NNT : 2016SACLO009

THESE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY,
préparée à
L'INSTITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL

ÉCOLE DOCTORALE N°572
Ondes et Matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

Par

VAN DE WALLE Aymeric

Source paramétrique dans l'infrarouge moyen à haute cadence

Thèse soutenu à Palaiseau, le 3 novembre 2016 :

Composition du Jury :

M. Fabian ZOMER, LAL, Président du jury
M. Alain BARTHELEMY, Laboratoire d'optique de limoges, Rapporteur
M. Thibaut SYLVESTRE, FEMTO-ST, Rapporteur
Mme. Catherine LE BLANC, LULI, Examinatrice
M. Marc HANNA, LCF, Directeur de thèse
M. Nicolas FORGET, Fastlite, Invité

Table des matières

Tableau récapitulatif des acronymes....2
Introduction Générale....3
1. Les OPCPA femtoseconde, un outil pour la physique à haute intensité....8
1.1. Vers les impulsions courtes....8
1.1.1. Impulsions attosecondes et génération d'harmoniques élevés....9
1.1.2. Problématique de la thèse....14
1.2. Etat de l'art sur les OPCPA femtoseconde moyen infrarouge....17
1.2.1. Systèmes haute énergie basse cadence....19
1.2.2. Systèmes basse énergie haute cadence....22
2. Amplification Paramétrique Optique à dérive de fréquence....26
2.1. Amplification à dérive de fréquence....26
2.1.1. Systèmes d'étirement et de compression....27
2.1.2. Gestion de la dispersion dans la chaine d'amplification....28
2.2. Amplification paramétrique optique....29
2.2.1. Equation d'onde....31
2.2.2. Equations d'ondes couplées de l'amplification paramétrique optique....34
2.2.3. Solution aux équations d'onde couplées....36
2.2.4. Equations pour la phase....38
2.2.5. Prise en compte de l'aspect ultra-court....39
2.2.6. Action de la DFG sur la CEP....41
2.2.7. L'OPA dans le cadre du projet....42
2.3. Obtention de la condition d'accord de phase....43
2.3.1. Accord de phase par biréfringence....43
2.3.2. Quasi-accord de phase....44
2.4. Choix du matériau non linéaire....45
2.4.1. Mesures d'homogénéité transverse du PPLN....48
2.4.2. Déformations des faisceaux liées à la puissance....49
2.4.2.1. Effet photoréfractif....49
2.4.2.2. Lentille thermique et effet GRIIRA....51
3. Architecture : Le supercontinuum pour la synchronisation optique des OPA....56
3.1. La synchronisation et ses implications sur l'architecture....56

3.1.1. Architecture à synchronisation pré-amplification 57
3.1.1.1. Mesure de la dérive temporelle 59
3.1.2. Architecture à synchronisation post-amplification 63
3.2. Le supercontinuum 64
3.2.1. Explication du phénomène du supercontinuum 64
3.2.2. Paramètres pour l'optimisation d'un supercontinuum dans des matériaux massifs 66
3.2.3. Stabilité du Supercontinuum 67
3.2.3.1. Stabilité à long terme 67
3.2.3.2. Stabilité à court terme 68
3.2.3.2.1. "Time Stretch Dispersive Fourier Transform" (TSDFT) 69
3.2.3.2.2. Expérience sur la stabilité tir à tir 70
3.2.3.2.3. Résultats de l'expérience 71
3.2.3.2.4. Caractérisations spatiales du supercontinuum 74
3.2.3.2.5. Supercontinuum comme source de signal pour un OPA 75
3.3. Conclusion 75
4. Mise en œuvre expérimentale de la source MIR OPCPA 78
4.1. Simulations 78
4.1.1. Formalisme des simulations 78
4.1.2. Simulation du 1er étage 80
4.1.3. Simulation du 2ème étage 81
4.1.4. Simulation du 3ème étage et compression 82
4.2. Mise en œuvre expérimentale de la source 84
4.2.1. Laser de pompe 84
4.2.2. 1er étage : filtrage spectral du supercontinuum et mise en forme de l'impulsion signal 85
4.2.3. 2ème étage : Montée en énergie 88
4.2.4. 3ème étage : Extraction de l'énergie 90
4.2.5. Compression du signal et de l'idler 93
4.3. Conclusion 95
Conclusion générale 99
Annexe : Expérience préliminaire de mesure de f_{CEO} sur une source laser à fibre non stabilisée par battement « f – 2f » 101
