifier la taille et la position du waist image, il est indispensable de mesurer la caustique de focalisation de la pompe une fois la lentille placée. Cette mesure a été effectuée par la méthode du couteau, dont la procédure est décrite dans la norme ISO 11146. La Figure 2.7 montre que le meilleur fit avec les points expérimentaux est obtenu avec un rayon au waist de $90\text{ }\mu\text{m}$. Un profil spatial enregistré à la caméra pyroélectrique Pyrocam III une vingtaine de centimètres après le waist montre que le faisceau est bien TEM_{00} .

Enfin, nous avons également mesuré la stabilité en longueur d'onde de la pompe. Le résultat est présenté lui aussi en Figure 2.7 et nous voyons que la longueur d'onde du laser ne dérive que de $10\text{-}15\text{ pm}$ sur presque 6 heures de fonctionnement. La diminution observée lors de la première heure est attribuée au temps de chauffe du laser, et nous pouvons observer qu'au bout d'une heure, la longueur d'onde de pompe ne change plus que de $3\text{ ou }4\text{ pm}$, soit 100 MHz d'écart

RMS par rapport à la fréquence centrale : le laser à fibre émet donc un faisceau extrêmement bien stabilisé.

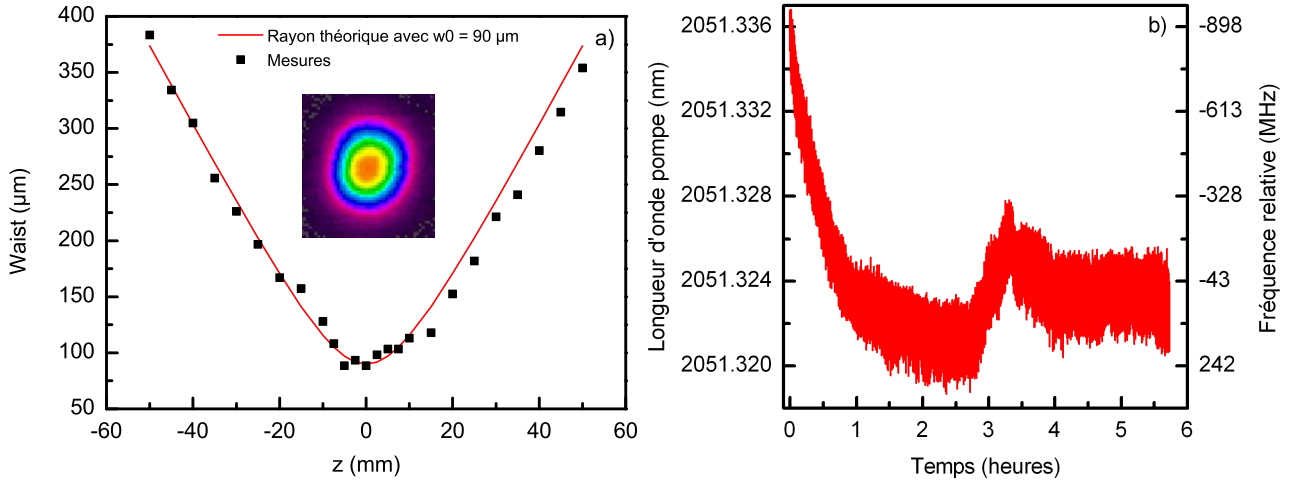


Figure 2.7 – a) Caustique de la pompe mesurée près du waist. b) Mesure de la stabilité en longueur d'onde du laser de pompe sur plusieurs heures.

2.3.4 Calculs de seuil

Avant de monter le NesCOPO, il est utile d'avoir un ordre de grandeur du seuil d'oscillation avec ZGP et CdSe. Pour cela, nous utilisons un code de calcul développé à l'Onera sous Matlab, qui simule l'oscillation dans n'importe quel type d'OPO doublement résonnant à partir de la résolution numérique des équations du chapitre 1, en se basant sur le calcul des pertes par diffraction par la méthode de Fox et Lie et les transformées de Hankel pour la discrétisation 2D. Les paramètres utilisés pour les simulations sont reportés dans le Tableau 2.2. Le miroir de fond pour le signal et le complémentaire est assimilé à un miroir équivalent qui prend en compte toutes les pertes subies par l'onde correspondante sur un aller-retour de cavité. Les coefficients de réflexion des miroirs et les pertes (liées aux traitements anti-reflets et à l'absorption résiduelle dans le cristal) sont déterminées à partir des courbes des traitements diélectriques données par les fournisseurs et des mesures de transmission réalisées au FTIR.

Le coefficient effectif d_{eff} a été calculé aux longueurs d'onde choisies grâce au logiciel SNLO, intégrant la dépendance en fréquence du coefficient non linéaire via la règle de Miller. Les seuils calculés sont relativement bas : 20 μJ avec ZGP (0,16 J/cm²) et 45 μJ avec CdSe (0,35 J/cm²). Ils supposent une phase relative idéale au retour et pourront être deux fois plus élevés en pratique. Avec ZGP, la marge vis à vis du seuil de dommage à 2 μm compris entre 1 et 2 J/cm² est confortable. En revanche, cette marge est beaucoup plus réduite avec CdSe dont le seuil de dommage est estimé à 1 J/cm² à 2 μm. Comme la pompe peut délivrer jusqu'à 270

Table 2.2 – Paramètres utilisés dans le code Matlab pour estimer le seuil d'oscillation du NesCOPO en ZGP et en CdSe.

Cristal	ZGP	CdSe
λ_p (nm)	2051	2051
λ_s (nm)	2724	2674
λ_c (nm)	8300	8800
d_{eff} (pm/V)	74,2	19,2
α_p (m ⁻¹)	0,048	0,02
α_s (m ⁻¹)	0,003	0,02
α_c (m ⁻¹)	0,06	0,02
Durée pompe (ns)	270	270
Waist pompe (μm)	90	90
Longueur cristal (mm)	5	15
Température cristal (°C)	25	25
Réfectivité M ₃ pompe	0,97	0,97
Phase relative au retour	$-\frac{\pi}{2}$	$-\frac{\pi}{2}$
M ₁ : distance au cristal (mm)	2	2
M ₁ : rayon de courbure (mm)	20	20
M ₁ : réflectivité complémentaire	0,81	0,85
M ₂ : distance au cristal (mm)	1,4	1,4
M ₂ : rayon de courbure (mm)	100000	100000
M ₂ : réflectivité signal	0,95	0,96
M ₃ : distance au cristal (mm)	1,5	1,5
M ₃ : rayon de courbure (mm)	50	50
M ₃ : réflectivité signal	0,83	0,72
M ₃ : réflectivité complémentaire	0,79	0,94
Seuil (μJ)	20	45
Seuil (J/cm ²)	0,16	0,35

μJ avec une durée de pompe de 270 ns, le seuil d'oscillation pourra être atteint sans difficulté, et ce malgré la transmission de M_1 qui n'est que de 60 % à la pompe. Nous allons maintenant présenter les résultats de caractérisation du NesCOPO.

2.3.5 Caractérisation du NesCOPO

Le schéma du montage du NesCOPO est donné en Figure 2.9. Avant de commencer l'alignement, une lame dichroïque qui permet d'extraire le complémentaire, hautement réfléchissante entre 8 et 11 μm , est placée juste après la lentille de focalisation de la pompe. Pour l'alignement effectué par autocollimation, nous disposons d'un laser Hélium-Néon que nous superposons au faisceau de pompe en passant à travers deux diaphragmes. La pompe est centrée et placée en autocollimation sur le miroir intermédiaire M_2 , car celui-ci n'a aucun réglage. Nous alignons ensuite le miroir d'entrée M_1 , puis le cristal en autocollimation sur l'Hélium-Néon. Comme ZGP et CdSe ne sont pas transparents dans le visible, l'autocollimation est effectuée sur la face d'entrée du cristal, qui est monté sur une platine possédant de multiples translations et rotations. Enfin, nous translatons provisoirement le cristal en dehors du faisceau afin de régler le miroir doré M_3 qui doit réfléchir l'Hélium-Néon sur lui-même. Cette étape suppose implicitement que le parallélisme des faces du cristal est excellent.

Nous avons très rapidement abandonné CdSe au profit de ZGP. En effet, dès que l'oscillation est observée, elle disparaît presque aussitôt, et une piqûre est nettement visible sur le miroir doré M_3 . Ainsi, le seuil d'oscillation expérimental de CdSe semble coïncider avec le seuil de dommage du miroir doré lorsque l'OPO fonctionne et que les trois ondes sont présentes dans la cavité. Nous avons ainsi mesuré un seuil d'oscillation autour de 70 μJ , soit 1,6 fois ce qui était prévu par la théorie, correspondant à une fluence de 0,55 J/cm^2 sur le traitement doré de M_3 . Remarquons que d'après les simulations, le waist du faisceau complémentaire est quasiment situé sur ce miroir, ce qui accentue le risque de provoquer un dommage optique à sa surface. Pour tester la robustesse des traitements dorés, nous avons mesuré le seuil de dommage à 2051 nm sur un miroir doré plan sans insérer de cristal de la cavité. Le miroir présente une légère piqûre au bout de 5 minutes pour une fluence de 0,8 J/cm^2 mais aucun dommage n'est observé pour une fluence de 0,65 J/cm^2 . Ceci confirme bien que le fait d'avoir trois ondes dans la cavité accélère l'endommagement du miroir de fond, et probablement des autres composants.

Concernant le NesCOPO en ZGP, un seuil de 20 μJ a été mesuré à 8 μm et 8,3 μm , ce qui correspond à une puissance crête de 75 W. Ce résultat est en parfait accord avec le seuil estimé par les simulations. En pompant 2,8 fois au dessus du seuil avec une énergie de 56 μJ , nous mesurons un dépeuplement de 43 % à 8 μm au centre du faisceau, comme le montrent les profils temporels de la Figure 2.10 où le dépeuplement de la pompe est fortement marqué. Le profil spatial du complémentaire est également représenté et montre que le faisceau à 8 μm est

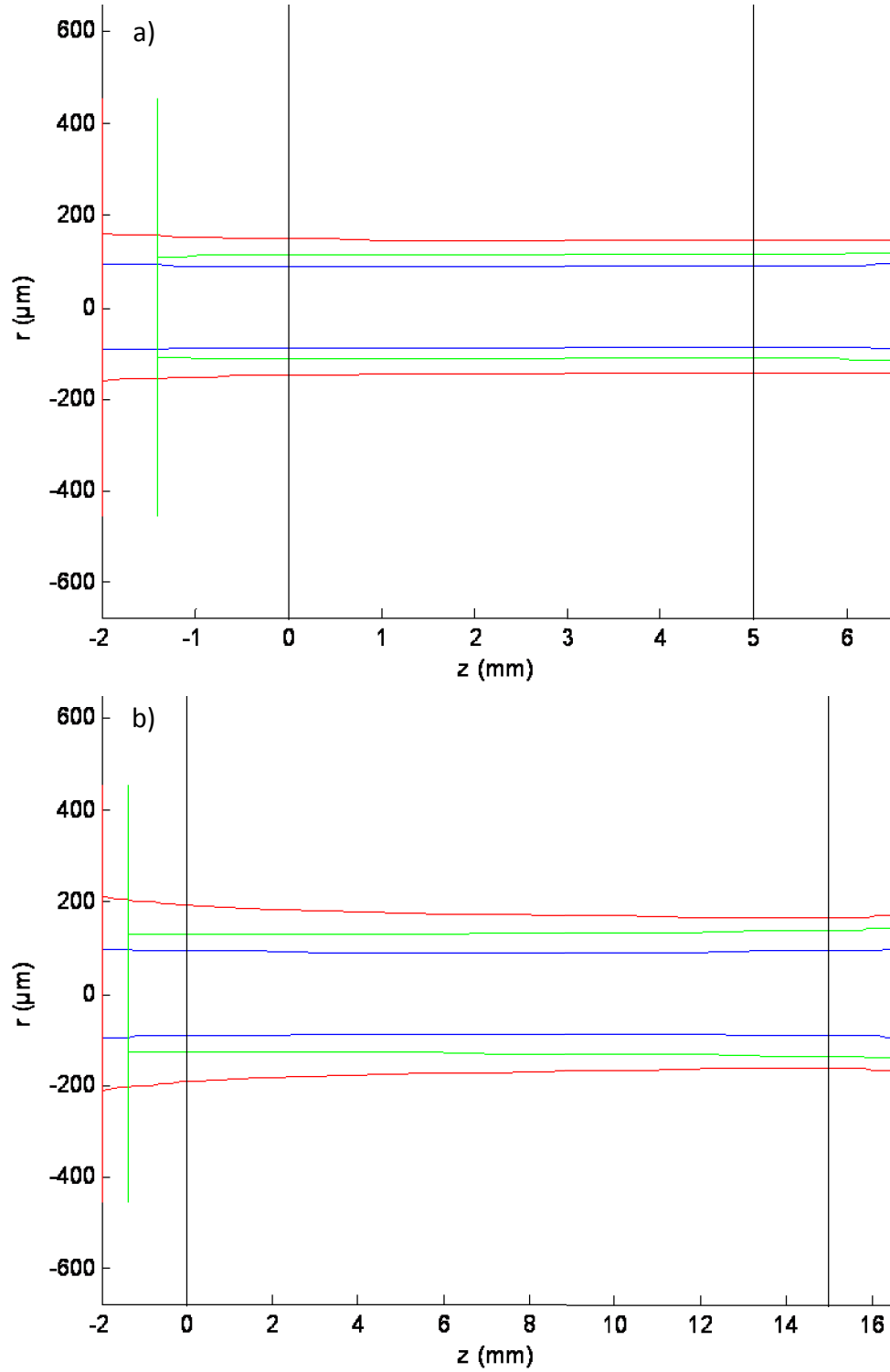


Figure 2.8 – Rayons au waist des faisceaux pompe, signal et complémentaire dans le NesCOPO, calculées à partir des données du Tableau 2.1. a) NesCOPO muni du cristal de ZGP de 5 mm. b) NesCOPO muni du cristal de CdSe de 15 mm.

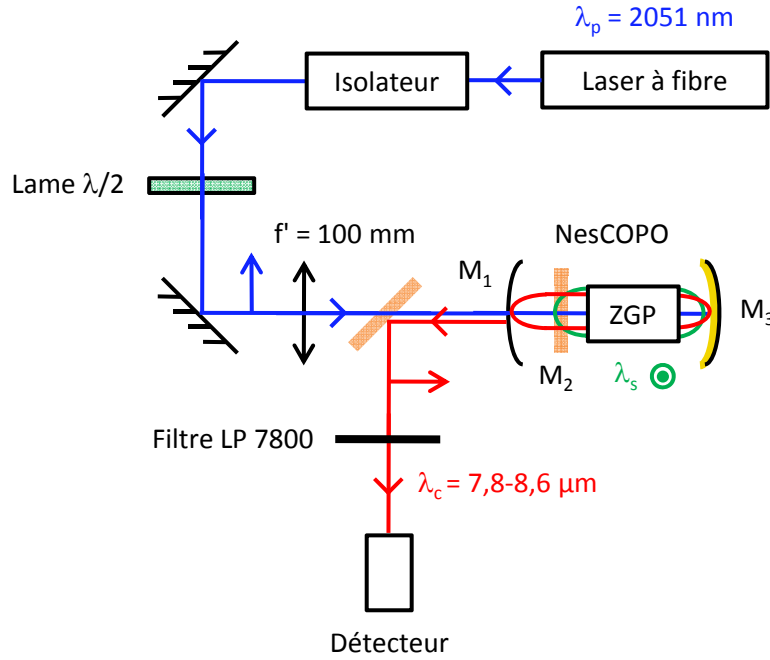


Figure 2.9 – Schéma du montage du NesCOPO en ZGP.

proche d'être TEM_{00} comme attendu.

La longueur d'onde du complémentaire a été accordée entre $7,8\ \mu\text{m}$ et $8,6\ \mu\text{m}$. Il était possible d'accéder à des longueurs d'onde plus basses mais non situées en bande III. En revanche, au-delà de $8,6\ \mu\text{m}$, la transmission des traitements anti-reflets du ZGP est trop faible pour espérer faire fonctionner l'OPO.

Les mesures de puissance sont compliquées à mettre en oeuvre car l'émission de l'OPO est très instable : le simple fait de toucher à la monture d'un miroir fait perdre l'oscillation. Ceci est dû à la combinaison de deux effets. Tout d'abord, de nombreux interféromètres de Fabry-Perot relatifs à la pompe sont présents dans la cavité, notamment à cause du miroir M_1 qui en réfléchit 40 %, car son traitement a été spécifié pour une longueur d'onde de pompe différente. Un premier Fabry-Perot peut être mis en évidence en démontant l'OPO et en regardant simplement la transmission de la pompe après M_1 et M_2 à l'oscilloscope en balayant la position de M_1 . La Figure 2.11 montre une modulation de signal sinusoïdale de 20 % sur la transmission de pompe mesurée. Une fois l'OPO remonté, nous nous plaçons à une puissance inférieure au seuil, et nous mesurons à nouveau la transmission de la pompe sur un aller retour de cavité en plaçant le détecteur sur une fuite de pompe au retour. Comme illustré sur la Figure 2.11, la transmission est maintenant ponctuée de nombreux trous, bien qu'une structure périodique se dégage : la modulation de transmission atteint 40 %.

Cependant, une fois qu'une coïncidence exacte entre un mode signal et un mode complémentaire est sélectionnée et que celle-ci est compatible avec un minimum de pertes du Fabry-Perot,

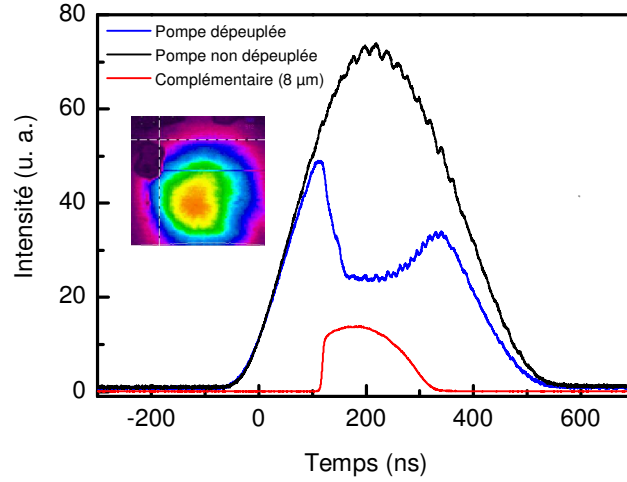


Figure 2.10 – Profils temporels de la pompe et du complémentaire collectés par un détecteur HgCdZnTe (VIGO) de temps de réponse 1 ns. Le profil spatial du complémentaire à 8 μm observé avec une caméra Pyrocam III est également représenté et montre un faisceau globalement TEM_{00} .

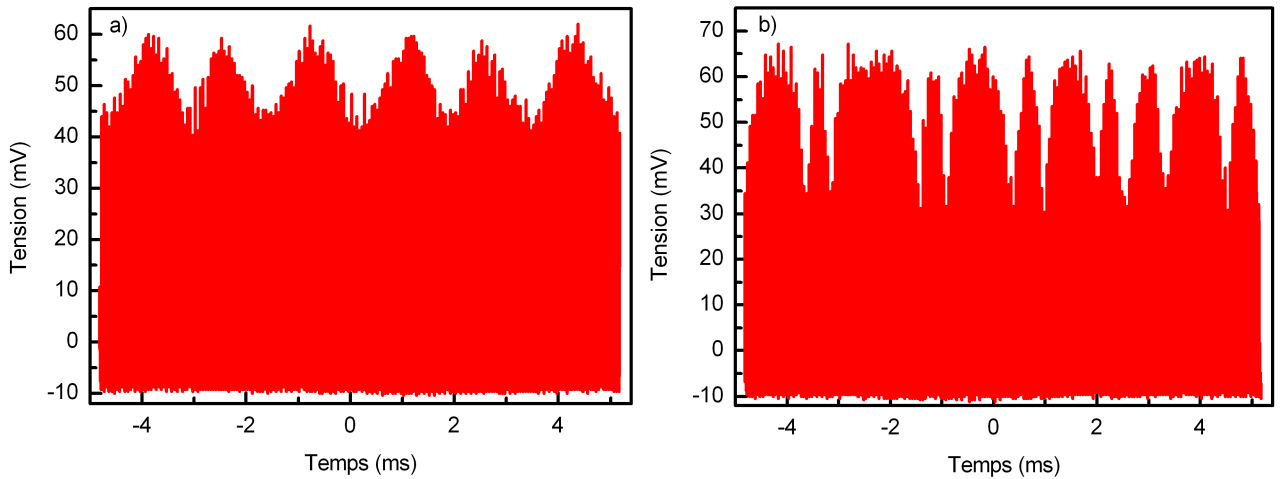


Figure 2.11 – Transmission de la pompe mesurée avec le détecteur VIGO et observée à l'oscilloscope. a) Transmission mesurée après M_1 et M_2 : une modulation de 20 % d'allure sinusoidale est visible. b) Transmission mesurée après un aller retour de cavité : de nombreux trous de transmission sont présents et la modulation atteint 40 %.

le rayonnement émis par l'OPO n'est pas stable pour autant. Ceci est lié à l'absorption résiduelle de la pompe à 2051 nm dans le ZGP, et dans une moindre mesure à l'absorption du complémentaire au-delà de 8 μm où l'absorption multiphonons commence légèrement à apparaître. Ceci entraîne continuellement une légère augmentation de la température dans le cristal malgré sa bonne conductivité thermique. Cette perturbation thermique peut être mise en évidence facilement en observant le faisceau complémentaire sur la caméra pyroélectrique. Lorsque l'oscillation est stabilisée sur une coïncidence exacte, ce faisceau s'atténue progressivement jusqu'à disparaître en l'espace de 20-30 secondes. Si nous décidons de couper le faisceau de pompe pendant une minute, le cristal revient à sa température initiale. Lorsque nous le rallumons, le faisceau complémentaire revient instantanément sur la caméra, et finit par disparaître à nouveau. Ceci est dû au fait que l'échauffement du cristal modifie les indices de réfraction des trois ondes et la longueur physique du cristal par dilatation thermique, ce qui entraîne une modification de la longueur optique des cavités signal et complémentaire, et donc un léger glissement des peignes de modes. Cet effet, couplé au Fabry-Perot parasite à la pompe dont la longueur optique est aussi affectée par l'échauffement du cristal, provoque alors une modulation erratique des pertes de la cavité, ce qui condamne généralement l'oscillation.

Il existe malgré tout des positions particulières des miroirs pour lesquelles l'OPO émet un rayonnement stable pendant plusieurs minutes. En présence des effets thermiques, le Fabry-Perot à la longueur d'onde de la pompe est légèrement modifié. Ainsi, sa transmission peut devenir plus faible, ce qui diminue la puissance de pompe absorbée dans le cristal, dont l'échauffement est moindre en retour. La transmission du Fabry-Perot à cette longueur d'onde va donc augmenter à nouveau car sa longueur optique va redevenir plus proche de ce qu'elle était initialement, et ainsi de suite jusqu'à obtenir un équilibre thermique régulé par la transmission du Fabry-Perot.

Pour arriver à cette situation, il est nécessaire de jouer progressivement sur les cales piézoélectriques des miroirs afin de garder un rayonnement complémentaire stable le temps que l'équilibre thermique s'établisse dans le ZGP. Une mesure de puissance peut alors être effectuée avec un puissancemètre, placé après le filtre LP 7800 dont la transmission vaut 90 % sur la plage 8-12 μm . Le défaut quantique à 8 μm vaut $\frac{\lambda_p}{\lambda_c} = 25,6$ %. En pompant avec 56 μJ (après avoir soustrait les pertes par réflexion sur M_1) et avec une déplétion de 43 %, nous pouvons donc extraire une énergie maximum de 6,2 μJ sur le complémentaire en sortie d'OPO. Sur la durée, la puissance moyenne mesurée à 8 μm sur un faisceau stable est de 60 mW, soit une énergie de 3 μJ . Comme la lame dichroïque transmet 95 % du rayonnement complémentaire, et compte tenu de la transmission du filtre LP 7800, ceci fait 70 mW moyen en sortie d'OPO soit 3,5 μJ . Lors de quelques mesures, une puissance maximale de 100 mW a été obtenue pendant quelques minutes sur le puissancemètre. Ceci correspond à une puissance moyenne de 117 mW à 8 μm en sortie d'OPO, et donc une énergie de 5,8 μJ , proche des 6,2 μJ calculés. Ainsi, il est possible

d'optimiser par chance le fonctionnement de l'OPO, mais les fortes instabilités auxquelles il est sujet rendent impossibles cette optimisation sur le long terme.

2.3.6 Analyse du spectre du NesCOPO en ZGP

Pour terminer les expériences avec ce NesCOPO, nous avons tenté d'analyser son spectre en se plaçant sur un point de fonctionnement où le rayonnement émis est stable. Nous utilisons pour cela un spectro-lambdamètre High Finesse IR 3, permettant de mesurer la longueur d'onde du complémentaire entre 7 et 11 μm . Cet appareil est muni de deux interféromètres de Fizeau dont les intervalles spectraux libres valent respectivement 8 GHz et 80 GHz, suivis d'un réseau de diffraction. En observant les figures d'interférence et l'évolution de la fréquence du complémentaire en fonction du temps, il est possible de savoir si son spectre est monomode ou non. Comme l'intervalle spectral libre de la cavité est d'environ 6,3 GHz, il sera possible de résoudre les éventuelles coïncidences partielles.

Dans un premier temps, nous testons ce lambdamètre avec un laser à cascade quantique émettant un faisceau continu et monomode entre 7660 et 8440 nm. Nous fixons sa longueur d'onde autour de 8 μm (1250 cm^{-1}) et nous l'injectons dans la fibre fournie avec l'appareil. Nous voyons que la fréquence ne change pas au cours du temps et que les interférences sont composées de pics uniques régulièrement espacés, ce qui confirme le fait que l'émission est bien monomode. Nous avons également vérifié que sur la plage d'accordabilité du laser à cascade quantique, similaire à celle du NesCOPO en ZGP, l'appareil est sensible à partir d'une puissance moyenne d'au moins 360 μW continu. Nous avons donc suffisamment de puissance moyenne sur notre faisceau complémentaire.

Nous injectons ensuite le faisceau complémentaire dans la fibre reliée au lambdamètre après avoir trouvé un point de fonctionnement stable. Nous réglons au préalable le tirage de M_1 pour nous placer dans une zone où la dissociation permet d'avoir une émission monomode. Cette zone a été déterminée par des simulations numériques reprenant les travaux de la thèse d'Isabelle Ribet [Rib01]; elle correspond à un espacement entre M_1 et M_2 qui vaut $\Delta L = 0,5 - 0,65\text{ mm}$. Comme le diamètre du miroir est de 6,35 mm et son rayon de courbure est de 20 mm, la distance sur l'axe de propagation entre le sommet et le bord du miroir vaut 0,52 mm : il est essentiel d'en tenir compte lors du réglage de la dissociation. Avec les valeurs calculées théoriquement, M_1 doit quasiment être collé à M_2 .

L'analyse du spectre montre que l'émission peut être monomode et stable pendant plusieurs minutes : un exemple est donné en Figure 2.12 à 8276 nm. Nous observons alors des interférogrammes bien contrastés et une série de pics uniques régulièrement espacés après avoir vérifié qu'aucun saut de fréquences n'était visible. Comme aucun élément ne permet de contrôler la phase relative des ondes au retour et que le miroir doré introduit un déphasage de π , nous nous

attendons à avoir une bande de gain à deux lobes au retour (les anti-reflets du cristal modifient peu la phase relative), comme nous l'avons mentionné dans la sous-section 1.2.4. Ceci n'empêche pas d'avoir une seule coïncidence exacte dans la bande de gain, et nous sommes probablement aidés en ce sens par la présence de Fabry-Perot supplémentaires aux longueurs d'onde signal et complémentaire.

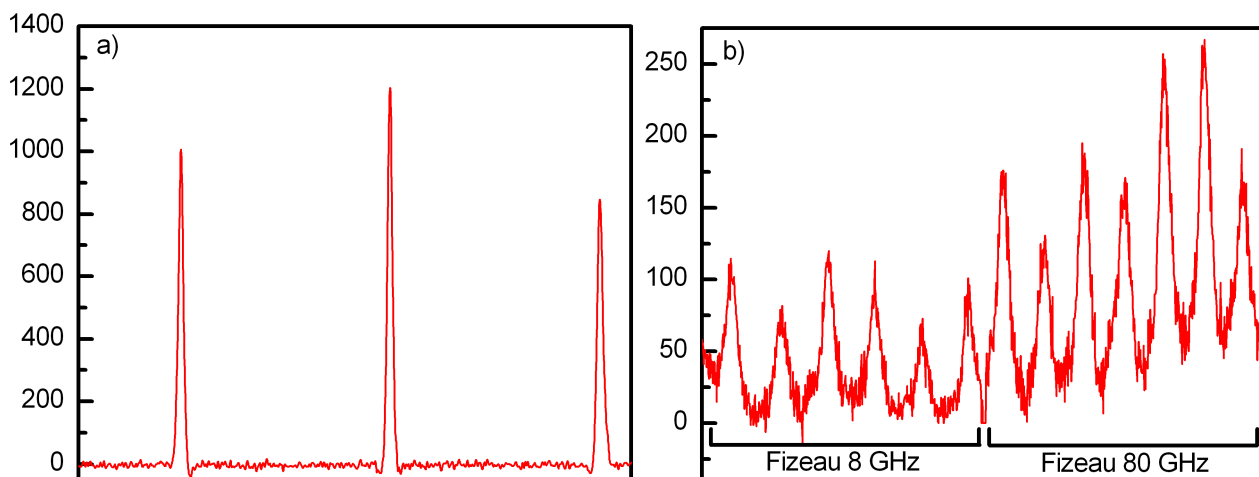


Figure 2.12 – a) Emission monomode à 8276 nm observée après le réseau. b) Interférogrammes correspondant à l'oscillation monomode donnés par les interféromètres de Fizeau du lambdamètre. L'échelle verticale correspond à un nombre de coups.

Cependant, l'émission finit toujours par dériver sur un comportement multimode, ce qui est observé à chaque fois que l'analyse du spectre a été effectuée et mis en évidence par une dégradation progressive et irréversible de la stabilité de la longueur d'onde du faisceau complémentaire comme le montre la Figure 2.13. Ceci s'accompagne d'une dégradation progressive du spectre du l'OPO. Dans un premier temps, des sauts de modes entre deux coïncidences partielles apparaissent au bout de quelques minutes. Comme ils correspondent à des variations de longueur d'onde très faibles, il est préférable d'observer l'évolution de la fréquence du faisceau complémentaire en fonction du temps pour les déceler. Ces sauts de modes sont illustrés sur la Figure 2.13. Pour un faisceau complémentaire à 8300 nm, la fréquence est $\nu_c = 36,144$ THz. À partir de cette fréquence initiale, de nombreux sauts de fréquences (donc de longueurs d'onde) d'environ 6,3 GHz sont visibles, ce qui correspond à l'intervalle spectral libre moyen des deux cavités. Ces sauts de fréquences sont donc des sauts de modes entre deux coïncidences partielles.

Au bout d'un temps plus long, les variations de longueur d'onde atteignent plusieurs nanomètres et sont facilement repérables : il s'agit alors de sauts de modes entre des coïncidences exactes, qui deviennent de plus en plus prononcés. Cette dégradation progressive du spectre est illustrée sur la Figure 2.14, où nous voyons progressivement apparaître deux puis trois pics largement séparés après le réseau. À ce stade, les interférogrammes sont quasiment brouillés

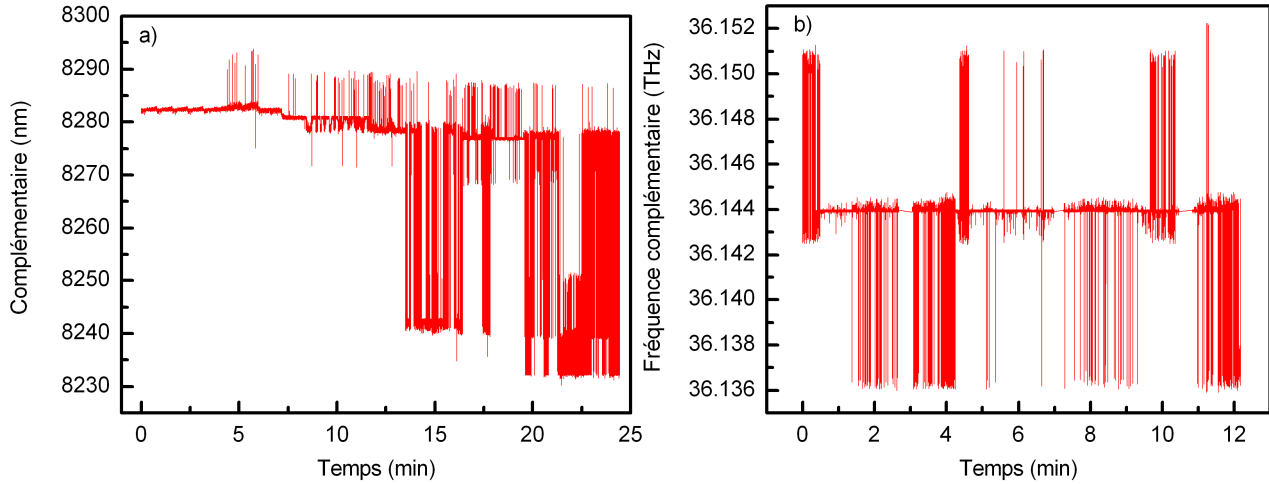


Figure 2.13 – a) Mesure de la longueur d'onde du faisceau complémentaire en fonction du temps avec le lambdamètre High Finesse IR 3. b) Mise en évidence de sauts de modes entre deux coïncidences partielles en mesurant la fréquence du faisceau complémentaire dans une zone où les variations de longueur d'onde sont très faibles.

et le lambdamètre ne peut plus évaluer la longueur d'onde d'émission de l'OPO car plusieurs longueurs d'onde distinctes sont émises en même temps.

Une question importante se pose alors : si la dissociation est fixée, pourquoi l'OPO peut-il émettre une seule coïncidence exacte dans un premier temps, puis plusieurs coïncidences exactes largement espacées dans le spectre au bout d'un certain temps ? Les fluctuations de chemin optique liées à l'échauffement du cristal sont trop faibles pour changer drastiquement la dissociation, et faire rentrer de nouvelles coïncidences exactes sous la bande de gain. La formule 2.2 permet de calculer directement l'écart en fréquences entre deux coïncidences exactes situées dans deux clusters de modes distincts. Pour l'onde complémentaire, l'écart théorique vaut $\Delta\nu_c = 621$ GHz. Or, l'écart mesuré est au maximum $\Delta\nu_c = 203$ GHz et ne correspond jamais à la valeur prédite théoriquement.

La dégradation du spectre d'émission de l'OPO est en fait liée à un changement progressif du profil spatial des faisceaux dans la cavité. Pour le confirmer, nous avons observé simultanément le spectre du faisceau complémentaire avec le lambdamètre en même temps que son profil spatial à la caméra. Après avoir sélectionné un point de fonctionnement stable, nous observons une dégradation progressive du profil spatial du faisceau au cours du temps, qui s'éloigne peu à peu du mode TEM₀₀. En parallèle, le spectre devient peu à peu multimode, et la fréquence des sauts de modes ainsi que le nombre de modes visibles après le réseau est directement lié au fait que le profil spatial est fortement dégradé. Ainsi, de nouvelles fréquences correspondant à des modes transverses d'ordre supérieur apparaissent. Nous attribuons leur apparition à la combinaison des effets du Fabry-Perot parasite à la pompe et des effets thermiques, qui peuvent

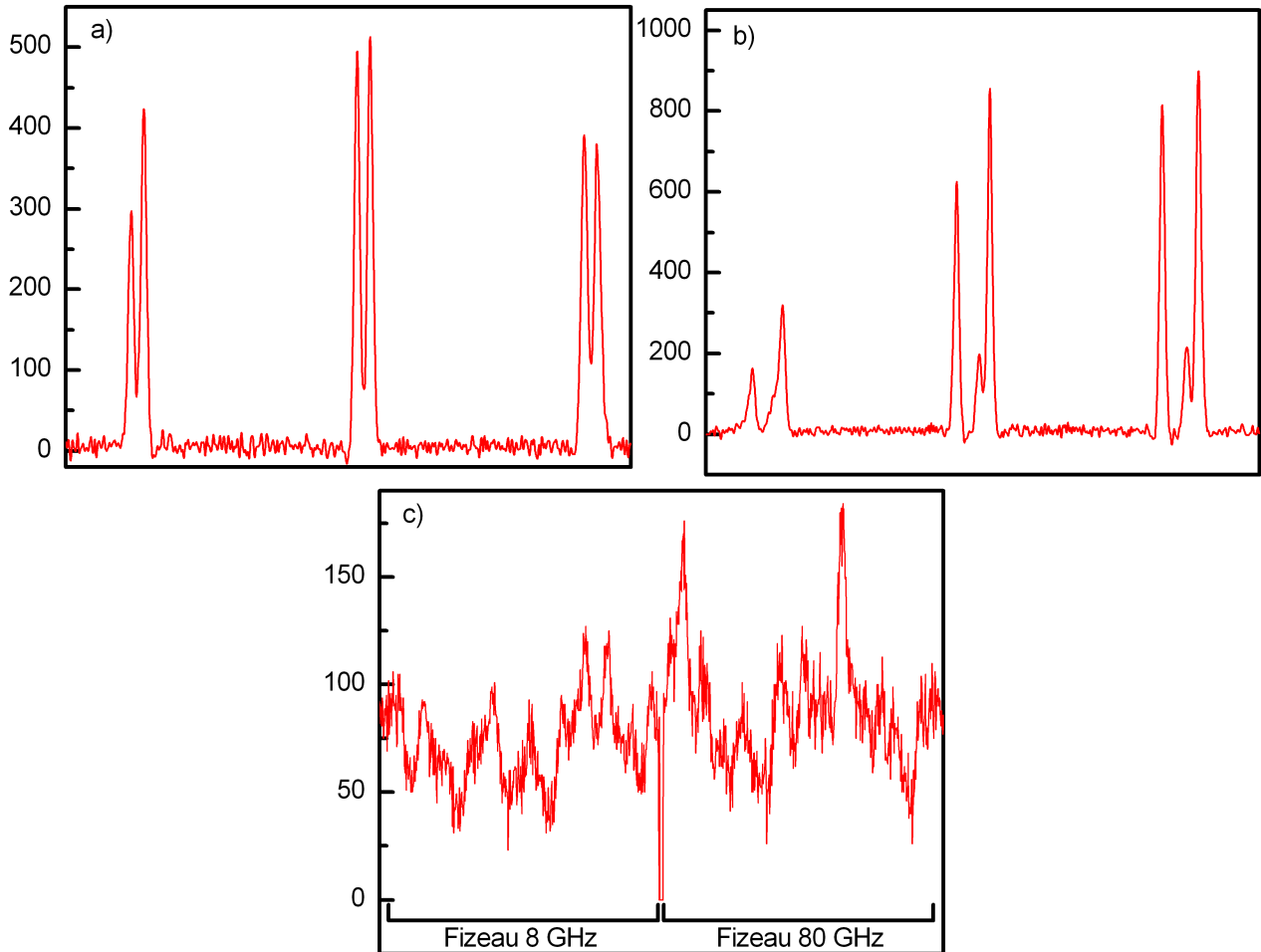


Figure 2.14 – a) Emission bimode à 8278 nm observée après 10 minutes. b) Emission fortement multimode à 8278 nm observée après 15 minutes. c) Interférogrammes correspondant : le fort brouillage est dû aux multiples longueurs d'onde émises simultanément par l'OPO.

avoir un effet supplémentaire sur le long terme malgré l'équilibre apparent permettant d'émettre un rayonnement stable sur plusieurs minutes. Ceci impacte fortement les modes transverses susceptibles d'être émis par l'OPO. La Figure 2.15 présente un premier profil spatial dans le cas où le spectre est monomode puis un autre profil spatial dégradé correspondant à un spectre multimode.

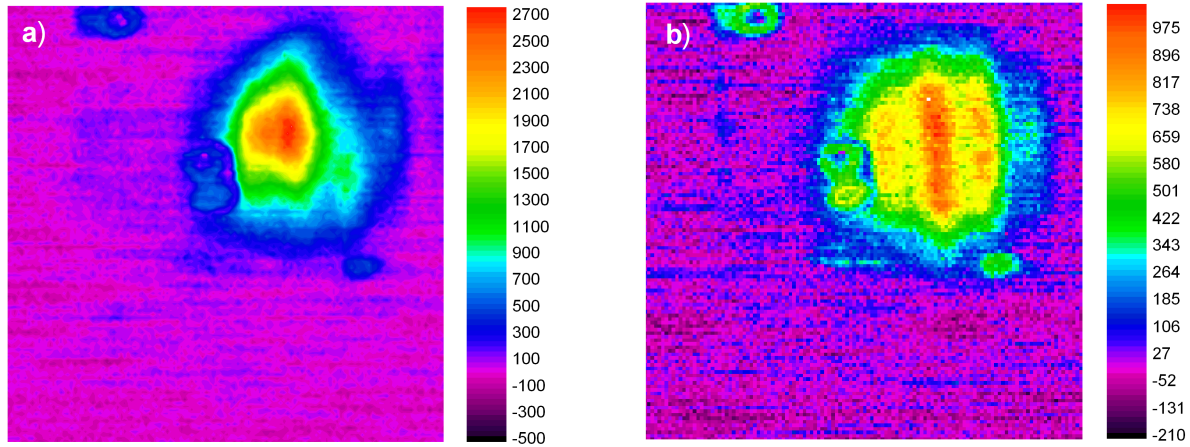


Figure 2.15 – Profil spatial du faisceau complémentaire observé à la caméra en mesurant simultanément son spectre. a) Dans un cas où le spectre est monomode. Le trou présent en bas à gauche du profil spatial est un défaut de la caméra b) Dans un cas où le spectre est multimode.

En conclusion, le spectre de l'OPO peut être monomode longitudinal pendant quelques minutes mais pas durablement dans le temps. Les fortes fluctuations dues au Fabry-Perot parasite et aux effets thermiques entraînent de nombreuses instabilités à la fois sur la puissance émise par l'OPO, sur les profils spatiaux des faisceaux et sur le spectre d'émission. Le réglage de l'OPO sur un point de fonctionnement stable en puissance, avec un faisceau complémentaire à la fois monomode longitudinal et monomode transverse, est très compliqué et reste provisoire. En ce sens, il ne paraît pas envisageable de détecter un gaz dans l'atmosphère entre 8 et 12 μm avec le faisceau complémentaire. Le NesCOPO en ZGP constitue néanmoins le premier OPO émettant un rayonnement à la fois monomode et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm , mais malheureusement de façon très instable. Les difficultés rencontrées ici ne constituent pas une limite fondamentale. En effet, diverses voies d'amélioration sont envisageables pour remédier à ce problème, par exemple utiliser un laser de pompe émettant à la longueur d'onde pour laquelle le traitement anti-reflets de M_1 a été spécifié ou commander un miroir M_1 muni d'un autre traitement anti-reflets, ceci afin de supprimer le Fabry-Perot parasite à la pompe. Il serait également possible d'augmenter légèrement la longueur d'onde pompe pour réduire son absorption dans ZGP, utiliser des cristaux d'ouverture plus petite et adaptée à la taille des

faisceaux afin de réduire légèrement le gradient de la lentille thermique, et surtout diminuer la puissance moyenne du laser, soit en modifiant légèrement sa conception, soit par l'ajout d'un hacheur mécanique ou un défecteur acousto-optique. De plus, le miroir doré M_3 pourrait être remplacé par un miroir diélectrique avec à priori une meilleure tenue au flux

Suite à ces résultats encourageants, nous allons présenter un autre NesCOPO basé cette fois sur un cristal d'OP-GaAs fonctionnant en quasi-accord de phase, et pompé par un microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ monofréquence. Nous allons voir que cette nouvelle source émet un rayonnement stable, ce qui va permettre de l'utiliser pour la détection de gaz en bande III.

2.4 Réalisation expérimentale d'un NesCOPO en OP-GaAs pompé par un microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ monofréquence

Cette nouvelle expérience s'inscrit dans le cadre du projet MUSTARD, financé par un contrat ASTRID par la Direction Générale de l'Armement (DGA) et en collaboration avec Thales Research & Technologies (TRT) et Teem Photonics. Contrairement au projet DROSO-FIL où l'accent était mis sur la génération de faisceaux de forte puissance moyenne et l'utilisation de lasers à fibre, nous recherchons ici à avoir une source compacte et potentiellement transportable. Ce projet avait deux objectifs majeurs : tout d'abord de concevoir et réaliser un OPO qui émet un faisceau complémentaire stable, monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-14 μm . Puis, utiliser le faisceau complémentaire pour détecter une espèce chimique à distance par spectroscopie d'absorption différentielle du signal rétrodiffusé, et ainsi démontrer les capacités de la source.

L'architecture retenue associe pour la première fois trois technologies clés : la configuration NesCOPO permettant un fonctionnement monomode et accordable en régime impulsif nanoseconde, un cristal non linéaire d'OP-GaAs développé par TRT permettant un accès à la gamme spectrale 6-16 μm , et un microlaser de pompe $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ émettant à 1940 nm conçu et réalisé par TRT et Teem Photonics.

2.4.1 Présentation du laser de pompe

Le laser de pompe est un microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ monofréquence émettant des impulsions d'une durée de 36 ns à la cadence de 100 Hz. L'énergie maximale par impulsion est de 170 μJ , correspondant à une puissance moyenne de 17 mW. Cette puissance moyenne bien plus faible que dans le cas du NesCOPO en ZGP permettra de s'affranchir des effets thermiques dans le cristal d'OP-GaAs, par ailleurs beaucoup plus absorbant que ZGP à 2 μm et 8 μm . De plus,

la puissance crête maximale est de 4,7 kW, ce qui constituera un autre avantage pour dépasser facilement le seuil d'oscillation. Le facteur M^2 vaut 1,04, ce qui signifie que la divergence du faisceau de pompe est quasiment limitée par la diffraction. Le cristal de Tm³⁺:YAP est pompé par une diode fibrée à 793 nm. Il présente une anisotropie conduisant à des propriétés laser différentes selon sa coupe. En particulier, la longueur d'onde laser est de 1940 nm dans le cas d'une orientation "a cut" alors qu'elle est de 1980 nm dans le cas d'une orientation "c cut". Initialement, l'orientation "c cut" était retenue car les raies d'absorption de l'eau sont beaucoup moins fortes et moins nombreuses autour de 1980 nm qu'autour de 1940 nm. Finalement, les expériences réalisées durant la phase de conception du microlaser ont montré que l'émission était favorisée avec un échantillon Tm³⁺:YAP en orientation "a cut" : ce microlaser émet donc vers 1940 nm. Les impulsions de pompe sont créées par Q-switch passif grâce à un absorbant saturable en Cr²⁺:ZnSe absorbant 5 % à 1940 nm. Le schéma de la cavité est donnée en Figure 2.16.

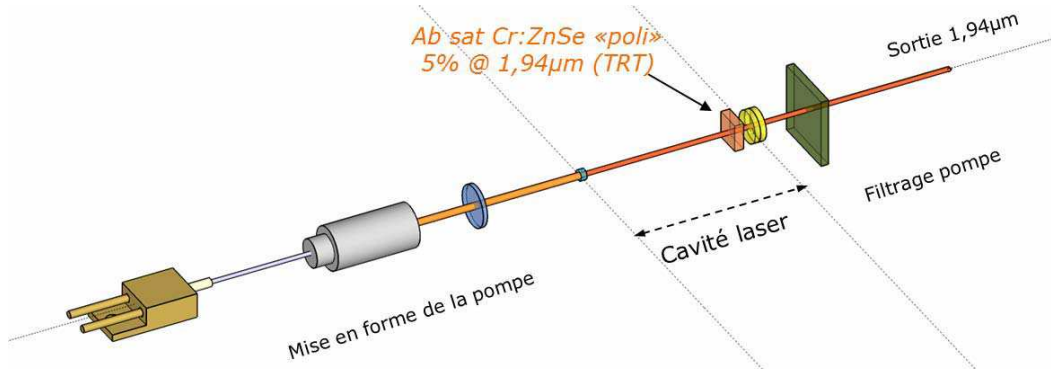


Figure 2.16 – Schéma de la cavité du microlaser de pompe (image fournie par TRT et Teem Photonics).

L'oscillation monomode longitudinale est obtenue grâce à la modulation du courant des diodes de pompe (brevet Teem Photonics) conjuguée à l'effet d'un étalon de 125 µm d'épaisseur. La modulation a eu pour effet de limiter la cadence des impulsions à 100 Hz. Nous avons mesuré la stabilité temporelle de la longueur d'onde de pompe. La mesure est donnée en Figure 2.17 et nous voyons que la longueur d'onde d'émission du microlaser est 1938,5 nm. Mis à part deux légers sauts au début, elle ne dérive que de 8 pm sur 6 heures de fonctionnement.

2.4.2 Présentation des cristaux d'OP-GaAs

Plusieurs cristaux d'OP-GaAs ont été élaborés par Thales. Pour chacun de ces cristaux, la direction de croissance est [001] tandis que la direction de propagation est [1 -1 0], correspondant à un angle $\phi = \frac{3\pi}{4}$. Leurs caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 2.3. Les cristaux peuvent présenter un seul réseau, ou plusieurs, jusqu'à quatre mis en parallèle. En changeant

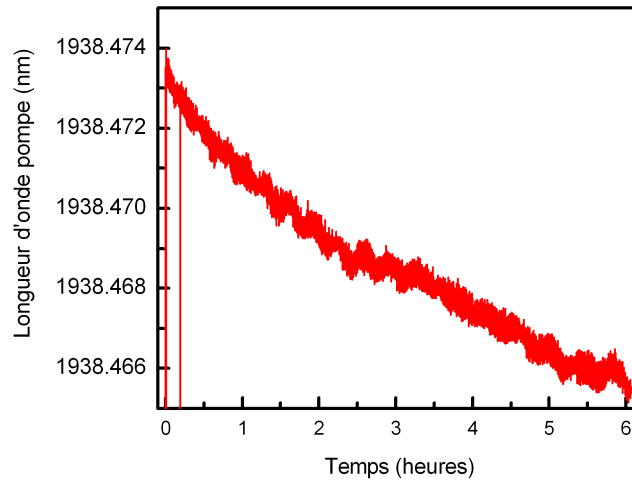


Figure 2.17 – Mesure de la longueur d’onde du microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ sur 6 heures de fonctionnement.

de réseau par une translation du cristal, il est possible d’accorder la longueur d’onde sur toute la gamme spectrale. Les longueurs d’onde complémentaires accessibles sur chaque réseau en faisant varier leur température sur la plage 20-100 °C sont également données en Tableau 2.4.

Table 2.3 – Caractéristiques des cristaux d’OP-GaAs réalisés par Thales.

Référence	R0	R1	R2	R3	R4	R5	Longueur (mm)	Largeur (mm)	Epaisseur (mm)	Transmission QPM (%)
XXL781s3-6 et M19					x		10,1	5,4	1,0	98
M14_L10_R1-4_P FAR		x	x	x	x		10,1	10,5	1,3	88
M2_L5_R0_AFHR	x						5,5	4,9	1,0	68
M12_L5_R2-4-AFHR			x	x	x		5,5	8,0	1,3	91
M13_L5_R1-4_P FAR		x	x	x	x		5,5	10,0	1,3	92
M4_L5_R2-5_P FAR			x	x	x	x	5,5	9,7	1,2	92
M8_L5_R2’R4’_AFAR			~		~		5,5	3,7	1,2	98

Les cristaux ont une longueur de 5 mm ou 10 mm. Le seuil d’oscillation est plus facilement atteignable pour les cristaux de 10 mm, mais le réglage de la dissociation est plus aisé avec les cristaux de 5 mm. En effet, la distance de propagation dans le cristal est alors moins grande, ce qui limite l’influence de la dispersion sur la dissociation des cavités. Certains cristaux ont un traitement hautement réfléchissant au signal déposé sur l’une des faces (repérés par HR dans le tableau, tandis que AR correspond à un traitement anti-reflet simple). Dans ce cas, le miroir M_2 est directement déposé sur le cristal et nous gagnons donc en encombrement pour régler la dissociation. Enfin, certains cristaux ont une face prismatique (repérés par AF dans le tableau tandis que PF correspond à une face plane), pour contrôler la phase relative des ondes

Table 2.4 – Longueurs d'onde complémentaires accessibles pour les différents réseaux en faisant varier la température entre 20 °C et 100 °C.

Réseau	Période (μm)	λ_c (μm) pour $T = 20-100$ °C
R0	64,0	7,72-9,27
R1	66,0	8,24-9,91
R2	68,2	8,85-10,68
R3	70,4	9,50-11,56
R4	72,6	10,20-12,57
R5	74,8	10,98-14,05

au retour.

Concernant l'angle de prisme optimal, celui-ci doit permettre de faire varier l'épaisseur du cristal d'une demi-longueur de cohérence sur environ six fois le rayon au waist du faisceau pour éviter une variation trop rapide de la phase relative transverse. Ainsi, en considérant un rayon typique de 120 μm et une période de quasi accord de phase de 70 μm (longueur de cohérence de 35 μm), l'angle typique est de 1,4°. Compte tenu du fort indice de réfraction du GaAs, $n \approx 3,33$, cet angle entraîne une forte déviation du faisceau en sortie du cristal. Compte tenu de son diamètre de 6,35 mm, le miroir de fond devra donc être approché le plus possible du cristal si sa face de sortie est prismatique pour espérer intercepter le faisceau dévié. Expérimentalement, nous mesurons un angle de 1,5° sur les échantillons prismatiques, proche de l'angle optimal.

L'épaisseur des cristaux dans la direction verticale est de l'ordre du millimètre. En revanche, la partie périodiquement orientée ne s'étend que sur 500 μm et repose sur un substrat en GaAs classique. Pour mesurer la transmission de la pompe et vérifier ainsi la qualité des cristaux en régime linéaire, il est donc nécessaire de focaliser la pompe avec un waist de l'ordre de 150 μm maximum. Pour l'échantillon numéro 2 (noté M2 dans le tableau), la transmission de la pompe dans le réseau de quasi-accord de phase n'est que 68 % : ceci exclue d'emblée l'utilisation de cet échantillon. Les courbes fournies par Thales montrent que les traitements anti-reflet aux trois ondes transmettent 99 % à 1940 nm, tandis que les traitements hautement réfléchissants au signal ne transmettent que 91 %. Ceci explique la baisse de transmission à 1940 nm observée entre les deux types de cristaux d'OP-GaAs. Nous vérifions de plus que la transmission des échantillons M13 et M14 n'est pas parfaite. Elle vaut respectivement 92 % et 88 %, alors qu'elle devrait être d'environ 98 %. Ces deux échantillons absorbent donc légèrement la pompe et ne seront donc pas utilisés en priorité.

Le cristal dont le design est adapté à un NesCOPO, avec un maintien de phase achromatique, est le cristal noté M12 qui mesure 5,5 mm de long. L'une des faces correspond à un miroir signal et l'autre face est prismatique. De plus, il possède une très bonne transmission à la longueur

d'onde de pompe (égale à la transmission des traitements des faces). Cependant, il s'agit du cristal pour lequel l'alignement du NesCOPO est le plus compliqué. Dans un premier temps, nous nous concentrerons sur le cristal de référence noté XXL781s3-6. Sa longueur est de 10,1 mm et ses deux faces sont planes et munies de traitement anti-reflet aux trois ondes. Il ne comporte que le réseau R4, de période $\Lambda = 72,6 \mu\text{m}$, qui transmet ici 98 % de la pompe. À noter que ce cristal n'est pas issu du même processus de croissance que les autres échantillons et que nous en disposons d'un double appelé M19. L'acceptance spectrale de ce cristal a été mesurée à $10,8 \mu\text{m}$ par différence de fréquences en faisant varier sa température comme le montre la Figure 2.18. Nous retrouvons le sinus cardinal attendu théoriquement, ici tracé en échelle logarithmique. Les faisceaux utilisés pour effectuer la différence de fréquences sont les faisceaux signal (1937 nm) et complémentaire (2361 nm) émis par un OPO en PPLN de Type II pompé à 1064 nm.

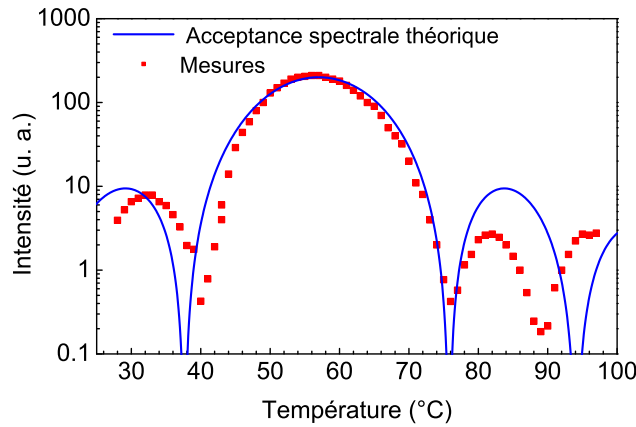


Figure 2.18 – Mesure de l'acceptance spectrale du cristal d'OP-GaAs de référence XXL781s3-6 à $10,8 \mu\text{m}$ par différence de fréquences.

2.4.3 Dimensionnement du NesCOPO et mise en forme du faisceau de pompe

Nous concevons une cavité identique à celle de la sous-section 2.3.2. La transmission mesurée est de 95 % après passage par M_1 , et de 90 % après passage par M_1 et M_2 . La pompe n'aura donc que 10 % de pertes (11 % si on tient compte en plus du traitement anti-reflet de la première face du cristal) avant d'entrer dans l'OP-GaAs de référence, ce qui est bien plus favorable que dans le cas du NesCOPO en ZGP. De plus, les effets de Fabry-Perot parasites devraient être réduits. La Figure 2.19 présente les différentes pièces optomécaniques du NesCOPO sur des dessins de CAO

Une fois encore, les calculs de zones de stabilité montrent que les cavités signal et complémentaire sont stables. Dans le cas où le miroir M_2 n'est pas déposé sur le cristal, les espaces

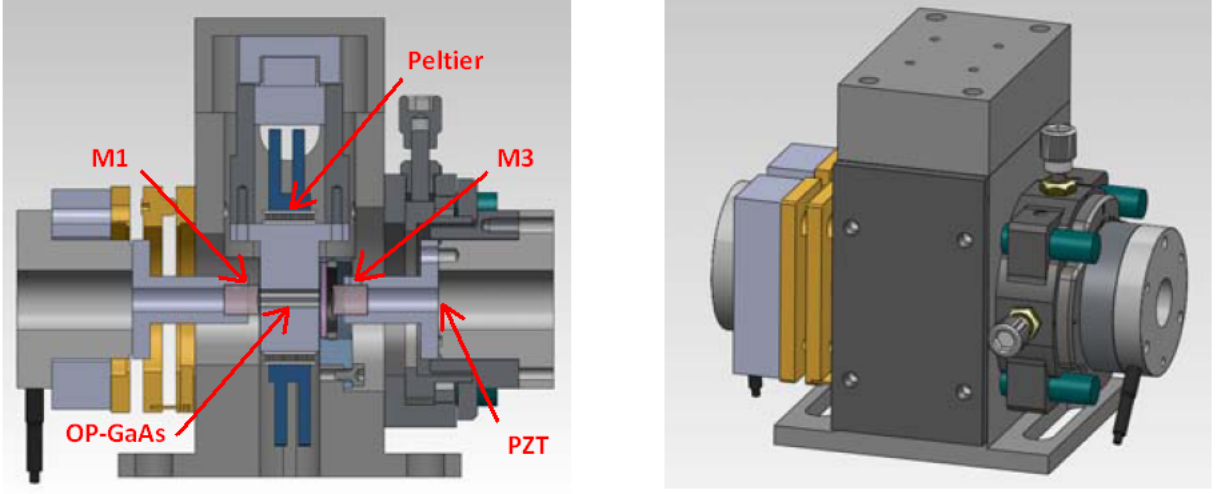


Figure 2.19 – Dessins réalisés sous Solidworks du NesCOPO en OP-GaAs avec M_2 déposé sur la face avant du cristal.

d'air de la cavité signal permettant de conserver une cavité stable sont de 7 mm quand l'OP-GaAs fait 10,1 mm de long. Cette tolérance sur les espaces d'air est légèrement plus élevée avec un cristal plus court et/ou quand le miroir est directement déposé sur le cristal. Avec un espacement de 1-2 mm d'air entre le cristal et les miroirs, nous calculons un rayon au waist du signal $w_{0s} = 110 - 120 \mu\text{m}$, et un rayon complémentaire $w_{0c} = 160 - 170 \mu\text{m}$.

Avant de pomper le NesCOPO, le faisceau de pompe issu du microlaser doit être mis en forme. Le faisceau passe tout d'abord dans un isolateur qui permet d'éviter les retours de pompe dans le laser. Une première lame demi-onde est insérée juste avant l'isolateur afin de faire varier la puissance du microlaser en sortie d'isolateur. Une deuxième lame demi-onde est ensuite placée pour faire varier la polarisation de la pompe en entrée d'OPO. D'une part, ceci permettra de vérifier une éventuelle dépendance en polarisation de l'efficacité du NesCOPO en OP-GaAs, et en particulier de son seuil d'oscillation. Cet effet a déjà été observé dans des cristaux d'OP-GaAs fournis par Thales [Kie09]. Il est dû à une biréfringence de forme qui peut apparaître dans l'OP-GaAs lors de la croissance par épitaxie. Cependant, il est impossible de savoir à l'avance si ce phénomène est présent dans nos cristaux. D'autre part, en choisissant la polarisation de la pompe, nous pourrions choisir la polarisation des ondes signal et complémentaire en sortie d'OPO. La polarisation qui optimise le processus de quasi-accord de phase peut être déterminée en calculant le coefficient non linéaire effectif de l'OP-GaAs. La croissance de nos cristaux a été effectuée selon l'orientation [001] (axe c), soit dans le plan (y,z) en imposant comme repère $(x,y,z) = (a,b,c)$. La polarisation non linéaire s'exprime alors par :

$$\vec{P}_{\text{NL}} = \varepsilon_0 d_{14} \begin{pmatrix} E_{\text{sy}} E_{\text{cz}} + E_{\text{sz}} E_{\text{cy}} \\ E_{\text{sx}} E_{\text{cz}} + E_{\text{sz}} E_{\text{cx}} \\ E_{\text{sy}} E_{\text{cx}} + E_{\text{sx}} E_{\text{cy}} \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Le coefficient non linéaire effectif est maximisé pour un angle $\phi = \frac{3\pi}{4}$. Pour cet angle, on montre ensuite que le coefficient non linéaire effectif évolue entre $d_{\text{eff}} = d_{14}$ (Type I, Type II) et $d_{\text{eff}} = \frac{2}{\sqrt{3}}d_{14}$ (Type 0) en fonction de la configuration de polarisation. L'efficacité est donc maximale quand les trois ondes ont la même polarisation.

Deux miroirs sont ensuite placés sur le trajet du faisceau afin de l'orienter. Une lentille en CaF_2 traitée anti-reflet à 1940 nm est insérée entre ces deux miroirs et permet de focaliser la pompe avec le rayon au waist souhaité, qui devra être suffisamment faible pour bien passer dans la zone active de l'OP-GaAs, qui ne fait que 500 μm d'épaisseur. Le rayon au waist de la pompe optimal dans le NesCOPO est à nouveau calculé en imposant l'égalité des zones de Rayleigh de la pompe et du signal dans la cavité. Nous focalisons la pompe avec une lentille en CaF_2 de focale $f' = 200$ mm traitée anti-reflets autour de 2 μm . Le rayon est ensuite mesuré par la méthode du couteau : la Figure 2.20 montre que le meilleur fit avec les points expérimentaux est obtenu avec un rayon de 115 μm . Un profil spatial enregistré à la caméra Pyrocam III 40 cm après le waist montre que le faisceau est bien TEM_{00} , ce qui est essentiel pour pomper efficacement l'OPO.

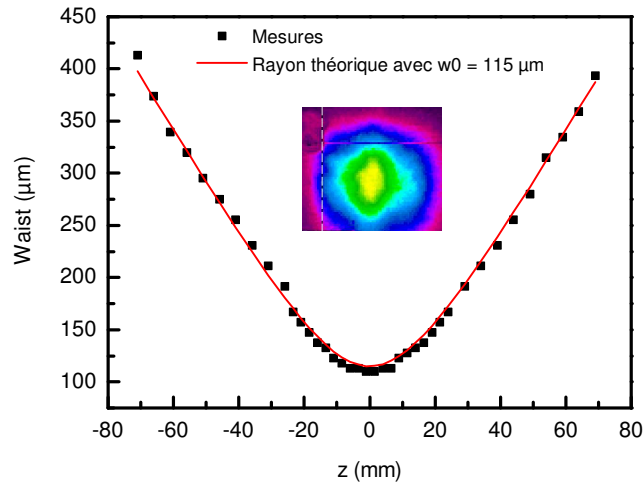


Figure 2.20 – Caustique de la pompe mesurée près du waist.

Nous effectuons également un calcul de seuil avec le même programme Matlab que pour le NesCOPO en ZGP. Nous nous plaçons à une longueur d'onde complémentaire de 10,3 μm qui correspond à la longueur d'onde d'émission à température ambiante du réseau R4. Pour cette

longueur d'onde, le coefficient non linéaire effectif donné par le logiciel SNLO vaut $d_{\text{eff}} = 66$ pm/V. Les coefficients de réflexion des miroirs et les pertes liées aux différents traitements sont évaluées à partir des courbes données par les fournisseurs. L'aperçu de la dimension des faisceaux dans la cavité donné par le code est conforme aux valeurs de rayons au waist et de longueurs de Rayleigh calculés précédemment. Nous avons une nouvelle fois des faisceaux quasiment collimatés dans la cavité. Avec une phase relative optimale au retour, nous attendons un seuil d'oscillation de 2 μ J. Le laser de pompe délivre donc largement assez d'énergie pour l'atteindre, même si ce seuil peut augmenter d'un facteur 2 à cause d'une phase relative non contrôlée au retour.

Enfin, suite à la mise en forme du faisceau de pompe, il est utile de caractériser rapidement les propriétés non linéaires des cristaux d'OP-GaAs en observant l'onde générée par doublage de fréquence parasite vers 970 nm à l'aide d'une photodiode en silicium. La période du réseau est optimisée pour obtenir un processus de quasi-accord de phase d'ordre 1 aux longueurs d'onde que l'on souhaite émettre. Cependant, un processus de quasi-accord de phase d'ordre très élevé peut être observé pour le doublage en fréquence dont la longueur de cohérence est bien plus faible. Ainsi, l'observation d'un doublage de fréquence efficace dans le réseau de quasi-accord de phase permet de s'assurer du bon retournement périodique des domaines. Pour ne pas endommager la photodiode, la pompe non doublée, qui contient la majeure partie de l'énergie, est coupée grâce à deux filtres qui coupent les longueurs d'onde inférieures à 1300 nm (SP 1300). Il est possible de voir du doublage à la fois dans le substrat et dans la zone de quasi-accord de phase. La limite entre les deux zones est facilement identifiable car elle s'accompagne d'une baisse de signal de doublage très marquée au moment de la transition. Nous observons que la majorité des cristaux doublent efficacement seulement près de la limite entre les deux zones, sur le premier tiers (voir le premier quart) inférieur du réseau de quasi-accord de phase, comme illustré sur la Figure 2.21. Or, à cet endroit, le faisceau de pompe est fortement diffracté, ce que confirme l'observation du profil spatial à la caméra.

Tous les cristaux, mis à part le cristal de référence et sa copie M19, sont concernés et ne pourront donc pas être utilisés dans l'OPO. Nous rappelons à ce titre que ces deux cristaux sont issus d'un processus de croissance distinct des autres cristaux. Le problème vient probablement du fait que les domaines orientés périodiquement peuvent peu à peu fusionner durant leur croissance. Il ne constitue pas une limite fondamentale et pourrait être réglé en optimisant les processus de croissance, moyennant quelques efforts financiers supplémentaires et plusieurs essais afin d'étalonner finement la croissance. Cependant, il n'existe pas à l'heure actuelle de méthode non destructive pour vérifier si l'inversion des domaines a bien eu lieu sur toute l'épaisseur de la zone souhaitée. De plus, suite à une erreur de manipulation, le cristal de référence a été cassé et il ne reste donc plus que l'échantillon M19 pour espérer faire fonctionner l'OPO.

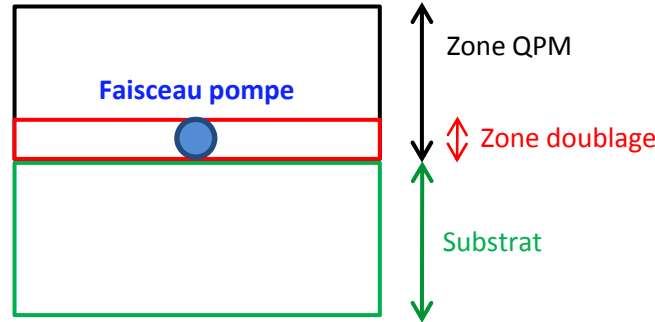


Figure 2.21 – Schéma illustrant quelle zone de l'échantillon M13 permet d'avoir un doublage de fréquence efficace. Ce phénomène est valable pour tous les réseaux de M13 et pour tous les cristaux issus du même processus de croissance.

2.4.4 Caractérisation du NesCOPO

Le schéma du montage du NesCOPO est donné en Figure 2.22. L'alignement de la cavité se fait par autocollimation, les premières étapes de la procédure étant les mêmes que pour le NesCOPO en ZGP. L'alignement du cristal d'OP-GaAs est particulièrement délicat car le réseau de quasi-accord de phase ne fait que 500 μm d'épaisseur et le diamètre de la pompe au waist est de 230 μm . Pour des raisons de compacité et de robustesse, le four qui contient l'OP-GaAs ne possède aucune translation verticale. Plusieurs jeux de rondelles métalliques (au minimum 100 μm d'épaisseur) peuvent être placées au niveau des vis de serrage du capot qui soutient le four pour régler la hauteur et l'inclinaison verticale du cristal. Nous recherchons ensuite la zone où le doublage de fréquence de la pompe est le plus intense. Enfin, nous réglons le miroir doré M_3 qui doit réfléchir la pompe sur elle-même. La lame dichroïque qui doit réfléchir le complémentaire réfléchit également une petite partie de la pompe. Nous observons cette légère réflexion à la caméra après passage dans les diaphragmes d'alignement. Lorsque l'image du faisceau retour n'est pas déformée, la pompe est réglée en autocollimation. Pour s'assurer que l'OPO oscille, nous utilisons le détecteur HgCdZnTe car la puissance moyenne attendue sur le faisceau complémentaire est trop faible pour espérer l'observer à la caméra pyroélectrique.

La polarisation de la pompe est ajustée de telle sorte qu'un maximum de puissance complémentaire soit mesuré après réflexion par la lame dichroïque et transmission par un filtre LP 7800 qui coupe la pompe résiduelle. La Figure 2.23 présente l'énergie complémentaire juste après M_1 en fonction de l'énergie de pompe incidente juste avant M_1 . L'énergie de pompe maximale disponible en entrée d'OPO est de 118 μJ , compte tenu des pertes subies par la pompe depuis la sortie du microlaser. En pompant avec 118 μJ , nous mesurons qu'une énergie maximale de 2 μJ peut être obtenue sur le complémentaire en sortie de l'OPO, après correction des pertes liées aux optiques de filtrage et d'extraction du faisceau. Un seuil de 10 μJ , soit 278 W crête, a été mesuré à 10,3 μm , indépendamment de la polarisation de la pompe. Ce résultat

diffère d'un facteur 5 du seuil estimé par les simulations, qui avaient pourtant été validées au préalable dans le NesCOPO en ZGP. Nous attribuons cette différence à des traitements diélectriques imparfaits, qui ont été légèrement endommagés en pompant l'OPO au maximum, et à des pertes potentielles dues à du clipping dans l'OP-GaAs, où le faisceau complémentaire peut venir toucher les bords du cristal ou le substrat. Ceci n'est malheureusement pas vérifiable sur son profil spatial car sa puissance moyenne est trop faible pour être détectée à la caméra. De plus, en supposant que les faisceaux sont centrés dans le réseau de quasi-accord de phase, les pertes par clipping seraient seulement de quelques pourcents en prenant la valeur et la position du waist du complémentaire données par les simulations. D'après des mesures que nous avons effectuées, la transmission linéaire du cristal à 8 μm est très bonne ($T = 95\%$), et nous pouvons supposer qu'elle l'est également à 10 μm . De plus, la transmission de la pompe est excellente ($T = 98\%$). Les pertes ne sont donc pas dues à une accumulation de micro-pertes à chaque interface des domaines qui constituent le réseau.

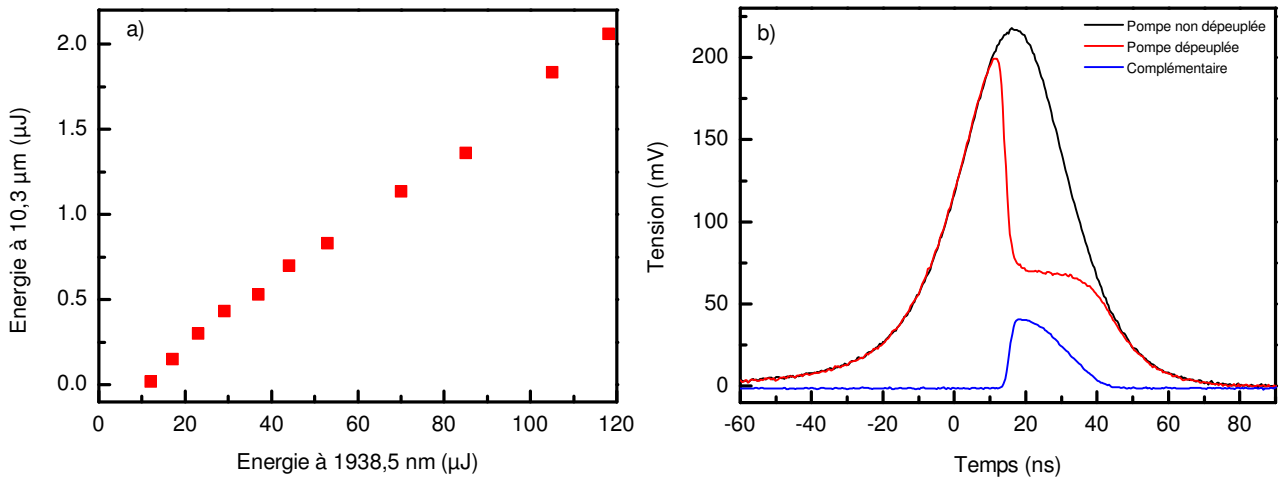


Figure 2.23 – a) Energie du complémentaire émis par l'OPO à 10,3 μm en fonction de l'énergie de la pompe à 1938,5 nm. b) Profils temporels de la pompe et du complémentaire à 10,3 μm en pompant avec 40 μJ après avoir focalisé le complémentaire et la pompe résiduelle sur le détecteur VIGO.

En pompant 4 fois au dessus du seuil, soit avec 40 μJ , nous mesurons un dépeuplement de pompe de 28 % à 10,3 μm . Les profils temporels relevés à l'oscilloscope grâce à ce détecteur sont également présentés en Figure 2.23. Cette mesure nous permet d'effectuer le bilan de pertes de l'OPO. Comme nous l'avons déjà mentionné, le faisceau de pompe rencontre 11 % de pertes entre l'entrée de M_1 et l'entrée du cristal après le traitement anti-reflet de la première face. Ainsi, l'énergie maximale effectivement disponible n'est que de 35,6 μJ . En prenant en compte le défaut quantique $\frac{\lambda_p}{\lambda_c} = 18,8\%$ et la déplétion de 28 %, nous pouvons obtenir jusqu'à 1,9 μJ de complémentaire en sortie. Nous mesurons une énergie complémentaire de 0,6 μJ en sortie de

M₁ à 4 fois le seuil (après correction des pertes) : nous avons donc quasiment un facteur 3 de perte.

La longueur d'onde du complémentaire est mesurée par un monochromateur à réseaux (Horiba Jobin Yvon). À température fixée, elle peut être accordée sur 60 nm en translatant les miroirs M₁ et M₃ par un changement de la tension des cales piézoélectriques. Cette accordabilité est en bon accord avec la valeur attendue pour la bande de gain paramétrique, estimée à 50 nm pour un DRO à retour de pompe muni d'un cristal d'OP-GaAs de 10,1 mm [Bjo70]. Pour accorder la longueur d'onde sur une plus grande gamme spectrale, nous faisons varier la température du cristal entre 22 °C et 70 °C comme le montre la Figure 2.24. Les longueurs d'onde émises par l'OPO sont alors situées entre 10,3 et 10,9 µm. Le cristal peut être chauffé jusqu'à 120 °C et nous pourrions donc observer des longueurs d'onde plus élevées. Cependant, l'OPO n'oscille plus au-delà de 11 µm car le coefficient de réflexion du miroir M₁ qui ferme la cavité complémentaire diminue très fortement à partir de cette longueur d'onde. La bande de gain du NesCOPO a également pu être mesurée sur l'onde signal grâce à un analyseur de spectre fonctionnant jusqu'à 2,5 µm. Cependant, cet instrument ne permet pas d'effectuer l'analyse du spectre en elle-même car nous travaillons à trop basse cadence. Nous mesurons une bande de gain à un seul lobe de 4 nm de large autour de 2388 nm comme le montre la Figure 2.24, soit 7 cm⁻¹. Le calcul théorique en double passage de pompe avec une phase relative idéale au retour prévoit une largeur spectrale de 8 cm⁻¹. Ainsi, la phase au retour est quasiment idéale dans notre cas, ce qui nous permet d'avoir quasiment le seuil le plus bas possible ainsi qu'une bande de gain à un seul lobe. La légère bosse qui apparaît entre 2386 et 2387 nm peut être due au fait que la phase relative au retour n'est pas tout à fait optimale.

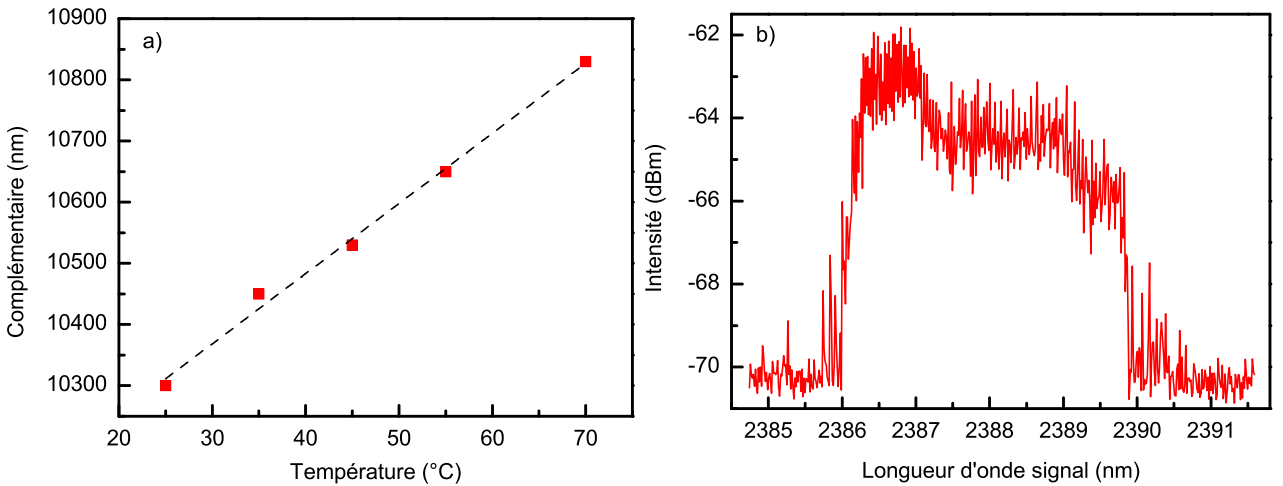


Figure 2.24 – a) Longueur d'onde complémentaire du NesCOPO en OP-GaAs en fonction de la température du cristal. b) Mesure de la bande de gain sur l'onde signal avec un analyseur de spectre. La bande de gain ne possède qu'un seul lobe et fait 4 nm de large soit 7 cm⁻¹.

2.4.5 Analyse du spectre du NesCOPO en OP-GaAs

L'analyse du spectre est effectuée sur l'onde signal, dont la longueur d'onde est comprise entre 2358 et 2388 nm. L'onde signal est séparée de la pompe au retour grâce à un miroir M_2 placé au préalable en quasi-incidence normale. Un autre miroir identique puis un miroir doré permettent d'injecter ce signal dans une fibre optique grâce à une lentille en CaF_2 de 150 mm de focale, comme illustré sur le schéma du montage en Figure 2.22. Un miroir hautement réfléchissant à la pompe et transparent au signal est placé juste devant l'entrée de la fibre pour supprimer la pompe résiduelle. La fibre optique choisie est une fibre monomode dont le diamètre de coeur est de 10 μm . Elle est connectée à un interféromètre de Fabry-Perot à balayage muni d'une photodiode InGaAs ($\lambda_{\text{coupure}} = 2,5 \mu\text{m}$), qui permet d'analyser le spectre. L'intervalle spectral libre du NesCOPO est d'environ 4 GHz, tandis que celui du Fabry-Perot à balayage est de 10 GHz : les coïncidences partielles conduisant à l'émission d'un cluster multimode pourront donc être identifiées.

Nous avons limité l'énergie de la pompe à 40 μJ , soit 4 fois au dessus du seuil, pour éviter l'apparition de comportements multimodes systématiques dus à un trop fort taux de pompage. La dissociation peut être réglée à l'aide de cales de différentes épaisseurs placées sous la monture du miroir M_1 . Après un changement de dissociation, il suffit de retoucher légèrement aux réglages de M_1 pour optimiser à nouveau l'alignement de la cavité. Par ailleurs, nous rappelons qu'une profondeur d'air d'environ 0,5 mm est présente sur l'axe de propagation des faisceaux entre les bords du miroir et son sommet : il est essentiel de la prendre en compte pour ajuster la dissociation.

L'émission monomode longitudinale est observée quand M_1 et M_2 sont séparés de $\Delta L = 0,6$ mm (donc pour M_1 quasiment collé à M_2 compte tenu des 0,52 mm d'air supplémentaires). La dissociation des longueurs optiques est alors estimée à $\frac{\Delta L}{L} = 0,6 \%$. Dans ce cas, deux pics uniques séparés de 10 GHz peuvent être observées à l'oscilloscope pendant le balayage de l'interféromètre de Fabry-Perot, comme le montre la Figure 2.25. L'émission monomode est vérifiée pour plusieurs longueurs d'onde signal et peut être maintenue stable pendant plus d'une demi-heure sans qu'aucun ajustement supplémentaire ne soit nécessaire.

Lorsque M_1 et M_2 sont séparés de moins de 0,6 mm, la dissociation diminue et le recouvrement entre les modes des coïncidences partielles devient suffisamment élevé pour leur permettre d'osciller à leur tour (à finesse fixée). Les coïncidences partielles sont alors émises et apparaissent distinctement dans le spectre. Ce comportement multimode est présenté en Figure 2.26, où des pics supplémentaires séparés de 4 GHz des premiers pics apparaissent à l'oscilloscope quand l'espace entre M_1 et M_2 vaut 0,52 mm.

La dissociation peut également être augmentée en espaçant davantage M_1 et M_2 . Cela conduit à nouveau à une émission multimode, cette fois-ci due à la présence de plusieurs coïnci-

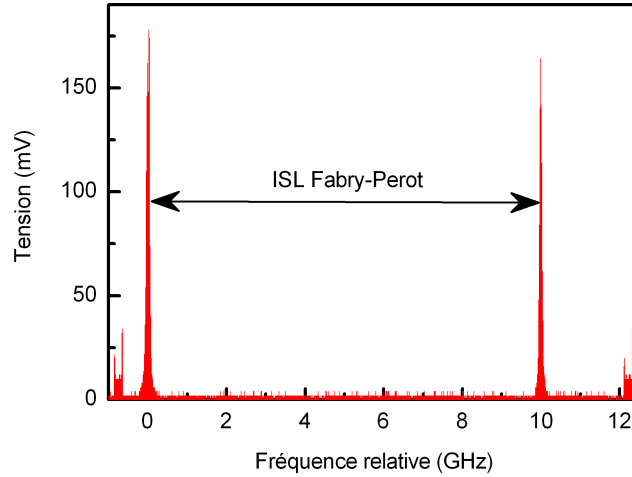


Figure 2.25 – Spectre monomode longitudinal de l'onde signal à 2388 nm analysé avec l'interféromètre de Fabry-Perot à balayage. Les rebonds de la ligne de base présents au début et à la fin délimitent la rampe de tension appliquée au miroir de fond du Fabry-Perot.

dences exactes au sein de la bande de gain. Ce cas est lui aussi présenté en Figure 2.26, où deux pics peu séparés et émis en même temps sont visibles à l'oscilloscope pour M_1 et M_2 séparés de $\Delta L = 1$ mm. Ces deux pics correspondent à deux coïncidences exactes qui coexistent dans la bande de gain car la dissociation est trop élevée.

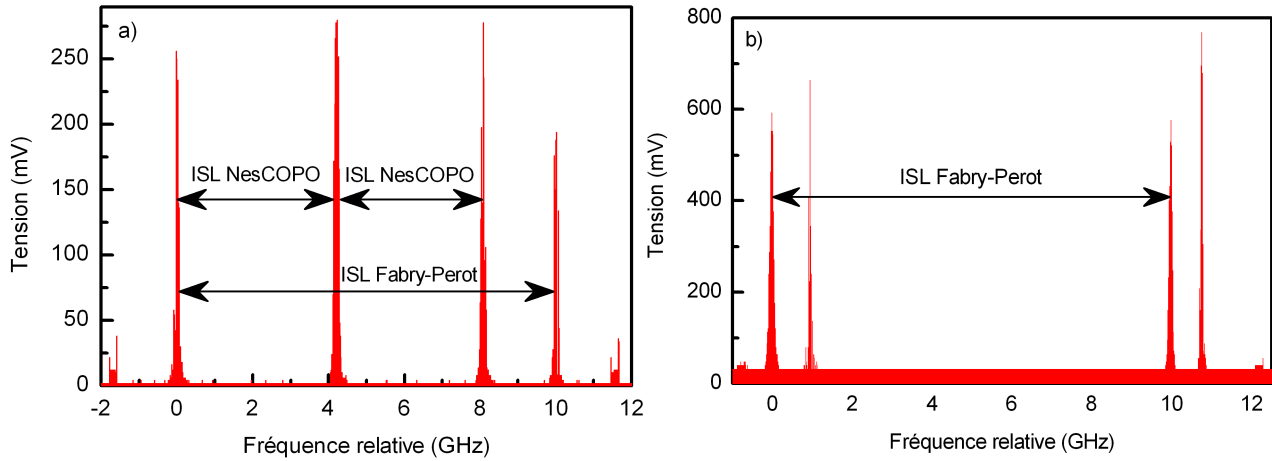


Figure 2.26 – Exemples de spectres multimodes de l'onde signal à 2388 nm. a) Emission d'un cluster multimode due à une dissociation trop faible. b) Emission de deux coïncidences exactes simultanément due à une dissociation trop élevée.

En conclusion, l'analyse du spectre prouve qu'un faisceau monomode longitudinal, stable et accordable en bande III peut être obtenu à partir du NesCOPO en OP-GaAs. Il s'agit du premier OPO au monde réunissant toutes ces caractéristiques [Cle15a]. Pour démontrer les capacités de cette nouvelle source pour la détection de gaz à distance, nous allons maintenant

utiliser le faisceau complémentaire pour détecter des vapeurs d'ammoniac.

2.5 Détection à distance de vapeurs d'ammoniac

Plusieurs espèces chimiques possèdent des raies d'absorption intéressantes entre 10,3 et 10,9 μm . Pour notre expérience, nous visons un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac fortement absorbantes, situées entre 10320 et 10450 nm. L'avantage de l'ammoniac est qu'il peut s'obtenir facilement et qu'il est à l'état gazeux à température ambiante sous pression atmosphérique. Comme le montre la Figure 2.27, d'autres espèces telles que l'éthylène (notamment produit par certains fruits en décomposition) ou le SF_6 auraient également pu être détectés. Les raies d'absorption ont été calculées avec la base de données HITRAN 2012. Remarquons que l'eau présente de très fines raies dans cette gamme spectrale.

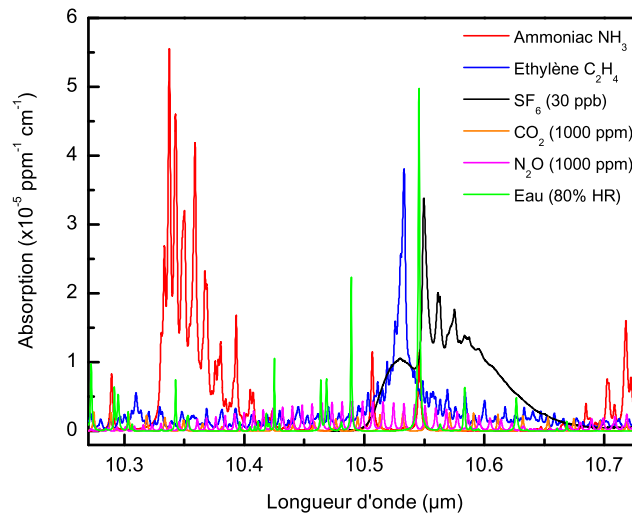


Figure 2.27 – Raies d'absorption de certaines espèces chimiques potentiellement détectables grâce au NesCOPO en OP-GaAs.

Les vapeurs d'ammoniac sont obtenues à partir d'une solution d'ammoniaque (hydroxyde d'ammonium) diluée à 20 %. Quelques gouttes de cette solution sont versées dans une cuve de 8 mm d'épaisseur munie de fenêtres faites d'un film alimentaire en polyéthylène, qui transmet autour de 10 μm . Avec ce film, la cuve n'est pas totalement hermétique mais l'essentiel est d'avoir une concentration d'ammoniac gazeux à peu près constante au cours du temps, sans turbulences dues à une évaporation trop rapide pour pouvoir faire une mesure de détection. Notre objectif est simplement de mesurer le profil des raies visées et non d'accéder à une concentration.

L'expérience de détection nécessite de mettre en forme le faisceau complémentaire issu de l'OPO. Pour cela, ce faisceau est tout d'abord collimaté, puis séparé en trois voies à l'aide de

deux prismes en ZnSe, dont l'angle au sommet est de 25° , afin d'éviter les effets d'interférence, comme illustré sur la Figure 2.28. En utilisant le faisceau réfléchi (environ 20 % de l'énergie) et transmis par la première face des prismes, nous obtenons bien trois voies différentes. L'ouverture des prismes est assez faible : 1 cm en hauteur et 2 cm en largeur en incidence normale. Plusieurs lentilles sont donc nécessaires en amont pour obtenir un faisceau complémentaire, à la fois collimaté et qui ne soit pas diffracté par les prismes.

Le premier faisceau, appelé faisceau d'analyse, est transmis par le premier prisme et traverse la cellule contenant les vapeurs d'ammoniac. Ce faisceau vient ensuite frapper une cible diffusante (feuille de papier). La lumière diffusée en réflexion est collectée sur un détecteur HgCdTe (MCT) refroidi par azote liquide grâce à une lentille en Germanium de 40 mm de diamètre et de 25 mm de focale. Lors des premières mesures, le MCT est placé tout près de la cible diffusante pour être certain de détecter du signal. Dans un deuxième temps, il est placé à 2 mètres de la cible, près du dernier miroir qui envoie le faisceau d'analyse dans l'atmosphère, afin de se placer dans une configuration proche de celle d'un LIDAR.

Le deuxième faisceau correspond au faisceau de référence : il est réfléchi par le premier prisme et transmis par le deuxième. Il vient ensuite frapper directement une cible diffusante identique à celle de la voie d'analyse, et le flux diffusé est à nouveau collecté sur un détecteur MCT refroidi. Ceci permettra d'obtenir un signal de référence pour corriger le signal mesuré des fluctuations d'intensité de l'OPO. Une cellule vide, identique à celle qui contient l'ammoniac, est insérée sur le trajet du faisceau de référence avant qu'il ne frappe la cible. Le faisceau d'analyse et le faisceau de référence voient donc les mêmes pertes dues au polyéthylène pour une certaine longueur d'onde. Pour des raisons pratiques, nous cherchons à obtenir le même niveau de signal à l'oscilloscope sur les deux voies lorsque les deux cuves sont vides. Ainsi, quand l'ammoniac est présent dans la cuve, la transmission T à une longueur d'onde donnée s'obtient simplement en faisant le rapport des tensions mesurées sur chaque voie. L'absorption A s'obtient alors par la relation $A = 1 - T$.

Enfin, le dernier faisceau correspond au faisceau réfléchi par les deux prismes. Il est envoyé dans le monochromateur et sert à mesurer précisément la longueur d'onde du complémentaire. En fermant les fentes jusqu'à 0,2 mm et en plaçant un détecteur MCT en sortie, une résolution de ± 1 nm est atteinte autour de 10,4 μm , soit moins de 0,1 cm^{-1} : ceci est largement suffisant pour enregistrer le spectre de l'ammoniac.

La première mesure de l'ensemble de raies d'absorption visées est présentée en Figure 2.29. Elle a été effectuée avec un détecteur MCT placé tout proche de la cible diffusante. Pour cette mesure, la longueur d'onde du complémentaire a été balayée entre 10250 et 10480 nm, correspondant à une température de cristal comprise entre 21 et 38 $^\circ\text{C}$. À température fixée, il est possible d'obtenir plusieurs points spectraux en obtenant successivement plusieurs coïncidences exactes dans la bande de gain par ajustement de la tension des cales piézoélectriques des miroirs.

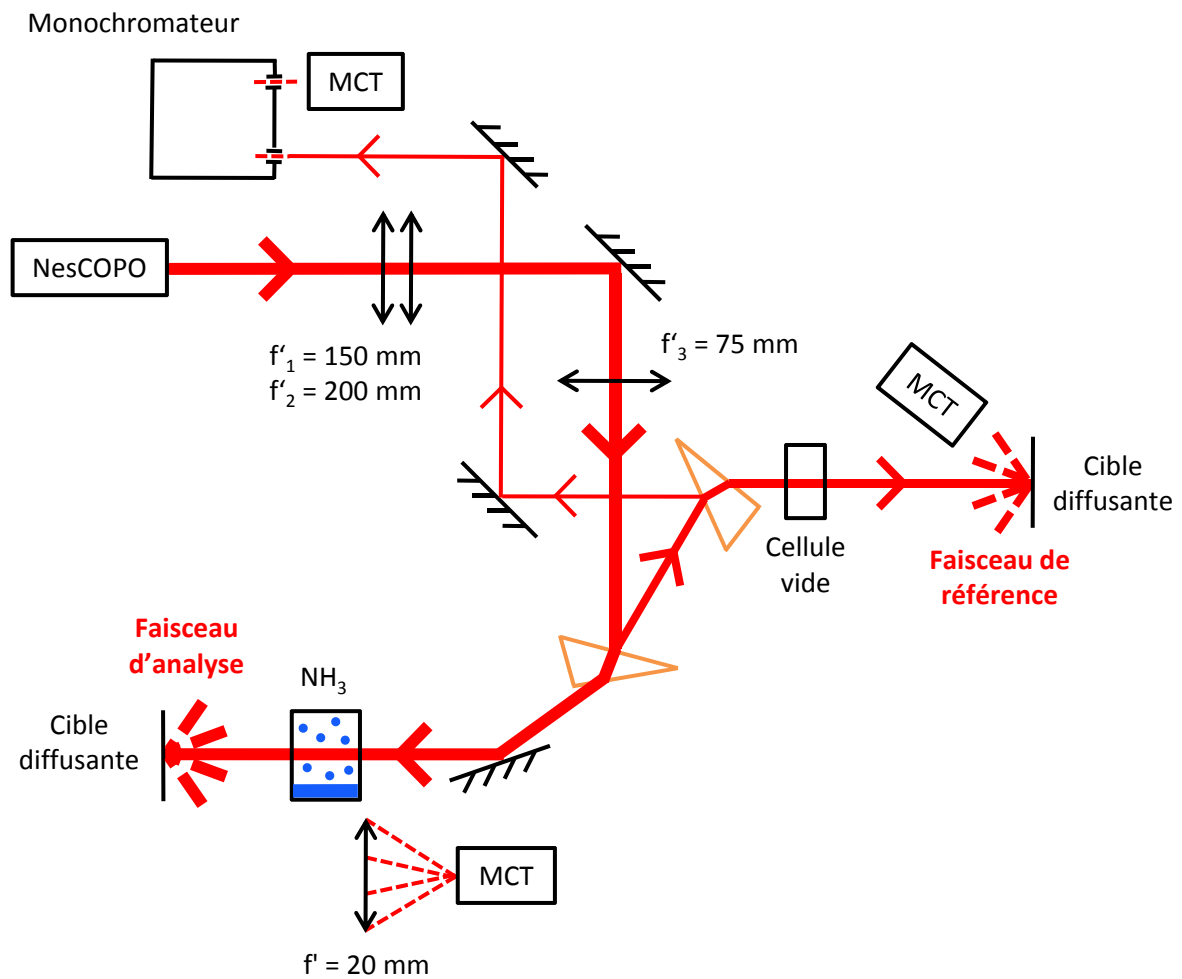


Figure 2.28 – Schéma du montage pour la détection de vapeurs d'ammoniac. Le faisceau complémentaire est séparé en trois voies au moyen de deux prismes en ZnSe pour effectuer les mesures.

Pour chaque point, nous observons une fluctuation de 5 à 10 % de la valeur de la tension mesurée à l'oscilloscope, qui est reprise dans le calcul des barres d'incertitude. L'absorption théorique en fonction de la longueur d'onde a été calculée avec la base de données HITRAN 2012, et les concentrations ont été adaptées afin d'obtenir la meilleure correspondance avec les mesures expérimentales.

Pour exploiter au maximum les capacités de la source en terme de résolution spectrale, nous identifions une raie d'absorption très fine de l'ammoniac située autour de 10393 nm. Les résultats sont également présentés en Figure 2.29. Comme la cuve n'est pas totalement hermétique, une légère fuite d'ammoniac a lieu de façon continue tout au long de la journée. C'est pourquoi nous avons un maximum d'absorption plus faible que sur la mesure précédente autour de 10393 nm car les deux mesures n'ont pas été effectuées au même moment de la journée. Nous voyons qu'il est possible de décrire très précisément cette fine raie d'absorption, ceci étant rendu possible par le fait que le spectre du NesCOPO est monomode longitudinal, la résolution étant limitée par le monochromateur.

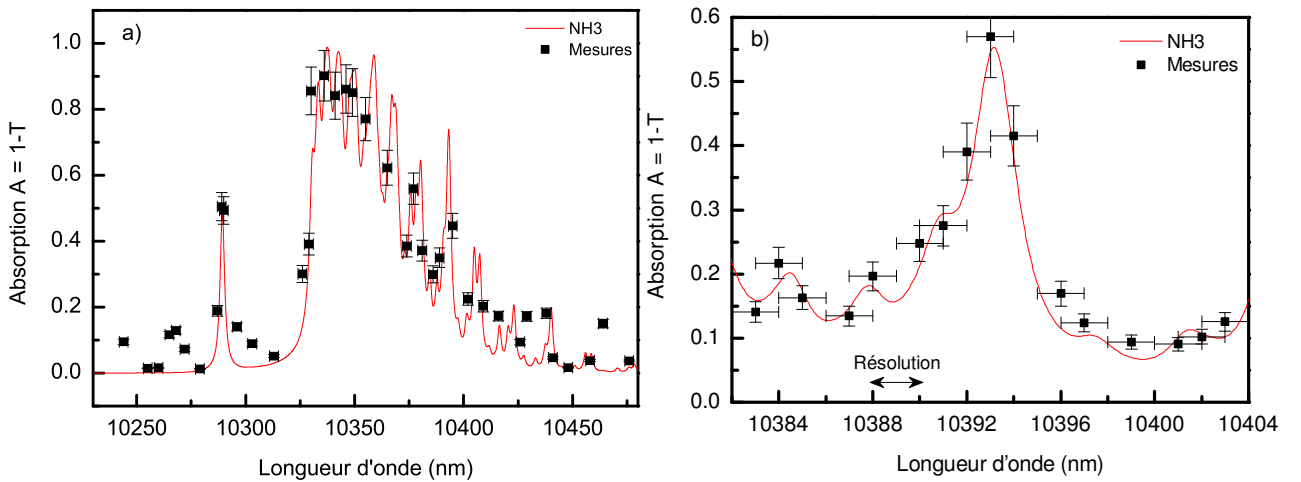


Figure 2.29 – a) Mesure d'un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac entre 10250 et 10480 nm avec un détecteur placé près de la cible diffusante. b) Mesure d'une raie d'absorption très fine de l'ammoniac autour de 10393 nm, exploitant la très grande finesse spectrale de la source.

Nous effectuons deux mesures supplémentaires orientées vers une approche opérationnelle de la détection de gaz à distance. D'un point de vue pratique, il est beaucoup plus simple de fixer l'OPO sur une coïncidence exacte donnée, puis de changer seulement la température de l'OP-GaAs pour faire varier la longueur d'onde du complémentaire. Nous effectuons dans la même configuration que précédemment la mesure de l'ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac mais en changeant seulement la température du cristal cette fois-ci, sans réajuster la tension des cales piézoélectriques à partir du réglage initial. Les résultats sont donnés en Figure 2.30

et montrent que nous obtenons moitié moins de points de mesures. Ceci s'avère suffisant pour détecter l'ammoniac mais il n'est plus vraiment possible de détecter une fine raie d'absorption. Comme les espèces chimiques en bande III présentent généralement des raies d'absorption très larges, ceci peut malgré tout permettre de les identifier.

Une dernière mesure est faite en plaçant le MCT refroidi à 2 mètres de la cible diffusante en configuration LIDAR. Nous accordons la longueur d'onde du complémentaire en changeant à la fois la température du cristal et le tirage des miroirs pour avoir le plus de points possible. Nous parvenons à effectuer une mesure correcte à 2 mètres malgré la diminution du rapport signal à bruit, comme le montre la Figure 2.30.

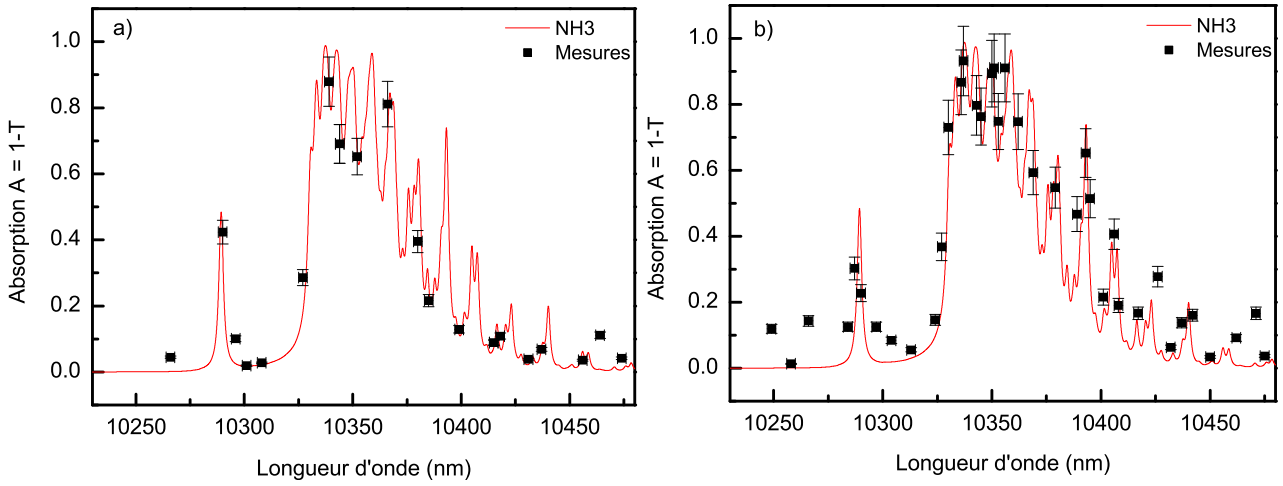


Figure 2.30 – a) Mesure d'un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac en fixant le NesCOPO en OP-GaAs sur une coïncidence exacte et en faisant seulement varier la température du cristal pour accorder la longueur d'onde du complémentaire. b) Mesure d'un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac avec un détecteur placé à 2 mètres de la cible diffusante.

En conclusion, le NesCOPO en OP-GaAs permet d'effectuer des mesures de gaz à distance en bande III. Le fait d'avoir un spectre d'émission monomode longitudinal permet d'avoir une excellente résolution spectrale et ainsi de pouvoir mesurer des raies d'absorption très fines. De plus, d'éventuels interférents pourraient potentiellement être distingués de l'espèce chimique à identifier. En modifiant légèrement la cavité pour avoir des rayons au waist plus petits et en ayant un traitement anti-reflet non endommagé, il serait probablement possible d'extraire davantage d'énergie sur le faisceau complémentaire et de se rapprocher de la valeur attendue par le calcul. Cette amélioration du rendement énergétique de l'OPO, couplée à l'utilisation d'un système de détection de grande ouverture, permettrait d'accroître la portée de la mesure LIDAR. De plus, l'utilisation d'un cristal comportant plusieurs réseaux différents mis en parallèle permettrait d'envisager une émission dans toute la bande III, et donc de détecter un grand nombre d'espèces chimiques avec la même source. Enfin, la stabilisation de la longueur d'onde

d'émission via un asservissement renforcerait davantage sa robustesse en vue de la conception d'un prototype opérationnel.

Synthèse

Nous avons mis en évidence le fait qu'il n'existait pas, avant le lancement de cette thèse, d'OPO monomode longitudinal émettant dans la gamme spectrale 6-16 μm en régime nanoseconde. Nous avons présenté en détail l'architecture NesCOPO brevetée par l'Onera, qui permet d'obtenir un spectre monomode longitudinal. Cette configuration avait déjà été testée et validée expérimentalement dans le PPLN dans la gamme spectrale 2-4,5 μm , notamment pour la détection de gaz à effets de serre. Nous nous sommes fixés comme objectif d'étendre ce concept à des cristaux non linéaires émettant au-delà de 8 μm tels que ZGP, CdSe et OP-GaAs. Nous avons ensuite réalisé expérimentalement un premier NesCOPO en ZGP, pompé par un laser à fibre silice dopée thulium monofréquence à 2051 nm. Nous avons montré que ce NesCOPO pouvait émettre un faisceau complémentaire monomode longitudinal et accordable entre 7,8 et 8,6 μm , mais que son émission était très instable en raison d'effets thermiques. Pour remédier à cet inconvénient, nous avons ensuite élaboré un NesCOPO en OP-GaAs pompé cette fois à 1938,5 nm par un microlaser $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$ monofréquence. Nous avons montré qu'il s'agissait du premier OPO émettant un faisceau complémentaire à la fois monomode longitudinal, stable en puissance et en longueur d'onde, et accordable dans une partie de la bande III, entre 10,3 et 10,9 μm . Les capacités de cette nouvelle source ont été démontrées à travers la détection à une distance de 2 mètres d'un ensemble de raies d'absorption de l'ammoniac situé autour de 10,4 μm , avec une résolution inférieure à 0,1 cm^{-1} . Cette démonstration de principe peut être appliquée à n'importe quelle espèce chimique possédant des raies d'absorption en bande III, en particulier les principaux neurotoxiques et gaz de combat. Par la suite, le NesCOPO en OP-GaAs pourrait constituer l'oscillateur maître d'un système MOPA, qui permettrait de monter en énergie et donc d'augmenter grandement la distance de détection, sous réserve de posséder une source de pompe de forte énergie et monomode autour de 2 μm .

Chapitre 3

Oscillateurs paramétriques optiques très largement accordables à condition d'accord de phase élargie

Objectifs

Dans le chapitre précédent, nous avons vu comment l'architecture NesCOPO permettait d'obtenir un rayonnement monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm . Dans ce type d'OPO, le paramètre qui contrôle le caractère monomode de l'émission est la dissociation des cavités signal et complémentaire. Comme les deux cavités sont physiquement dissociées, cette dissociation est réglable en ajustant les tirages des miroirs. Or, lors de la propagation dans le cristal non linéaire, la biréfringence et la dispersion entraînent déjà une légère variation de longueur optique entre la cavité signal et la cavité complémentaire qui contribue à la dissociation. La question suivante se pose alors : la biréfringence et la dispersion peuvent-elles induire une dissociation suffisante pour obtenir une oscillation monomode longitudinale ? Dans ce chapitre, nous allons présenter un nouveau type d'OPO, appelé Sheet OPO de par sa petite taille, qui tente de répondre à cette question en se basant sur le concept d'accord de phase relaxé.

3.1 Contexte

Nous avons présenté dans le chapitre 1 les équations qui gouvernent l'optique non linéaire et l'interaction paramétrique optique, ainsi que deux des principales méthodes d'accord de phase : l'accord de phase par biréfringence et le quasi-accord de phase. Si nous revenons aux fondements de l'optique non linéaire, il suffit d'avoir des interférences constructives entre la polarisation non linéaire et l'onde qu'elle rayonne pour avoir un processus non linéaire efficace. Le paramètre majeur qui contrôle ces interférences est la condition d'accord de phase $\Delta k = k_p - k_s - k_c$. Il est ensuite utile de définir la longueur de cohérence des interférences $L_{\text{coh}} = \frac{\pi}{\Delta k}$. Dans un cristal dont la longueur physique est L , la condition d'accord de phase est donnée par $\Delta k \rightarrow 0$ soit $L_{\text{coh}} \gg L$, qui correspond à la conservation d'interférences constructives entre les trois ondes tout au long de la propagation dans le cristal. Dans le cas de l'accord de phase parfait $\Delta k = 0$, la longueur de cohérence tend vers l'infini pour les longueurs d'ondes considérées. Ceci permet en principe de choisir un cristal non linéaire de n'importe quelle longueur, notamment pour satisfaire d'autres conditions d'oscillation telles que l'obtention d'un mode spatial stable pour les ondes résonnantes, un faible temps de construction ou un gain élevé. Cependant, la condition $\Delta k = 0$ apparaît comme très restrictive et n'est pas toujours réalisable aux longueurs d'onde d'intérêt dans un cristal donné. De plus, le coefficient non linéaire d_{eff} peut être nul ou de faible amplitude à cause d'une combinaison non favorable des éléments du tenseur dans la direction permettant l'accord de phase par biréfringence. Comme nous l'avons vu, le quasi-accord de phase permet de s'affranchir de ces limitations, mais il reste réservé à très peu de cristaux.

Une alternative intéressante aux techniques d'accord de phase connues serait de réduire fortement la longueur du cristal de telle sorte que la condition $L < L_{\text{coh}}$ soit vérifiée pour plusieurs couples de longueurs d'onde signal et complémentaire. Par la suite, nous nous référerons à cette inégalité en tant que condition d'accord de phase élargie. Nous définissons alors la bande de gain comme l'ensemble des longueurs d'onde signal et complémentaire permettant de respecter cette condition. Remarquons dès à présent que ce concept avait déjà été proposé pour le doublage de fréquence par Armstrong et al. dans leur article de 1962 posant les fondements théoriques de l'optique non linéaire [Arm62]. Il peut être également perçu comme une prémice du quasi-accord de phase sur un unique domaine de longueur inférieure ou égale à la longueur de cohérence. Nous allons maintenant voir comment cette technique peut être mise en place dans un OPO. Comme la longueur de cohérence est toujours de l'ordre d'une centaine de microns, ceci amène à concevoir un OPO de l'épaisseur d'une feuille de papier : ce nouveau type d'OPO sera ainsi appelé Sheet OPO.

La façon la plus simple de concevoir un OPO basé sur la condition d'accord de phase élargie et utilisant un cristal non linéaire très court est de déposer directement les miroirs sur les faces du cristal (OPO monolithique). En pratique, il est difficile d'incurver les faces

d'un cristal non linéaire et encore plus lorsque celui-ci fait moins d'un millimètre de long. La cavité de l'OPO sera donc constituée de deux miroirs plan et sera donc théoriquement instable du point de vue de l'optique gaussienne. Toutefois, sa très faible longueur permet de négliger la diffraction (ondes quasi-planes). Les OPO monolithiques présentent plusieurs avantages en terme de compacité et de diminution du temps de construction en régime nanoseconde, grâce à la suppression des espaces d'air dans la cavité. Plusieurs OPO monolithiques ont déjà été réalisés par le passé, notamment le premier OPO conçu par Giordmaine et Miller en configuration doublement résonnante [Gio65]. L'étude théorique de leur contenu spectral a également été abordée par Eckardt et al [Eck91], mais sans s'attarder sur les conditions permettant d'obtenir une oscillation monomode longitudinale. Les expériences montrent qu'elle est très difficile à obtenir dans de tels OPO, un point sur lequel nous reviendrons en détail.

L'idée générale du Sheet OPO a été proposée théoriquement à l'Onera en 2003 dans le GaAs [Hai03], mais aucune démonstration expérimentale n'avait pu prouver que le concept fonctionnait réellement. Nous expliquerons par la suite pourquoi un Sheet OPO ne peut être conçu avec un cristal non linéaire isotrope tel que le GaAs. En 2011, Xie et al ont réalisé expérimentalement pour la première fois un Sheet OPO dans un cristal de KTP pompé à 532 nm en régime nanoseconde, émettant autour de 1 μm près de la dégénérescence [Xie11]. Une bande de gain plus large que dans les OPO classiques a été observée ainsi qu'une émission monomode longitudinale. Cependant, ni la base théorique expliquant leurs résultats ni les raisons de leur choix de conception n'ont été présentés. En particulier, les conditions requises pour atteindre le seuil d'oscillation d'un OPO si court, et obtenir un spectre monomode en fonction des propriétés du cristal non linéaire et de la cavité n'ont pas été données. Dans ce contexte, nous avons réalisé une étude théorique pour comprendre les mécanismes permettant l'oscillation dans un Sheet OPO et pour en prédire le contenu spectral [Cle15b]. Nous allons développer pour cela un nouveau formalisme, que nous appliquerons ensuite à différentes méthodes d'accordabilité en faisant varier un paramètre : la longueur d'onde de la pompe, la longueur de la cavité ou la température du cristal. Nous verrons que chaque méthode permet d'obtenir un faisceau monomode et accordable. Pour cela, nous combinerons à la fois l'approche de Eckardt et al portant sur l'étude du contenu spectral des OPO monolithiques [Eck91], et l'approche développée à l'Onera par Scherrer et al pour obtenir l'oscillation monomode dans les NesCOPO [Sch00a]. À la lumière des conclusions tirées de cette étude théorique, nous présenterons les étapes de conception d'un Sheet OPO en ZGP, ce qui constituerait une source innovante très compacte, monomode et accordable entre 7,3 et 8,6 μm .

3.2 Longueur de cohérence

Pour démontrer les propriétés d'accordabilité remarquables du Sheet OPO, considérons des cristaux non linéaires taillés selon des configurations de polarisation de Type II. Nous reviendrons plus tard sur la raison de ce choix, favorable vis à vis de la dispersion. Nous choisissons trois exemples de cristaux : KTP, LiNbO₃ et ZGP, dont la longueur a été choisie arbitrairement sauf pour le KTP. Leurs caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 3.1 et nous les utiliserons en tant qu'exemples de Sheet OPO lors des simulations présentées dans ce chapitre. Pour chaque cristal, l'angle ϕ est tel que le coefficient non linéaire d_{eff} est maximal. À noter que les résultats expérimentaux issus de l'article [Xie11] nous permettront de vérifier la validité des formules théoriques établies dans tout ce chapitre sur le Sheet OPO en KTP. Une fois validées, ces formules pourront être appliquées pour concevoir un Sheet OPO avec n'importe quel cristal.

Table 3.1 – Paramètres principaux des trois exemples de Sheet OPO.

Cristal	LiNbO ₃	KTP	ZGP
λ_p (nm)	1064	532	2051
θ (degrés)	56	90	66
ϕ (degrés)	0	-	45
L (μm)	250	217	300
Bande de gain signal (nm)	1385-1546	1015,6-1066,2	2556-3150

Le premier avantage du Sheet OPO est qu'il peut émettre un rayonnement signal et complémentaire même si l'accord de phase exact, correspondant à une longueur de cohérence infinie, est impossible à réaliser aux longueurs d'onde choisies en jouant sur la biréfringence du cristal, et ce quel que soit l'angle de propagation. Pour illustrer ce point, considérons un cristal de LiNbO₃ dont l'indice de réfraction aux trois longueurs d'ondes est calculé avec les relations de Sellmeier données par Zelmon et al [Zel97]. En pompant ce cristal à $\lambda_p = 1064$ nm, l'accord de phase de Type II n'est pas possible pour des angles de taille inférieurs à $\theta = 58^\circ$, tandis que le coefficient non linéaire maximal serait atteint à $\theta = 0^\circ$. Comme nous le voyons sur la Figure 3.1, la longueur de cohérence ne dépasse pas 350 μm pour un cristal taillé à $\theta = 56^\circ$. Si la longueur du cristal est imposée à $L = 250$ μm , l'oscillation sera possible par la condition d'accord de phase relaxée sur une bande de gain comprise entre 1385 et 1546 nm pour le signal, correspondant à un complémentaire accordable entre 3413 et 4591 nm. En pratique, l'accordabilité ne pourrait pas être effectuée sur l'ensemble de la bande de gain car le niobate de lithium commence à absorber au-delà de 4 μm .

Même si l'accord de phase exact peut être atteint dans le cristal non linéaire considéré, le Sheet OPO présente comme deuxième avantage d'avoir une bande de gain instantanée bien plus large que dans un OPO classique en raison de sa faible épaisseur. Ce phénomène est illustré en Figure 3.1 avec le KTP, pour lequel nous avons repris les paramètres de l'expérience de Xie et al. En utilisant les relations de Sellmeier de Kato et al pour calculer les indices de réfraction des trois ondes [Kat02], la condition d'accord de phase est atteinte pour $\lambda_s = 1039,8$ nm. Expérimentalement, elle était vérifiée à $\lambda_s = 1041,4$ nm : cet écart s'explique par l'impossibilité de reproduire exactement les propriétés de dispersion du KTP de l'expérience avec les relations de Sellmeier choisies, et ne change en rien les conclusions que nous allons en tirer. Pour obtenir exactement le même comportement, il aurait fallu avoir les relations de Sellmeier exactes du cristal de KTP de Xie et al. Le signal est accordable entre 1015,6 et 1066,2 nm (expérimentalement entre 1016,4 et 1069,4 nm), correspondant à une bande de gain instantanée théorique de 50,6 nm pour un cristal de 217 μm de long (expérimentalement 53 nm). À titre de comparaison, pour obtenir une accordabilité identique avec un OPO classique simplement résonnant, il serait nécessaire de tourner le cristal de KTP sur plusieurs dizaines de degrés. De plus, l'accordabilité sur une gamme spectrale signal identique ne pourrait être effectuée en changeant la température du cristal. Par ailleurs, la bande de gain instantanée pour $L = 10$ mm serait réduite à la plage 1039,3-1040,3 nm soit une largeur de 1 nm seulement.

Enfin, nous considérons comme troisième exemple un Sheet OPO en ZGP, d'une longueur de 300 μm et pompé à 2051 nm, et dont les paramètres sont ceux que nous comptons utiliser pour une réalisation expérimentale. La longueur de cohérence est tracée en fonction de la longueur d'onde signal en Figure 3.1, à l'aide des relations de Sellmeier de Das et al [Das03]. Le pic de gauche correspond à des longueurs d'onde complémentaires supérieures à 14 μm , ce qui n'a aucun sens physique car ZGP absorbe totalement au-delà de 12 μm . La bande de gain associée au pic de droite correspond à une gamme spectrale signal $\lambda_s = 2556 - 3150$ nm, ce qui donne pour la longueur d'onde complémentaire $\lambda_c = 5,9 - 10,3$ μm , soit une gamme s'étalant sur 4,4 μm .

Pour des polarisations pompe, signal et complémentaire correspondant à un accord de phase de Type II, il existe toujours un angle de taille critique θ_c pour lequel l'accord de phase exact est impossible pour $\theta < \theta_c$. Cet angle correspond au point de rebroussement de la courbe d'accord de phase (longueur d'onde en fonction de θ). Pour un angle $\theta > \theta_c$, la courbe d'accord de phase montre que deux couples de longueurs d'onde signal et complémentaire permettent d'obtenir l'accord de phase exact, ce qui explique la présence de deux pics sur les courbes représentant la longueur de cohérence en fonction de la longueur d'onde. Ces pics s'éloignent progressivement l'un de l'autre dans le spectre quand θ augmente de la valeur θ_c jusqu'à $\theta = 90^\circ$. Théoriquement,

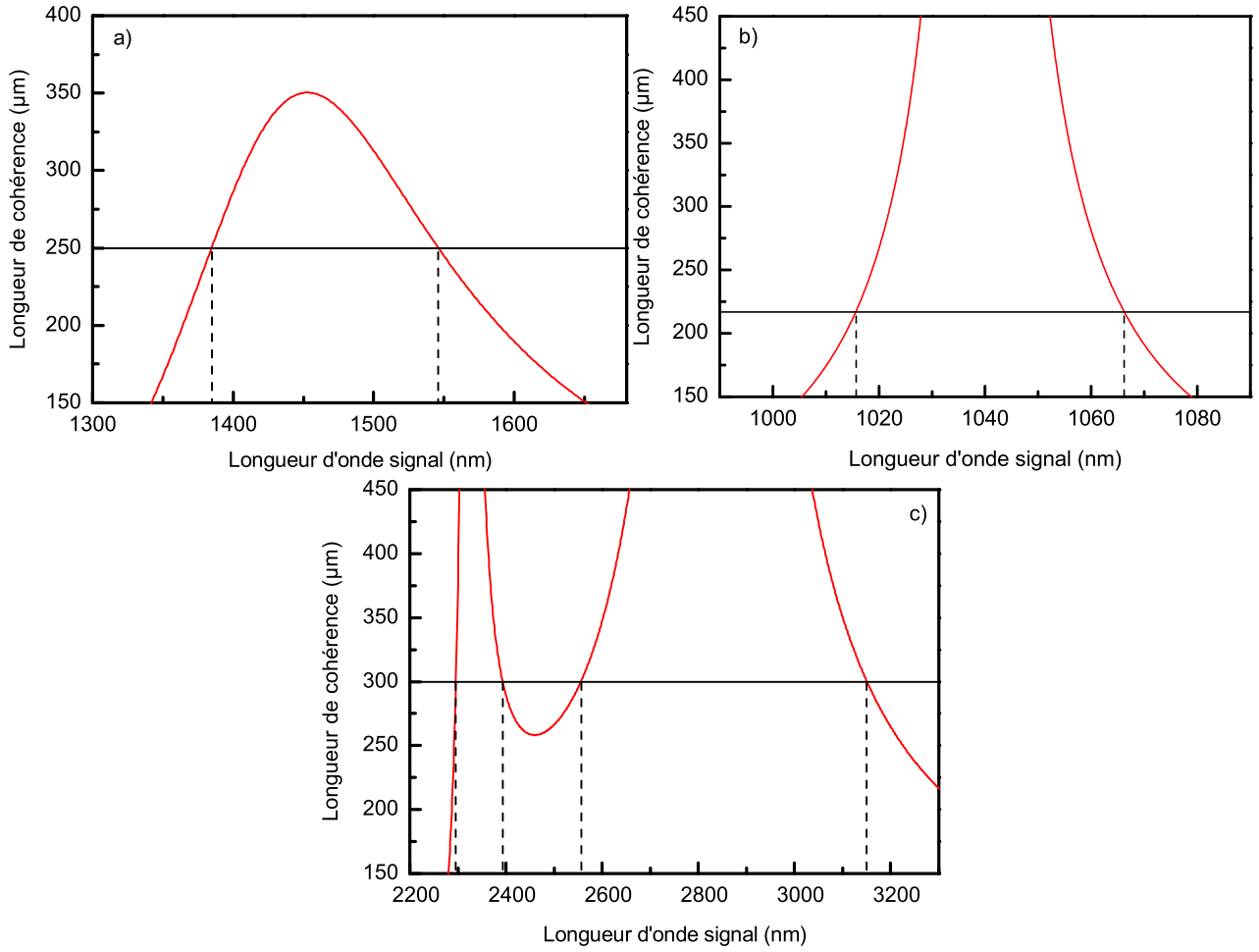


Figure 3.1 – Longueur de cohérence en fonction de la longueur d’onde signal pour les trois exemples de Sheet OPO du Tableau 3.1 taillés selon des accords de phase de Type II. Les lignes horizontales correspondent à $L_{\text{coh}} = L$ et les lignes pointillées verticales délimitent la bande de gain définie par $L < L_{\text{coh}}$. a) Sheet OPO en LiNbO_3 pompé à 1064 nm ($L = 250 \mu\text{m}$, $\theta = 56^\circ$). b) Sheet OPO en KTP pompé à 532 nm ($L = 217 \mu\text{m}$, $\theta = 90^\circ$). c) Sheet OPO en ZGP pompé à 2051 nm ($L = 300 \mu\text{m}$, $\theta = 66^\circ$).

la bande de gain instantanée la plus large possible pour un cristal donné sera obtenue à $\theta = 90^\circ$, en choisissant une longueur de cristal inférieure au minimum local de longueur de cohérence présent entre les deux pics. En pratique, pour la plupart des cristaux, l'un des deux pics de la longueur de cohérence correspond à des longueurs d'onde complémentaires fortement absorbées dans le cristal, et n'est donc pas à prendre en compte pour estimer l'accordabilité effective du Sheet OPO. Des accordabilités records peuvent toutefois être obtenues dans le spectre infra-rouge. À titre d'exemple, un Sheet OPO en CdSe de 300 μm de long, pompé à 2051 nm et taillé selon un accord de phase de Type II à $\theta = 90^\circ$, pourrait émettre un faisceau complémentaire accordable entre 6,3 et 31 μm . Compte tenu de l'absorption, les longueurs d'onde au-delà de 23 μm ne pourraient pas exister (absorption totale) et le seuil d'oscillation serait plus difficile à atteindre au-delà de 16 μm . Ce Sheet OPO en CdSe serait donc en mesure d'émettre un faisceau complémentaire accordable entre 6,3 et 16 μm . Pour la réalisation expérimentale d'un Sheet OPO émettant au-delà de 6 μm , nous préférons toutefois utiliser ZGP car son coefficient non linéaire beaucoup plus élevé sera un atout non négligeable pour atteindre le seuil d'oscillation. À noter que des situations originales sont également envisageables avec ZGP : une émission complémentaire entre 8,1 et 8,8 μm semble notamment possible pour un cristal taillé à $\theta = 90^\circ$ et pompé à 1064 nm par un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$.

3.3 Conditions d'oscillation du Sheet OPO

Après avoir présenté les avantages conférés au Sheet OPO par la condition d'accord de phase élargie, nous allons maintenant voir sous quelles conditions l'oscillation est possible. Dans un premier temps, nous allons expliquer pourquoi un Sheet OPO doublement résonnant est bien plus favorable qu'un Sheet OPO simplement résonnant. Comme le Sheet OPO fonctionne essentiellement à $\Delta k \neq 0$, nous étudierons ensuite l'effet du désaccord de phase sur le seuil d'oscillation. Nous verrons ainsi que le seuil semble difficilement atteignable en régime continu mais peut être dépassé en régime impulsionnel.

3.3.1 Sheet OPO simplement résonnant et doublement résonnant

En 2003, Haidar et al ont expliqué comment une amplification paramétrique efficace pouvait avoir lieu dans une microcavité grâce aux effets de remise en phase des ondes dans la cavité, même si la condition d'accord de phase n'est pas vérifiée [Hai03]. Nous allons expliquer plus en détail ce concept dans le paragraphe suivant. Pour cela, nous considérons tout d'abord un Sheet OPO simplement résonnant. Par convention, nous supposons que l'onde résonnante est le signal. Dans cet OPO, le seul mécanisme de sélection spectrale est la condition d'accord de phase, en plus de la présence de modes longitudinaux sur l'onde signal. Ainsi, le rayonnement

émis sera toujours centré autour de l'accord de phase exact, s'il existe, ou bien autour de la longueur d'onde permettant d'avoir une longueur de cohérence maximale sinon. Comme le seul moyen d'accorder la longueur d'onde consiste à modifier Δk , il est impossible de tirer parti de la grande accordabilité offerte par la très large bande de gain du Sheet OPO. De plus, la compétition de modes étant faible en régime impulsionnel, le spectre d'émission sera composé de plusieurs modes longitudinaux.

Nous montrons ainsi qu'une cavité simplement résonnante n'est pas adaptée pour concevoir un Sheet OPO, où le but recherché est de sélectionner une seule longueur d'onde d'émission dans une large gamme spectrale définie par la condition $L < L_{\text{coh}}$. Par ailleurs, un Sheet OPO simplement résonnant comportera les mêmes avantages et inconvénients que les SRO classiques, notamment un seuil élevé. C'est pourquoi nous nous concentrons, pour le reste de ce chapitre, sur des Sheet OPO doublement résonnant, qui seront utilisés pour les différents calculs et simulations.

Dans un DRO, la phase du signal et du complémentaire doit être inchangée après un aller-retour dans la cavité : c'est la condition de double résonance. La cavité remet alors en phase les deux ondes à chaque tour de cavité. Pour un gain paramétrique supérieur aux pertes, l'intensité des ondes augmente comme illustré sur la Figure 3.2.

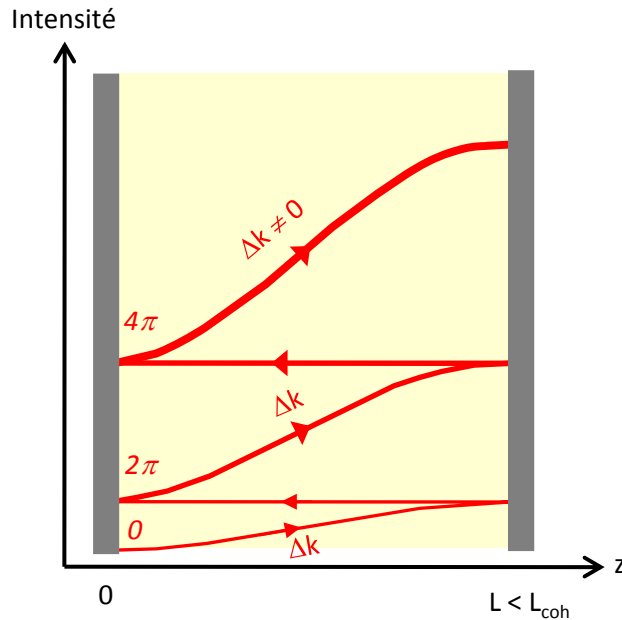


Figure 3.2 – Diagramme expliquant le concept d'accord de phase relaxé en microcavité pour un simple passage de pompe. Dans un DRO, ce mécanisme conduit à une intensité signal et complémentaire croissante tant que le gain est supérieur aux pertes, grâce à la remise en phase des ondes à chaque tour de cavité.

La conséquence essentielle sur le contenu spectral, liée à la condition de double résonance, est ensuite la même que pour n'importe quel DRO : seuls les couples de modes signal et complémentaire qui vérifient la conservation de l'énergie peuvent osciller. Les mécanismes de sélection spectrale des modes permettent alors de changer la longueur d'onde d'émission dans toute la bande de gain, et donc potentiellement très loin de l'accord de phase exact. L'espacement entre modes et la dissociation des cavités dépendent seulement des indices de réfraction "vus" par le signal et le complémentaire car la longueur physique des deux cavités est la même. De ce fait, la dissociation est imposée par les propriétés du cristal, à savoir la dispersion et la biréfringence.

3.3.2 Effet du désaccord de phase sur le seuil d'oscillation

Comme le cristal est inhabituellement court (quelques centaines de microns), on peut s'imaginer qu'un Sheet OPO oscillera très difficilement, même en configuration doublement résonnante. Nous allons montrer que le seuil peut être atteint en régime impulsif, et nous illustrerons cela sur les trois exemples de Sheet OPO pour lesquels nous avons calculé la bande de gain dans la section 3.1. Par souci de simplicité, la pompe, le signal et le complémentaire sont considérés comme des ondes planes se propageant colinéairement selon l'axe z . L'approximation des ondes planes est a priori justifiée car la longueur de Rayleigh de chaque faisceau est bien plus grande que le cristal. De plus, les effets de walk-off seront négligés de par la faible longueur du cristal. La prise en compte des pertes par diffraction, dues au caractère instable de la cavité composée de deux miroirs plan, nécessiterait une simulation numérique 2D assez fastidieuse dont nous pouvons nous affranchir pour avoir une première estimation du seuil.

Le calcul du seuil s'effectue en résolvant les équations de propagation non linéaires 1.2, en supposant que la condition d'accord de phase n'est pas vérifiée. La solution des équations dans le cas général est donnée dans l'Annexe B mais est peu utilisable en pratique. Pour obtenir une formule plus commode, nous pouvons supposer qu'au seuil, la pompe n'est pas dépeuplée, ce qui simplifie grandement la résolution des équations couplées. Le calcul du gain $G = \frac{I_c(L)}{I_c(0)}$ pour l'onde complémentaire et pour un simple passage de pompe dans le cristal est lui aussi donné en Annexe B. Pour simplifier encore le calcul, nous supposons que le Sheet OPO est un DRO équilibré, c'est-à-dire ayant les mêmes pertes et les mêmes réflectivités de miroir pour le signal et le complémentaire. Le gain s'écrit alors :

$$G = \cosh^2(\gamma L) + \left(\kappa^2 u_p^2 + \frac{\Delta k^2}{4} - \kappa u_p \Delta k \cos(\varphi_0) \right) \frac{\sinh^2(\gamma L)}{\gamma^2} - \frac{\kappa u_p}{\gamma} \sin(\varphi_0) \sinh(2\gamma L), \quad (3.1)$$

où γ est défini par :

$$\gamma = \sqrt{\kappa^2 u_p^2 - \frac{\Delta k^2}{4}}, \quad (3.2)$$

et où les autres paramètres ont déjà été définis au chapitre 1 avec φ_0 correspondant à la phase relative des ondes en $z = 0$. En régime continu, la condition d'oscillation au seuil s'écrit $GR^2 = 1$ où R est la moyenne géométrique des réflectivités des deux miroirs. Dans un Sheet OPO, le désaccord de phase augmente très rapidement dès que l'on s'éloigne légèrement de la condition d'accord de phase exact. Ce phénomène est notamment visible sur l'allure très piquée de la longueur de cohérence quand elle tend vers l'infini. De ce fait, l'hypothèse de gain faible $\gamma L < 0,1$, qui permet d'effectuer un développement de Taylor des fonctions hyperboliques, n'est généralement pas valide. À titre d'exemple, dans le Sheet OPO en KTP, cette hypothèse est valide sur une plage signal de 2 nm de large centrée sur l'accord de phase exact, soit 4 % de la largeur totale de la bande de gain. L'amplitude de la pompe au seuil doit donc être calculée numériquement en insérant la formule 3.1 dans la condition d'oscillation au seuil.

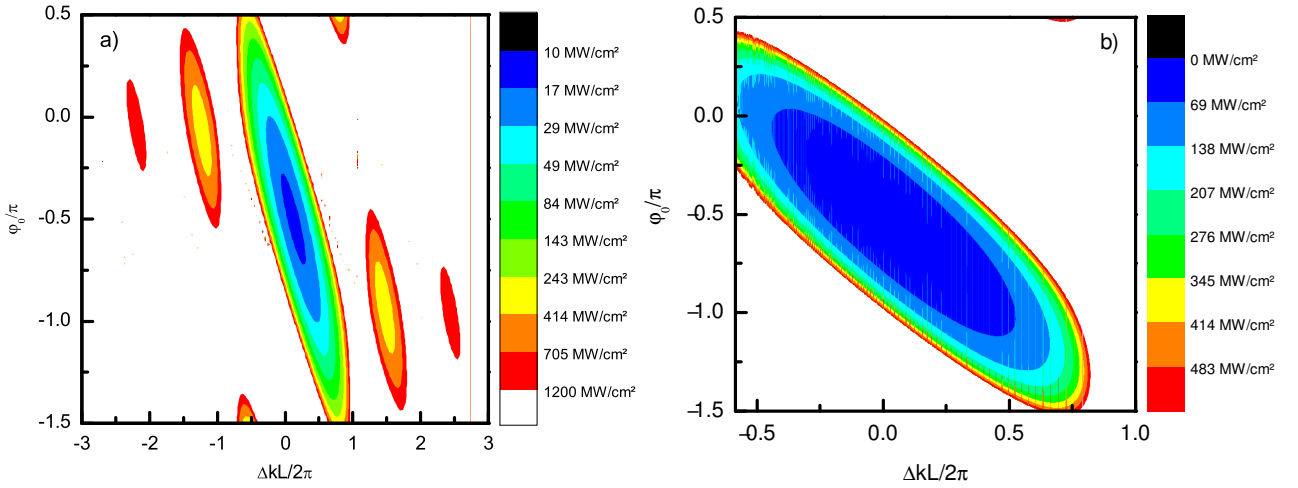


Figure 3.3 – Intensité de la pompe au seuil en régime continu en fonction de φ_0 et $\frac{\Delta kL}{2}$. Le seuil minimal suit une quasi-droite d'équation $\varphi_0 + \frac{\Delta kL}{2} = -\frac{\pi}{2}$. a) Sheet OPO en KTP. b) Sheet OPO en ZGP.

La Figure 3.3 montre l'évolution du seuil d'oscillation en fonction de la phase relative φ_0 en $z = 0$ et du désaccord de phase Δk pour le Sheet OPO en KTP et en ZGP. Nous voyons que le seuil augmente quand $|\Delta k|$ augmente et que la valeur de la phase relative qui minimise le seuil n'est pas $\varphi_0 = -\frac{\pi}{2}$ en dehors de l'accord de phase exact. Ainsi, quand $\Delta k \neq 0$, la phase relative s'adapte en prenant une valeur comprise dans l'intervalle $[\pi; 2\pi]$ pour obtenir le seuil le plus bas à Δk fixé. Une analyse rapide de la Figure 3.3 montre que les deux paramètres semblent liés par la relation $\varphi_0 + \frac{\Delta kL}{2} = -\frac{\pi}{2}$ pour minimiser le seuil. Cette relation peut être démontrée en résolvant l'équation non linéaire d'évolution de la phase 1.3, en ayant résolu au préalable celles

portant sur l'amplitude des champs et en insérant les solutions de 1.2 dans 1.5. La relation générale qui lie la phase relative et le désaccord de phase pour maximiser le gain s'écrit alors [Bos96] :

$$\phi(L) = \varphi_0 + \frac{\Delta k L}{2} + \sum_{i=p,s,c} K_i \Pi_i, \quad (3.3)$$

où $K_{p,s,c}$ sont des termes dépendant de Δk , des constantes de Manley-Rowe et de la constante Γ et où $\Pi_{p,s,c}$ désignent des fonctions elliptiques de troisième espèce. Pour maximiser le transfert d'énergie de la pompe vers les ondes signal et complémentaire, la phase $\phi(L)$ doit être égale à $-\frac{\pi}{2}$. Au premier ordre, la résolution permet de négliger les fonctions elliptiques, et nous retrouvons bien la relation $\varphi_0 + \frac{\Delta k L}{2} = -\frac{\pi}{2}$.

Le seuil d'oscillation minimal est obtenu dans la zone où la condition d'accord de phase relaxée $L < L_{\text{coh}}$ est vérifiée. Des minima locaux du seuil, bien visibles pour le Sheet OPO en KTP, sont aussi rencontrés quand L s'approche d'un multiple impair de la longueur de cohérence, soit $L \approx (2n+1)L_{\text{coh}}$. Cependant, ces situations ne sont pas optimales en comparaison avec l'accord de phase relaxée car elles débouchent sur des seuils d'oscillation plus élevés. Enfin, remarquons que les valeurs calculées des intensités seuil en régime continu ne sont pas raisonnablement accessibles en pratique, c'est pourquoi il est nécessaire de pomper un Sheet OPO en régime impulsif avec un laser délivrant une forte puissance crête.

Nous allons maintenant donner un ordre de grandeur du seuil théorique des trois exemples de Sheet OPO du Tableau 3.1. Pour cela, nous reprenons la démarche pour calculer le seuil en régime impulsif pour les DRO qui a été détaillée dans le chapitre 1. Il s'agit principalement de déterminer le rapport entre le seuil impulsif et le seuil continu donné par [God04]:

$$X_{\text{th}} = \frac{I_{\text{th}}^{\text{impulsion}}}{I_{\text{th}}^{\text{continu}}} = \left(1 - \frac{2 \ln \left(1 + \frac{\beta t_{\text{AR}}}{2\tau_p} \right)}{\ln(R)} \right)^2. \quad (3.4)$$

Les paramètres de cette relation sont les mêmes que ceux déjà définis au chapitre 1. Les différentes valeurs choisies pour ces paramètres afin d'estimer le seuil sont données dans le Tableau 3.2.

Pour le Sheet OPO en KTP, nous avons repris les valeurs de l'article de Xie et al. Pour les autres exemples, nous avons pris des valeurs en accord avec le matériel dont nous disposons au laboratoire (sources de pompe et miroirs). Pour le niobate de lithium, nous avons pris le waist le plus petit possible car le seuil est élevé. Pour des impulsions de pompe d'une durée de 11 ns, la relation 3.4 donne un rapport $X_{\text{th}} \approx 1,5$ pour le Sheet OPO en ZGP, ce qui signifie que la puissance crête au seuil en régime impulsif est environ 1,5 fois plus grande qu'en régime continu. Nous traçons l'évolution du temps de construction en fonction du taux de pompage

Table 3.2 – Energie seuil en régime nanoseconde pour les trois exemples de Sheet OPO.

Cristal	LiNbO ₃	KTP	ZGP
λ_p (nm)	1064	532	2051
R (%)	99	99	96
t_{AR} (ps)	3,6	2,6	6,3
τ_p (ns)	6	5	11
d_{eff} (pm/V)	0,468	1,77	74,8
w_p (μ m)	50	300	150
Intensité seuil continu (MW/cm ²)	1380	15	7,8
X_{th}	2,1	3,1	1,5
Energie seuil nanoseconde (μ J)	1164	333	44

par rapport au seuil continu en Figure 3.4. Le temps de construction diminue progressivement jusqu'à atteindre un dixième de la durée de la pompe (environ 1 ns) en pompant 8,5 fois au dessus du seuil continu soit 5 fois au dessus du seuil impulsionnel. Ce phénomène est un comportement connu dans les OPO en régime nanoseconde.

Nous évaluons ensuite le seuil théorique du Sheet OPO en ZGP que nous comptons concevoir. Avec les paramètres du Tableau 3.2, nous obtenons une énergie seuil en régime impulsionnel $E_{th}^{impulsion} = 44 \mu\text{J}$ correspondant à une fluence de $0,13 \text{ J/cm}^2$: la marge vis à vis du seuil de dommage ($1\text{-}2 \text{ J/cm}^2$) est donc assez confortable.

3.4 Contenu spectral du Sheet OPO

Dans cette section, nous analysons en détail les effets de la condition de double résonance sur le spectre du Sheet OPO, à la lumière des conclusions établies pour les NesCOPO au chapitre 2. En développant un nouveau formalisme basé sur les nombres modaux, nous allons déterminer sous quelles conditions l'émission monomode est possible, en fonction des propriétés du cristal : isotropie ou biréfringence, dispersion, etc. Nous nous concentrons tout d'abord sur les conditions permettant d'obtenir une coïncidence exacte entre un mode signal et un mode complémentaire. Les différentes méthodes envisagées pour l'accordabilité seront présentées dans la section suivante.

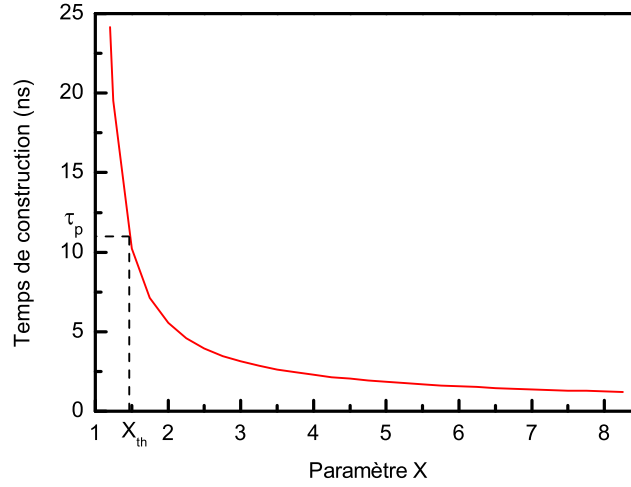


Figure 3.4 – Temps de construction (ns) en fonction du taux de pompage X par rapport au seuil continu pour le Sheet OPO en ZGP. X_{th} correspond au rapport entre le seuil impulsionnel et le seuil continu.

3.4.1 Sélection spectrale en cavité monolithique

Contrairement aux NesCOPO décrits au chapitre 2, les cavités signal et complémentaire ne sont pas dissociées physiquement dans le Sheet OPO. Rappelons que les DRO monolithiques ont été étudiés dès 1965 [Gio65]. Dans ces OPO, la dissociation est directement déterminée par les indices de réfraction et s'écrit :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{n_s - n_c}{n_s}. \quad (3.5)$$

De plus, en supposant égaux les indices de réfraction et les indices de groupe, il est intéressant de voir que l'espace entre clusters de modes (c'est-à-dire entre deux coïncidences exactes) dans le domaine spectral s'écrit en première approximation :

$$\Delta\nu_s = \frac{c}{2L(n_{gs} - n_{gc})}. \quad (3.6)$$

$n_{gs,c}$ désigne l'indice de groupe respectivement pour le signal et pour le complémentaire. Cette expression correspond à la demi bande de gain au premier ordre dans l'approximation quadratique. Ainsi, la bande de gain d'un DRO monolithique contient au plus trois clusters, et ce quelle que soit sa largeur spectrale. Toutefois, dans un Sheet OPO, l'intervalle spectral libre est au moins supérieur d'un ordre de grandeur à celui des DRO classiques dont la longueur physique est de l'ordre du centimètre. Les coïncidences exactes sont donc séparées de plusieurs nanomètres, ce qui permet en pratique d'en éliminer certaines avec des traitements diélectriques adaptés sur les miroirs pour s'assurer de n'émettre qu'un seul cluster. De plus, la petite taille du Sheet OPO et son caractère monolithique vont naturellement réduire les instabilités dues aux

fluctuations des chemins optiques. Lorsqu'une coïncidence exacte sera sélectionnée, il devrait donc être possible de la conserver et d'avoir une émission monomode stable.

D'après la relation 3.5, un Sheet OPO ne peut pas avoir une dissociation élevée (plus que quelques pourcents). Ainsi, la principale problématique pour avoir un spectre monomode longitudinal sera d'éviter l'oscillation de plusieurs coïncidences partielles autour de la coïncidence exacte sélectionnée. Pour des configurations d'accord de phase de Type 0 ou de Type I, pour lesquelles le signal et le complémentaire ont la même polarisation, la dissociation est extrêmement faible sauf si l'indice de réfraction varie très rapidement avec la longueur d'onde. Ceci peut être le cas près d'une résonance optique (pic d'absorption) ou dans le domaine térahertz que nous n'abordons pas ici. Ainsi, un Sheet OPO utilisé avec une configuration de polarisation de Type 0 ou de Type I émettra probablement un cluster multimode. L'unique solution favorable pour obtenir une émission monomode est donc d'utiliser des polarisations en configuration de Type II. Si de surcroît le cristal présente un accord de phase exact de Type II, cela augmente (favorablement) la longueur de cohérence dans la gamme spectrale considérée, mais ce n'est pas obligatoire en théorie. Ceci permet d'avoir des indices de réfraction significativement différents pour le signal et le complémentaire, et donc une dissociation non nulle.

En Type II, la dissociation reste malgré tout imposée par les propriétés du cristal et des coïncidences partielles peuvent osciller au sein d'un cluster. La finesse de la cavité devient alors un paramètre essentiel car elle détermine la largeur spectrale des modes, et va donc influencer sur leur recouvrement. Elle devra être suffisamment élevée pour empêcher l'apparition de coïncidences partielles au sein d'un cluster et ainsi conduire à un spectre monomode longitudinal.

Nous illustrons cela sur le Sheet OPO en KTP réalisée par Xie et al [Xie11]. Les indices de réfraction de la pompe, du signal et du complémentaire valent $n_p = 1,7887$, $n_s = 1.8297\text{--}1.8315$ et $n_c = 1.7441\text{--}1.7455$ sur les gammes spectrales considérées et pour une température de cristal $T = 25\text{ }^\circ\text{C}$, ce qui conduit à une dissociation d'environ 4,7 %. Les coefficients de réflexion des miroirs pour le signal et le complémentaire valent $R_{1s,c} = 99,8\text{ }\%$ et $R_{2s,c} = 98,2\text{ }\%$, conduisant à une finesse $F = 292$. Pour évaluer le recouvrement entre un mode signal et un mode complémentaire, nous considérons le produit de deux fonctions de transmission de Fabry-Perot $T_{FPs} \times T_{FPC}$ définies par :

$$T_{FPs,c} = \frac{1}{1 + \frac{4R_{s,c}}{(1-4R_{s,c})} \sin^2\left(\frac{\phi_{s,c}}{2}\right)}, \quad (3.7)$$

avec

$$\phi_{s,c} = \frac{4\pi n_{s,c}L}{\lambda_{s,c}}, \quad (3.8)$$

où $R_{s,c} = \sqrt{R_{1s,c}R_{2s,c}}$. Ceci donne une représentation simple sur le contenu spectral du Sheet

OPO en considérant une pompe monochromatique et en fixant la température du cristal ainsi que sa longueur. Nous supposons que l'un des paramètres est ajusté de manière à obtenir au moins une coïncidence exacte dans la bande de gain. Le recouvrement entre les modes signal et complémentaire au sein de la bande de gain du Sheet OPO en KTP est représenté sur la Figure 3.5 pour deux finesses différentes. Dans un premier temps, nous considérons une finesse $F = 14$ dans une cavité composée de deux miroirs réfléchissant seulement 80 % du signal et du complémentaire. Nous voyons alors qu'avec une faible finesse, deux clusters existent dans la bande de gain car la dissociation imposée par les indices de réfraction reste relativement faible, même pour des configurations de polarisation de Type II. La distance inter-clusters, calculée à partir de la relation 3.6 est de 7 THz. Plusieurs coïncidences partielles sont également présentes de part et d'autre des coïncidences exactes. Nous traçons ensuite ce recouvrement avec les paramètres correspondant à l'expérience de Xie et al. Pour une cavité identique, la finesse élevée ($F = 292$) permet de supprimer à la fois le second cluster et les coïncidences partielles. Ainsi, il ne reste plus qu'un seul mode longitudinal dans la bande de gain, et le spectre d'émission est monomode.

3.4.2 Nouveau formalisme

Nous allons à présent développer un nouveau formalisme pour prévoir le contenu spectral du Sheet OPO. Notre approche a des points communs avec celle de Eckardt et al [Eck91] mais permet d'obtenir des équations plus simples pour calculer les propriétés liées à la double résonance. En écrivant la conservation de la phase après un aller-retour de cavité, nous pouvons voir que les fréquences du signal et du complémentaire, respectivement notées ν_s et ν_c , sont liées à l'intervalle spectral libre de la cavité dans le vide $\nu_0^{\text{ISL}} = \frac{c}{2L}$ par les relations suivantes :

$$\nu_{s,c} = \frac{m_{s,c}}{n_{s,c}} \nu_0^{\text{ISL}}, \quad (3.9)$$

où m_s et m_c sont des nombres entiers correspondant à des numéros de modes longitudinaux. Nous en déduisons la condition de double résonance :

$$\frac{m_s}{n_s \nu_s} = \frac{m_c}{n_c \nu_c}. \quad (3.10)$$

La conservation de l'énergie s'écrit $\nu_p = \nu_s + \nu_c$. En utilisant la relation 3.9, elle se réécrit sous la forme :

$$\frac{m_s}{n_s} + \frac{m_c}{n_c} = X_p, \quad (3.11)$$

avec $X_p = \frac{\nu_p}{\nu_0^{\text{ISL}}} = \frac{2L}{\lambda_p}$. Finalement, en combinant les équations 3.10 et 3.11, les nombres

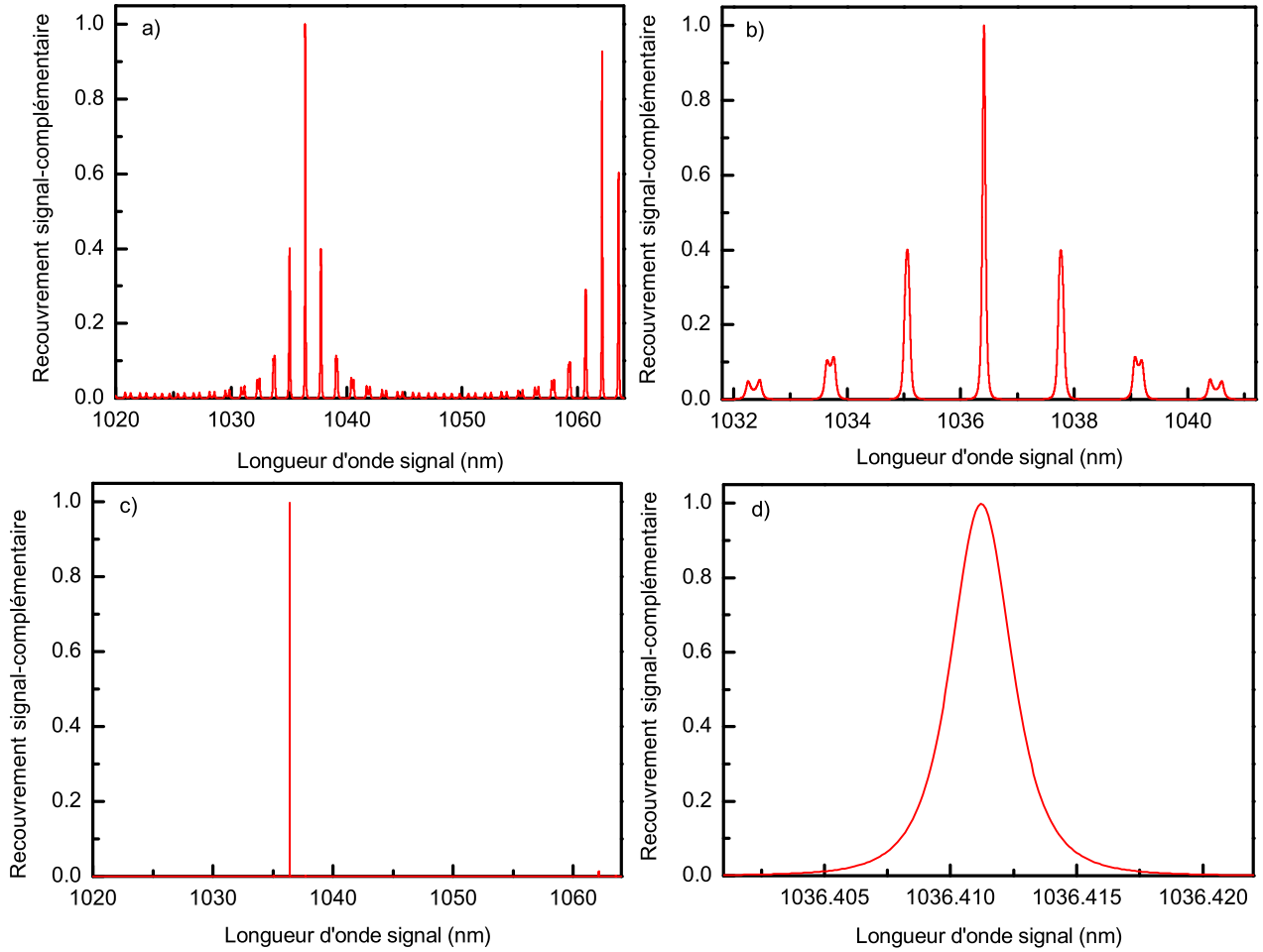


Figure 3.5 – Recouvrement des modes signal et complémentaire au sein de la bande de gain du Sheet OPO en KTP. a) Recouvrement normalisé pour une finesse $F = 14$: deux clusters sont visibles dans la bande de gain. b) Zoom dans un cluster : mise en évidence des coïncidences partielles au voisinage de la coïncidence exacte. c) Recouvrement normalisé pour une finesse $F = 292$: le deuxième cluster disparaît et une seule coïncidence exacte est présente dans la bande de gain. d) Zoom sur la coïncidence exacte : les coïncidences partielles disparaissent elles aussi et l'émission est donc monomode longitudinale.

modaux m_s et m_c qui vérifient la condition de double résonance sont déterminés par :

$$m_{s,c} = n_{s,c} \frac{X_p}{1 + \frac{\nu_{c,s}}{\nu_{s,c}}}. \quad (3.12)$$

La condition d'accord de phase, que nous n'avons pas encore traitée, s'écrit :

$$\frac{2\pi}{c} (n_p \nu_p - n_s \nu_s - n_c \nu_c) = 0. \quad (3.13)$$

En multipliant 3.13 par L , nous retrouvons le terme ν_0^{ISL} . Puis, en utilisant 3.10, nous écrivons la condition d'accord de phase avec les nombres modaux :

$$m_s + m_c - n_p X_p = 0. \quad (3.14)$$

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'accord de phase exact n'est pas le but recherché dans le Sheet OPO. La condition d'accord de phase relaxée, qui s'écrit $L < L_{coh}$ soit $|\Delta k L| < \pi$, peut alors être mise sous la forme :

$$|m_s + m_c - n_p X_p| < 1. \quad (3.15)$$

Pour trouver les nombres modaux qui vérifient à la fois la conservation de l'énergie et la condition d'accord de phase relaxée, il est utile de tracer les équations 3.11 et 3.15 dans le plan (m_s, m_c) . La Figure 3.6 étudie tout d'abord le cas d'un Sheet OPO basé sur un matériau non biréfringent, tel qu'un matériau isotrope ou un matériau fonctionnant en quasi-accord de phase, dans lequel la pompe, le signal et le complémentaire ont la même polarisation. Ce cas est analogue à celui de l'OPO de longueur sub-millimétrique qui a été envisagé dans un premier temps dans le GaAs [Hai03]. Comme l'inégalité $n_p > n_{s,c}$ est toujours vérifiée, nous voyons clairement qu'un matériau non biréfringent n'est pas adapté pour concevoir un Sheet OPO doublement résonnant : les deux équations n'ont jamais de solutions en commun et la droite représentant la conservation de l'énergie est parallèle à la bande d'accord de phase relaxé. Cette situation inadaptée sera presque toujours rencontrée avec un matériau non biréfringent, excepté pour des cas très particuliers où le complémentaire serait situé dans l'infrarouge très lointain ou le domaine térahertz.

Considérons alors un Sheet OPO basé sur un cristal biréfringent, illustrant le cas démontré expérimentalement avec KTP [Xie11]. Dans ce cas, illustré également en Figure 3.6, les deux équations ont une solution commune à l'endroit où les deux droites se croisent dès que l'inégalité $n_{s,c} < n_p < n_{c,s}$ est vérifiée.

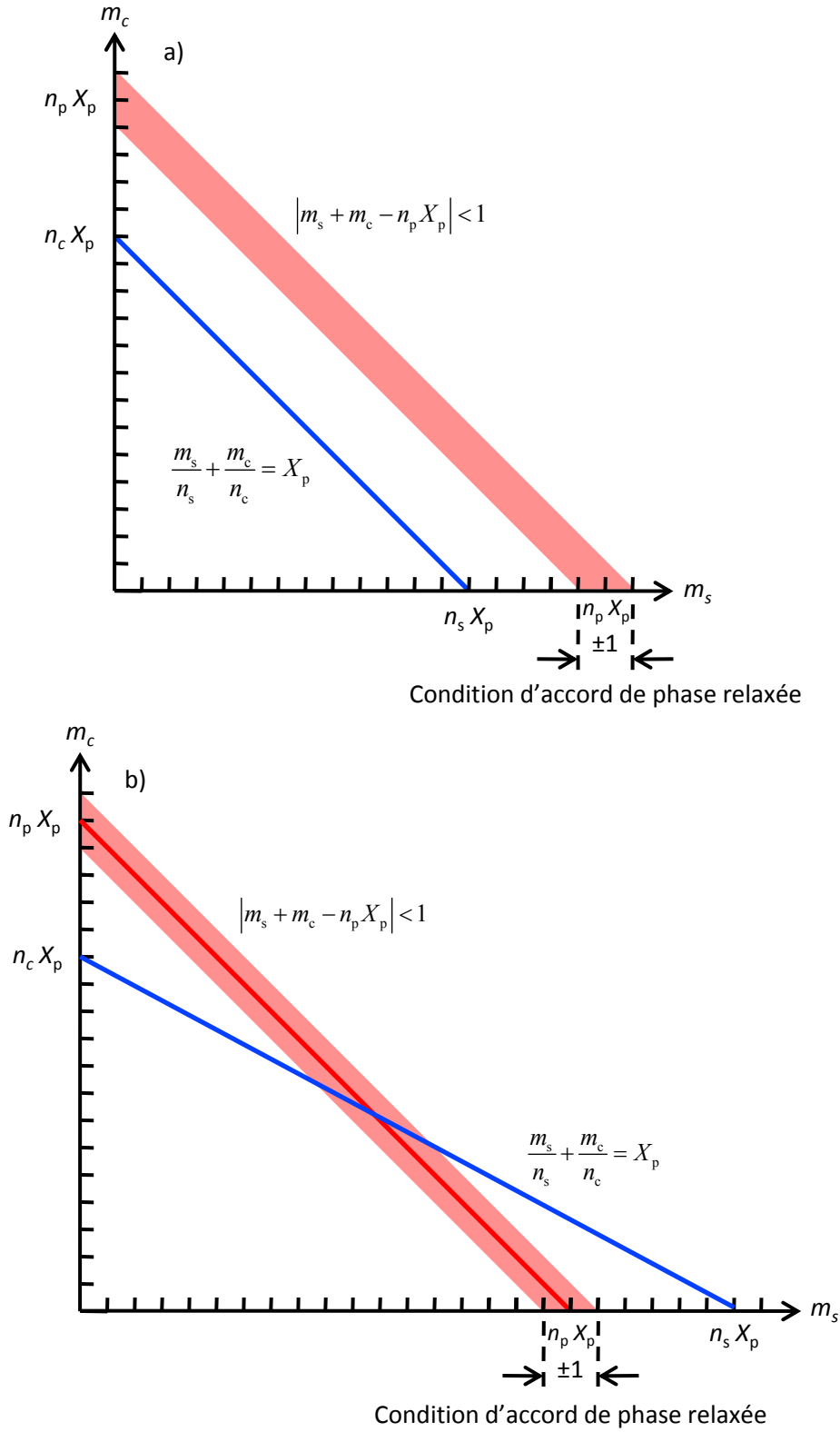


Figure 3.6 – Relation de conservation de l'énergie et condition d'accord de phase relaxée tracées dans le plan (m_s, m_c) . a) Cristal non biréfringent, les deux équations n'ont pas de solution commune. b) Cristal biréfringent, une solution commune existe lorsque l'indice de réfraction de la pompe est compris entre celui du signal et du complémentaire.

Ainsi, excepté pour de très rares situations, le Sheet OPO peut osciller uniquement lorsqu'il est conçu avec un cristal biréfringent. L'indice de réfraction de la pompe doit alors être compris entre celui du signal et du complémentaire pour espérer trouver une coïncidence exacte. De plus, comme mentionné précédemment, les clusters de modes peuvent également contenir des coïncidences partielles qui se recouvrent suffisamment dans le diagramme de Giordmaine et Miller pour pouvoir osciller, du fait que la finesse de la cavité est nécessairement finie. En considérant cette finesse F , l'équation 3.9 devient :

$$\left| \frac{n_{s,c}\nu_{s,c}}{m_{s,c}\nu_0^{\text{ISL}}} - 1 \right| < \frac{1}{2nF}, \quad (3.16)$$

où $n = \frac{n_s+n_c}{2}$ est un indice de réfraction moyen. En conséquence, les modes signal et complémentaire qui se recouvrent partiellement peuvent également vérifier la conservation de l'énergie. L'équation 3.11 devient alors :

$$\left| \frac{m_s}{n_s} + \frac{m_c}{n_c} - X_p \right| < \frac{1}{nF}. \quad (3.17)$$

La prise en compte de la finesse est mise en évidence en traçant la relation 3.17 en Figure 3.7. La condition de double résonance relaxée est maintenant représentée par une bande dont la largeur est déterminée par la finesse, dans laquelle les fréquences signal et complémentaire qui satisfont la conservation de l'énergie se recouvrent suffisamment pour être potentiellement émises par le Sheet OPO. En revanche, la condition d'accord de phase relaxée définie par la relation 3.15 est inchangée. Cette représentation permet de déterminer la probabilité de trouver une solution qui vérifie à la fois la conservation de l'énergie et la condition d'accord de phase relaxée, comme le montre la Figure 3.8. L'oscillation est alors possible quand un couple de nombres modaux (m_s, m_c) , représenté par un point, se retrouve dans le domaine correspondant à l'intersection des deux bandes.

Pour illustrer ce dernier point, nous représentons deux situations : dans la première, trois couples de modes sont inclus dans ce domaine, ce qui correspond à trois couples de longueurs d'onde signal et complémentaire différents. Les trois coïncidences exactes coexistent donc et oscillent en même temps dans la cavité. En conséquence, le Sheet OPO présente une émission multimode. Dans la seconde situation, la finesse de la cavité est augmentée, ce qui conduit à un unique couple de modes signal et complémentaire qui oscillent dans le Sheet OPO : le spectre d'émission est alors monomode longitudinal.

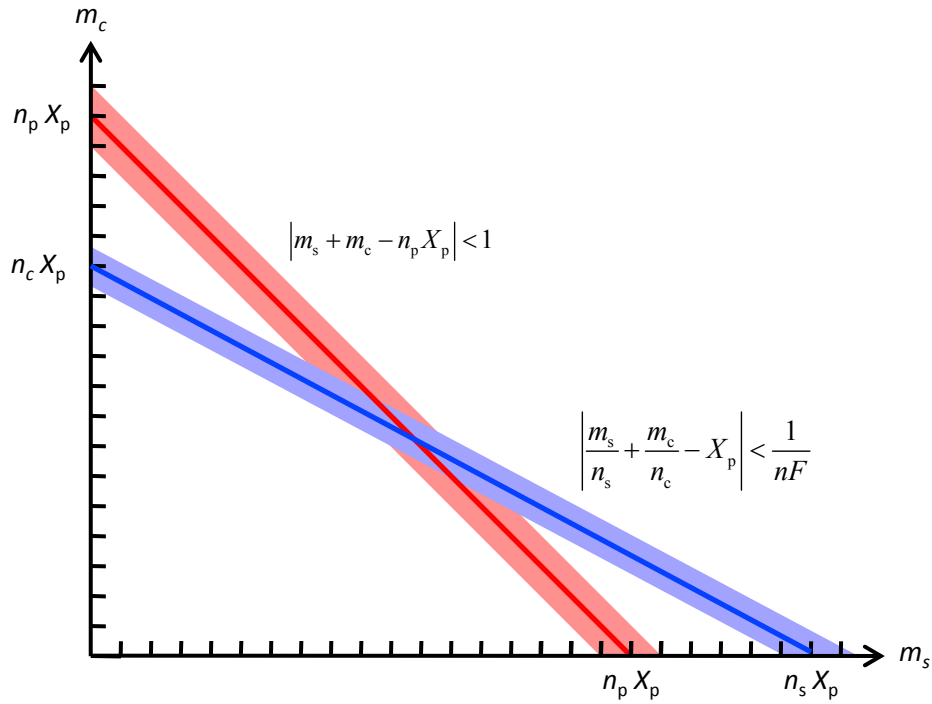


Figure 3.7 – Relation de conservation de l'énergie et condition d'accord de phase relaxée tracées dans le plan (m_s, m_c) pour un cristal biréfringent en prenant en compte la finesse de la cavité dont la valeur est finie.

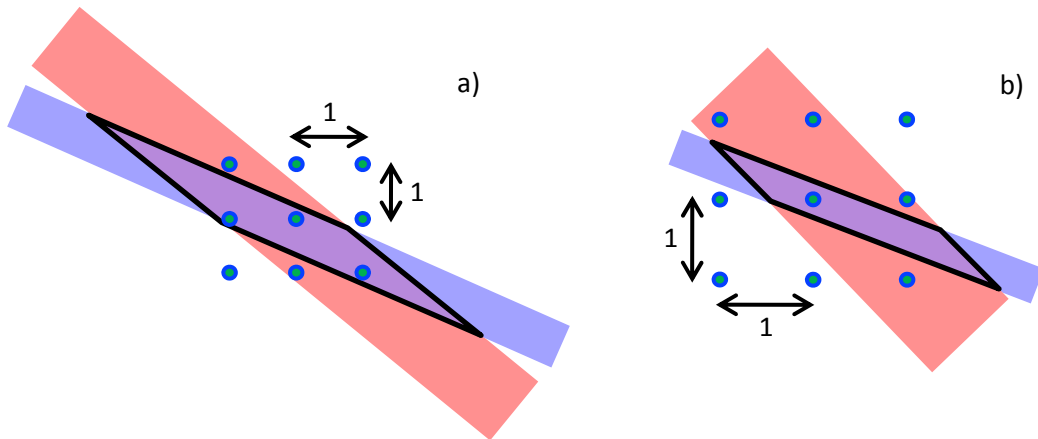


Figure 3.8 – Zoom sur l'intersection des deux bandes de la Figure 3.7. Les points représentent des couples de nombres entiers (m_s, m_c) et le parallélogramme correspond à l'aire d'intersection des deux bandes. a) Trois couples de longueurs d'onde signal et complémentaire peuvent osciller simultanément. b) Le spectre d'émission est monomode longitudinal lorsqu'il n'y a qu'un seul point à l'intérieur du parallélogramme.

Afin de limiter l'aire d'intersection entre les deux bandes dans le plan (m_s, m_c) et donc de favoriser l'émission monomode, il est souhaitable d'avoir une différence aussi grande que possible entre n_s et n_c . Ainsi, nous retrouvons le fait que les configurations de polarisation de Type II sont généralement requises pour obtenir une émission monomode, alors que le Type I conduira le plus souvent à l'émission de clusters de modes. Il est tentant d'envisager seulement des situations pour lesquelles le cristal est taillé à $\theta = 90^\circ$, car ceci maximise la différence entre les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire. Cependant, ces situations peuvent correspondre à une longueur de cohérence faible aux longueurs d'onde d'émission souhaitées en pratique. Dès que la dissociation est suffisante pour permettre une émission monomode, il est donc préférable d'avoir la longueur de cohérence la plus grande possible, ou idéalement d'avoir l'accord de phase exact à ces longueurs d'onde. En fonction du cristal, il peut aussi être intéressant de rechercher des configurations de grande acceptance, où la longueur de cohérence a une dépendance non critique en longueur d'onde. Enfin, pour un cristal donné, l'aire d'intersection des deux bandes peut toujours être réduite par la suite en imposant une très grande finesse. Ceci peut être difficile à réaliser pour un Sheet OPO émettant dans la gamme spectrale 6-16 μm , pour lequel la conception de miroirs très réfléchissants sur de grandes gammes spectrales signal et complémentaire tout en étant transparent à la pompe n'est pas aisée.

3.5 Accordabilité en longueur d'onde du Sheet OPO

Nous venons de voir sous quelles conditions le spectre d'émission du Sheet OPO peut être monomode longitudinal. Nous allons maintenant utiliser le nouveau formalisme établi dans la section précédente pour analyser trois méthodes permettant d'accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO par sauts de modes, tout en conservant un spectre monomode longitudinal.

3.5.1 Accordabilité via la longueur d'onde de pompe

La première méthode d'accordabilité consiste à faire varier la longueur d'onde de pompe. En supposant qu'une coincidence exacte est initialement sélectionnée dans la bande de gain du Sheet OPO, l'objectif est de déterminer la variation de longueur d'onde de pompe minimale permettant de trouver une nouvelle coincidence exacte, ce qui revient à effectuer un saut de mode. Nous effectuons ce calcul en suivant la même approche que celle de Scherrer et al, développée dans le cas des NesCOPO [Sch00a]. Cependant, nous considérons ici que la longueur d'onde de pompe n'est pas fixe lors du saut de mode. La somme des énergies du signal et du complémentaire est donc modifiée quand la longueur d'onde de pompe varie, ce qui complique légèrement le calcul. Comme l'onde signal et l'onde complémentaire sont résonnantes dans la

cavité, leur déphasage respectif φ_s et φ_c après un tour de cavité s'écrit :

$$\varphi_{s,c}(\nu_{s,c}) = \frac{4\pi\nu_{s,c}n_{s,c}(\nu_{s,c})L}{c} = 2\pi m_{s,c}, \quad (3.18)$$

où m_s et m_c sont des nombres entiers qui représentent une paire de modes résonnants constituant la coincidence exacte initiale. En augmentant ou en diminuant la longueur d'onde de la pompe, une autre coincidence exacte peut être trouvée ailleurs dans la bande de gain suite à un nombre de sauts de mode signal Δm_s et complémentaire Δm_c , de telle sorte que

$$\varphi_s(\nu_s + \Delta\nu_s) = 2\pi(m_s + \Delta m_s), \quad (3.19)$$

$$\varphi_c(\nu_c - \Delta\nu_c) = 2\pi(m_c - \Delta m_c), \quad (3.20)$$

où $\Delta\nu_s$ est la différence de fréquences signal entre les deux coincidences exactes, et $\Delta\nu_c$ est cette même différence de fréquences pour le complémentaire. Comme la longueur d'onde de pompe varie entre ces deux coincidences exactes, la somme des fréquences signal et complémentaire est modifiée lors du saut de modes, ce qui implique que $\Delta\nu_s \neq \Delta\nu_c$. En écrivant la conservation de l'énergie, on obtient la relation suivante :

$$\Delta\nu_p = \Delta\nu_s - \Delta\nu_c, \quad (3.21)$$

où $\Delta\nu_p$ est la variation de fréquences de pompe permettant d'effectuer le saut de mode. À noter que le signe négatif présent devant le terme $\Delta\nu_c$ est lié à sa définition par la relation 3.20. Ainsi, Δm_s et Δm_c sont des nombres entiers qui ont le même signe afin de respecter la conservation de l'énergie. La première étape nécessaire pour obtenir l'expression de $\Delta\nu_p$ est d'effectuer un développement de Taylor à l'ordre 1 des phases $\varphi_s(\nu_s + \Delta\nu_s)$ et $\varphi_c(\nu_c - \Delta\nu_c)$ sur les termes $\Delta\nu_s$ et $\Delta\nu_c$:

$$2\pi\Delta m_{s,c} = \Delta\nu_{s,c} \frac{\partial\varphi_{s,c}}{\partial\nu} \big|_{\nu_{s,c}}. \quad (3.22)$$

En utilisant 3.18 pour calculer la dérivée partielle de la relation 3.22, on obtient

$$\Delta\nu_{s,c} = \Delta m_{s,c} \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_{\text{gs},c}}, \quad (3.23)$$

avec la définition usuelle pour l'indice de groupe :

$$n_{\text{gs},c} = n_{s,c} + \nu_{s,c} \frac{\partial n_{s,c}}{\partial\nu} \big|_{\nu_{s,c}}. \quad (3.24)$$

La combinaison des formules 3.21 et 3.23 conduit ensuite naturellement à l'expression de

$\Delta\nu_p$:

$$\Delta\nu_p = \Delta\nu_s - \Delta\nu_c = \left(\frac{\Delta m_s}{n_{gs}} - \frac{\Delta m_c}{n_{gc}} \right) \nu_0^{\text{ISL}}. \quad (3.25)$$

Pour analyser le saut de mode entre les deux coïncidences exactes, il est utile d'introduire la différence entre les nombres modaux $\varepsilon = \Delta m_s - \Delta m_c$ et la différence entre les indices de groupe $\Delta n_g = n_{gs} - n_{gc}$. En considérant un indice de groupe moyen $n_g \approx n_{gs} \approx n_{gc}$, la relation 3.25 se réécrit sous la forme

$$\frac{\Delta\nu_p}{\nu_p} = \frac{1}{n_g X_p} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon \right), \quad (3.26)$$

où nous rappelons que $X_p = \frac{\nu_p}{\nu_0^{\text{ISL}}}$.

Les sauts d'une coïncidence exacte à l'autre peuvent être caractérisés à partir de cette dernière équation. Le paramètre $\frac{\Delta n_g}{n_g}$ représente la dissociation entre les cavités signal et complémentaire du Sheet OPO. Quand $\varepsilon = 0$, le saut de modes a lieu au voisinage de la coïncidence exacte initiale. Suite à une variation de la fréquence de la pompe selon la relation 3.26, le peigne de fréquences signal glisse par rapport au peigne de fréquences complémentaire comme le montre la Figure 3.9. Pour $\varepsilon = 0$, une coïncidence partielle appartenant au même cluster que la coïncidence exacte initiale devient donc la nouvelle coïncidence exacte. Le cas $\Delta m_s = 1$ correspond alors à une variation de fréquence de pompe qui transforme la coïncidence partielle la plus proche en cette nouvelle coïncidence exacte. Dans ce cas, la relation 3.26 se réécrit sous la forme

$$\Delta\nu_p^{\varepsilon=0} = \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_g} \frac{\Delta n_g}{n_g}, \quad (3.27)$$

en supposant $n_g^2 \gg \frac{\Delta n_g^2}{4}$. La variation de fréquence de pompe quand $\varepsilon = 0$ est donc égale à un pourcentage de l'espacement moyen entre modes du Sheet OPO, $\frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_g}$. Ce pourcentage n'est autre que la dissociation $\frac{\Delta n_g}{n_g}$ entre les cavités signal et complémentaire.

Les cas pour lesquels $\varepsilon \neq 0$ correspondent à un saut de mode vers une coïncidence exacte qui sera située dans un cluster différent de celui qui contient la coïncidence exacte initiale. Pour déterminer le nombre de sauts de mode signal Δm_s correspondant à la variation de fréquence de pompe la plus faible requise pour changer de coïncidence exacte, il suffit de minimiser le terme entre parenthèses dans l'équation 3.26. On obtient alors :

$$\Delta m_s = \varepsilon \left\lceil \frac{n_g}{\Delta n_g} \right\rceil, \quad (3.28)$$

où les semi-crochets représentent ici la fonction arrondi, qui donne le nombre entier le plus

proche de $\frac{n_g}{\Delta n_g}$, car Δm_s doit être un nombre entier relatif. En pratique, le cas le plus probable correspond à $\varepsilon = \pm 1$, ce qui signifie que le saut de modes a lieu vers une nouvelle coincidence exacte située dans le cluster voisin à celui de la coincidence exacte initiale. Dans ce cas, la variation de fréquence de pompe permettant d'effectuer le saut de modes peut être très faible. Elle est donnée par la relation :

$$\Delta \nu_p^{\varepsilon=\pm 1} = \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_g} \left(\left\lceil \frac{n_g}{\Delta n_g} \right\rceil \frac{\Delta n_g}{n_g} - 1 \right). \quad (3.29)$$

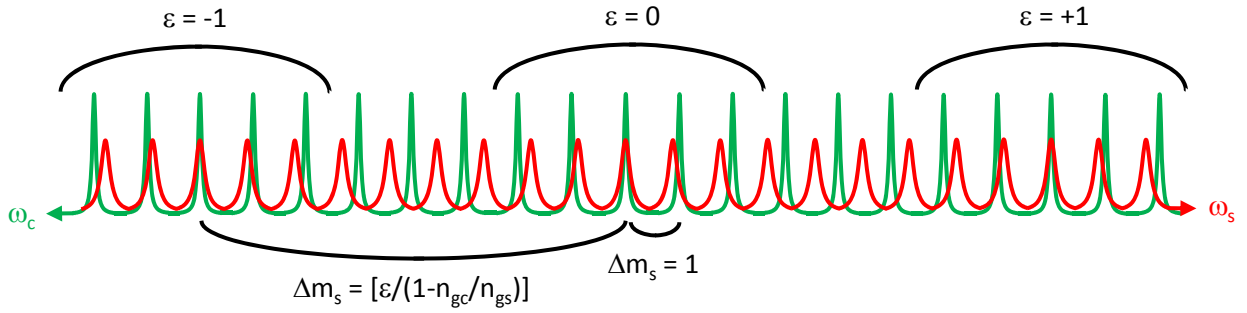


Figure 3.9 – Sauts de modes en fonction de la valeur de ε . Le nombre de sauts de modes Δm_s dépend de ε .

Le premier saut de mode qui induit un changement de la longueur d'onde de la pompe aura donc lieu pour $\Delta \nu_p = \min(\Delta \nu_p^{\varepsilon=0}, \Delta \nu_p^{\varepsilon=\pm 1})$. Le Tableau 3.3 donne un exemple de calcul de sauts de mode en faisant varier la longueur d'onde de pompe pour les trois exemples de Sheet OPO donnés dans le Tableau 3.1. L'indice de groupe moyen $n_g = (n_{gs} + n_{gc})/2$ est calculé à partir des relations de Sellmeier données dans [Kat02] pour KTP, [Zel97] pour LiNbO₃ et [Das03] pour ZGP. Les sauts de mode suivants peuvent ensuite être calculés pas à pas en suivant la même démarche.

Il est aussi intéressant de déterminer numériquement la répartition de toutes les coincidences exactes au sein de la bande de gain du Sheet OPO. Ceci permet à terme de concevoir n'importe quel Sheet OPO en vue d'une réalisation expérimentale. Pour cela, nous nous basons sur la procédure numérique suivante. Dans un premier temps, nous choisissons une longueur d'onde de pompe fixe et nous considérons une longueur d'onde signal incluse dans la bande de gain du Sheet OPO, qui vérifie la condition $L < L_{\text{coh}}$. La longueur d'onde complémentaire se déduit de la relation de conservation de l'énergie. À cet instant de la procédure, les trois longueurs d'onde sont considérées comme approximatives. Elles permettent ensuite de calculer les nombres modaux exacts m_s et m_c à partir de la relation 3.12. Ces nombres doivent être des entiers naturels et, une fois fixés, tous les autres paramètres tels que les trois longueurs d'onde peuvent être calculés. Les longueurs d'onde exactes du signal et du complémentaire se déduisent de la condition de double résonance :

$$m_{s,c} \frac{\lambda_{s,c}}{n_{s,c}(\lambda_{s,c})} = 2L. \quad (3.30)$$

A cause de la dispersion de l'indice de réfraction, nous obtenons deux équations implicites pour calculer les longueurs d'onde exactes λ_s et λ_c . La longueur d'onde exacte de la pompe est enfin calculée grâce à la relation de conservation de l'énergie. En effectuant cette procédure pour toutes les longueurs d'onde signal incluses dans la bande de gain, c'est-à-dire celles qui permettent de vérifier la condition d'accord de phase relaxée $L < L_{\text{coh}}$, nous obtenons le contenu spectral du Sheet OPO, à savoir les longueurs d'onde signal et complémentaire qu'il est susceptible d'émettre en fonction de la longueur d'onde de pompe. A noter que numériquement, l'échantillonnage des longueurs d'onde signal au sein de la bande de gain peut se faire avec un pas aussi fin que l'on veut. Cependant, il existe un pas minimal en dessous duquel le contenu spectral ne change pas, car la longueur d'onde de la pompe doit varier d'une certaine quantité pour induire un saut de mode.

Cette procédure a tout d'abord été appliquée au Sheet OPO en KTP avec des paramètres identiques à ceux de Xie et al [Xie11]. La Figure 3.10 présente les résultats obtenus : Chaque point représente un mode qui peut être émis par le Sheet OPO. Ces points semblent être disposés selon des droites parallèles entre elles, qui sont en réalité les asymptotes de branches d'hyperboles dans le domaine des longueurs d'onde car la conservation de l'énergie s'écrit $\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_c}$ qui est l'équation réduite d'une hyperbole. Chaque branche correspond à des doubles résonances qui appartiennent au même cluster ($\epsilon = 0$). Comme le montre la Figure 3.11, la séquence de sauts de mode obtenue en faisant varier la longueur d'onde de pompe s'effectue d'une branche à l'autre, ce qui correspond au cas $\epsilon = \pm 1$. Ceci est en accord avec les calculs effectués au premier ordre, qui démontrent que $\Delta\nu_p^{\epsilon=\pm 1} < \Delta\nu_p^{\epsilon=0}$. Si nous comparons les résultats de nos calculs et simulations avec ceux publiés pour le KTP [Xie11], nous voyons que les pentes des asymptotes des branches d'hyperbole sont les mêmes. Nos résultats simulés présentent un léger décalage des longueurs d'onde de pompe par rapport aux résultats expérimentaux. Ce décalage est attribué aux propriétés de dispersion du cristal de KTP utilisé spécifiquement dans [Xie11], qui ne sont pas exactement reproduites par les relations de Sellmeier de [Kat02] que nous avons utilisées pour les indices de réfraction. Nous l'avons ensuite appliquée au Sheet OPO en LiNbO₃ et en ZGP avec les paramètres donnés dans le Tableau 3.1.

La Figure 3.10 présente également les résultats obtenus dans le cas du LiNbO₃, pour lesquels les hyperboles sont facilement identifiables. Comme nous avons choisi un angle de taille $\theta < \theta_c$, aucun accord de phase exact n'est possible dans le cas du Sheet OPO en niobate de lithium. Dans ce cas, il n'existe qu'un seul cluster dans la bande de gain, c'est pourquoi il n'y a qu'une seule hyperbole visible pour le signal et pour le complémentaire.

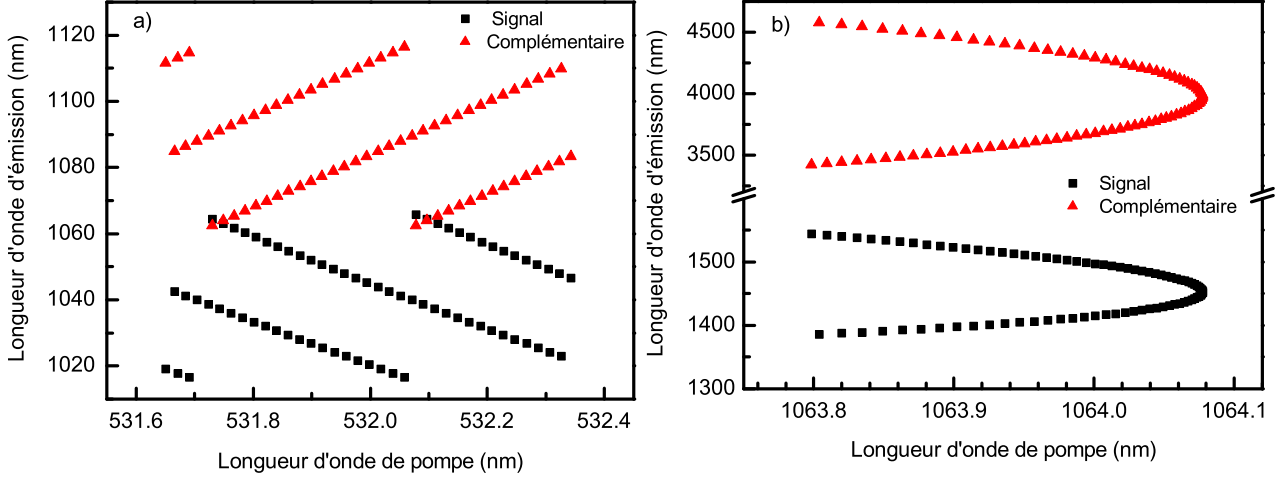


Figure 3.10 – Simulation du contenu spectral d'un Sheet OPO en faisant varier la longueur d'onde de pompe. a) Sheet OPO muni d'un cristal de KTP avec les paramètres de [Xie11]. La longueur d'onde de pompe varie autour de 532 nm. b) Sheet OPO muni d'un cristal de LiNbO₃ avec les paramètres du Tableau 3.1. La longueur d'onde de pompe varie autour de 1064 nm.

Il est important de souligner que l'analyse numérique qui vient d'être effectuée ne retient que les coïncidences exactes entre les modes signal et complémentaire. Pour une cavité de faible finesse, rappelons que le recouvrement partiel des modes voisins à chaque coïncidence exacte serait suffisant pour entraîner l'émission de plusieurs coïncidences partielles (les points de la Figure 3.10 deviendront alors de fines lignes verticales). Expérimentalement, ceci impose une largeur spectrale de la pompe plus faible pour éviter l'émission simultanée de deux couples de longueurs d'onde signal et complémentaire distincts.

Le Tableau 3.3 permet également de comparer les valeurs de la variation de fréquence de pompe permettant d'effectuer un saut de mode, obtenues par le calcul du premier ordre et par les simulations numériques. Un très bon accord est obtenu entre les deux méthodes quand $\varepsilon = 0$, soit pour un saut de modes au sein du même cluster. Dans le cas $\varepsilon = \pm 1$, nous remarquons cependant un écart significatif entre la variation de fréquence de pompe $\Delta\nu_p^{\varepsilon=\pm 1}$ calculée avec la relation 3.29 et celle obtenue à partir de la simulation numérique, bien que la variation de numéros de modes Δm_s soit presque la même. Cet écart est dû à la dispersion, qui a un impact considérable sur la valeur de $\Delta\nu_p^{\varepsilon=\pm 1}$ estimée par le calcul au premier ordre. Cette quantité est très sensible à de petites variations de l'écart fréquentiel entre deux modes signal et deux modes complémentaire car Δm_s peut être très élevé. En conséquence, le calcul effectué à l'ordre 1 ainsi que les diverses approximations effectuées par la suite (par exemple considérer que $n_g^2 \gg \frac{\Delta n_g^2}{4}$) ne sont pas valables. Seul un développement de Taylor à des ordres supérieurs permet d'obtenir un accord entre la valeur estimée par le calcul et celle donnée par la simulation. L'ordre à partir duquel le développement de Taylor donne lieu à un résultat cohérent dépend du cristal

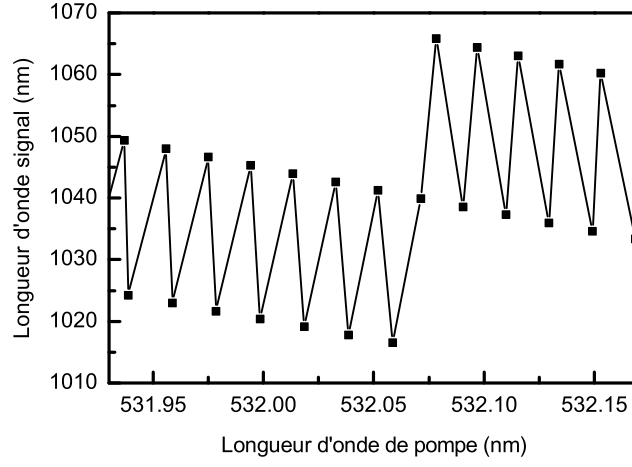


Figure 3.11 – Zoom sur les longueurs d’onde d’émission signal de la Figure 3.10 relative au KTP. Les sauts de mode s’effectuent de cluster à cluster quand la longueur d’onde de pompe varie autour de 532 nm.

Table 3.3 – Calculs de la variation de fréquence de pompe nécessaire pour effectuer un saut de mode pour les trois exemples de Sheet OPO, avec les formules à l’ordre 1 et avec les simulations numériques.

Cristal	LiNbO ₃	KTP	ZGP
Coincidence exacte initiale (nm)	1481	1030	2756
Calcul ordre 1			
$\Delta\nu_p^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-13,01	20,808	-2,325
$\Delta\nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,648	-368,41	156,149
$\Delta\nu_p^{\varepsilon=\pm 1}$ (GHz)	-	-6,42	0,823
$\Delta\nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (THz)	-	-6,631	-10,62
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	18	-68
Calcul numérique			
$\Delta\nu_p^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-12,98	20,805	-2,328
$\Delta\nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,652	-368,43	156,145
$\Delta\nu_p^{\varepsilon=\pm 1}$ (GHz)	-	-1,19	0,925
$\Delta\nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (GHz)	-	-7,004	-10,48
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	19	-67

choisi. Plus la bande de gain est large spectralement, plus cet ordre sera élevé. Ainsi, pour le Sheet OPO en KTP, un accord relatif inférieur à 0,2 % peut être obtenu entre les deux méthodes d'analyse en s'arrêtant à l'ordre 2, qui inclut dans le calcul la dispersion des vitesses de groupe. En revanche, pour le Sheet OPO en ZGP, les longueurs d'onde complémentaire sont tellement éloignées l'une de l'autre lors d'un saut de mode inter-clusters que certaines d'entre elles sont situées dans une zone où l'indice de réfraction présente une forte inflexion. Ainsi, le développement de Taylor à l'ordre 2 n'est pas suffisant : continuer ce développement à un ordre encore plus élevé est certes possible mais donne lieu à des formules inexploitablement facilement. Dans ce cas, seule la simulation numérique basée sur les relations de Sellmeier donne une estimation correcte de la variation de fréquence de pompe nécessaire pour accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO par saut de mode. Néanmoins, les calculs effectués à l'ordre 1 pour $\varepsilon = \pm 1$ donnent un ordre de grandeur acceptable en première approximation. Enfin, il est possible de déduire de ces calculs la largeur spectrale maximale de la pompe qui permet de ne pas émettre simultanément deux coïncidences exactes. A titre d'exemple, la largeur spectrale de la pompe devra être au maximum de $\frac{\Delta\nu_p^{\varepsilon=\pm 1}}{2} = 463$ MHz pour avoir une émission monomode longitudinale dans le Sheet OPO en ZGP.

3.5.2 Accordabilité via la longueur de cavité

Une autre méthode envisagée pour accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO par saut de mode consiste à faire varier la longueur la cavité. Expérimentalement, ceci peut par exemple être effectué en taillant l'une des faces du cristal avec un petit angle. Cet angle doit rester faible pour assurer un bon recouvrement spatial pour chaque onde après un aller-retour de cavité. L'expression au premier ordre de la variation de longueur de cavité ΔL permettant de passer d'une coïncidence exacte à une autre peut être calculée de la même façon que pour l'accordabilité via la longueur d'onde de pompe. Le détail des calculs est donné en Annexe C. Finalement, on obtient l'expression suivante :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{nX_p} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon \right). \quad (3.31)$$

Les expressions de ΔL dans les cas $\varepsilon = 0$ (saut de mode dans le même cluster) et $\varepsilon = \pm 1$ (saut de mode dans le cluster voisin) se déduisent ensuite de la relation 3.31 :

$$\frac{\Delta L^{\varepsilon=0}}{L} = \frac{1}{nX_p} \frac{\Delta n_g}{n_g}, \quad (3.32)$$

$$\frac{\Delta L^{\varepsilon=\pm 1}}{L} = \frac{1}{nX_p} \left(\left\lceil \frac{n_g}{\Delta n_g} \right\rceil \frac{\Delta n_g}{n_g} - 1 \right), \quad (3.33)$$

avec $n_g = \frac{n_{gs} + n_{gc}}{2}$ et $n = \frac{n_s + n_c}{2}$. Des simulations numériques ont également été effectuées pour déterminer les longueurs d'onde d'émission du Sheet OPO suite à une variation de sa longueur de cavité. Les détails de la procédure sont données en Annexe C. A titre d'exemple, la Figure 3.12 présente le contenu spectral du Sheet OPO en KTP lorsque la longueur de cavité varie. Enfin, le Tableau 3.4 compare les valeurs de ΔL permettant d'effectuer le saut de mode, données par les expressions au premier ordre puis par les simulations. Les deux méthodes donnent à nouveau des résultats similaires sauf pour le cas $\varepsilon = \pm 1$ (pour les mêmes raisons évoquées précédemment).

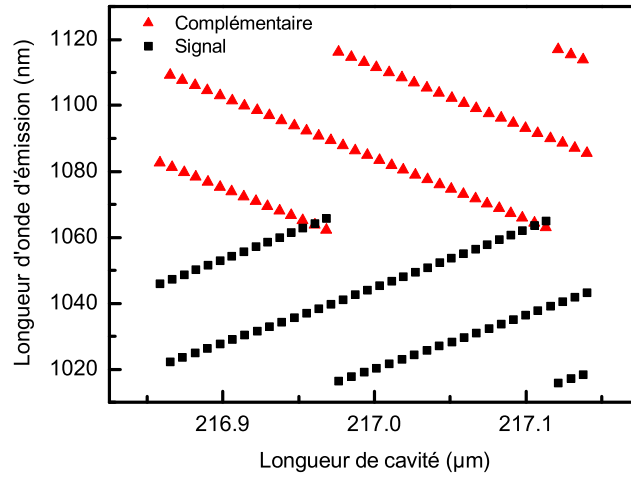


Figure 3.12 – Simulation du contenu spectral d'un Sheet OPO à base d'un cristal de KTP avec les paramètres de [Xie11] en faisant varier la longueur de cavité autour de 217 μm .

Ces résultats montrent qu'une légère variation de la longueur de cavité entraîne un saut de mode vers une nouvelle coïncidence exacte, et change donc la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO. En pratique, ceci requiert un contrôle parfait du diamètre du faisceau de pompe dans la cavité, une connaissance très précise de l'angle de la face prismatique et une planéité parfaite des faces. En effet, pour espérer avoir une émission monomode longitudinale, la variation de longueur de cavité sur le diamètre du faisceau de pompe doit rester très faible, auquel cas plusieurs coïncidences exactes sont émises simultanément. Compte tenu des valeurs de $\Delta L^{\varepsilon=\pm 1}$ de l'ordre du nanomètre, cette méthode est inenvisageable en pratique. De plus, en choisissant une autre méthode d'accordabilité, ceci impose une forte contrainte sur la qualité du parallélisme des deux faces du cristal ainsi que sur leur planéité.

3.5.3 Accordabilité via la température

La dernière méthode considérée pour accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO est de faire varier la température du cristal non linéaire. Comme les principes du calcul au

Table 3.4 – Calculs de la variation de longueur de cavité nécessaire pour effectuer un saut de mode pour les trois exemples de Sheet OPO, avec les formules à l'ordre 1 et avec les simulations numériques.

Cristal	LiNbO ₃	KTP	ZGP
Coincidence exacte initiale (nm)	1481	1030	2756
Calcul ordre 1			
$\Delta L^{\varepsilon=0}$ (nm)	0,98	8,18	4,84
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,648	-368,41	156,149
$\Delta L^{\varepsilon=\pm 1}$ (nm)	-	-1,58	1,67
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (THz)	-	-6,631	-10,62
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	18	-68
Calcul numérique			
$\Delta L^{\varepsilon=0}$ (nm)	1,03	8,20	4,80
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,652	-368,43	156,145
$\Delta L^{\varepsilon=\pm 1}$ (nm)	-	-0,46	1,90
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (GHz)	-	-7,002	-10,47
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	19	-67

premier ordre sont très similaires à ceux des deux méthodes précédentes, nous présentons seulement les résultats importants et nous en donnons les détails en Annexe C. Au final, la variation de température nécessaire pour effectuer le saut de mode est donnée par :

$$\Delta T = \frac{1}{nX_p(\alpha_T + \beta_T)} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon \right). \quad (3.34)$$

Le coefficient de dilatation thermique α_T et le coefficient thermo-optique β_T qui apparaissent dans cette expression sont respectivement définis par :

$$\alpha_T = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT}, \quad (3.35)$$

$$\beta_T = \frac{1}{n} \frac{dn}{dT}. \quad (3.36)$$

Les expressions de ΔT au premier ordre dans les cas $\varepsilon = 0$ et $\varepsilon = \pm 1$ se déduisent de la relation 3.34 :

$$\Delta T^{\varepsilon=0} = \frac{1}{nX_p(\alpha_T + \beta_T)} \frac{\Delta n_g}{n_g}, \quad (3.37)$$

$$\Delta T^{\varepsilon=\pm 1} = \frac{1}{nX_p(\alpha_T + \beta_T)} \left(\left\lceil \frac{n_g}{\Delta n_g} \right\rceil \frac{\Delta n_g}{n_g} - 1 \right), \quad (3.38)$$

avec $n_g = \frac{n_{gs} + n_{gc}}{2}$, $n = \frac{n_s + n_c}{2}$ et $\frac{dn}{dT} = \frac{1}{2} \left(\frac{dn_s}{dT} + \frac{dn_c}{dT} \right)$. Nous effectuons ensuite des simulations numériques pour déterminer le contenu spectral du Sheet OPO lorsque la température du cristal varie. La procédure, plus complexe que pour les deux méthodes précédentes, est détaillée dans l'Annexe C et prend en compte la dilatation thermique du cristal. Les résultats sont présentés en Figure 3.13 pour le Sheet OPO en KTP et le Sheet OPO en ZGP. Dans le cas du Sheet OPO en KTP, nous les comparons avec les résultats expérimentaux publiés par Xie et al [Xie11]. Les pentes des asymptotes des hyperboles obtenues par la simulation sont en très bon accord avec l'expérience, comme pour l'accordabilité via la longueur d'onde de pompe. A noter que la prise en compte de la dilatation thermique du cristal est essentielle pour faire concorder les simulations avec les résultats expérimentaux. Il y a beaucoup plus de points avec le Sheet OPO en ZGP, mais ceci n'est pas dû à une différence d'échantillonnage. En effet, la bande de gain étant beaucoup plus large que pour KTP, tout en ayant un espacement spectral entre modes quasiment identiques, davantage de modes sont présents dans la bande de gain. Comme le nombre de clusters présents dans la bande de gain est le même, il suffit donc d'une légère variation de température pour effectuer un saut de modes vers une nouvelle coïncidence exacte dans le Sheet OPO en ZGP. Enfin, le Tableau 3.5 donne les valeurs typiques de variation de température permettant d'effectuer un saut de mode, obtenues par les formules à l'ordre 1 et

par les simulations : les résultats sont à nouveau en accord sauf pour $\varepsilon = \pm 1$.

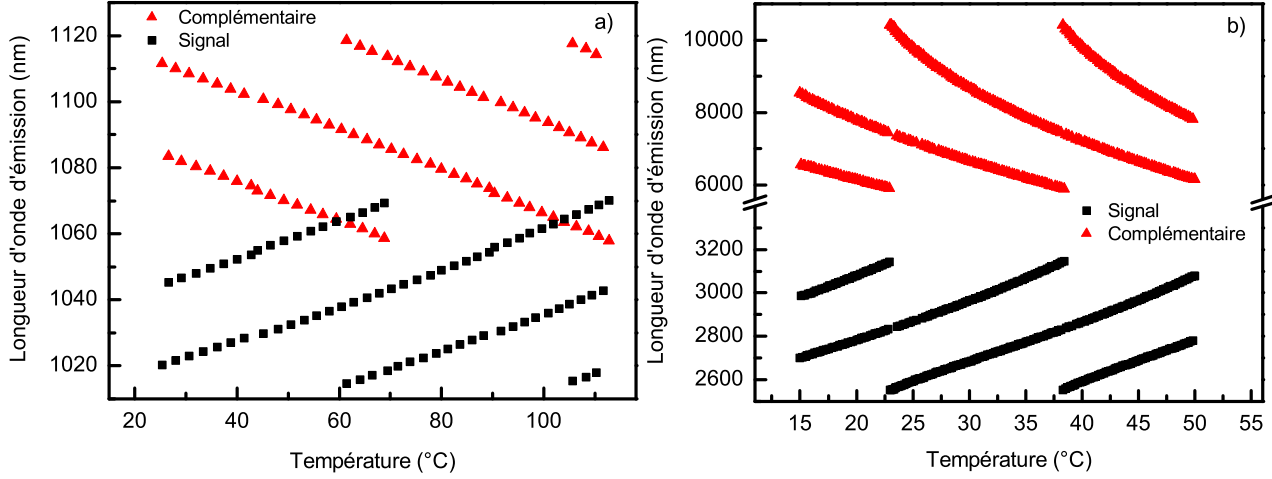


Figure 3.13 – Simulation du contenu spectral d'un Sheet OPO en faisant varier la température. a) Sheet OPO muni d'un cristal de KTP avec les paramètres de [Xie11]. La longueur d'onde de pompe varie autour de 532 nm. b) Sheet OPO muni d'un cristal de ZGP avec les paramètres du Tableau 1 illustrant la courbe d'accord de phase théorique du Sheet OPO que nous souhaitons concevoir.

Nous nous orientons vers cette méthode d'accordabilité pour la réalisation expérimentale d'un Sheet OPO en ZGP. A partir de la simulation numérique présentée en Figure 3.13, nous calculons qu'une variation de température $\Delta T \approx 0,23$ °C permet d'accorder la longueur d'onde d'émission par un saut de modes au sein d'un même cluster, tandis qu'une variation plus faible $\Delta T \approx 0,11$ °C permet d'y parvenir par un saut de mode vers une coïncidence exacte située dans un cluster voisin. Ainsi, pour avoir une émission monomode longitudinale, la température devra être contrôlée au dixième de degrés près. Les modules Peltier pouvant effectuer ce contrôle jusqu'au millième de degrés, ils sont donc parfaitement adaptés.

3.5.4 Accordabilité sans sauts de mode

Les trois méthodes présentées précédemment sont très pratiques pour effectuer l'accordabilité en longueur d'onde sur toute la bande de gain paramétrique offerte par la condition d'accord de phase relaxée. Cependant, elles ne garantissent pas la possibilité d'émettre n'importe quelle longueur d'onde au sein de la bande de gain car seules des séquences discrètes de longueurs d'onde sont émises par sauts de mode. Nous discutons ici brièvement de la combinaison de deux méthodes d'accordabilité permettant d'accorder continuellement la longueur d'onde d'émission sans sauts de mode, de manière à pouvoir générer n'importe quelle longueur d'onde comprise dans la bande de gain paramétrique du Sheet OPO.

Table 3.5 – Calculs de la variation de température nécessaire pour effectuer un saut de mode pour les trois exemples de Sheet OPO, avec les formules à l'ordre 1 et avec les simulations numériques.

Cristal	LiNbO ₃	KTP	ZGP
Coincidence exacte initiale (nm)	1481	1030	2756
Calcul ordre 1			
$\Delta T^{\varepsilon=0}$ (°C)	0,17	2,82	0,24
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,648	-368,41	156,149
$\Delta T^{\varepsilon=\pm 1}$ (°C)	-	-0,55	-0,09
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (THz)	-	-6,631	-10,62
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	18	-68
Calcul numérique			
$\Delta T^{\varepsilon=0}$ (°C)	0,14	2,80	0,23
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=0}$ (GHz)	-271,652	-368,43	156,145
$\Delta T^{\varepsilon=\pm 1}$ (°C)	-	-1,20	-0,11
$\Delta \nu_s^{\varepsilon=\pm 1}$ (GHz)	-	-7,001	-10,43
$\Delta m_s^{\varepsilon=\pm 1}$	-	19	-67

Nous nous proposons de faire varier simultanément la longueur d'onde de pompe et la température du cristal afin d'obtenir une accordabilité très fine tout en maintenant la condition de double résonance sur la même paire de modes signal et complémentaire. Un changement de la température du cristal permet de faire varier la longueur optique du Sheet OPO et ainsi de faire varier la longueur d'onde des modes de la cavité. En faisant varier simultanément la longueur d'onde de pompe, il est alors possible de maintenir la relation de conservation de l'énergie sur les modes signal et complémentaire qui constituent la coincidence exacte initialement choisie.

Dans ces conditions, en utilisant une approche similaire à celle de l'Annexe C avec $\Delta\nu_c = \Delta\nu_s - \Delta\nu_p$ et $\Delta m_{s,c} = 0$ (pas de saut de mode), nous obtenons les expressions suivantes après un développement de Taylor des phases à l'ordre 1 :

$$n_{gs}\Delta\nu_s + n_s\nu_s (\alpha_T + \beta_{Ts}) \Delta T = 0, \quad (3.39)$$

$$n_{gc}(\Delta\nu_p - \Delta\nu_s) + n_c\nu_c (\alpha_T + \beta_{Tc}) \Delta T = 0. \quad (3.40)$$

En combinant ces deux équations, on obtient directement la relation entre $\Delta\nu_p$ et ΔT permettant d'accorder continuellement sans sauts de mode la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO :

$$\Delta\nu_p = - \left(\frac{n_s\nu_s}{n_{gs}} (\alpha_T + \beta_{Ts}) + \frac{n_c\nu_c}{n_{gc}} (\alpha_T + \beta_{Tc}) \right) \Delta T. \quad (3.41)$$

En supposant $n_g \approx n_{gs} \approx n_{gc}$, $n \approx n_s \approx n_c$ et $\beta_T \approx \beta_{Ts} \approx \beta_{Tc}$, la relation 3.41 peut être simplifiée et devient :

$$\frac{\Delta\nu_p}{\nu_p} = - \frac{n}{n_g} (\alpha_T + \beta_T) \Delta T. \quad (3.42)$$

Si le but recherché est d'obtenir un accord spectral fin sur un intervalle spectral libre de cavité signal $\Delta\nu_s = \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_{gs}}$, la combinaison des équations 3.39 et 3.42 permet de déterminer les expressions correspondantes de ΔT et $\Delta\nu_p$:

$$\Delta T = \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_s\nu_s (\alpha_T + \beta_{Ts})}, \quad (3.43)$$

$$\Delta\nu_p = - \frac{\nu_0^{\text{ISL}}}{n_g} \frac{\nu_p}{\nu_s}. \quad (3.44)$$

Cette dernière relation signifie que la variation relative de longueur d'onde de pompe est la même que la variation relative de la longueur d'onde signal. En considérant les paramètres du

Sheet OPO en ZGP, nous calculons $\Delta T = 8,1$ °C et $\Delta \nu_p = 211$ GHz.

3.6 Conception du Sheet OPO en ZGP

Suite à cette étude théorique, nous avons commencé la conception du Sheet OPO en ZGP. Des lamelles de différentes épaisseurs ont été fabriquées par Twinstar à partir d'un cristal de ZGP taillé à $\theta = 66^\circ$ fourni par Eksma et seront idéalement pompées vers 2051 nm. Chaque cristal est disponible en deux exemplaires pour chacune des longueurs suivantes : 348 μm , 574 μm et 881 μm . Plus le cristal est long, plus la bande de gain est étroite mais le seuil d'oscillation est alors plus faible. Nous choisissons la méthode d'accordabilité par température pour accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO. Pour cela, le cristal de ZGP est inséré dans un four composé de deux mâchoires métalliques, sur lesquelles sont montés des modules Peltier permettant de contrôler la température du cristal. Le four est ensuite fixé sur un isolant thermique, lui-même fixé sur un socle métallique. La Figure 3.14 présente des photos du Sheet OPO démonté puis entièrement monté.

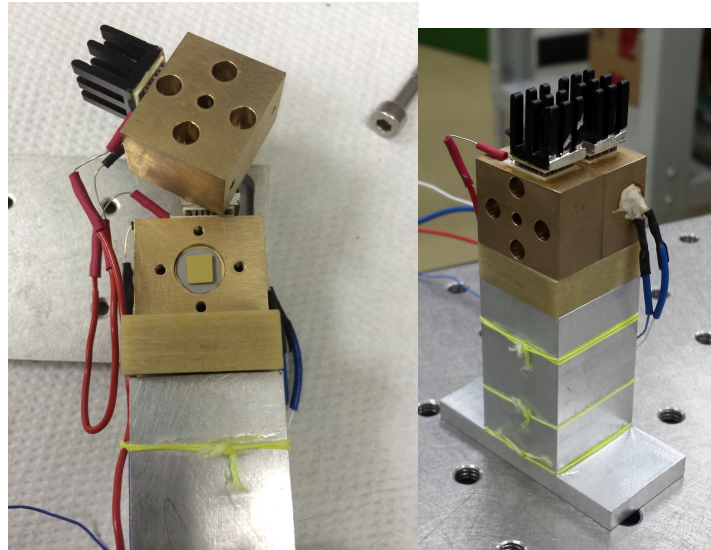


Figure 3.14 – Photos du Sheet OPO démonté (à gauche) et monté (à droite), dont la température est contrôlée avec les modules Peltier.

Pour une longueur d'onde de pompe de 2051 nm, l'accord de phase exact est obtenu pour le couple de longueurs d'onde ($\lambda_s = 2838$ nm, $\lambda_c = 7396$ nm). Pour cette première démonstration, nous avons réduit la bande de gain effective à la plage spectrale signal $\lambda_s = 2690 - 2850$ nm, soit une plage spectrale complémentaire $\lambda_c = 7300 - 8600$ nm avec les traitements des miroirs réalisés par Twinstar. Les propriétés des traitements sont données dans le Tableau 3.6.

Pour cette première démonstration d'un Sheet OPO en ZGP, la réduction de la bande de

Table 3.6 – Coefficients de réflexion des miroirs du Sheet OPO en ZGP.

Longueurs d'onde (nm)	R_1	R_2
2051	9 %	2 %
2690-2800	> 95 %	> 90 %
7300-8600	> 98 %	> 96 %

gain permet d'assurer plus facilement l'obtention d'une oscillation monomode longitudinale en limitant le nombre de clusters pouvant être émis simultanément par le Sheet OPO. Comme le montre la courbe d'accord de phase par température théorique présentée en Figure 3.15, ceci nous permettra d'avoir un seul cluster dans la bande de gain pour le cristal de 348 μm . Pour les cristaux de 574 μm et 881 μm , deux clusters pourront coexister en bord de bande de gain, ce qui permettra d'observer l'accordabilité par saut de modes entre deux doubles résonances situées dans des clusters voisins.

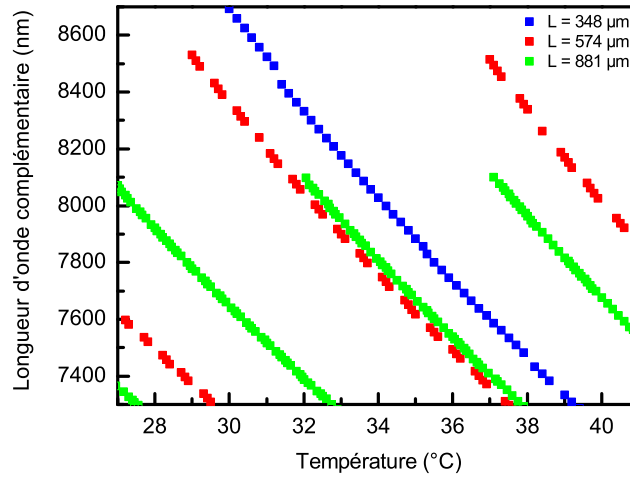


Figure 3.15 – Courbe d'accord de phase théorique du Sheet OPO en ZGP en faisant varier la température. Le nombre de clusters présents dans la bande de gain réduite dépend de la longueur du cristal.

L'alignement du Sheet OPO se fera ensuite par autocollimation avec un laser Hélium-Néon superposé au préalable sur le faisceau de pompe. Un éventuel retour de pompe pourra être effectué en ajoutant un miroir doré externe, si nous rencontrons des difficultés non anticipées pour atteindre le seuil d'oscillation. À l'heure où ce manuscrit est rédigé, la source de pompe envisagée pour réaliser l'expérience n'est pas disponible. Lorsque cette source sera opérationnelle, les calculs anticipent une énergie complémentaire de 1,6 μJ à 8 μm en pompant le Sheet OPO de 574 μm de long avec une énergie de 150 μJ et un waist de pompe de 100 μm . Pour un waist

de pompe de 1 mm, il serait à priori possible de pomper ce Sheet OPO avec 15 mJ, donnant lieu à une énergie de 150 μJ à 8 μm . Nous avons tenté un pompage par le microlaser utilisé pour pomper le NesCOPO en OP-GaAs, mais l'oscillation n'a pu être obtenue, y compris avec un retour de pompe. Ceci n'est pas surprenant a posteriori car la puissance crête maximale disponible est quasiment égale à celle du seuil estimé théoriquement en régime nanoseconde avec les paramètres du microlaser : le microlaser est donc à la limite de la source adéquate pour pomper le Sheet OPO de 574 μm .

Synthèse

Nous avons réalisé une étude théorique portant sur le concept d'accord de phase élargi, permettant lui-même de définir un nouveau type d'OPO appelé Sheet OPO. Ce concept, basé sur le fait que la pompe interfère constructivement avec le signal et le complémentaire sur des distances de propagation inférieures à la longueur de cohérence, impose au Sheet OPO une longueur inférieure au millimètre pour en tirer profit. Il permet notamment d'obtenir une bande de gain instantanée bien plus large que dans les OPO classiques et d'émettre des couples de longueurs d'onde a priori interdits par l'accord de phase par biréfringence, ces deux effets pouvant conduire à des accordabilités records dans le spectre infrarouge. Nous avons montré que le seuil d'oscillation du Sheet OPO pouvait être atteint en régime impulsionnel et nous avons montré que l'architecture doublement résonnante était privilégiée pour exploiter ses propriétés d'accordabilité remarquables. Après avoir développé un nouveau formalisme pour prévoir le contenu spectral du Sheet OPO, nous avons démontré que l'oscillation était possible uniquement dans un cristal biréfringent vérifiant la condition $n_{s,c} < n_p < n_{c,s}$ sur les indices de réfraction des trois ondes, et que le spectre d'émission pouvait être monomode longitudinal, sous réserve d'utiliser une configuration de polarisation de Type II et d'avoir une finesse suffisamment élevée. Puis, nous avons présenté trois méthodes d'accordabilité par sauts de mode, en faisant varier la longueur d'onde de pompe, la longueur de cavité ou la température du cristal. Enfin, nous avons présenté les étapes de conception d'un Sheet OPO en ZGP basé sur l'accord de phase par température. Ce Sheet OPO constituerait une source innovante à la fois monomode longitudinale, largement accordable autour de 8 μm et extrêmement compacte. A terme, l'expérience pourrait également être effectuée avec un Sheet OPO en CdSe, pouvant théoriquement émettre sur la quasi-totalité de la gamme spectrale 6-16 μm . Jusqu'à présent, nous avons présenté des expériences portant sur la conception de source infrarouge à spectre fin sans nous soucier de l'énergie disponible sur le faisceau complémentaire. Dans le dernier chapitre, nous allons voir comment la montée en énergie peut être effectuée par amplification paramétrique optique, tout en conservant un faisceau monomode longitudinal, largement accordable en longueur d'onde et quels sont les cristaux non linéaires nous permettant d'y parvenir. Nous étudierons notamment un cristal de CdSe à géométrie innovante taillé en cylindre partiel.

Chapitre 4

Montée en énergie largement accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm

Objectifs

Nous avons conçu et réalisé différents OPO doublement résonnants destinés à émettre un rayonnement monomode longitudinal et accordable dans la gamme spectrale 6-16 μm , sans se soucier de l'énergie du faisceau complémentaire. Dans les expériences réalisées avec les NesCOPO, l'énergie mesurée du faisceau complémentaire ne dépassait jamais 10 μJ . Avec le Sheet OPO en ZGP, il est peu probable d'atteindre des énergies plus élevées. Or, pour des applications de spectroscopie à distance au-delà de quelques dizaines de mètres, il est nécessaire d'avoir un faisceau bien plus énergétique, de l'ordre du millijoule. Pour atteindre cet objectif, nous proposons d'étudier la montée en énergie dans la gamme spectrale 6-16 μm , ce qui fait l'objet de ce chapitre. Nous utiliserons préférentiellement l'amplification paramétrique optique, ce qui permet de conserver la finesse spectrale du faisceau complémentaire à amplifier tant qu'il n'y a pas reconversion de la pompe. Après avoir vérifié les propriétés d'accordabilité des cristaux à notre disposition, nous exposerons une expérience d'amplification d'un laser à cascade quantique dans un cristal de ZGP. Nous présenterons ensuite un nouveau cristal de CdSe taillé en cylindre partiel que nous caractériserons par différence de fréquences, puis éventuellement dans un OPO simplement résonnant. Ce nouveau cristal pourra être utilisé pour réaliser des OPA hautement énergétiques et largement accordables, à des longueurs d'onde inaccessibles avec ZGP.

Plusieurs sources de haute énergie et accordables ont déjà été réalisées de différentes façons dans la gamme spectrale 6-16 μm , par exemple un OPO en ZGP [Lip08], un système MOPA en ZGP [Haa08] ou bien une source paramétrique basée sur la différence de fréquences dans un cristal de CdSe [Men98]. Cependant, toutes ces sources présentent un spectre large et aucune tentative d'affinage n'a été envisagée à notre connaissance. L'objectif de ce chapitre est donc d'étudier des pistes permettant d'obtenir un faisceau accordable de haute énergie dans la gamme spectrale 6-16 μm , ayant par ailleurs une grande finesse spectrale. Deux méthodes sont privilégiées pour y parvenir. La première consiste à générer ce faisceau par différence de fréquences entre deux faisceaux de haute énergie et fins spectralement issu d'OPO émettant entre 2 et 3 μm , tandis que la seconde vise à amplifier le faisceau issu d'un OPO fin spectralement émettant déjà entre 6 et 16 μm , tel que le NesCOPO en OP-GaAs. Pour effectuer l'amplification dans la gamme spectrale 6-16 μm et en particulier entre 8 et 12 μm pour des mesures de gaz à longue portée dans l'atmosphère, il semble à première vue préférable d'utiliser des cristaux d'OP-GaAs pour couvrir l'intégralité de la plage d'accordabilité. Or, pour potentiellement produire des impulsions complémentaires de l'ordre du mJ, il est nécessaire d'avoir une énergie de pompe de plusieurs mJ. L'ouverture limitée des cristaux d'OP-GaAs, qui limite l'énergie de pompe à quelques centaines de μJ pour ne pas les endommager, est alors un frein à leur utilisation. Nous préférons donc nous concentrer sur des cristaux non linéaires biréfringents de ZGP ou de CdSe d'ouverture centimétrique pour réaliser l'amplification.

Compte tenu des propriétés de transmission de ces deux types de cristaux présentées au chapitre 1, ZGP est un candidat idéal pour effectuer l'amplification entre 6 et 10 μm , tandis que CdSe sera préférentiellement utilisé entre 10 et 16 μm . Pour un pompage vers 2 μm , CdSe reste malgré tout peu accordable à 10 μm et il faut tourner le cristal sur une grande plage angulaire pour réaliser la montée en énergie sur une grande plage spectrale, ce qui est difficile en raison de l'ouverture limitée du CdSe (bien que centimétrique) et provoque de forts désalignements. Ainsi, pour couvrir l'intégralité de la gamme spectrale 6-16 μm , il faudra utiliser au moins un cristal de ZGP et plusieurs cristaux de CdSe, et ceci reste valable même en se limitant à la bande III de transmission de l'atmosphère (8-12 μm). Pour pallier ces difficultés, nous étudierons les propriétés d'accordabilité d'un nouveau cristal de CdSe taillé en cylindre partiel.

4.1 Montée en énergie d'un laser à cascade quantique monofréquence par amplification paramétrique optique

Comme mentionné lors de l'introduction, les lasers à cascade quantique (QCL) sont attrayants pour la détection d'espèces chimiques car ils font office de sources compactes qui peuvent délivrer un faisceau de faible largeur spectrale et accordable sur plusieurs centaines de nanomètres. En revanche, leur principal inconvénient vis à vis d'un OPO pour la détection d'espèces chimiques à distances est, outre leur accordabilité limitée, une énergie beaucoup trop faible qui va fortement réduire la portée de la source. L'amplification paramétrique optique (OPA) dans des cristaux non linéaires est alors une solution envisageable pour augmenter l'énergie d'un faisceau émis par un QCL. Ce type d'expérience a déjà été réalisé à Thales avec un DFB-QCL émettant à $4,5\text{ }\mu\text{m}$, dont le faisceau a été amplifié dans un cristal d'OP-GaAs pompé à 2090 nm par un laser $\text{Ho}^{3+}:\text{YAG}$ multimode, avec un gain paramétrique maximum de 2.10^5 [Blo10]. Nous nous proposons de réaliser une expérience similaire, mais à des longueurs d'onde plus élevées ($> 6\text{ }\mu\text{m}$) et avec des faisceaux monomodes longitudinaux. À noter que tant que le dépeuplement de la pompe n'est pas total, la finesse spectrale du faisceau amplifié est automatiquement conservée par l'OPA. Ceci permet donc de produire des impulsions à la fois fines spectralement et énergétiques, sous réserve d'avoir un faisceau de pompe et un faisceau complémentaire ayant au préalable un spectre fin.

Cette section présente une expérience d'OPA d'un laser à cascade quantique à cavité étendue (Daylight Solutions, USA) émettant un rayonnement monofréquence et accordable entre $7,66$ et $8,44\text{ }\mu\text{m}$, par une source de pompe monofréquence à 2210 nm . Pour cette expérience, le cristal privilégié est ZGP et nous allons ainsi pouvoir caractériser les performances des cristaux de ZGP dont nous disposons pour la montée en énergie largement accordable à des longueurs d'onde inférieures à $10\text{ }\mu\text{m}$. Il s'agit d'une expérience de référence, qui permet de produire des impulsions fines spectralement sur toute la plage d'accordabilité du QCL. Nous allons tout d'abord caractériser les propriétés d'accordabilité de nos cristaux de ZGP, ce qui nous permettra de présenter la source de pompe utilisée pour l'OPA. Puis nous exposerons les résultats de l'expérience d'OPA et nous verrons quelles sont les pistes d'amélioration pour exploiter pleinement tout son potentiel.

4.1.1 Propriétés d'accordabilité des cristaux de ZGP utilisés pour l'amplification paramétrique optique

Les cristaux de ZGP à notre disposition sont ceux fournis par Eksma, de longueur $L = 15$ mm et dont la qualité cristalline a déjà été vérifiée au chapitre 1 par les expériences d'ombroscopie et d'interférométrie. Ils sont taillés selon une configuration de polarisations de Type I, avec des angles $\theta = 49^\circ$ et $\phi = 0^\circ$ (ou 180°). La façon la plus simple de vérifier leurs propriétés d'accordabilité est de les insérer dans un OPO simplement résonnant et de mesurer la courbe d'accord de phase. Comme ils sont identiques (mis à part l'angle ϕ), nous présentons les caractérisations effectuées sur l'un des deux cristaux, les résultats étant similaires pour le deuxième.

La source cohérente utilisée pour pomper l'OPO est un système MOPA qui constitue une source LIDAR accordable autour de 2 μm pour mesurer la concentration atmosphérique du méthane, du dioxyde de carbone et de l'eau [Ray09] [Bar14c]. Un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ monofréquence émet des impulsions de 120 mJ à 1064 nm, d'une durée de 15 ns à la cadence de 30 Hz. Une petite partie de l'énergie est extraite du faisceau afin de pomper un NesCOPO en PPLN de Type II fonctionnant près de la dégénérescence. Ce NesCOPO émet un faisceau signal à 2051 nm et un faisceau complémentaire à 2210 nm, dont le spectre est monomode longitudinal. Ces faisceaux ont une largeur spectrale de 100 MHz et sont ensuite amplifiés à l'aide de l'énergie restante à 1064 nm. La chaîne d'amplification fait intervenir un pré-amplificateur constitué d'un cristal de PPLN utilisé en Type 0 suivi de trois cristaux de KTP taillés selon une configuration de polarisation de Type II ($L = 20$ mm, $\theta = 52,7^\circ$, $\phi = 0^\circ$). En sortie de la chaîne d'amplification, le faisceau complémentaire à 2210 nm est polarisé horizontalement et atteint une énergie de 12 mJ (durée d'impulsion de 11 ns) : nous l'utilisons alors comme faisceau de pompe pour l'OPO en ZGP et pour notre future expérience d'amplification du laser à cascade quantique. Son profil spatial est légèrement elliptique : le waist mesuré au niveau du cristal du ZGP vaut $1,5 \times 0,9$ mm (rayon à $1/e^2$ horizontal $\times$ vertical). Cette ellipticité est attribuée aux effets combinés de la divergence et du walk-off spatial dans les cristaux de KTP.

L'OPO est composé de deux miroirs plans, hautement réfléchissants à la longueur d'onde signal et transparents à la pompe et au complémentaire, selon le schéma de la Figure 4.1. Bien que la cavité ne soit pas stable du point de vue de l'optique gaussienne, le guidage par le gain permet d'obtenir l'oscillation. Nous diminuons le temps de construction des impulsions et donc le seuil d'oscillation en réduisant au maximum les espaces d'air entre le cristal et les miroirs. L'alignement de la cavité est effectué à l'aide d'un laser Hélium-Néon, en le superposant au préalable sur la pompe en passant à travers deux diaphragmes. Les différents éléments de l'OPO sont ensuite alignés par autocollimation, et le faisceau complémentaire est collecté en sortie sur un détecteur HgCdZnTe (VIGO) ou une caméra pyroélectrique (Pyrocam III) après

réjection de la pompe par un miroir dichroïque. Un filtre LP 7800, coupant les longueurs d'onde inférieures à 7800 nm, peut être placé avant le détecteur, ainsi qu'une lentille convergente afin de collecter tout le flux du complémentaire. Les mesures de longueurs d'onde sont effectuées à l'aide de filtres interférentiels placés juste avant le détecteur, dont la précision est suffisante pour ces expériences car le spectre du faisceau complémentaire est large.

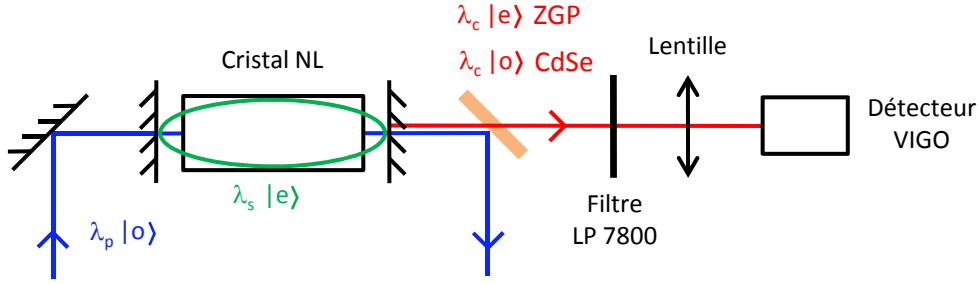


Figure 4.1 – Montage du banc de caractérisation des cristaux de ZGP et CdSe. Les lettres o et e désignent respectivement une polarisation ordinaire et extraordinaire.

Cette expérience a été effectuée lorsque les cristaux de ZGP de 15 mm étaient encore tous les deux munis d'un traitement anti-reflet Eksma. Un seuil de 1,5 mJ correspondant à une puissance moyenne de pompe de 45 mW a été mesuré à 8050 nm. A cette même longueur d'onde, un dépeuplement de la pompe de 35 % a également été mesuré comme le montrent les profils temporels de la Figure 4.2, en pompant avec 5 mJ, soit environ 3 fois au dessus du seuil. Les mesures de l'énergie du complémentaire en fonction de l'énergie de la pompe sont présentées en Figure 4.2 et montrent un comportement linéaire avec une énergie maximale de 330 μ J sur l'onde complémentaire à 8050 nm. Le rendement interne expérimental de la conversion de fréquence est évalué à 8,4 % contre 9,5 % prévu théoriquement en tenant compte des coefficients de réflexion des miroirs et des traitements anti-reflets des cristaux. Ainsi, notre OPO présente très peu de pertes internes et les cristaux de ZGP sont de bonne qualité malgré des traitements anti-reflet non optimaux.

Nous avons finalement vérifié la courbe d'accord de phase du ZGP en tournant le cristal dans le plan contenant l'axe optique. La longueur d'onde a été mesurée pour différents angles avec les filtres interférentiels que nous avons déjà décrits. Le filtre LP 7800 a été retiré afin d'évaluer la totalité de la courbe d'accord de phase expérimentale. Comme montré en Figure 4.3, nous obtenons un excellent accord entre nos mesures et la courbe théorique donnée par le logiciel SNLO avec les relations de Sellmeier de Zelmon et al [Zel01]. En particulier, nous vérifions que l'amplification pourra avoir lieu sur toute la plage d'émission du laser à cascade quantique, comprise entre 7,66 et 8,44 μ m. Comme la qualité du traitement anti-reflet Eksma diminue fortement entre 4,5 μ m et 5,5 μ m, il a été nécessaire de pomper plus fort afin d'effectuer des mesures à ces longueurs d'onde. A cette occasion, nous avons pu vérifier que les traitements anti-

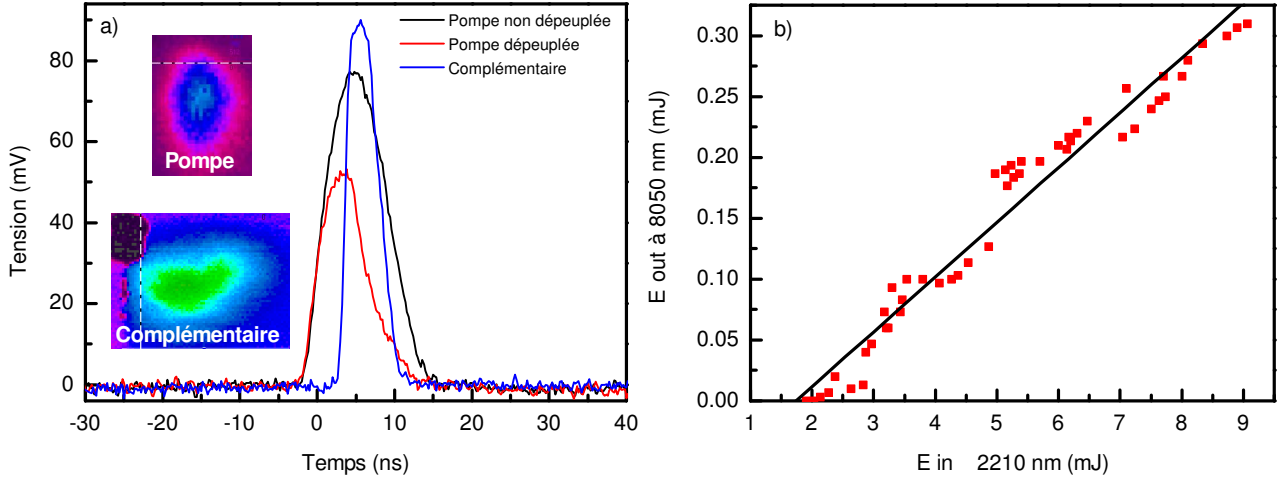


Figure 4.2 – a) Profils temporels et spatiaux de la pompe à 2210 nm et du complémentaire à 8050 nm de l'OPO en ZGP. b) Energie du complémentaire à 8050 nm en fonction de l'énergie de pompe.

reflet et le cristal supportaient des fluences de 1 J/cm^2 à $2 \mu\text{m}$, qui sera la fluence maximale pour l'expérience d'amplification. Enfin, une mesure de spectre effectuée à 7000 nm , où la variation de la courbe d'accord de phase avec l'angle est la moins forte, est présentée en Figure 4.3. En accord de phase de Type I, nous nous attendons à un spectre d'une largeur de 272 nm en pleine largeur à mi-hauteur (valeur donnée par SNLO) : un fit gaussien réalisé sur les points expérimentaux nous donne une valeur de 253 nm , en bon accord avec la valeur théorique. Remarquons à travers cette expérience que si extraire de l'énergie vers $8 \mu\text{m}$ d'un OPO en ZGP est relativement simple, les propriétés spectrales et spatiales du faisceau ne sont pas du tout adaptées à la détection de gaz à distance. C'est pourquoi nous privilégions les configurations de type MOPA pour monter en énergie, où un oscillateur maître monofréquence accordable est suivi d'un amplificateur paramétrique, dont l'étude est l'objet de la sous-section suivante.

4.1.2 Expérience d'amplification du laser à cascade quantique, mesure du gain

Le schéma du montage de l'expérience d'amplification est présenté en Figure 4.4. Dans un premier temps, nous utilisons un seul cristal de ZGP et nous insérerons si besoin le deuxième en série. Le QCL que nous souhaitons amplifier délivre un faisceau d'une puissance moyenne de 100 mW en régime continu, avec une largeur spectrale de 30 MHz . Il peut éventuellement être utilisé en régime impulsionnel, mais ceci s'accompagne d'effets thermiques qui augmentent la largeur spectrale du faisceau [Mel12]. De plus, il est plus simple de l'utiliser en régime continu pour ne pas à avoir à le synchroniser temporellement avec les impulsions de pompe dans le

4.1 Montée en énergie d'un laser à cascade quantique monofréquence par amplification paramétrique optique

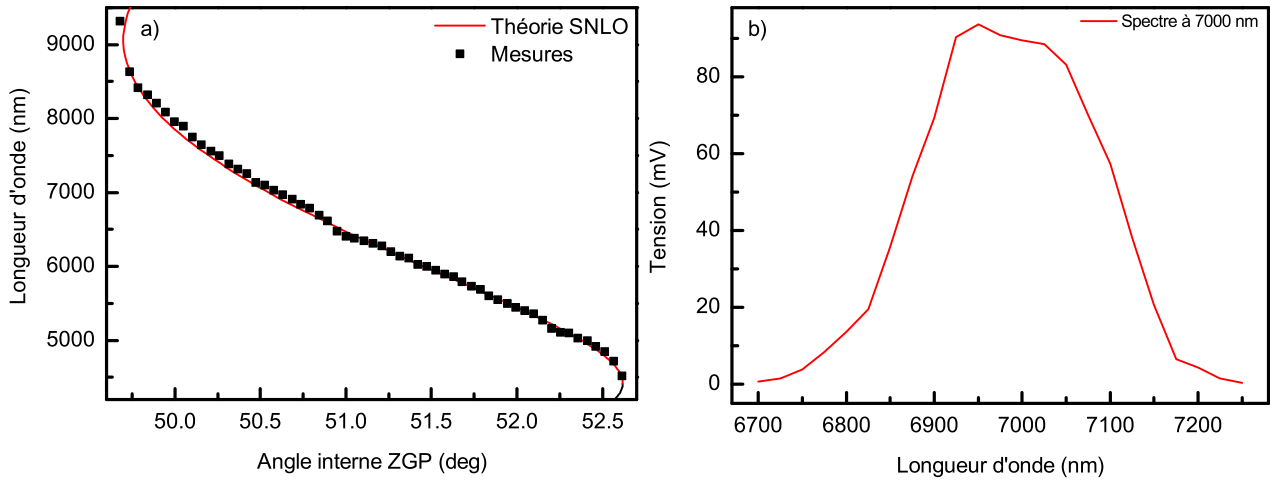


Figure 4.3 – a) Courbe d'accord de phase d'un cristal de ZGP Eksma de 15 mm de long. b) Mesure de spectre centrée à 7000 nm réalisée avec les filtres interférentiels dont la résolution est estimée à ± 20 nm.

cristal. Les impulsions créées par amplification paramétrique auront donc la même durée et la même cadence que les impulsions de pompe. Le profil spatial du faisceau est légèrement elliptique mais est presque gaussien à une distance de 53 cm de la sortie du laser, avec un waist $w_{QCL} = 1,3$ mm (rayon à $1/e^2$). Comme les deux faisceaux ont des dimensions similaires, aucune remise en forme n'est nécessaire. Le faisceau émis par le QCL est polarisé verticalement, comme le faisceau de pompe : il est donc tourné de 90° avec l'aide de deux miroirs dorés pour rendre sa polarisation horizontale et ainsi respecter l'accord de phase de Type I dans le cristal de ZGP.

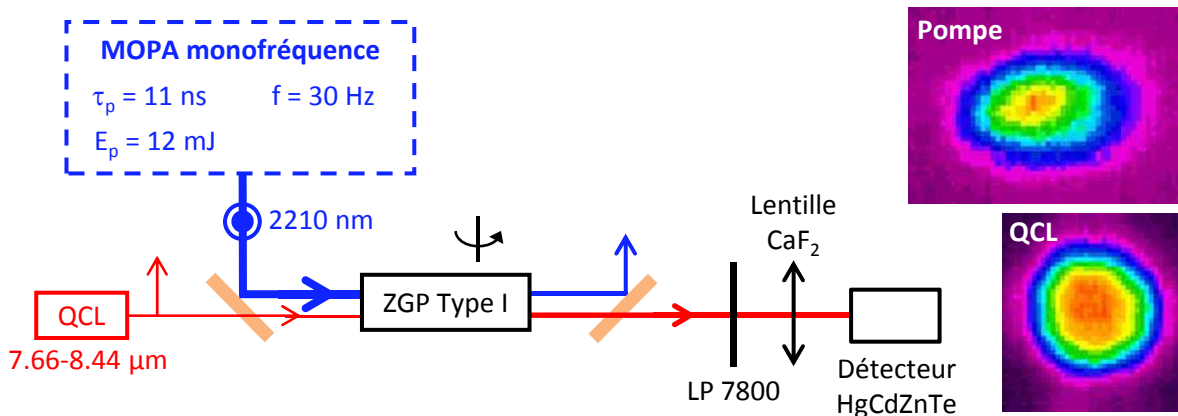


Figure 4.4 – Schéma du montage de l'expérience d'amplification du laser à cascade quantique dans un cristal de ZGP. Les profils spatiaux des faisceaux ont été mesurés à la caméra pyroélectrique.

Après avoir traversé le ZGP, le faisceau de pompe est filtré au moyen d'une lame dichroïque en ZnSe hautement réfléchissante à 2210 nm et transparente à 8 μm . Un filtre LP 7800 permet

ensuite de couper la pompe résiduelle transmise par la lame, ainsi que le signal généré autour de 3 μm . Le flux provenant du faisceau amplifié est collecté par le détecteur HgCdZnTe après focalisation par une lentille en CaF_2 non traitée. Sur la trace d'oscilloscope, le gain est donné par le rapport entre la tension crête des impulsions QCL amplifiées et la ligne de base correspondant au QCL en régime continu. Les tensions mesurées sont moyennées et chaque mesure est répétée plusieurs fois pour réduire l'incertitude liée aux fluctuations tir à tir de l'énergie des impulsions de pompe (environ 5 % crête à crête). Les mesures sont corrigées des valeurs de transmission des optiques de filtrage et de collection du flux, toutes mesurées au préalable au FTIR. La transmission du cristal de ZGP n'est que de 63 % à 2210 nm et au maximum de 81 % entre 7,66 et 8,44 μm à cause de traitements anti-reflets imparfaits (traitements Eksma). Pour comparer nos mesures avec la théorie, nous avons donc considéré l'énergie de pompe effectivement disponible dans le cristal après transmission par le traitement anti-reflets de la face d'entrée.

Dans un premier temps, nous étudions l'évolution du gain à une longueur d'onde fixe de 8 μm , en augmentant progressivement l'énergie de pompe entre 0,5 et 12 mJ, soit une énergie de pompe effective comprise entre 0,3 et 7,5 mJ. Les résultats sont présentés en Figure 4.5 et montrent une croissance exponentielle du gain quand l'énergie de pompe augmente.

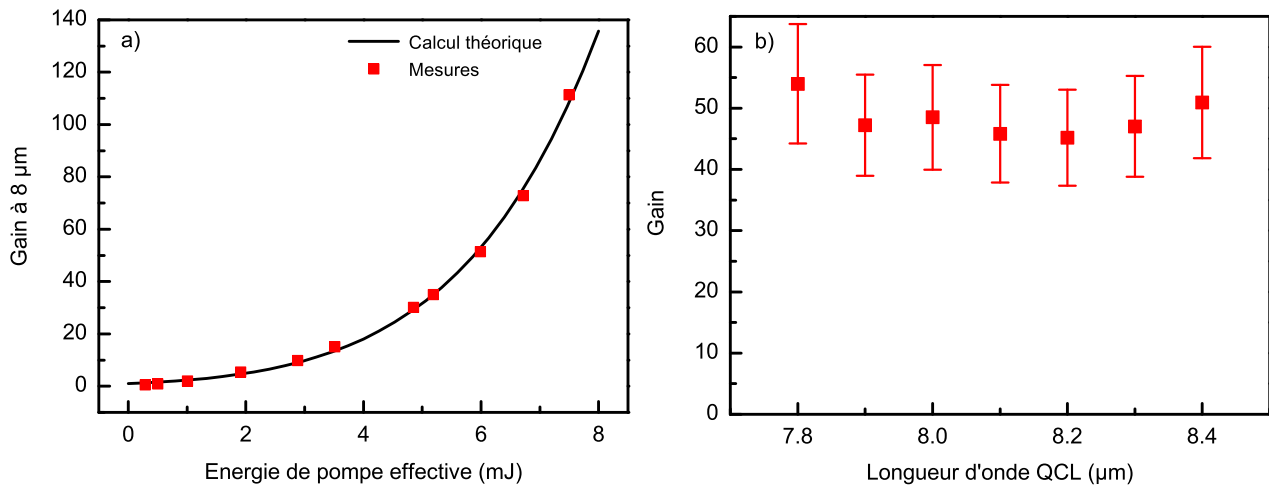


Figure 4.5 – a) Gain de l'OPA à 8 μm en fonction de l'énergie de pompe effective. b) Gain de l'OPA sur la plage 7,8-8,4 μm pour une énergie de pompe effective de 6 mJ.

Nos mesures sont comparées à un calcul théorique effectué dans l'approximation du non dépeuplement de la pompe. Dans notre expérience, cette approximation est valide tant que le gain théorique reste inférieur à $6 \cdot 10^4$, valeur pour laquelle le dépeuplement de la pompe dépasse 5 %. Le calcul se base sur la même approche que celle établie par Barnes et al [Bar98], que nous avons étendu au cas des faisceaux elliptiques. Les profils spatiaux et temporels du QCL et de la pompe sont supposés gaussiens dans chaque direction transverse, hypothèse validée par nos mesures. Nous calculons alors le recouvrement spatial des deux faisceaux en intégrant selon la

direction verticale et horizontale afin de déterminer le gain, soit :

$$G = \int \frac{2}{\pi w_{\text{QCL}}^2} \exp \left(-\frac{2x^2 + 2y^2}{w_{\text{QCL}}^2} \right) \cosh^2(\gamma_{\text{OPA}} L) dx dy, \quad (4.1)$$

avec le gain paramétrique usuel

$$\gamma_{\text{OPA}} = \left(\frac{8\sqrt{\ln(2)}\mu_0 d_{\text{eff}}^2 \omega_s \omega_c E_p}{\pi^{\frac{3}{2}} c \tau_p n_p n_s n_c w_h w_v} \exp \left(-\frac{4 \ln(2) t^2}{\tau_p^2} - \frac{2x^2}{w_h^2} - \frac{2y^2}{w_v^2} \right) \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (4.2)$$

déterminé à partir des équations non linéaires 1.3. E_p représente ici l'énergie de pompe, tandis que w_h et w_v représentent les rayons au waist de la pompe respectivement dans la direction horizontale et verticale, les autres paramètres ayant déjà été définis précédemment. Pour ce calcul, nous avons choisi $d_{\text{eff}} = 75$ pm/V : cette valeur coïncide exactement avec la valeur de l'élément de tenseur d_{14} donnée dans la littérature pour le doublage de fréquence à 9,6 μm , car l'effet de l'angle d'accord de phase est contrebalancé par la dépendance en longueur d'onde via la règle de Miller lorsque le pompage est effectué vers 2 μm [Alf01].

Nous voyons sur la Figure 4.5 que les mesures sont en bon accord avec le gain calculé sans ajuster aucun paramètre. Pour une énergie de pompe effective de 7,5 mJ, nous mesurons un gain $G = 111$, tandis que les calculs prévoyaient une valeur de 108. A partir d'une énergie initiale de 1,1 nJ contenue dans le faisceau en sortie du QCL, nous obtenons des impulsions de 122 nJ après amplification (11 W en puissance crête). Avec des traitements anti-reflets qui transmettraient 95 % de la pompe et du complémentaire, l'énergie de pompe effective serait de 11,4 mJ, et nous prévoyons dans ce cas un gain théorique de 544. De même, avec ces traitements anti-reflets adaptés, le gain maximal théoriquement atteignable avec un seul cristal est de $7,4 \cdot 10^5$, obtenu pour un ZGP de longueur $L = 32$ mm (des cristaux de 30 mm ayant déjà été réalisés par BAE Systems). Dans ce cas, le dépeuplement de la pompe doit être pris en compte dans le calcul, et le gain s'exprime de la façon suivante :

$$G = \int \frac{2}{\pi w_{\text{QCL}}^2} \exp \left(-\frac{2x^2 + 2y^2}{w_{\text{QCL}}^2} \right) \text{cn}^2 \left(i\kappa L u_p(0), -\frac{\omega_p}{\omega_c} \frac{I_c(0)}{I_p(0)} \right) dx dy, \quad (4.3)$$

où cn désigne la fonction cosinus de Jacobi. Les détails du calcul qui aboutissent à cette expression sont donnés en Annexe B. Ceci conduirait à des impulsions de 0,8 mJ à 8 μm , qui ne peuvent être produites à cette longueur d'onde par émission directe d'une source laser à base de semiconducteurs. Le profil temporel du faisceau amplifié à 8 μm est donné en Figure 4.6. Nous vérifions qu'il est bien identique à celui de la pompe. Le gain de l'OPA est ensuite mesuré en faisant varier la longueur d'onde d'émission du QCL entre 7,8 et 8,4 μm . Pour cette expérience, nous travaillons avec une énergie de pompe effective de 6 mJ, soit une fluence de 0,45 J/cm² sur

les faces du cristal de ZGP, pour avoir une marge confortable vis à vis du seuil de dommage. Les résultats sont également présentés en Figure 4.5. Nous mesurons un gain moyen de 50 sur la plage 7,8-8,4 μm avec un gain presque constant entre 7,9 et 8,2 μm .

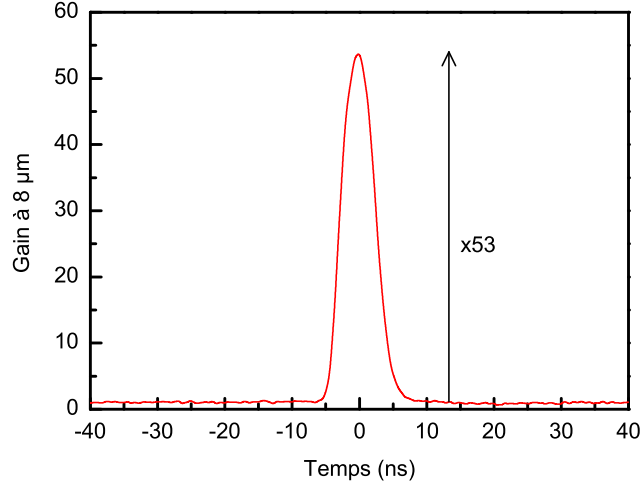


Figure 4.6 – Profil temporel du QCL amplifié à 8 μm pour une énergie de pompe effective de 6 mJ. La largeur temporel de l’impulsion à 8 μm est de 11 ns comme la pompe.

Pour compléter notre étude théorique, nous avons calculé le gain global d’un amplificateur composé de deux cristaux de ZGP identiques mis en série en configuration de compensation de walk-off [Arm97]. Nous avons tenté de réaliser cette expérience avec les deux cristaux fournis par Eksma mais l’un des cristaux a été endommagé suite à une erreur de manipulation (piqûre sur un traitement anti-reflets) ainsi que le QCL suite à un retour optique. Comme une onde signal est générée et que l’onde complémentaire est amplifiée dans le premier cristal, les conditions initiales pour le calcul du gain sont différentes pour le deuxième cristal de ZGP. Ces conditions initiales doivent également tenir compte des pertes des traitements anti-reflets lors de la propagation entre les deux cristaux. Après avoir repris nos calculs, nous en déduisons une formule légèrement plus compliquée pour le gain global de l’amplificateur à deux cristaux dans l’approximation de non dépeuplement de la pompe, qui passe de 53 à 6170 à 8 μm pour une énergie de pompe effective de 6 mJ. Cette expression est valable si le déphasage relatif entre les trois ondes $\varphi = -\frac{\pi}{2}$ est conservé lors de la propagation dans l’air entre les deux cristaux :

$$G = \int \frac{2}{\pi w_{\text{QCL}}^2} \exp\left(-\frac{2x^2 + 2y^2}{w_{\text{QCL}}^2}\right) (T_c^2 \cosh^2(\gamma_1 L) \cosh^2(\gamma_2 L) + T_s^2 \sinh^2(\gamma_1 L) \sinh^2(\gamma_2 L) + \frac{1}{2} T_s T_c \sinh(2\gamma_1 L) \sinh(2\gamma_2 L)) dx dy, \quad (4.4)$$

où $T_{s,c}$ représente la transmission du traitement anti-reflet du ZGP respectivement pour le signal (généré par le premier cristal) et le complémentaire (faisceau issu du QCL). Réaliser un amplificateur avec plusieurs cristaux de ZGP mis en série permet donc d'améliorer significativement le gain. En effectuant cette même expérience avec deux cristaux munis de traitements adaptés ($T = 95\%$ aux différentes longueurs d'onde) et en prenant en compte le dépeuplement de la pompe pour le deuxième cristal, le gain théorique est estimé à $1,1 \cdot 10^6$, ce qui amènerait à la génération d'impulsions de 1,2 mJ : nous aurons donc toujours davantage de gain qu'avec un seul cristal très long.

L'utilisation d'une source de pompe fine spectralement permet de conserver les propriétés spectrales du faisceau à amplifier. Ainsi, les mesures de gain montrent que nos cristaux de ZGP pourraient être utilisés pour amplifier le rayonnement complémentaire de grande finesse spectrale issu d'un NesCOPO en OP-GaAs muni de réseaux adaptés (voire d'un Sheet OPO en ZGP si celui-ci fonctionne) et atteindre des énergies de l'ordre du millijoule pour des longueurs d'onde situées autour de 8 μm , débouchant sur le développement d'un système MOPA pour la détection d'espèces chimiques dans l'atmosphère entre 8 et 12 μm .

Comme mentionné au début de cette section, nous avons choisi un cristal de ZGP pour réaliser l'OPA, car l'accordabilité du gain pouvait facilement être démontrée sur toute la plage d'émission du QCL avec ce cristal contrairement à CdSe. Or, le ZGP ne pourrait effectuer l'amplification d'un faisceau au-delà de 10 μm à cause de l'absorption qui devient trop forte : le cristal privilégié sera alors CdSe, dont nous allons maintenant étudier les propriétés d'accordabilité.

4.2 Etude des propriétés d'accordabilité d'un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel

Pour accorder la longueur d'onde d'un OPO ou d'un OPA muni d'un cristal de CdSe, il suffit de changer l'orientation du cristal en le tournant dans le plan contenant l'axe optique. Cependant, la faible biréfringence du CdSe nécessite des angles de plusieurs degrés voir plusieurs dizaines de degrés pour couvrir une grande gamme spectrale dans l'infrarouge comme le montre la Figure 4.10, ce qui n'est généralement pas possible en raison de l'ouverture limitée des cristaux. Pour s'en convaincre, nous avons caractérisé succinctement dans l'OPO à cavité plan-plan un cristal de CdSe de 40 mm fourni par Moltech et présenté au chapitre 1. Ce cristal est taillé à l'accord de phase non critique $\theta = 90^\circ$ et sa grande longueur est destinée à compenser son coefficient non linéaire d_{eff} plus faible que ZGP pour avoir un gain équivalent dans une expérience d'OPA. Un seuil de 3,5 mJ a été mesuré ainsi qu'un dépeuplement de 20 % à 8370 nm, visible sur les profils temporels de la Figure 4.7.

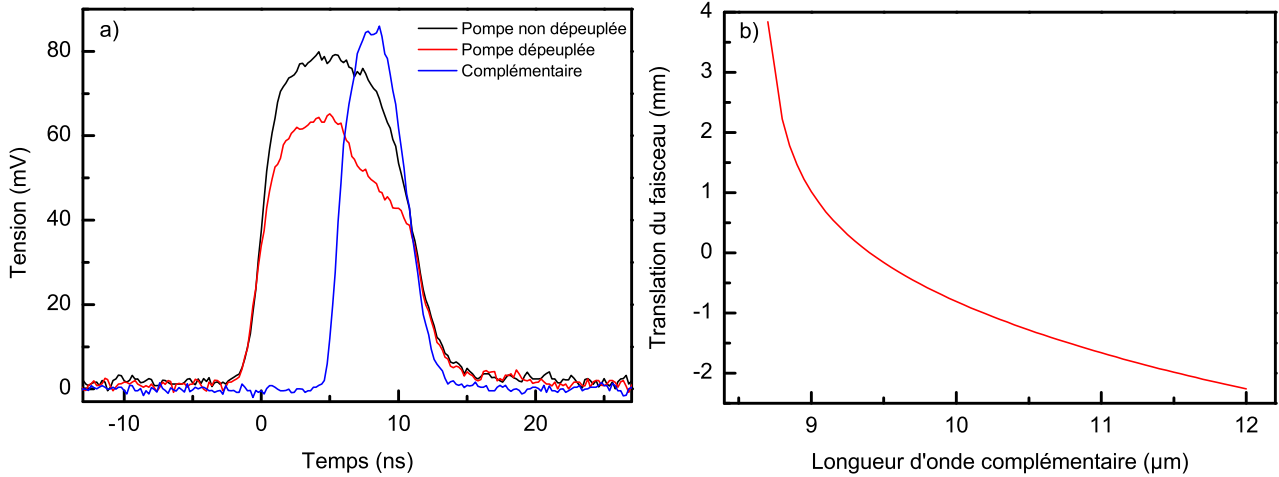


Figure 4.7 – a) Profils temporels de la pompe à 2210 nm et du complémentaire à 8370 nm de l'OPO en CdSe obtenus grâce à un détecteur VIGO. b) Déviation du faisceau généré par différence de fréquences en fonction de sa longueur d'onde. La déviation varie extrêmement rapidement près de 9 μm à cause de la faible dépendance en angle de la courbe d'accord de phase près de $\theta = 90^\circ$.

En revanche, l'accordabilité n'a pas pu être démontrée. En effet, compte tenu de la longueur du cristal, le faisceau de pompe est diffracté dès qu'il n'est plus en incidence normale sur le CdSe. Il serait possible de diminuer son diamètre en focalisant, mais ceci augmenterait la fluence et imposerait de travailler à plus basse énergie pour ne pas endommager le cristal. L'amplification à haute énergie d'un faisceau complémentaire largement accordable généré par un OPO n'est donc pas envisageable. Cette difficulté intervient directement dans le projet MICLID mené par l'Onera. Dans ce projet, une source LIDAR doit pouvoir émettre entre 7,5 et 11 μm , cette plage de longueurs d'onde étant émise par différence de fréquences. Pour cela, des cristaux de ZGP et de CdSe sont utilisés simultanément. Concernant le CdSe, celui-ci doit être tourné sur une plage angulaire de 56° , ce qui a nécessité des ouvertures de 12 mm malgré le faible diamètre du faisceau. Comme le montre la Figure 4.7, la déviation du faisceau sur la plage angulaire du CdSe est de 6 mm : un système de compensation est donc nécessaire en sortie pour éviter les désalignements.

Pour sortir de cette impasse, nous proposons d'étudier un cristal de CdSe à géométrie innovante taillé en cylindre partiel. Le fait d'être taillé en cylindre partiel permet d'avoir accès à des angles très importants sans désalignement des faisceaux comme le montre également la Figure 4.8, et donc de pouvoir effectuer une potentielle montée en énergie largement accordable par OPA. L'autre intérêt est que le faisceau pompe reste colinéaire à la surface d'incidence quelque soit l'angle de propagation, ce qui évite tout walk-off spatial vis-à-vis des vecteurs d'onde des ondes en interaction. Ce cristal a été conçu par l'équipe de recherche de Benoît Boulanger à l'Institut Néel de Grenoble, qui a déjà expérimenté et validé la technique de découpe

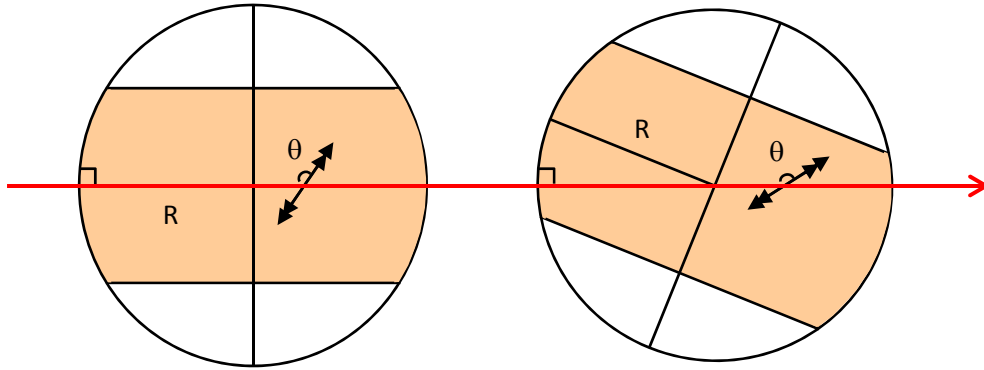


Figure 4.8 – Illustration de l'intérêt du CdSe cylindrique pour l'alignement d'un OPO ou d'un OPA : le faisceau de pompe reste en incidence normale quel que soit l'angle du cristal.

et de polissage en cylindre partiel sur d'autres cristaux non linéaires tels que LiNbO_3 et KTP. Dans un premier temps, nous allons présenter les expériences de caractérisation d'un cristal de CdSe cylindrique par différence de fréquences, afin de générer un faisceau largement accordable sur une plage de longueurs d'onde peu ou pas accessible avec ZGP. Puis, nous exposerons les étapes de conception d'un OPO simplement résonnant hautement énergétique et largement accordable basé sur un cristal de CdSe cylindrique.

4.2.1 Différences de fréquences dans un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel

L'expérience principale de différence de fréquences a été effectuée à l'Institut Néel à Grenoble. Le schéma du montage est représenté en Figure 4.9.

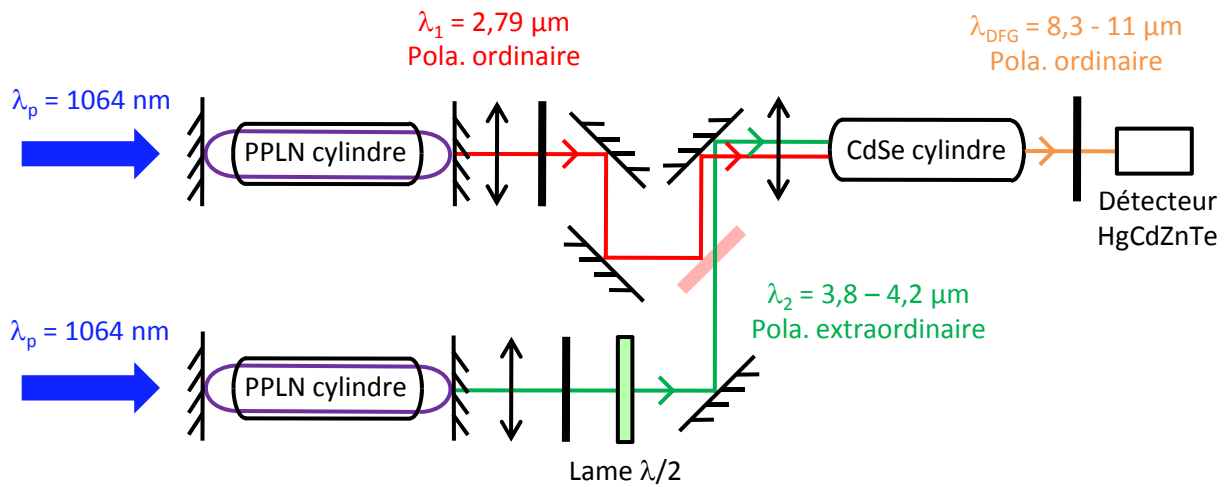


Figure 4.9 – Schéma du montage de l'expérience de différence de fréquences dans le CdSe taillé en cylindre partiel effectuée à l'Institut Néel.

La différence de fréquences est réalisée entre deux faisceaux, chacun étant généré par un OPO indépendant [Kem13b]. Ces OPO identiques sont simplement résonnants à l'onde signal et ont été conçus avec deux miroirs plans entre lesquels a été inséré un cristal de PPLN également taillé en cylindre partiel. La différence de fréquences est ensuite effectuée dans le cristal de CdSe entre les faisceaux complémentaires respectifs issus de ces OPO. Le premier OPO émet volontairement à une longueur d'onde fixe $\lambda_1 = 2,79 \mu\text{m}$ avec une polarisation ordinaire. Le second émet à une longueur d'onde qui varie suivant l'orientation du PPLN, dans la gamme spectrale $\lambda_2 = 3,8 - 4,2 \mu\text{m}$ pour cette expérience (il est possible de l'accorder davantage). Comme le cristal de CdSe fonctionne en accord de phase de Type II, il est nécessaire de faire tourner la polarisation du faisceau complémentaire du deuxième OPO afin de la rendre extraordinaire. Les deux faisceaux sont ensuite superposés puis focalisés avec une lentille sphérique en CaF_2 de focale $f' = 150 \text{ mm}$ dans le CdSe, taillé à $\theta = 79^\circ$ et dont la longueur est $L = 20 \text{ mm}$. Les angles accessibles sont compris entre 48° et 110° . Les angles utiles en pratique sont compris entre 68° et 90° , car aucun accord de phase n'est possible pour un angle inférieur à 68° avec les longueurs d'onde de travail, tandis que la courbe d'accord de phase est symétrique pour des angles supérieurs à 90° . Le faisceau généré par différence de fréquences est polarisé ordinairement et est collecté au moyen d'un détecteur HgCdZnTe non refroidi. Sa longueur d'onde a été mesurée avec des filtres interférentiels situés avant ce détecteur et calibrés au préalable avec un monochromateur. La précision de lecture des verniers circulaires sur lesquels sont montés les filtres permet de l'estimer avec une précision de $\pm 20 \text{ nm}$. Un faisceau accordable entre $8,3$ et $10,6 \mu\text{m}$ a été obtenu en faisant varier la longueur d'onde de pompe du deuxième OPO et en tournant progressivement le CdSe. Comme la longueur d'onde de coupure du détecteur HgCdZnTe se situe aux alentours de $11 \mu\text{m}$, il n'a pas été possible de mesurer des longueurs d'onde plus élevées. Les résultats sont présentés en Figure 4.10

Les mesures concordent assez bien avec les courbes d'accord de phase théoriques calculées avec différentes relations de Sellmeier. Les mesures montrent que la longueur d'onde d'émission est presque indépendante de l'angle autour de l'accord de phase non critique à $\theta = 90^\circ$, sur une plage angulaire plus grande que ne le prévoient les courbes théoriques. La longueur d'onde mesurée $\lambda_{\text{DFG}} = 8,35 \mu\text{m}$ ne varie pas pour des angles compris autour de $90^\circ \pm 5^\circ$. Comme la face d'entrée du CdSe est polie en cylindre, le faisceau de pompe refocalise à l'intérieur du cristal. Afin de précompenser cet effet et avoir un faisceau collimaté dans le cristal, il est donc préférable d'effectuer la focalisation juste avant. Or, lors de cette expérience, les faisceaux ont plutôt été focalisés au centre du cristal et il a été démontré qu'en cas de forte focalisation, le maximum d'efficacité de la génération paramétrique n'est plus à l'accord de phase pour le rayon central mais légèrement décalé [Boy68] [Zon98]. Par rapport à l'angle de taille de 79° , un léger écart de 1° à 2° a été constaté pour les points expérimentaux. Ainsi, cet écart peut être dû à une refocalisation de la pompe à l'intérieur du cristal. Il peut également être lié au fait que les

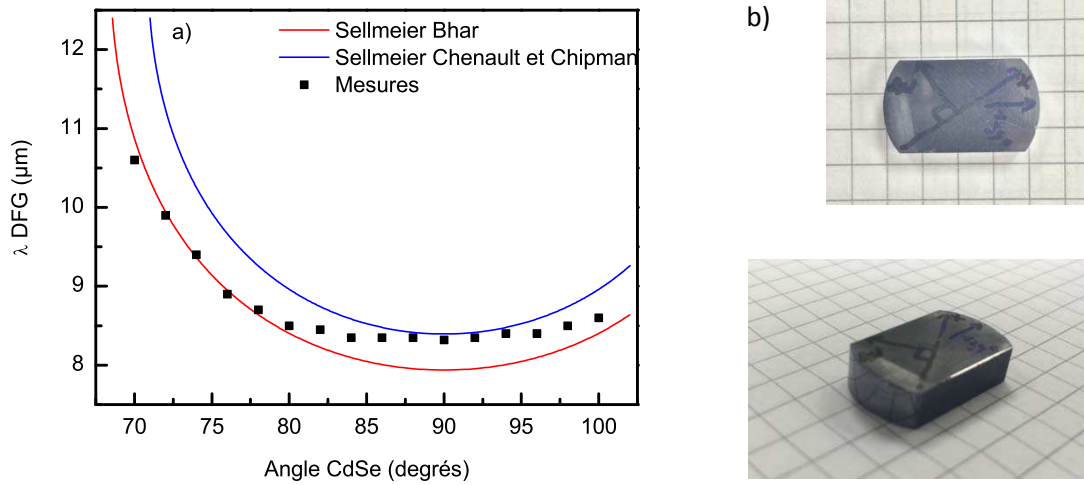


Figure 4.10 – a) Génération de longueurs d'onde entre 8,3 et 10,6 μm par différence de fréquences dans le cristal de CdSe cylindrique. b) Photos du cristal de CdSe cylindrique.

faisceaux utilisés pour effectuer la différence de fréquences sont larges spectralement car ils sont générés par des OPO simplement résonnants à cavités plan-plan ayant la condition d'accord de phase pour seul mécanisme de sélection spectrale. Ceci peut entraîner la génération d'une longueur d'onde légèrement différente de celle calculée à partir de la longueur d'onde centrale des deux faisceaux de pompe.

Afin de comprendre l'origine de cet écart et d'étendre la courbe d'accord de phase à des longueurs d'onde plus élevées, une expérience complémentaire de différence de fréquences a été mise en place à l'Onera. Pour cette expérience, la différence de fréquences s'effectue entre le faisceau signal et le faisceau complémentaire d'un NesCOPO. Cet OPO utilise un cristal de PPLN selon une configuration de polarisations de Type II afin d'obtenir une largeur spectrale assez faible d'environ 1 cm^{-1} sur les faisceaux émis. Les longueurs d'onde signal et complémentaire varient sur les plages $\lambda_s = 1,92 - 1,98\text{ }\mu\text{m}$ et $\lambda_c = 2,3 - 2,39\text{ }\mu\text{m}$. Une lentille cylindrique en CaF_2 est placée avant le CdSe afin d'avoir des faisceaux parfaitement collimatés à l'intérieur du cristal. Enfin, le détecteur HgCdZnTe a été remplacé par un détecteur MCT refroidi par azote liquide qui peut détecter des longueurs d'onde supérieures à $11\text{ }\mu\text{m}$. Pour cette expérience, la longueur d'onde de coupure est imposée à $14,2\text{ }\mu\text{m}$ par les filtres interférentiels utilisés pour mesurer la longueur d'onde. Les résultats présentés en Figure 4.11 confirment ceux obtenus à l'Institut Néel, sans écart angulaire par rapport à l'angle de taille de 79° . La longueur d'onde générée par différence de fréquences couvre la gamme spectrale $\lambda_{DFG} = 9,5 - 14,2\text{ }\mu\text{m}$.

En conclusion, les résultats montrent que le CdSe taillé en cylindre partiel est un cristal de premier intérêt pour générer des faisceaux cohérents accordables entre 8,3 et $14\text{ }\mu\text{m}$. Ce cristal pourrait donc être utilisé comme amplificateur largement accordable pour des longueurs d'onde supérieures à $8,3\text{ }\mu\text{m}$ et permettrait de réaliser la montée en énergie sur presque l'intégralité

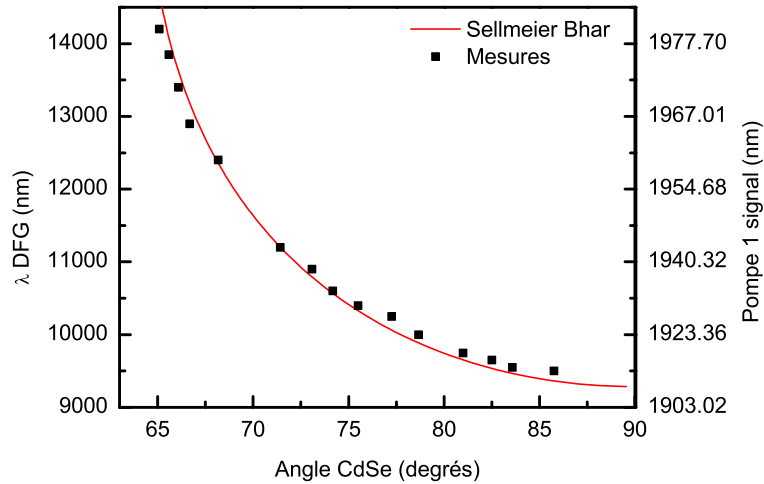


Figure 4.11 – Génération de longueurs d’onde entre 9,5 et 14,2 μm par différence de fréquences dans le cristal de CdSe cylindrique.

de la gamme spectrale 8-12 μm . Couplé avec un cristal de ZGP, l’amplification serait possible entre 6 et 16 μm avec seulement deux cristaux, ce qui n’est pas envisageable avec des CdSe à faces planes. De plus, les faces cylindriques permettent d’effectuer le pompage en incidence normale quel que soit son angle, ce qui permet de s’affranchir de la déviation des faisceaux due à la réfraction. Pour terminer l’étude du cristal de CdSe cylindrique, nous allons l’insérer dans un OPO simplement résonnant. Ceci va permettre de vérifier ses propriétés d’accordabilité à longueur d’onde de pompe fixe, sans dépendre de deux faisceaux. Ceci nous donnera également des informations concernant la qualité optique du cristal.

4.2.2 Oscillateur paramétrique optique muni d’un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel

Notre intention est de monter un OPO à cavité plan-plan, comme nous l’avons déjà fait pour caractériser le cristal de CdSe de 40 mm de long ainsi que les cristaux de ZGP utilisés pour amplifier le laser à cascade quantique. Des calculs numériques effectués avec un code Matlab développé à l’Onera pour simuler le comportement d’un OPO simplement résonnant montrent que pour être certain d’atteindre le seuil d’oscillation, il est préférable d’avoir un cristal de CdSe cylindrique qui soit traité anti-reflets (pour éviter les pertes par réflexion de Fresnel d’environ 18 % par face) et de 30 mm de long. De ce fait, l’Institut Néel a poli en forme de cylindre partiel un autre cristal de CdSe taillé en Type II à $\theta = 79^\circ$, dont la longueur finale est $L = 27 \text{ mm}$. Des traitements anti-reflets réalisés par Twinstar ont ensuite été déposés sur les faces de ce nouveau cristal. D’après les courbes de transmission données par le fournisseur, le cristal transmet au moins 96 % sur la gamme spectrale 2-2,8 μm (incluant la longueur d’onde de pompe et la plage

d'accordabilité signal) et au moins 94 % entre 7 et 12 μm ($T > 90\%$ à 14 μm). Comme le faisceau de pompe sera collimaté dans le cristal, nous pouvons facilement estimer le seuil à partir des mesures effectuées avec le cristal de CdSe non cylindrique de 40 mm de long. En supposant un rayon au waist de 1 mm, nous nous attendons à un seuil d'oscillation de 3 mJ soit une fluence seuil de 0,2 J/cm².

Initialement, l'OPO devait être pompé par la source MOPA monofréquence à 2 μm que nous avons utilisée pour amplifier le QCL, mais une opération de maintenance sur cette source l'a rendue indisponible pour une nouvelle expérience. Comme nous n'avons pas d'autre source de pompe qui soit à la fois assez fine spectralement (nécessaire pour réaliser une courbe d'accord de phase correcte) et énergétique à 2 μm , nous avons mis en place une collaboration avec l'équipe de V. Pasiskevicius de l'Institut Royal de Technologie (KTH) de Stockholm. L'expérience, dont le schéma est donné en Figure 4.12, sera réalisée ultérieurement et nous présentons ici son dimensionnement.

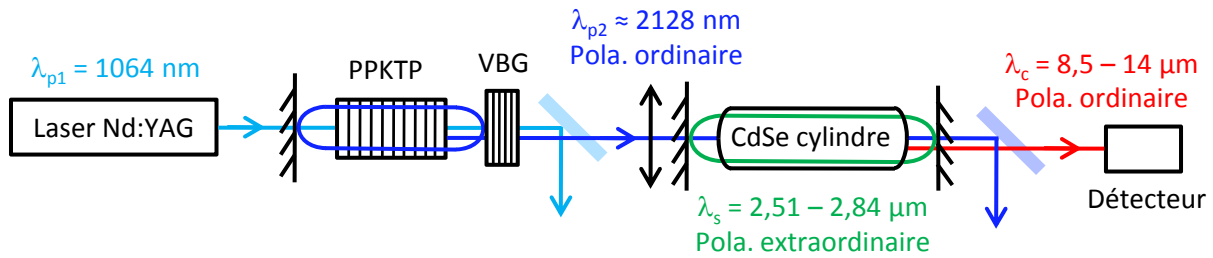


Figure 4.12 – Schéma du montage de l'OPO en CdSe cylindrique envisagé pour l'expérience à KTH.

La source de pompe de notre OPO en CdSe cylindrique est elle-même un OPO simplement résonnant, constitué d'un cristal de PPKTP dont la fabrication est bien maîtrisée à KTH [Zuk11]. Cette source de pompe paramétrique a déjà été utilisée à KTH dans un système MOPA afin de pomper un OPO en ZGP configuration RISTRA [Sto12]. L'OPO en PPKTP est lui-même pompé par un laser Nd³⁺:YAG émettant des impulsions de 80 mJ, d'une durée de 10 ns à la cadence de 100 Hz à 1064 nm. Deux cristaux de PPKTP munis d'un même réseau seront à notre disposition pour cette expérience. Le premier cristal fait 10 mm de long pour une ouverture de 3 × 5 mm, tandis que le deuxième est dopé au rhubidium et a une ouverture légèrement supérieure de 5 × 5 mm pour une longueur de 16 mm. L'OPO en PPKTP émet des impulsions de 8 ns près de la dégénérescence à $\lambda_s = 2127$ nm et $\lambda_c = 2129$ nm. L'affinage du spectre est effectué en insérant un miroir de Bragg volumique dans la cavité [Thi11], technique qui a également été mise en place à KTH dans un OPO muni d'un cristal de PPLN [Zei14]. En imposant un rayon au waist de pompe de 1 mm et une fluence maximale de 3,8 J/cm² dans le

cristal de PPKTP de 10 mm de long, nous traçons la caractéristique en puissance de l'OPO avec le code Matlab. Le résultat est donné en Figure 4.13 et montre que nous avons suffisamment d'énergie pour pomper l'OPO en CdSe.

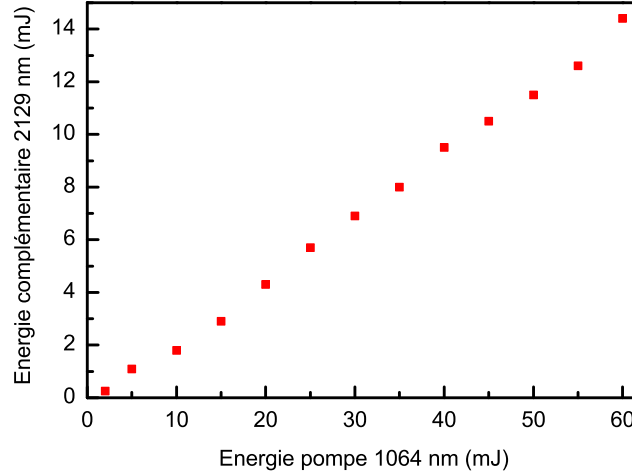


Figure 4.13 – Energie calculée du complémentaire à 2129 nm en fonction de l'énergie de pompe à 1064 nm pour l'OPO en PPKTP. L'espace d'air entre le cristal et les miroirs est de 2 mm et le coefficient de réflexion des miroirs pour l'onde signal est de 96 %.

L'OPO en CdSe sera pompé avec un faisceau collimaté dans le cristal avec un rayon au waist de 1 mm, grâce à l'utilisation d'une lentille cylindrique qui permettra de compenser la focalisation interne due à la courbure des faces. En supposant une longueur d'onde de pompe moyenne $\lambda_p = 2128 \text{ nm}$, l'acceptance spectrale de la pompe pour le CdSe vaut $\delta\lambda_p = \frac{\lambda_p^2}{2L} \frac{1}{n_{gp} - n_{gc}} = \pm 2 \text{ nm}$. Ainsi, bien que les longueurs d'onde signal et complémentaire émises par l'OPO en PPKTP soient distinctes, nous pouvons considérer que l'OPO en CdSe sera pompé à une longueur d'onde unique. Nous présentons en Figure 4.14 la caractéristique en puissance théoriquement attendue ainsi que la courbe d'accord de phase théorique du CdSe pour un pompage à 2128 nm déterminée avec le logiciel SNLO. D'après les calculs, la longueur d'onde minimale du complémentaire sera de 8,5 μm pour $\theta = 90^\circ$ et la longueur d'onde maximale de 16 μm . En pratique, la plage spectrale mesurable sera probablement limitée à 14 μm ($\theta = 65,2^\circ$) par les filtres interférentiels avec lesquels nous mesurons la longueur d'onde. Suite à ce pré-dimensionnement, il nous reste désormais à nous rendre à KTH, pour mesurer la courbe d'accord de phase du CdSe cylindrique et la caractéristique en puissance de l'OPO.

À travers les expériences de caractérisation des propriétés d'accordabilité du cristal de CdSe cylindrique par différence de fréquences ou dans un OPO, nous démontrons que ce cristal peut émettre un rayonnement complémentaire dans la gamme spectrale 8,5-16 μm . Il pourrait donc être utilisé en tant qu'amplificateur accordable pour les expériences de détection de gaz, sans avoir recours à deux cristaux de ZGP et de CdSe à faces planes. Pour atteindre $\lambda_c = 8 \mu\text{m}$ à

$\theta = 90^\circ$, il faudrait toutefois pomper le cristal à une longueur d'onde supérieure à 2370 nm.

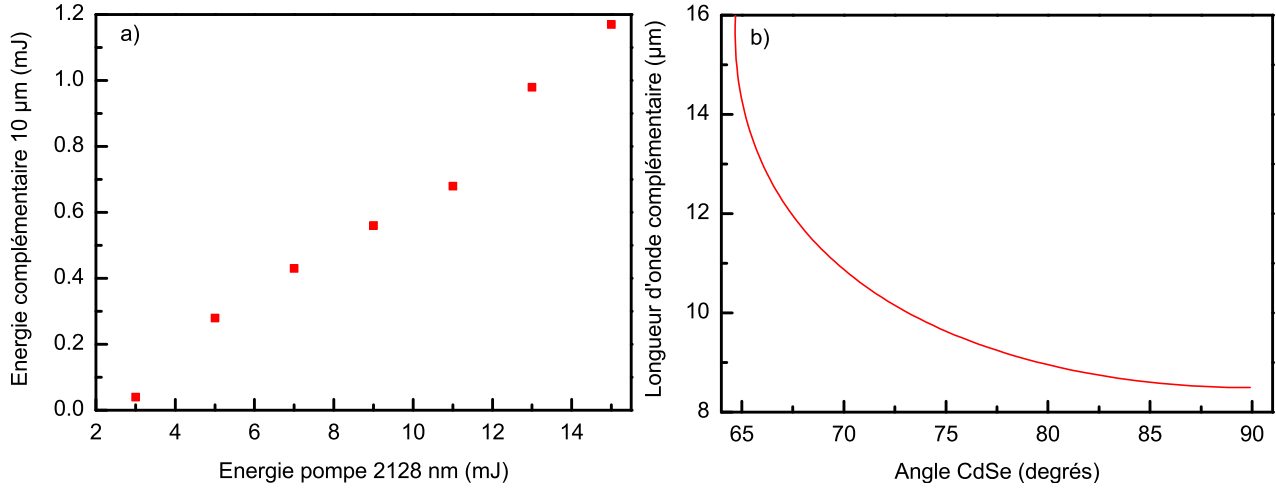


Figure 4.14 – a) Energie calculée du complémentaire à 10 μm en fonction de l'énergie de pompe à 2128 nm pour l'OPO en CdSe cylindrique. L'espace d'air entre le cristal et les miroirs est de 2 mm et le coefficient de réflexion des miroirs pour l'onde signal est de 95 %. b) Courbe d'accord de phase théorique en Type II du CdSe cylindrique pour un pompage à 2128 nm.

Synthèse

À travers l'amplification paramétrique optique, nous avons démontré que la montée en énergie était possible dans la gamme spectrale 6-16 μm , tout en conservant un faisceau fin spectralement après amplification. Ceci a notamment été illustré par l'amplification du rayonnement issu d'un laser à cascade quantique sur la plage spectrale 7,8-8,4 μm dans un cristal de ZGP. En optimisant l'expérience et en extrapolant ses performances maximales, des impulsions millijoules et monofréquences pourraient être produites autour de 8 μm . L'étude des propriétés d'accordabilité de ZGP et CdSe a confirmé que pour amplifier un faisceau sur l'intégralité de la gamme spectrale 6-16 μm , plusieurs cristaux sont nécessaires et ne pourraient pas être mis en série compte tenu de l'absorption de ZGP au-delà de 10 μm . Pour réduire leur nombre, nous avons caractérisé un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel, permettant notamment de couvrir la gamme spectrale 8,5-16 μm pour un pompage à 2128 nm. Ceci permettrait d'utiliser un seul cristal pour réaliser l'amplification sur cette plage spectrale, ce qui simplifierait la conception des étages amplificateurs tout en gagnant en compacité et qualité des faisceaux générés. Ayant étudié séparément la montée en énergie et la production d'impulsions monomodes longitudinales pour la détection d'espèces chimiques à distance, la prochaine étape est de combiner ces deux aspects afin d'élaborer une source MOPA monomode longitudinale, de haute énergie et largement accordable entre 6 et 16 μm .

Conclusion et perspectives

Ce travail a mis en évidence l'intérêt des sources cohérentes basées sur les oscillateurs paramétriques optiques pour la détection d'espèces chimiques à distance, dans la gamme spectrale dite "d'empreintes digitales" s'étendant de 6 à 16 μm , ce qui inclut la bande III de transmission de l'atmosphère (8-12 μm). À travers les expériences et les études théoriques présentées, nous avons démontré qu'il était possible d'élaborer des sources infrarouges comportant à la fois une faible largeur spectrale, une bonne qualité spatiale, une grande accordabilité en longueur d'onde dans la gamme spectrale 6-16 μm , et qu'il était également possible d'en augmenter l'énergie par amplification paramétrique pour potentiellement atteindre le millijoule sans dégradation des faisceaux.

Le premier chapitre a été essentiellement consacré au fonctionnement des oscillateurs paramétriques optiques et sur le choix des cristaux non linéaires permettant de réaliser une conversion de fréquence efficace au-delà de 6 μm en pompant autour de 2 μm . Après quelques rappels d'optique non linéaire, nous avons montré que bien qu'un OPO simplement résonnant soit adapté pour extraire de l'énergie sur l'onde complémentaire, un OPO doublement résonnant était préférable en régime impulsif afin d'avoir un spectre fin, idéalement monomode longitudinal. Puis, nous avons présenté deux techniques d'accord de phase très largement répandues : l'accord de phase par biréfringence et le quasi-accord de phase. Une étude comparative des différents cristaux biréfringents pouvant émettre entre 6 et 16 μm a permis d'identifier ZGP et CdSe comme les cristaux les plus à même d'y parvenir efficacement, de par leurs avantages complémentaires et leur maturité technologique. Pour le quasi-accord de phase, l'OP-GaAs a été identifié comme le cristal adéquat pour réaliser la conversion de longueur d'onde sur l'ensemble de la gamme spectrale 6-16 μm .

Dans le chapitre 2, nous avons décrit différentes expériences basées sur les trois cristaux non linéaires sélectionnés afin de concevoir un OPO émettant directement un faisceau monomode longitudinal et accordable en longueur d'onde dans une partie de la gamme spectrale 6-16 μm . Pour y parvenir, nous avons utilisé la configuration doublement résonnante à cavités imbriquées ou NesCOPO inventée à l'Onera, qui permet d'obtenir un faisceau monomode longitudinal en régime nanoseconde, à condition de choisir une dissociation des cavités ni trop faible ni trop

élevée.

Dans un premier temps, nous avons présenté la réalisation expérimentale du premier NesCOPO muni d'un cristal biréfringent de ZGP (projet DROSOFIL, collaboration avec l'équipe SLS de l'Onera). Toutefois, l'émission accordable entre 7,8 et 8,6 μm s'est révélée très instable, à cause des effets combinés d'interféromètres de Fabry-Perot parasites à la longueur d'onde de pompe et d'effets thermiques indésirables dus à la forte puissance moyenne de pompe. L'analyse du spectre a montré qu'une oscillation monomode longitudinale pouvait être obtenue pendant quelques minutes, mais que le spectre du faisceau complémentaire, ainsi que son profil spatial finissaient invariablement par se dégrader progressivement et simultanément. Cette dégradation a été attribuée aux effets thermiques : il serait possible de diminuer la puissance moyenne de la pompe pour éventuellement s'en affranchir. Finalement, cette première expérience a été riche d'enseignements mais les diverses instabilités auxquelles étaient soumis le NesCOPO n'ont pas pu permettre d'effectuer une mesure de détection de gaz.

Suite à ces résultats encourageants, nous avons conçu un NesCOPO muni d'un cristal d'OP-GaAs (projet MUSTARD, collaboration avec Thales et Teem Photonics). Nous avons montré que l'émission était stable et que la longueur d'onde pouvait être accordée entre 10,3 et 10,9 μm . Pour une dissociation bien choisie, l'analyse du spectre a mis en évidence une oscillation monomode longitudinale stable pendant plus d'une demi-heure : le NesCOPO en OP-GaAs est donc le premier OPO à émettre en régime nanoseconde un rayonnement monomode longitudinal, stable et accordable dont la longueur d'onde est incluse dans la gamme spectrale 6-16 μm . Afin de démontrer les capacités de cette nouvelle source pour la détection d'espèces chimiques à distance, nous avons détecté des vapeurs d'ammoniac qui présentent un ensemble de raies d'absorption autour de 10,4 μm . Pour cela, le NesCOPO a été placé en configuration LIDAR à une distance de 2 mètres. Les raies d'absorption ont été décrites avec une résolution inférieure à 0,1 cm^{-1} limitée par le monochromateur utilisé pour mesurer la longueur d'onde du complémentaire. Des raies d'absorption de quelques nanomètres de large ont pu également être identifiées, laissant supposer que d'éventuels interférents pourraient être distingués séparément. Cette expérience très prometteuse devrait par la suite être améliorée, notamment pour accorder la longueur d'onde complémentaire sur une plus grande plage spectrale afin de détecter un grand nombre d'espèces chimiques, notamment entre 8 et 11 μm . L'optique de détection devrait également être modifiée afin d'avoir une plus grande ouverture et ainsi augmenter la distance de détection.

Dans le chapitre 3, nous nous sommes intéressés à un nouveau type d'OPO basé sur la condition d'accord de phase élargie, appelé Sheet OPO de par sa petite taille de l'ordre de quelques centaines de microns. Ce nouveau type d'OPO présente naturellement une bande de gain instantanée très large, et peut même osciller avec des configurations de polarisation qui ne permettent pas de réaliser l'accord de phase par biréfringence. Compte tenu de sa taille, un tel

OPO est préférentiellement monolithique. Nous avons démontré que pour exploiter sa très large accordabilité, ce Sheet OPO devait être doublement résonnant, ce qui permet, de plus, d'atteindre facilement le seuil d'oscillation malgré la faible longueur du cristal. Nous avons ensuite élaboré un nouveau formalisme basé sur les nombres modaux signal et complémentaire, dans le but de déterminer les conditions d'oscillation du Sheet OPO. En particulier, nous avons montré que l'oscillation était uniquement possible avec un cristal biréfringent et que les configurations de polarisation de Type II sont les plus favorables pour obtenir un spectre monomode longitudinal. Nous avons finalement envisagé trois méthodes pour accorder la longueur d'onde d'émission du Sheet OPO tout en conservant une oscillation monomode longitudinale : par la longueur d'onde de la pompe, la longueur de la cavité ou bien la température du cristal. Des simulations numériques nous ont permis de prévoir pour chacune d'entre elles le contenu spectral du Sheet OPO. En pratique, si la source de pompe n'est pas finement accordable, la méthode d'accordabilité par température est la plus aisée à mettre en place. À la lumière des conclusions de cette étude théorique, nous avons présenté les étapes de conception et de montage d'un Sheet OPO en ZGP, destiné à émettre un faisceau complémentaire monomode longitudinal entre 7,3 et 8,6 μm en faisant varier la température du cristal. À terme, le Sheet OPO constituerait une source infrarouge à la fois innovante et extrêmement compacte, les simulations prévoyant la possibilité de concevoir un Sheet OPO en ZGP pompé à 1 μm ou un Sheet OPO en CdSe émettant à partir de 6,3 μm pour un pompage à 2 μm .

Dans le quatrième et dernier chapitre a été exposée la problématique de montée en énergie dans la gamme spectrale 6-16 μm . L'amplification paramétrique optique est une solution adaptée pour parvenir à augmenter l'énergie du faisceau complémentaire tout en conservant un spectre fin, sous réserve d'avoir une source de pompe elle-même spectralement fine. Grâce à une expérience d'amplification d'un laser à cascade quantique, nous avons démontré l'efficacité de nos cristaux de ZGP pour l'amplification paramétrique autour de 8 μm . Pour réaliser l'amplification au-delà de 10 μm , il est préférable d'utiliser un cristal de CdSe dont la transmission est excellente jusqu'à 16 μm mais sa faible biréfringence nécessite de grands angles, généralement inaccessibles avec un cristal parallélépipédique. Pour pallier cette difficulté, nous avons présenté un cristal de CdSe taillé en cylindre partiel, dont la caractérisation par différence de fréquences a montré qu'il pouvait générer (et donc potentiellement amplifier) des longueurs d'onde entre 8,3 et 14,2 μm , et même au-delà jusqu'à 16 μm . Les propriétés d'accordabilité du cristal devront être caractérisées plus en détail, par exemple en l'insérant dans un OPO pompé à 2 μm . Ainsi, en utilisant un cristal de ZGP suivi d'un cristal de CdSe cylindrique, il serait possible de réaliser la montée en énergie sur l'ensemble de la gamme spectrale 6-16 μm avec seulement deux cristaux. Cette solution présente un intérêt de premier plan dans le but de réaliser un système MOPA fin spectralement de haute énergie entre 6 et 16 μm . A noter que l'emploi de AgGaSe_2 comme cristal amplificateur à basse cadence serait également à reconsidérer à la lumière des

progrès réalisés sur les lasers de pompe à 2 μm .

Durant cette thèse, l'affinage du spectre du faisceau complémentaire et la montée en énergie ont été étudiés séparément. En perspective, l'idéal serait désormais de réunir ces deux aspects à travers la réalisation d'un système MOPA puis de l'intégrer dans un LIDAR afin d'effectuer des tirs dans l'atmosphère. À l'issue de cette thèse, toutes les briques élémentaires sont disponibles pour concevoir et dimensionner le système MOPA : un NesCOPO en OP-GaAs pourrait être utilisé comme oscillateur maître (avec une accordabilité améliorée), suivi d'une chaîne d'amplification basée sur un cristal de ZGP et un cristal de CdSe cylindrique. Supposons que le NesCOPO puisse être pompé par la source MOPA à 2 μm : en optimisant la cavité et en utilisant le même cristal d'OP-GaAs, il serait possible d'extraire jusqu'à 7 μJ sur l'onde complémentaire en sortie d'OPO avec la même énergie de pompe. Un gain de 20 serait potentiellement atteignable avec le cristal de CdSe cylindrique dont nous disposons, portant l'énergie du complémentaire à 140 μJ à 10,3 μm . En utilisant un autre cristal d'OP-GaAs pouvant émettre autour de 8 μm , il serait possible d'avoir recours à un amplificateur en ZGP sans absorption du complémentaire. Toutes choses égales par ailleurs (dimensions du cristal, waists intracavité, seuil, dépeuplement de la pompe), l'énergie maximale en sortie du NesCOPO est estimée à 9 μJ à 8,3 μm (défaut quantique plus favorable) et un gain de 700 serait attendu avec un seul cristal de ZGP de 15 mm de long, conduisant à une énergie de 6,3 mJ à 8,3 μm . Le NesCOPO pourrait éventuellement être remplacé par un Sheet OPO pour gagner en compacité, et un pré-amplificateur en OP-GaAs pourrait être ajouté en début de chaîne d'amplification pour faciliter la montée en énergie, notamment avec l'amplificateur en CdSe cylindrique. La réalisation expérimentale du MOPA est à ce jour conditionnée par la disponibilité d'une source à la fois fine spectralement et suffisamment énergétique à 2 μm , actuellement en cours de développement dans le cadre des autres thèses effectuées au sein du laboratoire.

Annexe A

Equations de propagation non linéaires du champ électrique

La physique des processus non linéaires d'ordre 2 est décrite par un ensemble d'équations différentielles couplées faisant intervenir les champs électromagnétiques des ondes pompe, signal et complémentaire. Nous allons voir comment obtenir ces équations à partir des équations de Maxwell et quelles sont les diverses approximations et hypothèses permettant de les écrire sous la forme présentée au chapitre 1. Tout d'abord, bien que la pompe soit une onde électromagnétique, nous ne nous intéressons qu'aux effets non linéaires induits par les dipôles créés par l'action de son champ électrique sur les atomes composant le matériau diélectrique qu'elle traverse. Les effets non linéaires induits par la partie magnétique de la force de Lorentz ou par le développement multipolaire des dipôles seront négligés car ils sont beaucoup plus faibles. Ils peuvent cependant provoquer des situations inattendues, telles que l'apparition d'effets non linéaires d'ordre 2 dans les matériaux centro-symétriques.

Nous proposons une résolution des équations en ondes planes, hypothèse a priori risquée car la pompe est généralement une onde issue d'un laser obéissant aux lois de l'optique gaussienne. Les modèles qui en découlent permettent malgré tout une modélisation correcte des expériences décrites dans ce manuscrit. Dans un milieu diélectrique, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad , \quad (\text{A.1})$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad , \quad (\text{A.2})$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad , \quad (\text{A.3})$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad , \quad (\text{A.4})$$

où $\vec{E}$ est le champ électrique, $\vec{B}$ le champ magnétique, $\vec{D}$ le vecteur déplacement électrique, $\vec{H}$ le vecteur induction magnétique, $\vec{j}$ la densité de courant libre et ρ la densité de charge libre. Dans un milieu diélectrique, on a la relation constitutive $\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H}$, qui se simplifie pour un milieu non magnétique ($\mu_r = 1$) par $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$. De plus, on a par définition $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ où $\vec{P}$ est la polarisation rayonnée par les dipôles sous l'action du champ électrique de la pompe. En supposant un milieu sans courant et sans charges ($\vec{j} = \vec{0}$) et combinant les équations A.3 et A.4, on obtient l'équation de propagation :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \left(\frac{\partial^2 \vec{P}_L}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \right), \quad (\text{A.5})$$

où on a utilisé la relation $\epsilon_0 \mu_0 c^2 = 1$ et où la polarisation rayonnée a été séparée en une composante linéaire $\vec{P}_L$ et non linéaire $\vec{P}_{NL}$. Ecrivons maintenant l'équation de propagation dans le domaine fréquentiel, en utilisant la correspondance $\frac{\partial^2}{\partial t^2} \longleftrightarrow -\omega^2$:

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E} = \mu_0 \omega^2 (\vec{P}_L + \vec{P}_{NL}). \quad (\text{A.6})$$

On néglige ensuite la dépendance en fréquence de la susceptibilité linéaire afin de relier directement la polarisation au champ électrique via la relation $\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \vec{E}(\omega)$. Cette hypothèse est valable si on considère un milieu non dispersif, ou bien en supposant que l'enveloppe du champ électrique est lentement variable et qu'on se situe loin de toute résonance. A noter que la dépendance en fréquence de la susceptibilité peut être réintroduite par la suite. L'équation de propagation peut alors s'écrire sous la forme :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_r \vec{E} + \mu_0 \omega^2 \vec{P}_{NL}. \quad (\text{A.7})$$

Puis, on exprime le champ $\vec{E}$ sous la forme $\vec{E} = A(\omega) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) \vec{e}$ où $A(\omega)$ est l'amplitude complexe du champ électrique. L'expression du produit vectoriel est alors donné par :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = \left(-A \vec{k} \wedge \vec{k} \wedge \vec{e} + i \left(\vec{\nabla} A \wedge \vec{k} \wedge \vec{e} + \vec{k} \wedge \vec{\nabla} A \wedge \vec{e} \right) + \vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} A \wedge \vec{e} \right) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}). \quad (\text{A.8})$$

On choisit alors pour $\vec{e}$ la direction d'un mode de propagation propre dans le cristal (par exemple la polarisation ordinaire ou extraordinaire pour un milieu uniaxe). En insérant A.8 dans A.7 on voit apparaître l'équation de propagation dans un milieu isotrope $\vec{k} \wedge \vec{k} \wedge \vec{e} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_r \vec{e} = \vec{0}$. De plus, en faisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable, les dérivées secondes spatiales peuvent être négligées :

$$\left| \frac{\partial^2 A}{\partial x_i \partial x_j} \right| \ll \left| k \frac{\partial A}{\partial x_i} \right|. \quad (\text{A.9})$$

Ainsi, l'équation de propagation devient :

$$i \left(\vec{\nabla} A \wedge \vec{k} \wedge \vec{e} + \vec{k} \wedge \vec{\nabla} A \wedge \vec{e} \right) = \mu_0 \omega^2 \vec{P}_{NL} \exp \left(-i \vec{k} \cdot \vec{r} \right). \quad (\text{A.10})$$

Effectuons enfin le produit scalaire avec $\vec{e}$ pour chaque membre de la relation A.10 et utilisons la formule du double produit vectoriel $\vec{u} \wedge \vec{v} \wedge \vec{w} = (\vec{u} \cdot \vec{w}) \vec{v} - (\vec{u} \cdot \vec{v}) \vec{w}$. On obtient :

$$2i \vec{\nabla} A \cdot (\vec{k} \wedge \vec{e} \wedge \vec{e}) = \mu_0 \omega^2 \vec{e} \cdot \vec{P}_{NL} \exp \left(-i \vec{k} \cdot \vec{r} \right). \quad (\text{A.11})$$

La dernière étape consiste à se placer dans le repère défini par les vecteurs $(\vec{D}, \vec{H}, \vec{k})$ pour faire intervenir l'angle de walk-off α . Dans ce repère, les vecteurs $\vec{k}$, $\vec{e}$ et le vecteur de Poynting $\vec{S}$ sont définis par :

$$\vec{k} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ k \end{pmatrix}, \quad \vec{e} = \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ 0 \\ \sin \alpha \end{pmatrix}, \quad \vec{S} = \begin{pmatrix} -\sin \alpha \\ 0 \\ \cos \alpha \end{pmatrix}. \quad (\text{A.12})$$

On montre alors que $\vec{k} \wedge \vec{e} \wedge \vec{e} = -k \cos \alpha \vec{S}$ où $\vec{S}$ est le vecteur de Poynting et l'équation de propagation devient finalement :

$$-\tan \alpha \frac{\partial A}{\partial x} + \frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i\omega}{2nc\varepsilon_0 \cos^2(\alpha)} \vec{e} \cdot \vec{P}_{NL} \exp \left(-i \vec{k} \cdot \vec{r} \right). \quad (\text{A.13})$$

Le walk-off est souvent négligé en première approximation, conduisant à l'équation suivante fréquemment rencontrée dans les ouvrages d'optique non linéaire :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i\omega}{2nc\varepsilon_0} \vec{e} \cdot \vec{P}_{NL} \exp \left(-i \vec{k} \cdot \vec{r} \right). \quad (\text{A.14})$$

Cette équation peut être ensuite exprimée pour les trois ondes pompe, signal et complémentaire, en écrivant explicitement la polarisation non linéaire $\vec{P}_{NL} = \varepsilon_0 \chi(\omega_i) \vec{E}_j \vec{E}_k$. Pour chaque onde, un terme de la forme $\chi_{\text{eff}} = \vec{e}_i \cdot \chi(\omega_i) \vec{e}_j \vec{e}_k$, défini comme la susceptibilité non linéaire effective, apparaît alors dans l'équation de propagation. Pour un milieu sans pertes, la symétrie de Kleinman est valide ce qui implique que le terme χ_{eff} est le même pour les trois équations. Ainsi, en définissant le vecteur d'accord de phase $\Delta \vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c$, on obtient les trois équations

de propagation :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial A_s}{\partial z} &= \frac{i\omega_s}{2n_sc} \chi_{\text{eff}} A_p A_c^* \exp(i\Delta kz), \\
 \frac{\partial A_c}{\partial z} &= \frac{i\omega_c}{2n_cc} \chi_{\text{eff}} A_p A_s^* \exp(i\Delta kz), \\
 \frac{\partial A_p}{\partial z} &= \frac{i\omega_p}{2n_pc} \chi_{\text{eff}} A_s A_c \exp(-i\Delta kz),
 \end{aligned} \tag{A.15}$$

où * désigne le complexe conjugué. Les équations de propagation des amplitudes normalisées 1.2 et des phases 1.3 s'en déduisent aisément en remplaçant l'amplitude du champ par son expression $A = \sqrt{\frac{\omega}{n}} u \exp(i\varphi)$.

Annexe B

Résolution des équations de propagation non linéaires

Les équations de propagation non linéaires du champ électrique sont des équations couplées dont la résolution peut s'avérer difficile. Certaines approximations sont souvent effectuées au préalable pour faciliter la résolution. La plus courante d'entre elles est l'approximation de non déplétion de la pompe, qui suppose constante l'amplitude du champ électrique de la pompe. Ceci permet de découpler les équations sans difficulté, par exemple en dérivant l'une d'entre elles. Cette approximation est valable dans de nombreuses situations expérimentales, notamment près du seuil et lorsque l'efficacité du processus non linéaire est faible. En revanche, elle n'est plus vérifiée en cas de forte interaction et ceci a des conséquences sur le gain d'un OPO ou d'un OPA, notamment lorsqu'il y a reconversion des ondes générées vers la pompe. Les premières sections de cette annexe détaillent la résolution des équations de propagation non linéaires sans faire l'approximation de non déplétion de la pompe, tout d'abord à l'accord de phase et ensuite hors accord de phase. Le premier cas permettra de détailler le calcul du gain de l'OPA présenté au chapitre 4, tandis que le second cas correspond à la situation du Sheet OPO présenté au chapitre 3. Pour déduire une expression simple du gain du Sheet OPO au seuil d'oscillation, nous effectuerons enfin la résolution hors accord de phase dans l'approximation de non déplétion de la pompe.

B.1 Résolution des équations à l'accord de phase

Reprenons les équations de propagation de base sur l'amplitude normalisée des champs données en 1.2 et plaçons nous en géométrie colinéaire à l'accord de phase $\Delta k = 0$. Dans ce cas, le déphasage relatif entre les ondes permettant de maximiser l'efficacité du processus d'interaction non linéaire est $\varphi = -\frac{\pi}{2}$. L'équation sur l'onde signal s'écrit alors :

$$\frac{du_s}{dz} = \kappa u_c(z) u_p(z). \quad (\text{B.1})$$

Les relations de Manley-Rowe permettent d'exprimer $u_c(z)$ et $u_p(z)$ en fonction des constantes m_2 et m_3 définies en 1.6 :

$$\begin{aligned} u_c &= \sqrt{u_s^2 - m_3}, \\ u_p &= \sqrt{m_2 - u_s^2}. \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Par séparation des variables dans B.1, on obtient l'équation suivante :

$$\kappa dz = \frac{du_s}{\sqrt{m_2 - u_s^2} \sqrt{u_s^2 - m_3}}. \quad (\text{B.3})$$

Cette équation peut alors s'intégrer :

$$\kappa L = \int_{u_s(0)}^{u_s(L)} \frac{du_s}{\sqrt{m_2 - u_s^2} \sqrt{u_s^2 - m_3}}. \quad (\text{B.4})$$

Le calcul de l'intégrale du membre de droite est possible à l'aide des fonctions de Jacobi [Abr70], fonctions à arguments complexes méromorphes et doublement périodiques. Nous utilisons pour cela la relation :

$$\text{sn}^{-1} \left(\frac{x}{b}, \frac{b^2}{a^2} \right) = a \int_0^x \frac{dt}{\sqrt{a^2 - t^2} \sqrt{b^2 - t^2}}, \quad (\text{B.5})$$

où sn^{-1} est la fonction réciproque de la fonction sinus de Jacobi notée sn . En remaniant légèrement B.4 et en utilisant la linéarité de l'intégrale, on obtient finalement :

$$i\sqrt{m_2}\kappa L = \text{sn}^{-1} \left(\frac{u_s(L)}{\sqrt{m_3}}, \frac{m_3}{m_2} \right) - \text{sn}^{-1} \left(\frac{u_s(0)}{\sqrt{m_3}}, \frac{m_3}{m_2} \right). \quad (\text{B.6})$$

Pour extraire $u_s(L)$ de cette relation, il est possible d'appliquer la fonction sn à chaque membre puis d'utiliser certaines formules de trigonométrie relatives aux fonctions de Jacobi : l'expression finale est alors compliquée. En revanche, le calcul est simplifié dans le cas où le signal est initialement nul ($u_s(0) = 0$), par exemple lorsqu'une onde dite complémentaire est amplifiée par une onde de pompe extérieure dans un cristal non linéaire par OPA. Il s'agit exactement de l'expérience d'amplification du laser à cascade quantique dans un cristal de ZGP détaillée au chapitre 4. L'amplitude normalisée de l'onde signal s'exprime alors de façon simple :

$$u_s(L) = \sqrt{m_3} \operatorname{sn} \left(i\sqrt{m_2} \kappa L, \frac{m_3}{m_2} \right) \quad (\text{B.7})$$

A partir de cette expression, nous pouvons calculer le gain d'amplification de l'onde complémentaire en donnant l'expression des constantes m_2 et m_3 . Comme $u_s(0) = 0$, la constante m_3 permet d'écrire $u_s(L) = u_c(L) - u_c(0)$. De plus, on a les relations :

$$\begin{aligned} m_2 &= u_p^2(0) = \frac{2I_p(0)}{c\varepsilon_0\omega_p} \quad , \\ m_3 &= -u_c^2(0) = \frac{2I_c(0)}{c\varepsilon_0\omega_p} \quad . \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

En insérant [B.8](#) dans [B.7](#) après élévation au carré, on en déduit l'amplitude normalisée de l'onde complémentaire :

$$u_c^2(L) = u_c^2(0) \left(1 - \operatorname{sn}^2 \left(i\kappa L u_p(0), -\frac{\omega_p I_c(0)}{\omega_c I_p(0)} \right) \right). \quad (\text{B.9})$$

En utilisant la relation $\operatorname{sn}^2 + \operatorname{cn}^2 = 1$, on obtient finalement l'expression du gain de l'onde complémentaire prenant en compte la déplétion de la pompe :

$$G = \frac{u_c^2(L)}{u_c^2(0)} = \operatorname{cn}^2 \left(i\kappa L u_p(0), -\frac{\omega_p I_c(0)}{\omega_c I_p(0)} \right). \quad (\text{B.10})$$

B.2 Résolution des équations hors accord de phase : calcul du gain du Sheet OPO

B.2.1 Cas général

Nous nous proposons maintenant de résoudre les équations de propagation sur l'amplitude normalisée des champs hors accord de phase. Ce cas intervient notamment dans le Sheet OPO, qui oscille la plupart du temps loin de l'accord de phase exact. Commençons le calcul à partir de l'équation différentielle donnant l'évolution de l'amplitude normalisée de l'onde complémentaire :

$$\frac{du_c}{dz} = \kappa u_s u_p \sin(\phi), \quad (\text{B.11})$$

avec $\phi(z) = \varphi(z) + \Delta k z$. La première étape consiste à éliminer le terme $\sin(\phi)$ de l'équation [B.11](#) en faisant intervenir la constante Γ définie en 1.7. En utilisant la relation $\sin(\phi) =$

$\sqrt{1 - \cos^2(\phi)}$, il vient :

$$\sin(\phi) = \sqrt{1 - \left(\frac{\Gamma - \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)} u_p^2}{u_s u_c u_p} \right)^2}. \quad (\text{B.12})$$

On reporte ensuite cette expression dans l'équation différentielle [B.11](#) qui devient

$$\frac{du_c}{dz} = \kappa u_s u_p \sqrt{1 - \left(\frac{\Gamma - \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)} u_p^2}{u_s u_c u_p} \right)^2} = \frac{\kappa}{u_c} \sqrt{u_s^2 u_c^2 u_p^2 - \left(\Gamma - \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)} u_p^2 \right)^2}. \quad (\text{B.13})$$

Cette équation différentielle s'intègre de la façon suivante :

$$\kappa L = \int_{u_c(0)}^{u_c(L)} \frac{u_c du_c}{\sqrt{u_s^2 u_c^2 u_p^2 - \left(\Gamma - \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)} u_p^2 \right)^2}}. \quad (\text{B.14})$$

Intéressons nous maintenant au terme sous la racine carrée. Il est possible de le réécrire uniquement en fonction de u_c , Γ et ΔS à l'aide des constantes de Manley-Rowe : $u_s = \sqrt{m_3 + u_c^2}$ et $u_p = \sqrt{m_1 - u_c^2}$. Ce terme devient alors un polynôme en u_c :

$$P(u_c) = u_s^2 u_c^2 u_p^2 - \left(\Gamma - \frac{\Delta k}{\kappa u_p(0)} u_p^2 \right)^2 = u_c^2 (m_3 + u_c^2) (m_1 - u_c^2) - \left(\Gamma - \frac{\Delta k}{2\kappa u_p(0)} (m_1 - u_c^2) \right)^2. \quad (\text{B.15})$$

En développant chaque terme, le polynôme se réécrit sous la forme d'un polynôme d'ordre 3 en u_c^2 :

$$P(u_c) = a_3 (u_c^2)^3 + a_2 (u_c^2)^2 + a_1 (u_c^2) + a_0, \quad (\text{B.16})$$

dont les coefficients sont donnés par :

$$\begin{aligned} a_3 &= -1, \\ a_2 &= m_1 - m_3 - \frac{\Delta k^2}{4\kappa^2 u_p^2(0)}, \\ a_1 &= m_1 m_3 - \Gamma \frac{\Delta k}{\kappa u_p(0)} + m_1 \frac{\Delta k^2}{2\kappa^2 u_p^2(0)}, \\ a_0 &= m_1 \Gamma \frac{\Delta k}{\kappa u_p(0)} - \Gamma^2 - m_1 \frac{\Delta k^2}{4\kappa^2 u_p^2(0)}. \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

On peut ensuite écrire le polynôme sous forme factorisée :

$$P(u_c) = (u_c^2 - X_1)(u_c^2 - X_2)(u_c^2 - X_3), \quad (\text{B.18})$$

où X_1 , X_2 et X_3 sont solutions de l'équation $P(u_c) = 0$. Leur expression est donnée par les solutions générales du polynôme d'ordre 3 en fonction des coefficients $a_{0,1,2,3}$. L'équation [B.14](#) s'écrit alors :

$$\kappa L = \int_{u_c(0)}^{u_c(L)} \frac{u_c du_c}{\sqrt{(u_c^2 - X_1)(u_c^2 - X_2)(u_c^2 - X_3)}}. \quad (\text{B.19})$$

Effectuons maintenant le changement de variables $U_c = u_c^2$. L'équation [B.19](#) devient :

$$\kappa L = \frac{1}{2} \int_{U_c(0)}^{U_c(L)} \frac{dU_c}{\sqrt{(U_c - X_1)(U_c - X_2)(U_c - X_3)}}. \quad (\text{B.20})$$

Nous effectuons ensuite un nouveau changement de variable $t^2 = \frac{U_c - X_1}{X_2 - X_1}$ qui conduit à

$$\kappa L = \frac{1}{2} \int_{t(0)}^{t(L)} \frac{2(X_2 - X_1) t dt}{t(X_2 - X_1) \sqrt{(t^2 - 1) \left(\frac{X_2 - X_1}{X_3 - X_1} t^2 - 1 \right)}}. \quad (\text{B.21})$$

En posant $m^2 = \frac{X_2 - X_1}{X_3 - X_1}$, l'équation [B.21](#) se réécrit

$$\kappa L = \frac{1}{\sqrt{X_3 - X_1}} \int_{t(0)}^{t(L)} \frac{dt}{\sqrt{1 - t^2} \sqrt{1 - m^2 t^2}}. \quad (\text{B.22})$$

Il est alors possible de calculer l'intégrale à l'aide des fonctions de Jacobi :

$$\kappa L \sqrt{X_3 - X_1} = \text{sn}^{-1}(t(L), m) - \text{sn}^{-1}(t(0), m). \quad (\text{B.23})$$

En posant

$$L_X = \frac{\text{sn}^{-1}(t(0), m)}{\sqrt{X_3 - X_1}}, \quad (\text{B.24})$$

on obtient finalement :

$$t(L) = \text{sn} \left(\kappa \sqrt{X_3 - X_1} (L + L_X), m \right), \quad (\text{B.25})$$

soit

$$u_c^2(L) = X_1 + (X_2 - X_1) \text{sn}^2 \left(\kappa \sqrt{X_3 - X_1} (L + L_X), m \right). \quad (\text{B.26})$$

Nous obtenons ainsi l'expression de l'amplitude normalisée de l'onde complémentaire hors

accord de phase. Dans le cas du Sheet OPO, le gain en intensité s'en déduit en calculant $G = \frac{u_c^2(L)}{u_c^2(0)} = \frac{I_c(L)}{I_c(0)}$. Son expression est très compliquée et le calcul du seuil via la condition d'oscillation $GR^2 = 1$ nécessiterait un très long calcul numérique pour extraire $u_p(0)$. Nous allons voir dans la prochaine sous-section qu'une simplification est possible en effectuant l'hypothèse de non déplétion de la pompe.

B.2.2 Approximation de non déplétion de la pompe

L'hypothèse de non déplétion de la pompe, a priori valide au seuil, suppose que l'amplitude normalisée de la pompe u_p peut être considérée comme constante au cours de la propagation dans le cristal non linéaire. La résolution des équations de propagation ne comporte alors aucune difficulté particulière et le champ électrique, ici donné pour l'onde complémentaire, prend une forme bien connue :

$$E_c(L) = \exp\left(i\frac{\Delta k}{2}L\right) \left[\frac{\eta_c}{\gamma} E_s^*(0) \sinh(\gamma L) + E_c(0) \left[\cosh(\gamma L) - i\frac{\Delta k}{2\gamma} \sinh(\gamma L) \right] \right], \quad (\text{B.27})$$

où le paramètre η_s est défini par :

$$\eta_c = i \frac{\pi \chi_{\text{eff}}}{n_c \lambda_c} |E_p(0)| \exp(i\varphi_p(0)). \quad (\text{B.28})$$

La solution pour le complémentaire s'écrit de façon identique en permutant les indices s et c. Avec ces notations, l'intensité des ondes signal et complémentaire est alors donnée par :

$$I_{s,c}(L) = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \omega_{s,c} u_{s,c}^2(L) = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 n_{s,c} |E_{s,c}^2(L)|. \quad (\text{B.29})$$

Finalement, le gain en intensité pour le complémentaire après un passage dans le cristal a pour expression

$$G = \frac{I_c(L)}{I_c(0)} = \cosh^2(\gamma L) + \left(|\eta_c|^2 \frac{|E_{s0}|^2}{|E_{c0}|^2} + i\frac{\Delta k}{2} \left(\eta_c \frac{E_{s0}^*}{E_{c0}} - \eta_c^* \frac{E_{s0}}{E_{c0}^*} \right) + \frac{\Delta k^2}{4} \right) \frac{\sinh^2(\gamma L)}{\gamma^2} + \frac{1}{2\gamma} \left(\eta_c \frac{E_{s0}^*}{E_{c0}} + \eta_c^* \frac{E_{s0}}{E_{c0}^*} \right) \sinh(2\gamma L), \quad (\text{B.30})$$

où l'indice 0 a été utilisé pour les expressions des champs en $z = 0$. Pour des raisons de simplicité, nous considérons le cas d'un DRO équilibré, dont les miroirs ont le même coefficient de réflexion pour l'onde signal et l'onde complémentaire. De ce fait, $u_s(L) = u_c(L)$ et $u_c(L) =$

$u_c(0)$ car l'amplitude normalisée u est proportionnelle au flux de photons. L'expression du gain [B.30](#) se simplifie et s'écrit de la façon suivante :

$$G = \cosh^2(\gamma L) + \left(\kappa^2 u_p^2 + \frac{\Delta k^2}{4} - \kappa u_p \Delta k \cos(\varphi_0) \right) \frac{\sinh^2(\gamma L)}{\gamma^2} - \frac{\kappa u_p}{\gamma} \sin(\varphi_0) \sinh(2\gamma L). \quad (\text{B.31})$$

Le calcul du seuil du Sheet OPO à partir de la condition d'oscillation $GR^2 = 1$ est finalement donné dans le chapitre 3.

Annexe C

Détail des calculs d'accordabilité par sauts de modes dans le Sheet OPO

C.1 Accordabilité via la longueur de cavité

Les calculs effectués dans le cadre de l'accordabilité du Sheet OPO en faisant varier la longueur de cavité sont détaillés dans cette section. Comme l'onde signal et l'onde complémentaire sont résonnantes dans la cavité, leur déphasage respectif φ_s et φ_c après un aller-retour de cavité peut s'écrire sous la forme

$$\varphi_{s,c}(\nu_{s,c}, L_0) = \frac{4\pi\nu_{s,c}n_{s,c}(\nu_{s,c})L_0}{c} = 2\pi m_{s,c}, \quad (\text{C.1})$$

où L_0 représente la longueur de la cavité pour la coïncidence exacte initiale. En augmentant ou en diminuant la longueur de la cavité, une nouvelle coïncidence exacte peut être trouvée après Δm_s et Δm_c sauts de mode. Le déphasage du signal et du complémentaire s'écrit alors :

$$\varphi_s(\nu_s + \Delta\nu, L_0 + \Delta L) = 2\pi(m_s + \Delta m_s), \quad (\text{C.2})$$

$$\varphi_c(\nu_c - \Delta\nu, L_0 + \Delta L) = 2\pi(m_c - \Delta m_c), \quad (\text{C.3})$$

où $\Delta\nu$ est la différence de fréquence séparant les deux coïncidences exactes et ΔL est la variation de longueur de cavité permettant de passer d'une coïncidence exacte à la suivante. Comme la longueur d'onde de pompe est ici fixée, la conservation de l'énergie impose l'égalité $\Delta\nu = \Delta\nu_s = \Delta\nu_c$. L'objectif est maintenant de déterminer l'expression de ΔL . La première étape consiste à faire un développement de Taylor au premier ordre des phases en $\Delta\nu$ et ΔL :

$$2\pi\Delta m_s = \Delta\nu \frac{\partial\varphi_s}{\partial\nu} \big|_{\nu_s} + \Delta L \frac{\partial\varphi_s}{\partial L} \big|_{L_0}, \quad (\text{C.4})$$

$$2\pi\Delta m_c = \Delta\nu \frac{\partial\varphi_c}{\partial\nu} \big|_{\nu_c} - \Delta L \frac{\partial\varphi_c}{\partial L} \big|_{L_0}. \quad (\text{C.5})$$

Après avoir calculé les dérivées partielles de la phase, on obtient :

$$\Delta m_s = \frac{n_{\text{gs}}}{\nu_0^{\text{ISL}}} \Delta\nu + \frac{2n_s\nu_s}{c} \Delta L, \quad (\text{C.6})$$

$$\Delta m_c = \frac{n_{\text{gc}}}{\nu_0^{\text{ISL}}} \Delta\nu - \frac{2n_c\nu_c}{c} \Delta L. \quad (\text{C.7})$$

Ces deux équations peuvent se combiner en éliminant le terme ν_0^{ISL} , ce qui conduit à

$$\frac{1}{n_{\text{gs}}} \left(\Delta m_s - \frac{2n_s\nu_s}{c} \Delta L \right) = \frac{1}{n_{\text{gc}}} \left(\Delta m_c + \frac{2n_c\nu_c}{c} \Delta L \right). \quad (\text{C.8})$$

En introduisant les paramètres $\varepsilon = \Delta m_s - \Delta m_c$ et $\Delta n_g = n_{\text{gs}} - n_{\text{gc}}$, l'équation C.8 se réécrit sous la forme :

$$\frac{1}{n_{\text{gc}}} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_{\text{gs}}} + \varepsilon \right) = \left(\frac{n_s\nu_s}{n_{\text{gs}}} + \frac{n_c\nu_c}{n_{\text{gc}}} \right) \frac{2\Delta L}{c}. \quad (\text{C.9})$$

Cette équation décrit les sauts de mode entre deux coïncidences exactes quand la longueur de cavité varie. Elle peut être simplifiée en considérant un indice de groupe moyen $n_g \approx n_{\text{gs}} \approx n_{\text{gc}}$ et un indice de réfraction moyen $n \approx n_s \approx n_c$:

$$\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon = (\nu_s + \nu_c) \frac{2n\Delta L}{c}. \quad (\text{C.10})$$

En utilisant la relation de conservation de l'énergie $\nu_p = \nu_s + \nu_c$, on obtient finalement

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{nX_p} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon \right). \quad (\text{C.11})$$

Le paramètre principal de cette relation est la dissociation due à la dispersion chromatique, $\frac{\Delta n_g}{n_g}$. À partir de cette expression, nous pouvons calculer ΔL dans les cas $\varepsilon = 0$ et $\varepsilon = \pm 1$, pour retrouver les expressions données dans le chapitre 3.

Nous avons également développé une procédure numérique pour déterminer le contenu spectral du Sheet OPO lorsque la longueur de cavité varie. Tout d'abord, la longueur de cavité est imposée et est considérée comme approximative. Le début de la procédure reprend les étapes de celle établie pour l'accordabilité via la longueur d'onde de pompe, et nous obtenons de la même façon les nombres modaux exacts m_s et m_c . L'étape suivante consiste à calculer la longueur

d'onde exacte du signal en utilisant la relation de conservation de l'énergie et la condition de double résonance. Ceci amène à résoudre une équation implicite dont la solution est λ_s . Cette équation implicite se résout numériquement en faisant intervenir les relations de Sellmeier pour l'indice de réfraction :

$$m_s \frac{\lambda_s}{n(\lambda_s)} = \frac{m_c}{n\left(\frac{\lambda_p \lambda_s}{\lambda_s - \lambda_p}\right)} \frac{\lambda_p \lambda_s}{\lambda_s - \lambda_p}. \quad (\text{C.12})$$

La longueur de cavité exacte se déduit finalement de la relation suivante :

$$L = \frac{m_s}{2} \frac{\lambda_s}{n(\lambda_s)}. \quad (\text{C.13})$$

C.2 Accordabilité via la température du cristal

Nous présentons ici le détail des calculs effectués pour l'accordabilité du Sheet OPO en faisant varier la température du cristal. Les principes sont les mêmes que pour l'accordabilité via la longueur de cavité, mais l'indice de réfraction dépend maintenant à la fois de la fréquence et de la température. Nous commençons par écrire le déphasage des ondes résonnantes signal et complémentaire après un aller-retour de cavité :

$$\varphi_{s,c}(\nu_{s,c}, T_0) = \frac{4\pi\nu_{s,c}n_{s,c}(\nu_{s,c}, T_0)L}{c} = 2\pi m_{s,c}, \quad (\text{C.14})$$

où T_0 représente la température du cristal pour la coincidence exacte initiale. En augmentant ou en diminuant la température une nouvelle coincidence exacte peut être trouvée après Δm_s et Δm_c sauts de mode. Le déphasage du signal et du complémentaire s'écrit alors :

$$\varphi_s(\nu_s + \Delta\nu, T_0 + \Delta T) = 2\pi(m_s + \Delta m_s), \quad (\text{C.15})$$

$$\varphi_c(\nu_c - \Delta\nu, T_0 + \Delta T) = 2\pi(m_c - \Delta m_c), \quad (\text{C.16})$$

où $\Delta\nu$ est la différence de fréquence séparant les deux coincidences exactes et ΔT est la variation de température permettant de passer d'une coincidence exacte à la suivante. La longueur d'onde de pompe étant fixée, la conservation de l'énergie impose l'égalité $\Delta\nu = \Delta\nu_s = \Delta\nu_c$. La première étape pour déterminer ΔT consiste à faire un développement de Taylor au premier ordre des phases en $\Delta\nu$ et ΔT :

$$2\pi\Delta m_s = \Delta\nu \frac{\partial \varphi_s}{\partial \nu} \Big|_{\nu_s} + \Delta T \frac{\partial \varphi_s}{\partial T} \Big|_{T_0}, \quad (\text{C.17})$$

$$2\pi\Delta m_c = \Delta\nu \frac{\partial\varphi_c}{\partial\nu} \big|_{\nu_c} - \Delta T \frac{\partial\varphi_c}{\partial T} \big|_{T_0}. \quad (\text{C.18})$$

Puis, le calcul des dérivées partielles des phases conduit à :

$$\Delta m_s = \frac{n_{\text{gs}}}{\nu_0^{\text{ISL}}} \Delta\nu + \frac{n_s \nu_s}{\nu_0^{\text{ISL}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Ts}}) \Delta T, \quad (\text{C.19})$$

$$\Delta m_c = \frac{n_{\text{gc}}}{\nu_0^{\text{ISL}}} \Delta\nu - \frac{n_c \nu_c}{\nu_0^{\text{ISL}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Tc}}) \Delta T, \quad (\text{C.20})$$

où le coefficient de dilatation thermique α_T et le coefficient thermo-optique β_T sont définis par :

$$\alpha_T = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT}, \quad (\text{C.21})$$

$$\beta_{\text{Ts,c}} = \frac{1}{n_{\text{s,c}}} \frac{dn_{\text{s,c}}}{dT}. \quad (\text{C.22})$$

Le coefficient thermo-optique dépend également de la longueur d'onde et peut être calculé à partir des relations de Sellmeier thermo-optiques du cristal considéré. Il est important de noter que la dilatation thermique du cristal au premier ordre n'est pas négligeable. Le terme $\Delta\nu$ s'élimine ensuite en combinant les équations C.19 et C.20 :

$$\frac{1}{n_{\text{gs}}} \left(\Delta m_s - \frac{n_s \nu_s}{\nu_0^{\text{ISL}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Ts}}) \Delta T \right) = \frac{1}{n_{\text{gc}}} \left(\Delta m_c + \frac{n_c \nu_c}{\nu_0^{\text{ISL}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Tc}}) \Delta T \right). \quad (\text{C.23})$$

En introduisant les paramètres $\varepsilon = \Delta m_s - \Delta m_c$ et $\Delta n_g = n_{\text{gs}} - n_{\text{gc}}$, l'équation C.23 devient :

$$\frac{1}{n_{\text{gc}}} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_{\text{gs}}} + \varepsilon \right) = \frac{1}{\nu_0^{\text{ISL}}} \left(\frac{n_s \nu_s}{n_{\text{gs}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Ts}}) + \frac{n_c \nu_c}{n_{\text{gc}}} (\alpha_T + \beta_{\text{Tc}}) \right) \Delta T. \quad (\text{C.24})$$

Cette équation décrit les sauts de mode entre deux coïncidences exactes quand la température du cristal varie. Elle peut être simplifiée en considérant un indice de groupe moyen $n_g \approx n_{\text{gs}} \approx n_{\text{gc}}$, un indice de réfraction moyen $n \approx n_s \approx n_c$, et un coefficient thermo-optique moyen $\beta_T \approx \beta_{\text{Ts}} \approx \beta_{\text{Tc}}$:

$$\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon = \frac{n(\nu_s + \nu_c)}{\nu_0^{\text{ISL}}} (\alpha_T + \beta_T) \Delta T. \quad (\text{C.25})$$

En utilisant la relation de conservation de l'énergie $\nu_p = \nu_s + \nu_c$, on obtient finalement

$$\Delta T = \frac{1}{nX_p(\alpha_T + \beta_T)} \left(\Delta m_s \frac{\Delta n_g}{n_g} + \varepsilon \right). \quad (\text{C.26})$$

Le paramètre principal de cette relation est la dissociation due à la dispersion chromatique, $\frac{\Delta n_g}{n_g}$. A partir de cette expression, nous pouvons calculer ΔT dans les cas $\varepsilon = 0$ et $\varepsilon = \pm 1$, pour retrouver les expressions données dans le chapitre 3. Une procédure numérique a également été mise en place pour déterminer le contenu spectral du Sheet OPO lorsque la température du cristal varie, mais elle est légèrement plus compliquée que pour les deux autres méthodes d'accordabilité. Les formules de départ sont les mêmes, mais la température affecte désormais à la fois l'indice de réfraction et la longueur de cavité. L'expression de la longueur de cavité en fonction de la température est donnée par un développement de Taylor au deuxième ordre en $\delta T = T - T_0$ faisant intervenir les coefficients de dilatation thermique d'ordre 1 et 2. Pour l'indice de réfraction, nous utilisons directement des relations de Sellmeier thermo-optiques, qui incluent à la fois une dépendance en longueur d'onde et en température.

Nous utilisons ensuite une approche itérative pour construire point par point la courbe d'accord de phase du Sheet OPO en fonction de la température. Les étapes de la procédure sont les mêmes que pour l'accordabilité via la longueur de cavité. Cependant, comme l'indice de réfraction dépend à la fois de λ et T , fixer les nombres modaux ne permet pas de calculer la longueur d'onde signal exacte puis la température exacte : il faut donc échantillonner dès le départ la température sur une certaine plage arbitrairement choisie. En suivant les étapes de la procédure établie pour la longueur de cavité, on calcule ensuite successivement pour tous les couples (λ_s, T) possibles : les nombres modaux m_s et m_c , la longueur d'onde signal exacte et la longueur de cavité exacte suite au changement de température. Nous obtenons alors les deux tableaux suivants :

	$T_{\text{ech}} \rightarrow$				$T_{\text{ech}} \rightarrow$		
$\lambda_{s,\text{ech}} \downarrow$	$L_{\text{cav } 11}$	$\dots$	$L_{\text{cav } 1n}$	$\lambda_{s,\text{ech}} \downarrow$	$\lambda_{s,\text{exact } 11}$	$\dots$	$\lambda_{s,\text{exact } 1n}$
	$\vdots$	$\ddots$	$\vdots$		$\vdots$	$\ddots$	$\vdots$
	$L_{\text{cav } m1}$	$\dots$	$L_{\text{cav } mn}$		$\lambda_{s,\text{exact } m1}$	$\dots$	$\lambda_{s,\text{exact } mn}$

Nous cherchons alors dans chaque colonne du tableau des longueurs de cavité (donc pour chaque température) la longueur de cavité qui se rapproche le plus de la longueur de cavité initiale à cette même température T . Nous repérons alors le numéro de ligne correspondant. Nous cherchons ensuite la longueur d'onde signal exacte à ce même numéro de ligne pour la colonne sélectionnée et nous obtenons ainsi point par point la courbe λ_s en fonction de T . La longueur d'onde complémentaire exacte se déduit de la relation de conservation de l'énergie.

Annexe D

Liste des publications et des communications

D.1 Publications

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J. Barrientos Barria, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut et A. Godard, “Tunable optical parametric amplification of a single-frequency quantum cascade laser around 8 μm in ZnGeP_2 ”, Optics Letters 38 (20), pp. 4046-4049 (2013).

Q. Clément, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, B. Boulanger et M. Lefebvre, “Ultrawidely tunable optical parametric oscillators based on relaxed phase matching: theoretical analysis”, Journal of the Optical Society of America B 32 (1), pp.52-68 (2015).

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité et A. Godard, “Longwave infrared, single-frequency, tunable, pulsed optical parametric oscillator based on orientation-patterned GaAs for gas sensing”, Optics Letters 40 (12), pp. 2676-2679 (2015).

J. Rame, B. Viana, Q. Clément, J. M. Melkonian et J. Petit, “Control of Melt Decomposition for the Growth of High Quality AgGaGeS_4 Single Crystals for Mid-IR Laser Applications”, Crystal Growth & Design 14 (11), pp. 5554-5560 (2014).

D.2 Communications

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J. Barrientos Barria, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut et A.

Godard, “Tunable Optical Parametric Amplification of a Single Frequency Quantum Cascade Laser around 8 μm in ZnGeP_2 ”, Mid Infrared Coherent Sources (MICS) Congress, Oral Session, Paris (2013).

A. Godard, J.-M. Melkonian, Q. Clément, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, J. Petit et J. Rame, “Low absorption ZnGeP_2 single crystals for tunable mid IR laser applications”, 19th International Conference on Ternary and Multinary Compounds (ICTMC-19), Oral Session, Niigata (2014).

J. Petit, J. Rame, Q. Clément, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, O. Muller, A. Hildenbrand, C. Kieleck, A. Berrou, F. Moitrier et M. Eichhorn, “Progress in Chemical Synthesis and Crystal Growth of Irradiation Free Low Absorption ZnGeP_2 for Infrared Nonlinear Conversion” , 6th Europhoton Conference, Poster Session, Neuchâtel (2014).

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Godard. E. Lucas et G. Canat, “Nested Cavity Optical Parametric Oscillator Emitting at 8 μm Pumped by a Pulsed Single-Frequency 2 μm Fiber Laser”, 6th Europhoton Conference, Poster Session, Neuchâtel (2014).

G. Aoust, J. Barrientos Barria, Q. Clément, D. Mammez, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, A. Godard et M. Lefebvre, “Nested Cavity Optical Parametric Oscillator (NesCOPO): a unique approach for gas sensing”, LACSEA, Oral Session, Seattle (2014).

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Godard, A. Grisard, E. Lallier, B. Faure et G. Souhaité, “Long-wave infrared, tunable, single-frequency OP-GaAs OPO for the detection of hazardous chemicals”, CLEO US, Oral Session, San José (2015).

Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Godard, A. Grisard, E. Lallier, B. Faure et G. Souhaité, “Long-wave infrared, tunable, single-frequency OP-GaAs OPO for the detection of hazardous chemicals”, CLEO Europe, Oral Session, Munich (2015).

Bibliographie

- [Aad14] A. Aadhi, N. Apurv Chaitanya, R. P. Singh et G. K. Samanta, “High-power, continuous-wave, solid-state, single-frequency, tunable source for the ultraviolet”, *Optics Letters* **39**(12), 3410 (2014).
- [Abd72] G. B. Abdullaev, L. A. Kulevskii, A. M. Prokhorov, A. D. Savel’ev, E. Y. Salaev et V. V. Smirnov, “GaSe, A New Effective Material for Nonlinear Optics”, *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters* **16**, 90–92 (1972).
- [Abe98] K. S. Abedin, S. Haidar, Y. Konno, C. Takyu et H. Ito, “Difference Frequency Generation of 5-18 μm in a AgGaSe₂ Crystal.”, *Applied Optics* **37**, 1642–1646 (1998).
- [Alf01] W. J. Alford et A. V. Smith, “Wavelength variation of the second-order nonlinear coefficients of KNbO₃, KTiOPO₄, KTiOAsO₄, LiNbO₃, LiIO₃, β -BaB₂O₄, KH₂PO₄, and LiB₃O₅ crystals: a test of Miller wavelength scaling”, *Journal of the Optical Society of America B* **18**(4), 524 (2001).
- [All97] T. H. Allik, S. Chandra, D. M. Rines, P. G. Schunemann, J. A. Hutchinson et R. Utano, “Tunable 7-12 μm optical parametric oscillator using a Cr,Er:YSGG laser to pump CdSe and ZnGeP₂ crystals.”, *Optics Letters* **22**(9), 597–599 (1997).
- [And77] D. Andreou, “16 μm Tunable Source Using Parametric Processes in Non-Linear Crystals”, *Optics Communications* **23**(1), 37–43 (1977).
- [Aou14] G. Aoust, A. Godard, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, G. Canat et M. Lefebvre, “Pump duration optimization for optical parametric oscillators”, *Journal of the Optical Society of America B* **31**(12), 3113 (2014).
- [Arm62] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric*”, *Physical Review* **127**, 1918–1939 (1962).
- [Arm97] D. J. Armstrong, W. J. Alford, T. D. Raymond, A. V. Smith et M. S. Bowers, “Parametric amplification and oscillation with walkoff-compensating crystals”, *Journal of the Optical Society of America B* **14**(2), 460 (1997).
- [Ava11] S. Avanesov, V. Badikov, A. Tyazhev, D. Badikov, V. Panyutin, G. Marchev, G. Shevyrdayeva, K. Mitin, F. Noack, P. Vinogradova, N. Schebetova, V. Petrov et A. Kwas-

- niewski, “PbIn6Te10: new nonlinear crystal for three-wave interactions with transmission extending from 1.7 to 25 μm ”, *Optical Materials Express* **1**(7), 1286–1291 (2011).
- [Bad05] V. V. Badikov, A. K. Don, K. V. Mitin, A. M. Seregin, V. V. Sinaiskii et N. I. Schebetova, “Optical parametric oscillator on an $\text{Hg}(1-x)\text{Cd}(x)\text{Ga}_2\text{S}_4$ crystal”, *Quantum Electronics* **35**(9), 853–856 (2005).
- [Bar76] N. P. Barnes et V. J. Corcoran, “Parametric generation processes: spectral bandwidth and acceptance angles.”, *Applied Optics* **15**, 696–699 (1976).
- [Bar98] N. P. Barnes, K. E. Murray, M. G. Jani, P. G. Schunemann et T. M. Pollak, “ZnGeP2 parametric amplifier”, *Journal of the Optical Society of America B* **15**(1), 232 (1998).
- [Bar13] J. Barrientos Barria, S. Roux, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, J.-M. Melkonian, A. Godard et M. Lefebvre, “Microsecond fiber laser pumped, single-frequency optical parametric oscillator for trace gas detection.”, *Optics Letters* **38**(13), 2165–2167 (2013).
- [Bar14a] J. Barrientos Barria, *Développement de deux instruments LIDAR multi-longueurs d’onde et multi-espèces à base de sources paramétriques*, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (2014).
- [Bar14b] J. Barrientos Barria, A. Dobroc, H. Coudert-Alteirac, M. Raybaut, N. Cézard, J. B. Dherbecourt, T. Schmid, B. Faure, G. Souhaité, J. Pelon, J. M. Melkonian, A. Godard et M. Lefebvre, “Simultaneous remote monitoring of atmospheric methane and water vapor using an integrated path DIAL instrument based on a widely tunable optical parametric source”, *Applied Physics B* p. 509–518 (2014).
- [Bar14c] J. Barrientos Barria, D. Mammez, E. Cadiou, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, T. Schmid, A. Bresson, J.-M. Melkonian, A. Godard, J. Pelon et M. Lefebvre, “Multispecies high-energy emitter for CO_2 , CH_4 , and H_2O monitoring in the 2 μm range”, *Optics Letters* **39**(23), 6719–6722 (2014).
- [Bau79] R. Baumgartner et R. Byer, “Optical parametric amplification”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **15**(6), 432–444 (1979).
- [Bea94] J. D. Beasley, “Thermal conductivities of some novel nonlinear optical materials.”, *Applied Optics* **33**, 1000–1003 (1994).
- [Bel15] A. V. Belikov, K. V. Shatilova et A. V. Skrypnik, “Microprocessing of human hard tooth tissues surface by mid-infrared erbium lasers radiation”, in *Proceedings of SPIE* (2015).
- [Ber07] A. Berrou, A. Godard et M. Lefebvre, “Mid-IR entangled-cavity doubly resonant OPO with back-conversion minimization and automated tuning”, *Conference on Lasers and Electro-Optics, 2007, CLEO 2007* **1**, 28–29 (2007).

-
- [Ber08] A. Berrou, *Développement d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2008).
- [Ber10] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “High-resolution photoacoustic and direct absorption spectroscopy of main greenhouse gases by use of a pulsed entangled cavity doubly resonant OPO”, *Applied Physics B* **98** (2010).
- [Bet05] A. L. Betz, R. T. Boreiko, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno, “Frequency and phase-lock control of a 3 THz quantum cascade laser”, *Optics Letters* **30**(14), 1837–1839 (2005).
- [Bha76] G. C. Bhar, “Refractive index interpolation in phase-matching Morrissey and Powell 1 have described techniques for in- terpolation of refractive index data and have applied the same in the case of cyclohexane , polystyrene , and sapphire”, *Applied optics* **15**(2), 1974–1976 (1976).
- [Big14] S. Bigotta, G. Stöppler, J. Schöner, M. Schellhorn et M. Eichhorn, “Novel non-planar ring cavity for enhanced beam quality in high-pulse-energy optical parametric oscillators”, *Optical Materials Express* **4**(3), 411 (2014).
- [Bis06] S. E. Bisson, T. J. Kulp, O. Levi, J. S. Harris et M. M. Fejer, “Long-wave IR chemical sensing based on difference frequency generation in orientation-patterned GaAs”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **85**, 199–206 (2006).
- [Bjo68a] J. E. Bjorkholm, “Efficient optical parametric oscillation using doubly and singly resonant cavities”, *Applied Physics Letters* **13**, 53–56 (1968).
- [Bjo68b] J. E. Bjorkholm, “Some spectral properties of doubly and singly resonant pulsed optical parametric oscillators”, *Applied Physics Letters* **13**, 399–401 (1968).
- [Bjo70] J. Bjorkholm, A. Ashkin et R. Smith, “Improvement of optical parametric oscillators by nonresonant pump reflection”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **6**(12), 797–799 (1970).
- [Bla08] P. Blau, S. Pearl, S. Fastig et R. Lavi, “Single-mode operation of a mid-infrared optical parametric oscillator using volume-bragg-grating cavity mirrors”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **44**(9), 867–871 (2008).
- [Blo80] N. Bloembergen, “Conservation laws in nonlinear optics”, *Journal of the Optical Society of America* **70**(August), 1429 (1980).
- [Blo10] G. Bloom, A. Grisard, E. Lallier, C. Larat, M. Carras et X. Marcadet, “Optical parametric amplification of a distributed-feedback quantum-cascade laser in orientation-patterned GaAs.”, *Optics Letters* **35**(4), 505–507 (2010).
- [Boi11] F. Boitier, *Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2011).

- [Bos92] W. R. Bosenberg et D. R. Guyer, “Single-frequency optical parametric oscillator”, *Applied Physics Letters* **61**(1992), 387–389 (1992).
- [Bos96] A. Boscheron, *Etude de nouvelles configurations de conversion de fréquence pour l’optimisation des lasers de haute puissance*, Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay (1996).
- [Bou91] B. Boulanger et G. Marnier, “Field factor calculation for the study of the relationships between all the three-wave nonlinear optical interactions in uniaxial and biaxial crystals”, *Journal of Physics-Condensed Matter* **3**(43), 8327–8350 (1991).
- [Bou14] A. Boucon, B. Hardy-Baranski et F. Bretenaker, “Compact infrared continuous-wave double-pass single-frequency doubly-resonant OPO”, *Optics Communications* **333**, 53–57 (2014).
- [Boy66] G. D. Boyd et A. Ashkin, “Theory of parametric oscillator threshold with single-mode optical masers and observation of amplification in LiNbO₃”, *Physical Review* **146**(1965), 187–198 (1966).
- [Boy68] G. D. Boyd et D. A. Kleinman, “Parametric interaction of focused Gaussian light beams”, *Journal of Applied Physics* **39**(8), 3597–3639 (1968).
- [Boy71] G. D. Boyd, E. Buehler et F. G. Storz, “Linear and nonlinear optical properties of ZnGeP₂ and CdSe”, *Applied Physics Letters* **493**(1971), 1969–1972 (1971).
- [Bra09] P. Brand, B. Boulanger, P. Segonds, Y. Petit, C. Félix, B. Ménaert, T. Taira et H. Ishizuki, “Angular quasi-phase-matching experiments and determination of accurate Sellmeier equations for 5% MgO:PPLN.”, *Optics Letters* **34**(17), 2578–2580 (2009).
- [Bra13a] M. Brandstetter, T. Sumalowitsch, A. Genner, V. Fuhrmann et B. Lendl, “Clinical application of a mid-infrared Quantum Cascade Laser based sensor for multianalyte detection in human blood plasma”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2013* (2013).
- [Bra13b] M. Brandstetter, L. Volgger, A. Genner, C. Jungbauer et B. Lendl, “Direct determination of glucose, lactate and triglycerides in blood serum by a tunable quantum cascade laser-based mid-IR sensor”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **110**(2), 233–239 (2013).
- [Bre11] I. Breunig, D. Haertle et K. Buse, “Continuous-wave optical parametric oscillators: Recent developments and prospects”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **105**, 99–111 (2011).
- [Bro79] S. Brosnan et R. Byer, “Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **15**(6) (1979).

-
- [Car95] C. B. Carlisle, J. E. Van der Laan, L. W. Carr, P. Adam et J. P. Chiaroni, “CO₂ laser-based differential absorption lidar system for range-resolved and long-range detection of chemical vapor plumes”, *Applied Optics* **34**(27), 6187–6200 (1995).
- [Cat98] G. Catella, C. Crystals, R. Avenue et J. A. Hutchinson, “Tunable Output Around 8 μm from a Single Step AgGaS₂ OPO Pumped at 1.064 μm ”, *Advanced Solid State Lasers* **19**, 282–284 (1998).
- [Cha97] S. Chandra, T. H. Allik, G. Catella, R. Utano et J. A. Hutchinson, “Continuously tunable, 6–14 μm silver-gallium selenide optical parametric oscillator pumped at 1.57 μm ”, *Applied Physics Letters* **71**(1997), 584 (1997).
- [Cha10] O. Chalus, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, J. Biegert et M. Ebrahim-Zadeh, “Optical parametric generation in CdSiP₂”, *Optics Letters* **35**(24), 4142–4144 (2010).
- [Che05] W. Chen, E. Pouillet, J. Burie, D. Boucher, M. W. Sigrist, J.-J. Zondy, L. Isaenko, A. Yélissev et S. Lobanov, “Widely tunable continuous-wave mid-infrared radiation (5.5–11 μm) by difference-frequency generation in LiInS₂ crystal”, *Applied Optics* **44**(19), 4123–4129 (2005).
- [Cho14] F.-S. Choa, “Chemical and explosive detections using photo-acoustic effect and quantum cascade lasers”, in *SPIE Photonics West 2014*, v. 8993 (2014).
- [Cle13] Q. Clement, J.-M. Melkonian, J. Barrientos-Barria, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut et A. Godard, “Tunable optical parametric amplification of a single-frequency quantum cascade laser around 8 μm in ZnGeP₂”, *Optics Letters* **38**(20), 4046–4049 (2013).
- [Cle15a] Q. Clement, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité et A. Godard, “Pulsed optical parametric oscillator based on orientation patterned GaAs for gas sensing”, *Optics Letters* **40**(12), 2676–2679 (2015).
- [Cle15b] Q. Clement, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, B. Boulanger et M. Lefebvre, “Ultrawidely tunable optical parametric oscillators based on relaxed phase matching : theoretical analysis”, *Journal of the Optical Society of America B* **32**(1), 52–68 (2015).
- [Coh01] D. B. Cohn, E. J. Griffin, L. F. Klaras, M. E. Ehrhitz, C. R. Swim et J. A. Fox, “WILDCAT chemical sensor development US Army Night Vision and Electronic Sensors Directorate”, *Proceedings of SPIE* **4378**, 34–42 (2001).
- [Cou13] J. Courtois, R. Bouchendira, M. Cadoret, J. Zondy, I. Ricciardi, S. Mosca, M. D. Rosa et P. D. Natale, “High-Resolution Spectroscopy of the Methane ν_3 Band in the 3.3 μm Range using Widely Tunable Single-Frequency Optical Parametric Oscillators”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2013 (CLEO)*, v. 1, p. 4–5 (2013).

- [Cra13] I. M. Craig, M. S. Taubman, A. S. Lea, M. C. Phillips, E. E. Josberger et M. B. Raschke, “Infrared near-field spectroscopy of trace explosives using an external cavity quantum cascade laser”, *Optics Express* **21**(25), 30401 (2013).
- [Cre08] D. Creeden, P. A. Ketteridge, P. A. Budni, S. D. Setzler, Y. E. Young, J. C. McCarthy, K. Zawilski, P. G. Schunemann, T. M. Pollak, E. P. Chicklis et M. Jiang, “Mid-infrared ZnGeP₂ parametric oscillator directly pumped by a pulsed 2 μ m Tm-doped fiber laser”, *Optics Letters* **33**(6), 315 (2008).
- [Das03] S. Das, G. C. Bhar, S. Gangopadhyay et C. Ghosh, “Linear and nonlinear optical properties of ZnGeP₂ crystal for infrared laser device applications: revisited.”, *Applied Optics* **42**(21), 4335–4340 (2003).
- [Des04] A. Desormeaux, M. Lefebvre, E. Rosencher et J. P. Huignard, “Mid-infrared high-resolution absorption spectroscopy by use of a semimonolithic entangled-cavity optical parametric oscillator.”, *Optics Letters* **29**(24), 2887–2889 (2004).
- [Des05] A. Desormeaux, *Développement d’un oscillateur paramétrique optique monofréquence et réalisation d’un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire*, Thèse de doctorat, Université Paris XI (2005).
- [Des15] D. Descloux, C. Laporte, J. Dherbecourt, J. Melkonian, M. Raybaut, C. Drag et A. Godard, “Spectrotemporal dynamics of a picosecond OPO based on chirped quasi-phase-matching”, *Optics Letters* **40**(2), 280–283 (2015).
- [Dev13] K. Devi, S. C. Kumar et M. Ebrahim-Zadeh, “Tunable, continuous-wave, ultraviolet source based on intracavity sum-frequency-generation in an optical parametric oscillator using BiB₃O₆.”, *Optics Express* **21**(21), 24829–24836 (2013).
- [Dev14] K. Devi, P. G. Schunemann et M. Ebrahim-Zadeh, “Continuous-wave, multimilliwatt, mid-infrared source tunable across 6.4–7.5 μ m based on orientation-patterned GaAs”, *Optics Letters* **39**(23), 6751–6754 (2014).
- [Dhe10] J.-B. Dherbecourt, A. Godard, M. Raybaut, J.-M. Melkonian et M. Lefebvre, “Picosecond synchronously pumped ZnGeP₂ optical parametric oscillator.”, *Optics Letters* **35**(13), 2197–2199 (2010).
- [Dou98] A. Douillet et J. Zondy, “Low-threshold, self-frequency-stabilized AgGaS₂ continuous-wave subharmonic optical parametric oscillator”, *Optics Letters* **23**(16), 1259–1261 (1998).
- [Dra02] C. Drag, A. Desormeaux, M. Lefebvre et E. Rosencher, “Entangled-cavity optical parametric oscillator for mid-infrared pulsed single-longitudinal-mode operation.”, *Optics Letters* **27**(14), 1238–1240 (2002).

-
- [Ebe99] C. B. Ebert, L. A. Eyres, M. M. Fejer et J. S. Harris, “MBE growth of antiphase GaAs films using GaAs/Ge/GaAs heteroepitaxy”, *Journal of Crystal Growth* **201**, 187–193 (1999).
- [Eck86] R. C. Eckardt, Y. X. Fan, R. L. Byer, C. L. Marquardt, M. E. Storm et L. Esterowitz, “Broadly tunable infrared parametric oscillator using AgGaSe₂”, *Applied Physics Letters* **49**(11), 608–610 (1986).
- [Eck91] R. C. Eckardt, C. D. Nabors, W. J. Kozlovsky et R. L. Byer, “Optical parametric oscillator frequency tuning and control”, *Journal of the Optical Society of America B* **8**, 646 (1991).
- [Edn93] H. Edner, P. Ragnarson, S. Spannare et S. Svanberg, “Differential optical absorption spectroscopy (DOAS) system for urban atmospheric pollution monitoring”, *Applied Optics* **32**(3), 327–333 (1993).
- [Edw00] T. J. Edwards, G. A. Turnbull, M. H. Dunn et M. Ebrahimzadeh, “Continuous-wave, singly-resonant, optical parametric oscillator based on periodically poled KTiOPO₄”, *Optics Express* **6**(3), 1974–1976 (2000).
- [Eer76] J. W. Eerkens, “Spectral considerations in the laser isotope separation of Uranium Hexafluoride”, *Applied Physics* **10**, 15–31 (1976).
- [EM13] A. Esteban-Martin, G. Marchev, V. Badikov, V. Panyutin, V. Petrov, G. Shevyrdyaeva, D. Badikov, M. Starikova, S. Sheina, A. Fintisova et A. Tyazhev, “High-energy optical parametric oscillator for the 6 μ m spectral range based on HgGa₂S₄ pumped at 1064 nm”, *Laser & Photonics Reviews* **7**(16), L89–L92 (2013).
- [Eyr01] L. A. Eyres, P. J. Tourreau, T. J. Pinguet, C. B. Ebert, J. S. Harris, M. M. Fejer, L. Becouarn, B. Gerard et E. Lallier, “All-epitaxial fabrication of thick, orientation-patterned GaAs films for nonlinear optical frequency conversion”, *Applied Physics Letters* **79**(2001), 904–906 (2001).
- [Fai94] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson et A. Y. Cho, “Quantum Cascade Laser”, *Science* **264**(5158), 553–556 (1994).
- [Fai96] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. Sivco, J. Baillargeon, A. Hutchinson, S.-N. G. Chu et A. Cho, “High power mid-infrared (5 μ m) quantum cascade lasers operating above room temperature”, *Applied Physics Letters* **68**, 3680 (1996).
- [Fai97] J. Faist, C. Gmachl, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon et A. Y. Cho, “Distributed feedback quantum cascade lasers”, *Applied Physics Letters* **70**(1997), 2670 (1997).
- [Fal71] J. Falk, “Instabilities in the Doubly Resonant Parametric Oscillator: A Theoretical Analysis”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **7**(6), 230–235 (1971).

- [Fay07] D. Faye, E. Lallier, A. Grisard, B. Gérard, C. Kieleck et A. Hirth, “Thick low-loss orientation-patterned gallium arsenide (OP-GaAs) samples for mid-infrared laser sources”, *Proceedings of SPIE* **6740**, 67400I (2007).
- [Fea13] R. K. Feaver, R. D. Peterson et P. E. Powers, “Longwave-IR optical parametric oscillator in orientation-patterned GaAs pumped by a 2 μm Tm:Ho:YLF laser”, *Optics Express* **21**(13), 16104 (2013).
- [Fej92] M. M. Fejer, G. Magel, D. H. Jundt et R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **28**(1) (1992).
- [Fev01] J. P. Feve, O. Pacaud, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Hellström, V. Pasiskevicius et F. Laurell, “Widely and continuously tunable optical parametric oscillator based on a cylindrical periodically poled KTiOPO₄ crystal.”, *Optics Letters* **26**(23), 1882–1884 (2001).
- [Fev02] J.-P. Feve, O. Pacaud, B. Boulanger, B. Ménaert et M. Renard, “Tunable phase-matched optical parametric oscillators based on a cylindrical crystal”, *Journal of the Optical Society of America B* **19**(2), 222 (2002).
- [Fix96] A. Fix et R. Wallenstein, “Spectral properties of pulsed nanosecond optical parametric oscillators: experimental investigation and numerical analysis”, *Journal of the Optical Society of America B* **13**(11), 2484 (1996).
- [For05] N. Forget, *Des amplificateurs laser aux amplificateurs paramétriques : études de l’amplification paramétrique à dérive de fréquence et du blocage de modes dans les oscillateurs paramétriques optiques.*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2005).
- [Fra61] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters et G. Weinreich, “Generation of Optical Harmonics”, *Physical Review Letters* **7**(4), 118–120 (1961).
- [Fre11] D. French, R. Peterson et I. Jovanovic, “Energy-scalable pulsed mid-IR source using orientation-patterned GaAs”, *Optics Letters* **36**(4), 496–498 (2011).
- [Fuc13] F. Fuchs, S. Hugger, J. Jarvis, Q. K. Yang, R. Ostendorf, C. Schilling, R. Driad, R. Aidam, A. Bachle, W. Bronner et J. Wagner, “Detection of hazardous substances using broadband-tuneable quantum cascade laser based mid-infrared spectroscopy”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics Europe 2013*, p. 79108 (2013).
- [Gan01] F. Ganikhanov, T. Caughey et K. L. Vodopyanov, “Narrow-linewidth middle-infrared ZnGeP₂ optical parametric oscillator”, *Journal of the Optical Society of America B* **18**(6), 818–822 (2001).
- [Geb14] M. Gebhardt, C. Gaida, P. Kadwani, A. Sincore, N. Gehlich, C. Jeon, L. Shah et M. Richardson, “High peak-power mid-infrared ZnGeP₂ optical parametric oscillator

- pumped by a Tm: fiber master oscillator power amplifier system.”, *Optics Letters* **39**(5), 1212–1215 (2014).
- [Gio65] J. A. Giordmaine et R. C. Miller, “Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO₃ at Optical Frequencies”, *Physical Review Letters* **14**(24), 973–976 (1965).
- [Gio66] J. A. Giordmaine et R. C. Miller, “Optical parametric oscillation in LiNbO₃”, in *Physics of Quantum Electronics* (1966).
- [Gio15] F. R. Giorgetta, G. B. Rieker, E. Baumann, W. C. Swann, L. C. Sinclair, J. Kofler, I. Coddington et N. R. Newbury, “Broadband Phase Spectroscopy over Turbulent Air Paths”, *Physical Review Letters* **115**(September), 103901 (2015).
- [Gma00] C. Gmachl, F. Capasso, R. Köhler, A. Tredicucci, A. L. Hutchinson, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon et A. Y. Cho, “Mid-Infrared Tunable Quantum Cascade Lasers for Gas-Sensing Applications”, *IEEE Circuits & Devices Magazine* p. 10–18 (2000).
- [God04] A. Godard et E. Rosencher, “Energy yield of pulsed optical parametric oscillators: A rate-equation analysis”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **40**(6), 784–790 (2004).
- [Gra86] W. B. Grant, “He-Ne and cw CO₂ laser long-path systems for gas detection”, *Applied optics* **25**(5), 709–719 (1986).
- [Gri10] A. Grisard, F. Guty, E. Lallier et B. Gérard, “Compact fiber laser-pumped mid-Infrared source based on Orientation-Patterned Gallium Arsenide”, in *Proceedings of SPIE*, v. 7836, p. 783606–783607 (2010).
- [Guh82] S. Guha, Fei-Jain Wu et J. Falk, “The effects of focusing on parametric oscillation”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **18**(5), 907–912 (1982).
- [Gui09] S. Guilbaud, A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Double-pass single mode ECOPO with achromatic phase- adaptation”, in *Advanced Solid-State Photonics*, v. 5, p. 4–6 (2009).
- [Haa08] M. W. Haakestad, G. Arisholm, E. Lippert, S. Nicolas, G. Rustad et K. Stenersen, “High-pulse-energy mid-infrared laser source based on optical parametric amplification in ZnGeP₂”, *Optics Communications* **16**(18), 14263–14273 (2008).
- [Haa14] M. W. Haakestad, H. Fonnum et E. Lippert, “Mid-infrared source with 0.2 J pulse energy based on nonlinear conversion of Q-switched pulses in ZnGeP₂”, *Optics Express* **22**(2027), 8556 (2014).
- [Hai03] R. Haidar, N. Forget et E. Rosencher, “Optical parametric oscillation in microcavities based on isotropic semiconductors: A theoretical study”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39**(4), 569–576 (2003).
- [Har69] S. E. Harris, “Tunable optical parametric oscillators”, *Proceedings of the IEEE* **57**(12) (1969).

- [Har11] B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Compact, single-frequency, doubly resonant optical parametric oscillator pumped in an achromatic phase-adapted double-pass geometry.”, *Optics Letters* **36**(5), 678–680 (2011).
- [Hau95] J. G. Haub, R. M. Hentschel, M. J. Johnson et B. J. Orr, “Controlling the performance of a pulsed optical parametric oscillator: a survey of techniques and spectroscopic applications”, *Journal of the Optical Society of America B* **12**(11), 2128 (1995).
- [He01] Y. He et B. J. Orr, “Tunable single-mode operation of a pulsed optical parametric oscillator pumped by a multimode laser.”, *Applied Optics* **40**, 4836–4848 (2001).
- [Hem13] A. Hemming, J. Richards, A. Davidson, N. Carmody, N. Simakov et J. Haub, “99 W mid-IR operation of a ZGP OPO at 25 % duty cycle”, *Optics Express* **21**(8), 10062–10069 (2013).
- [Her72] R. L. Herbst et R. L. Byer, “Singly resonant CdSe infrared parametric oscillator”, *Applied Physics Letters* **21**(1972), 189–191 (1972).
- [Hol10] E. Holthoff, J. Bender, P. Pellegrino et A. Fisher, “Quantum cascade laser-based photoacoustic spectroscopy for trace vapor detection and molecular discrimination”, *Sensors* **10**, 1986–2002 (2010).
- [Hug13] S. Hugger, F. Fuchs, J. Jarvis, M. Kinzer, Q. K. Yang, R. Driad, R. Aidam et J. Wagner, “Broadband-tunable external-cavity quantum cascade lasers for the spectroscopic detection of hazardous substances”, *Proceedings of SPIE* **8631** (2013).
- [Hur06] W. C. Hurlbut, K. L. Vodopyanov, P. S. Kuo, M. M. Fejer et Y. S. Lee, “Multi-photon absorption and nonlinear refraction of GaAs in the mid-infrared”, *Conference on Lasers and Electro-Optics and 2006 Quantum Electronics and Laser Science Conference, CLEO/QELS 2006* **32**(6), 668–670 (2006).
- [Isy99] Y. Isyanova, A. Dergachev, D. Welford et P. F. Moulton, “Multi-Wavelength, 1.5-10 μm Tunable, Tandem OPO - OSA Trends in Optics and Photonics”, *Advanced Solid State Lasers* **26**, WB4 (1999).
- [Ji07] G. Ji, T. Shen, J. Huang, B. Zhao, Y. M. Andreev, V. V. Atuchin et G. Lanskiy, “Influence of composition ratio on the nonlinear optical properties of $\text{AgGa}_{1-x}\text{In}_x\text{Se}_2$ and $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Ga}_2\text{S}_4$ ”, in *Proceedings of SPIE*, v. 6595 (2007).
- [Kat02] K. Kato et E. Takaoka, “Sellmeier and thermo-optic dispersion formulas for KTP”, *Applied Optics* **41**(24), 5040–5044 (2002).
- [Kat04] K. Kato et N. Umemura, “Sellmeier and thermo-optic dispersion formulas for KTiOAsO_4 ”, *Conference on Lasers and Electro-Optics, 2004. (CLEO)*. **2**, 1–5 (2004).
- [Kem11] V. Kemlin, P. Brand, B. Boulanger, P. Segonds, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, B. Ménaert et J. Debray, “Phase-matching properties and refined Sellmeier equations

- of the new nonlinear infrared crystal CdSiP₂”, Optics Letters **36**(10), 1800–1802 (2011).
- [Kem13a] V. Kemlin, *Parametric infrared generation : from crystals to devices*, Thèse de doctorat, Université de Grenoble (2013).
- [Kem13b] V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, J.-M. Melkonian et A. Godard, “Dual-wavelength source from 5%MgO:PPLN cylinders for the characterization of nonlinear infrared crystals”, Optics Express **21**(23), 28886–28891 (2013).
- [Kie09] C. Kieleck, M. Eichhorn, A. Hirth, D. Faye et E. Lallier, “Orientation-patterned GaAs optical parametric oscillator pumped by a 2 μ m holmium laser”, Optics Letters **34**(3), 262–264 (2009).
- [Kie15] C. Kieleck, A. Berrou, B. Donelan, B. Cadier, T. Robin et M. Eichhorn, “6.5 W ZnGeP₂ OPO directly pumped by a Q-switched Tm³⁺ doped single-oscillator fiber laser”, Optics Letters **40**(6), 1101–1104 (2015).
- [Kle68] D. A. Kleinman, “Theory of Optical Parametric Noise”, (1968).
- [Knu10] D. J. Knuteson, N. B. Singh, G. Kanner, A. Berghmans, B. Wagner, D. Kahler, S. McLaughlin, D. Suhre et M. Gottlieb, “Quaternary AgGaGeSe_{2(n+1)} crystals for NLO applications”, Journal of Crystal Growth **312**, 1114–1117 (2010).
- [Kre69] L. B. Kreuzer, “Single mode oscillation of a pulsed singly resonant optical parametric oscillator”, Applied Physics Letters **15**(1969), 263–265 (1969).
- [Kro14] N. Kroger, A. Egl, M. Engel, N. Gretz, K. Haase, I. Herpich, B. Kranzlin, S. Neudecker, A. Pucci, A. Schonhals, J. Vogt et W. Petrich, “Quantum cascade laser-based hyperspectral imaging of biological tissue”, Journal of Biomedical Optics **19**(11) (2014).
- [Kuk00] K. Kukli, A. Aidla, J. Aarik, M. Schuisky, A. Hårsta, M. Ritala et M. Leskela, “Real-Time Monitoring in Atomic Layer Deposition of TiO₂ from TiI₄ and H₂O-H₂O₂”, **39**(23), 8122–8128 (2000).
- [Kul02] T. J. Kulp, S. E. Bisson, R. P. Bambha, T. A. Reichardt, U. B. Goers, K. W. Aniolek, D. A. V. Kliner, B. A. Richman, K. M. Armstrong, R. Sommers, R. Schmitt, P. E. Powers, O. Levi, T. Pinguet, M. Fejer, J. P. Koplow, L. Goldberg et T. G. McRae, “The application of quasi-phase-matched parametric light sources to practical infrared chemical sensing systems”, Applied Physics B: Lasers and Optics **75**, 317–327 (2002).
- [Kum13] C. Kumar, N. Patel, A. Lyakh, R. Maulini, I. Dunayevsiy et A. Tsekoun, “QCL Based Detection of Hazardous Substances”, Proceedings of the IEEE p. 90401 (2013).
- [Lee98] D. Lee et N. C. Wong, “Tuning characteristics of a cw dual-cavity KTP optical parametric oscillator”, Applied Physics B: Lasers and Optics **66**, 133–143 (1998).

- [Lee04] H. Lee, J. Yu, N. P. Barnes et Y. Bai, “High pulse energy ZnGeP2 singly resonant OPO”, *Advanced Solid-State Photonics* p. 10–12 (2004).
- [Lei14] Z. Lei, C. Zhu, C. Xu, B. Yao et C. Yang, “Growth of crack-free ZnGeP2 large single crystals for high-power mid-infrared OPO applications”, *Journal of Crystal Growth* **389**, 23–29 (2014).
- [Lev02] O. Levi, T. J. Pinguet, T. Skauli, L. A. Eyres, K. R. Parameswaran, J. S. Harris, Jr., M. M. Fejer, T. J. Kulp, S. E. Bisson, B. Gerard, E. Lallier et L. Becouarn, “Difference frequency generation of 8 μm radiation in orientation- patterned GaAs”, *Optics Letters* **27**(23), 2091 (2002).
- [Lin13] H. B. Lin, S. F. Li, Y. W. Sun, G. Zhao, X. P. Hu, X. J. Lv et S. N. Zhu, “High-Performance Cavity Phase Matching by Pump Reflection”, p. 2–5 (2013).
- [Lip08] E. Lippert, G. Rustad, G. Arisholm et K. Stenersen, “High power and efficient long wave IR ZnGeP2 parametric oscillator.”, *Optics Express* **16**(2027), 13878–13884 (2008).
- [Lip10] E. Lippert, H. Fonnum, G. Arisholm et K. Stenersen, “A 22-watt mid-infrared optical parametric oscillator with V-shaped 3-mirror ring resonator.”, *Optics Express* **18**(2007), 26475–26483 (2010).
- [Liu11] C. Liu, X. Guo, Z. Bai, X. Wang et Y. Li, “High-efficiency continuously tunable single-frequency doubly resonant optical parametric oscillator.”, *Applied Optics* **50**(10), 1477–1481 (2011).
- [Luc14] E. Lucas, L. Lombard, Y. Jaouën, S. Bordais et G. Canat, “1 kW peak power, 110 ns single-frequency thulium doped fiber amplifier at 2050 nm”, *Applied Optics* **53**(20), 4413–4419 (2014).
- [Mac13] N. A. Macleod, R. Rose et D. Weidmann, “Middle infrared active coherent laser spectrometer for standoff detection of chemicals”, *Optics Letters* **38**(19), 3708–11 (2013).
- [Mac15] N. A. Macleod, F. Molero et D. Weidmann, “Broadband standoff detection of large molecules by mid-infrared active coherent laser spectrometry”, *Optics Express* **23**(2), 912 (2015).
- [Mah12] L. Mahler, A. Tredicucci et M. S. Vitiello, “Quantum cascade laser: a compact, low cost, solid-state source for plasma diagnostics”, *Journal of Instrumentation* **7** (2012).
- [Mai60] T. Maiman, “Stimulated Optical Radiation in Ruby”, *Nature* **4736**, 493 (1960).
- [Mam13] D. Mammez, C. Stoeffler, J. Cousin, R. Vallon, M. H. Mammez, L. Joly, B. Parvitte et V. Zéninari, “Photoacoustic gas sensing with a commercial external cavity-quantum cascade laser at 10.5 μm ”, *Infrared Physics and Technology* **61**, 14–19 (2013).

-
- [Mar09] G. Marchev, A. Tyazhev, V. Vedenyapin, D. Kolker, A. Yelisseyev, S. Lobanov, L. Isaenko, J.-J. Zondy et V. Petrov, “Nd:YAG pumped nanosecond optical parametric oscillator based on LiInSe₂ with tunability extending from 4.7 to 8.7 μm ”, *Optics Express* **17**(16), 13441–13446 (2009).
- [Mar10] G. Marchev, P. Dallocchio, F. Pirzio, A. Agnesi, G. Reali, V. Petrov, A. Tyazhev, P. G. Schunemann et K. T. Zawilski, “1064 nm pumped CdSiP₂ optical parametric oscillator generating ~ 400 ps pulses near 6150 nm at 1-10 kHz repetition rates”, *Optics Communications* **3245**, 12489 (2010).
- [Med05] G. A. Medvedkin et V. G. Voevodin, “Magnetic and optical phenomena in nonlinear optical crystals ZnGeP₂ and CdGeP₂”, *Journal of the Optical Society of America B* **22**(9), 1884 (2005).
- [Mel12] J.-M. Melkonian, J. Petit, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Time-resolved spectral characterization of a pulsed external-cavity quantum cascade laser”, *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012* **8546** (2012).
- [Men98] G. Mennerat et P. Kupecek, “High-energy narrow-linewidth tunable source in the mid infrared”, in *Advanced Solid State Lasers*, v. 19, p. 15–18 (Optical Society of America, 1998).
- [Men00] G. Mennerat, *Conception, Modélisation et Réalisation d’une Source Cohérente de Forte Energie Accordable dans le Moyen Infrarouge*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strasbourg (2000).
- [Mil97] M. J. T. Milton, T. D. Gardiner, F. Molero et J. Galech, “Injection-seeded optical parametric oscillator for range-resolved DIAL measurements of atmospheric methane”, *Optics Communications* **42**, 153–160 (1997).
- [Miy07a] K. Miyata, V. Petrov et K. Kato, “Phase-matching properties for AgGaGeS₄”, *Applied Optics* **46**, 5728–5731 (2007).
- [Miy07b] K. Miyata, V. Petrov, N. Umemura, K. Kato, N. Saito et S. Wada, “New experimental results for SHG and DFG in AgGaGeS₄”, *Proceedings of SPIE* **6455**, 645514 (2007).
- [Miy11] K. Miyata, G. Marchev, A. Tyazhev, V. Panyutin et V. Petrov, “Picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on the wide-bandgap GaS_{0.4}Se_{0.6} pumped by a Nd:YAG laser system at 1064 nm”, *Optics Letters* **36**(10), 1785–1787 (2011).
- [Mou02] P. F. Moulton, “Recent Advances in Solid State Lasers and Nonlinear Optics for Remote Sensing”, *Proceedings of SPIE* **4893**, 193–202 (2002).
- [Mye95] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg et J. W. Pierce, “Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃”, *Journal of the Optical Society of America B* **12**(11), 2102 (1995).

- [Nic05] S. Nicolas, O. Nordseth, G. Rustad et G. Arisholm, “High-energy mid-IR source based on two-stage conversion from $1.06\ \mu\text{m}$ ”, *Advanced Solid-State Photonics* **98**, 417–422 (2005).
- [Nik05] D. N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: a complete survey* (2005).
- [Oza14] C. Ozanam, M. Savanier, L. Lanco, X. Lafosse, G. Almuneau, A. Andronico, I. Favero, S. Ducci et G. Leo, “Toward an AlGaAs/AlOx near-infrared integrated optical parametric oscillator”, *Journal of the Optical Society of America B* **31**(3), 542–550 (2014).
- [Pac04] M. V. Pack, D. J. Armstrong et A. V. Smith, “Measurement of the $\text{chi}(2)$ tensors of KTiOPO_4 , KTiOAsO_4 , RbTiOPO_4 , and RbTiOAsO_4 crystals.”, *Applied Optics* **43**(16), 3319–3323 (2004).
- [Pal09] A. Pal, C. D. Clark, M. Sigman et D. K. Killinger, “Differential absorption lidar CO_2 laser system for remote sensing of TATP related gases”, *Applied optics* **48**(4), B145–B150 (2009).
- [Pas12] V. Pasiskevicius, G. Strömquist, F. Laurell et C. Canalias, “Quasi-phase matched nonlinear media: Progress towards nonlinear optical engineering”, *Optical Materials* **34**(3), 513–523 (2012).
- [Pat08] C. K. N. Patel, “Laser photoacoustic spectroscopy helps fight terrorism: High sensitivity detection of chemical Warfare Agent and explosives”, *European Physical Journal: Special Topics* **153**, 1–18 (2008).
- [Pet97] V. Petrov, Y. Tanaka et T. Suzuki, “Parametric generation of 1-ps pulses between 5 and $11\ \mu\text{m}$ with a ZnGeP_2 crystal”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **33**(10), 1749–1755 (1997).
- [Pet99] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack et P. Schunemann, “Femtosecond parametric generation in ZnGeP_2 ”, *Optics Letters* **24**(6), 414–416 (1999).
- [Pet04a] V. Petrov, V. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin et V. Chizhikov, “Phase-matching properties and optical parametric amplification in single crystals of AgGaGeS_4 ”, *Optical Materials* **26**, 217–222 (2004).
- [Pet04b] V. Petrov, F. Noack, V. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin et V. Chizhikov, “Phase-matching and femtosecond difference-frequency generation in the quaternary semiconductor $\text{AgGaGe}_5\text{Se}_{12}$.”, *Applied Optics* **43**, 4590–4597 (2004).
- [Pet04c] V. Petrov, A. Yelisseyev, L. Isaenko, S. Lobanov, A. Titov et J.-J. Zondy, “Second harmonic generation and optical parametric amplification in the mid-IR with orthorhombic biaxial crystals LiGaS_2 and LiGaSe_2 ”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **78**, 543–546 (2004).

-
- [Pet12] V. Petrov, “Parametric down-conversion devices: The coverage of the mid-infrared spectral range by solid-state laser sources”, *Optical Materials* **34**(3), 536–554 (2012).
- [Pom12] L. A. Pomeranz, P. G. Schunemann, S. D. Setzler, C. Jones et P. A. Budni, “Continuous-wave Optical Parametric Oscillator based on Orientation Patterned Gallium Arsenide (OP-GaAs)”, *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012* (2012).
- [Pow98] P. E. Powers, T. J. Kulp et S. E. Bisson, “Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design.”, *Optics Letters* **23**(3), 159–161 (1998).
- [Qua85] G. J. Quarles, C. L. Marquardt, L. Esterowitz et A. Crysta, “2 μm pumped AgGaSe₂ Optical Parametric Oscillator with Continuous Tuning between 2.49 and 12.05 μm ”, in *Laser and Electro-Optics Society Annual Meeting*, p. 128–129 (1985).
- [Ram14a] J. Rame, *Recherche et élaboration de nouveaux matériaux pour les applications laser non-linéaires du moyen infrarouge*, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (2014).
- [Ram14b] J. Rame, B. Viana, Q. Clement, J. M. Melkonian et J. Petit, “Control of Melt Decomposition for the Growth of High Quality AgGaGeS₄ Single Crystals for Mid-IR Laser Applications”, *Crystal Growth & Design* **14**(11), 5554–5560 (2014).
- [Ray09] M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A. K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flament, A. Bohman, P. Geiser et P. Kaspersen, “High-energy single-longitudinal mode nearly diffraction-limited optical parametric source with 3 MHz frequency stability for CO₂ DIAL.”, *Optics Letters* **34**(13), 2069–2071 (2009).
- [Rib01] I. Ribet, *Oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées pour l’étude des réseaux dynamiques créés par mélange à quatre ondes résolu en temps*, Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay (2001).
- [Rie14] G. B. Rieker, F. R. Giorgetta, W. C. Swann, J. Kofler, A. M. Zolot, L. C. Sinclair, E. Baumann, C. Cromer, G. Petron, C. Sweeney, P. P. Tans, I. Coddington et N. R. Newbury, “Frequency Comb Based Remote Sensing of Greenhouse Gases over Kilometer Air Paths”, *Optica* **1**(5), 290–298 (2014).
- [Rob92] D. A. Roberts, “Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinear optical crystals: A plea for standardization of nomenclature and conventions”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **28**(10), 2057–2074 (1992).
- [Rob95] R. A. Robinson, P. T. P. T. Woods et M. J. T. Milton, “DIAL measurements for air pollution and fugitive-loss monitoring”, in *Proceedings of SPIE* (1995).

- [Rob14] G. Robertson, G. T. Maker et G. P. A. Malcolm, “Broadly tunable intracavity zinc germanium phosphate optical parametric oscillator for hyperspectral imaging”, *Optical Engineering* **53**, 063106 (2014).
- [Ros02] E. Rosencher et C. Fabre, “Oscillation characteristics of continuous-wave optical parametric oscillators: beyond the mean-field approximation”, *Journal of the Optical Society of America B* **19**(5), 1107 (2002).
- [Rud13] P. Rudolf, F. Kanal, D. Gehrig, J. Niesel, T. Brixner, U. Schatzschneider et P. Nuernberger, “Femtosecond Mid-Infrared Study of the Aqueous Solution Photochemistry of a CO-Releasing Molecule (CORM)”, in *International Conference on Ultrafast Phenomena* (2013).
- [Sav11] M. Savanier, A. Andronico, A. Lemaître, C. Manquest, I. Favero, S. Ducci et G. Leo, “Nearly degenerate three wave mixing at $1.55\ \mu\text{m}$ in oxidized AlGaAs waveguides”, *Optics Express* **19**(23), 22582–22587 (2011).
- [Sch98a] B. Scherrer, *Développement d’un oscillateur paramétrique optique monomode pour des mesures de température et de vitesse par Drasc temporellement résolue*, Thèse de doctorat, Université Paris XIII (1998).
- [Sch98b] C. Schwob, P. F. Cohadon, C. Fabre, M. Marte, H. Ritsch, A. Gatti et L. Lugiato, “Transverse effects and mode couplings in OPOS”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **66**, 685–699 (1998).
- [Sch00a] B. Scherrer, I. Ribet, A. Godard, E. Rosencher et M. Lefebvre, “Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators: demonstration of pulsed single-mode operation”, *Journal of the Optical Society of America B* **17**(10), 1716 (2000).
- [Sch00b] P. Schlup, “Single-mode near- and mid-infrared periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator”, *Optics Communications* **176**(March), 267–271 (2000).
- [Sch00c] P. G. Schunemann, S. D. Setzler, T. M. Pollak, M. C. Ohmer, J. T. Goldstein et D. E. Zelmon, “Crystal growth and properties of AgGaTe”, *Journal of Crystal Growth* **211**, 242–246 (2000).
- [Sch05] P. G. Schunemann, S. D. Setzler, L. Mohnkern, D. F. Bliss, D. Weyburne et K. O. Hearn, “ $2.05\ \mu\text{m}$ laser-pumped orientation-patterned gallium arsenide (OPGaAs) OPO”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2005*, p. 1835–1837 (2005).
- [Sch13] M. Schellhorn, G. Stoeppler, S. Bigotta, A. Hildenbrand, C. Kieleck et M. Eichhorn, “High-pulse energy mid-IR ZGP OPO”, *Advanced Solid-State Lasers Congress* p. MW3B.1 (2013).
- [Sch15] P. G. Schunemann, L. A. Pomeranz et D. J. Magarrell, “Optical parametric oscillation in quasi-phase-matched GaP”, *Proceedings of SPIE* **9347** (2015).

-
- [Sed13] A. B. Seddon, “Potential for using mid-infrared light for non-invasive, early-detection of skin cancers in vivo”, in *Proceedings of SPIE* (2013).
- [Sho04] R. K. Shori, “Recent Developments in Scaling Output Energy from Erbium-Based Lasers and Their Uses as Pump Sources for MWIR & LWIR OPOs”, in *Proceedings of the IEEE*, p. 805–806 (2004).
- [Sir97] C. Sirtori, J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson et A. Y. Cho, “Pulsed and Continuous-Wave Operation of Long Wavelength Infrared Quantum Cascade Lasers”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **33**(1), 89–93 (1997).
- [Ska02] T. Skauli, K. L. Vodopyanov, T. J. Pinguet, A. Schober, O. Levi, L. A. Eyres, M. M. Fejer, J. S. Harris, B. Gerard, L. Becouarn, E. Lallier et G. Arisholm, “Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation.”, *Optics Letters* **27**(8), 628–630 (2002).
- [Smi98] A. V. Smith, D. J. Armstrong et W. J. Alford, “Increased acceptance bandwidths in optical frequency conversion by use of multiple walk-off-compensating nonlinear crystals”, *Journal of the Optical Society of America B* **15**(1), 122 (1998).
- [Son13] Y. Songlin, L. Dachao, C. Hao, S. Changyue et X. Kexin, “Tunable mid-infrared laser spectroscopy based on fiber-optic sensor for glucose measurement”, in *Proceedings of SPIE* (2013).
- [Sor10] E. Sorokin, I. T. Sorokina, M. S. Mirov, V. V. Fedorov, I. S. Moskalev et S. B. Mirov, “Ultrabroad Continuous-Wave Tuning of Ceramic Cr:ZnSe and Cr:ZnS Lasers”, *Lasers, Sources and Related Photonic Devices* (2010).
- [Sto12] G. Stoeppler, N. Thilmann, V. Pasiskevicius, A. Zukauskas, C. Canalias et M. Eichhorn, “Tunable Mid-infrared ZnGeP₂ RISTRA OPO pumped by periodically-poled Rb:KTP optical parametric master-oscillator power amplifier”, *Optics Express* **20**(4), 4509 (2012).
- [Thi11] N. Thilmann, B. Jacobsson, C. Canalias, V. Pasiskevicius et F. Laurell, “A narrow-band optical parametric oscillator tunable over 6.8 THz through degeneracy with a transversely-chirped volume Bragg grating”, *Applied Physics B* **105**, 239–244 (2011).
- [Tuc95] J. E. Tucker, C. L. Marquardt, S. R. Bowman et B. J. Feldman, “Transient thermal lens in a ZnGeP₂ crystal.”, *Applied Optics* **34**, 2678–2682 (1995).
- [Tya12] A. Tyazhev, D. Kolker, G. Marchev, V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin et V. Petrov, “Mid-infrared optical parametric oscillator based on the wide-bandgap BaGa₄S₇ nonlinear crystal”, *Optics Letters* **37**(19), 4146–4148 (2012).
- [Tya13a] A. Tyazhev, G. Marchev, V. Badikov, A. Esteban-Martin, D. Badikov, V. Panyutin, G. Shevyrdyaeva, S. Sheina, A. Fintisova et V. Petrov, “High-power HgGa₂S₄ optical

- parametric oscillator pumped at 1064 nm and operating at 100 Hz”, *Laser & Photonics Reviews* **7**(4), 21–24 (2013).
- [Tya13b] A. Tyazhev, V. Vedenyapin, G. Marchev, L. Isaenko, D. Kolker, S. Lobanov, V. Petrov, A. Yelisseyev, M. Starikova et J. J. Zondy, “Singly-resonant optical parametric oscillation based on the wide band-gap mid-IR nonlinear optical crystal LiGaS₂”, *Optical Materials* **35**(8), 1612–1615 (2013).
- [Vod93] K. L. Vodopyanov, “Parametric generation of tunable infrared radiation in ZnGeP₂ and GaSe pumped at 3 μm ”, *Journal of the Optical Society of America B* **10**(9), 1723 (1993).
- [Vod98] K. L. Vodopyanov et P. G. Schunemann, “Efficient difference-frequency generation of 7-20 μm radiation in CdGeAs₂”, *Optics Letters* **23**(14), 1096–1098 (1998).
- [Vod99] K. L. Vodopyanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback et W. Ruderman, “AgGaS₂ optical parametric oscillator continuously tunable from 3.9 to 11.3 μm ”, *Applied Physics Letters* **75**(1999), 1204–1206 (1999).
- [Vod00] K. L. Vodopyanov, F. Ganikhanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback et W. Ruderman, “ZnGeP₂ optical parametric oscillator with 3.8-12.4- μm tunability.”, *Optics Letters* **25**(11), 841–843 (2000).
- [Vod03] K. L. Vodopyanov et P. G. Schunemann, “Broadly tunable noncritically phase-matched ZnGeP₂ optical parametric oscillator with a 2-microJ pump threshold.”, *Optics Letters* **28**(6), 441–443 (2003).
- [Vod04] K. L. Vodopyanov, O. Levi, P. S. Kuo, T. J. Pinguet, J. S. Harris, M. M. Fejer, B. Gerard, L. Becouarn et E. Lallier, “Optical parametric oscillation in quasi-phase-matched GaAs”, *Optics Letters* **29**(16), 1912–1914 (2004).
- [Vod14] K. L. Vodopyanov, I. Makasyuk et P. G. Schunemann, “Grating tunable 4-14 μm GaAs optical parametric oscillator pumped at 3 μm ”, *Optics Express* **22**(4), 4131–4136 (2014).
- [Wag15] J. Wagner, R. Ostendorf, J. Grahmann, A. Merten, S. Hugger, J.-P. Jarvis, F. Fuchs, D. Boskovic et H. Schenk, “Widely tunable quantum cascade lasers for spectroscopic sensing”, *Proceedings of SPIE* **9370**, 937012 (2015).
- [Web05] M. E. Webber, M. Pushkarsky et C. K. N. Patel, “Optical detection of chemical warfare agents and toxic industrial chemicals: Simulation”, *Journal of Applied Physics* **97**(11) (2005).
- [Wei03] P. Weibring, H. Edner et S. Svanberg, “Versatile mobile lidar system for environmental monitoring.”, *Applied Optics* **42**(18), 3583–3594 (2003).

-
- [Xie11] Z. D. Xie, X. J. Lv, Y. H. Liu, W. Ling, Z. L. Wang, Y. X. Fan et S. N. Zhu, “Cavity phase matching via an optical parametric oscillator consisting of a dielectric nonlinear crystal sheet”, *Physical Review Letters* **106**(February), 2–5 (2011).
- [Yan93] S. T. Yang, R. C. Eckardt et R. L. Byer, “Power and spectral characteristics of continuous-wave parametric oscillators: the doubly to singly resonant transition”, *Journal of the Optical Society of America B* **10**(9), 1684 (1993).
- [Yan13] F. Yang, J.-Y. Yao, H.-Y. Xu, K. Feng, W.-L. Yin, F.-Q. Li, J. Yang, S.-F. Du, Q.-J. Peng, J.-Y. Zhang, D.-F. Cui, Y.-C. Wu, C.-T. Chen et Z.-Y. Xu, “High efficiency and high peak power picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on BaGa₄Se₇ crystal.”, *Optics Letters* **38**(19), 3903–3905 (2013).
- [Zak02] A. Zakel, S. D. Setzler, P. G. Shunemann, T. M. Pollak, M. Burky et S. Guha, “Optical Parametric Oscillator Based on Cadmium Germanium Arsenide”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2002*, p. 172–173 (2002).
- [Zak05] A. Zakel, G. J. Wagner, W. J. Alford et T. J. Carrig, “High-power, rapidly-tunable dual-band CdSe optical parametric oscillator”, in *Advanced Solid-State Photonics* (2005).
- [Zaw06] K. T. Zawilski, S. D. Setzler, P. G. Schunemann et T. M. Pollak, “Increasing the laser-induced damage threshold of single-crystal ZnGeP₂”, *Journal of the Optical Society of America B* **23**(11), 2310 (2006).
- [Zei14] P. Zeil, N. Thilmann, V. Pasiskevicius et F. Laurell, “High-power, single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillator employing a variable reflectivity volume Bragg grating”, *Optics Express* **22**(24), 29907 (2014).
- [Zel97] D. E. Zelmon, D. L. Small et D. Jundt, “Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol.% magnesium oxide-doped lithium niobate”, *Journal of the Optical Society of America B* **14**(12), 3319 (1997).
- [Zel01] D. E. Zelmon, E. A. Hanning et P. G. Schunemann, “Refractive-index measurements and Sellmeier coefficients for zinc germanium phosphide from 2 to 9 μm with implications for phase matching in optical frequency-conversion devices”, *Journal of the Optical Society of America B* **18**(9), 1307 (2001).
- [Zen10] V. Zeninari, A. Grossel, L. Joly, T. Decarpenterie, B. Grouiez, B. Bonno et B. Parvitte, “Photoacoustic spectroscopy for trace gas detection with cryogenic and room-temperature continuous-wave quantum cascade lasers”, *Central European Journal of Physics* **8**(2), 194–201 (2010).
- [Zha13] Z. Zhang, D. T. Reid, S. Chaitanya Kumar, M. Ebrahim-Zadeh, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski et C. R. Howle, “Femtosecond-laser pumped CdSiP₂ optical parametric

- oscillator producing 100 MHz pulses centered at $6.2\ \mu\text{m}$.”, *Optics Letters* **38**(23), 5110–5113 (2013).
- [Zon91] J.-J. Zondy, “Comparative theory of walkoff-limited type-II versus type-I second harmonic generation with gaussian beams”, *Optics Communications* **81**(6), 427–440 (1991).
- [Zon98] J.-J. Zondy, “The effects of focusing in type-I and type-II difference-frequency generations”, *Optics Communications* **149**, 181–206 (1998).
- [Zon07] J.-J. Zondy, F. Bielsa, A. Douillet, L. Hilico, O. Acef, V. Petrov, A. Yelisseyev, L. Isaenko et P. Krinitsin, “Frequency doubling of CO₂ laser radiation at $10.6\ \mu\text{m}$ in the highly nonlinear chalcopyrite LiGaTe₂”, *Optics Letters* **32**(12), 1722–1724 (2007).
- [Zuk11] A. Zukauskas, G. Strömqvist, V. Pasiskevicius, F. Laurell, M. Fokine et C. Canalias, “Fabrication of submicrometer quasi-phase-matched devices in KTP and RKTP”, *Optical Materials Express* **1**(7), 1319 (2011).

Quentin Clément

**Sources paramétriques optiques pour la détection de gaz à distance
dans l'infrarouge lointain**

Résumé : Pour détecter des espèces chimiques gazeuses à distance dans l'atmosphère par spectro-métrie active, il est nécessaire d'avoir une source cohérente délivrant un faisceau fin spectralement, de bonne qualité spatiale, largement accordable dans l'infrarouge et énergétique. Les sources paramétriques, basées sur l'optique non linéaire d'ordre 2, constituent la seule filière technologique capable de répondre à toutes ces exigences en régime nanoseconde. Cependant, leur développement dans la gamme spectrale 6-16 μm (incluant la bande III de transmission atmosphérique 8-12 μm), qui contient de nombreuses raies d'absorption de gaz de combat, toxiques et d'explosifs est encore insuffisant en raison de difficultés technologiques. Dans ce travail, nous montrons comment les surmonter par la réalisation des premiers oscillateurs paramétriques optiques impulsionsnels monofréquences en bande III, basés sur l'architecture doublement résonnante à cavités imbriquées (NesCOPO). Nous proposons également un nouveau type d'OPO très compact aux propriétés d'accordabilité remarquables (Sheet OPO). Enfin, par la mise en oeuvre d'une expérience de détection à distance de vapeurs d'ammoniac et des expériences d'amplification paramétrique optique, nous montrons comment ces sources peuvent servir de brique de base pour réaliser des systèmes opérationnels pour la détection de gaz dangereux à longue distance dans l'atmosphère.

Mots-clés : laser, oscillateur/amplification paramétrique optique, infrarouge, nanoseconde, monofréquence, bande III, détection de gaz, OPO à cavités imbriquées (NesCOPO), Sheet OPO.

Optical parametric sources for stand-off long-wave infrared gas detection

Abstract: To ensure stand-off detection of gaseous chemical species in the atmosphere by active infrared spectrometry, a coherent source emitting a widely tunable narrow spectral linewidth beam with good quality and high energy is required. Parametric sources based on second order non linear optics are the only technological solution meeting all these requirements in the nanosecond regime. However, their development in the 6-16 μm spectral range (including the 8-12 μm atmospheric transparency window), which contains several absorption lines of hazardous chemicals and explosives, has not been sufficient yet due to technological difficulties. In this work, we show how to address this challenge by setting up the first pulsed single-frequency optical parametric oscillators emitting in the 8-12 μm range, based on the doubly resonant Nested Cavities architecture (NesCOPO). We also propose a new kind of very compact OPO with amazing tunability properties (Sheet OPO). Finally, by carrying out stand-off detection of ammonia vapor and optical parametric amplification experiments, we show how these sources can be used as the core element of operational systems for long range stand-off detection of hazardous gases in the atmosphere.

Keywords: laser, optical parametric oscillator/amplification, infrared, nanosecond, single-frequency, third transparency window, gas detection, Nested Cavities OPO, Sheet OPO.

ONERA - The French Aerospace Lab

Chemin de la Hunière BP 80100

FR-91123 PALAISEAU CEDEX

Tel. : + 33 (0) 1 80 38 60 60 - Fax : + 33 (0) 1 80 38 65 10

<http://www.onera.fr>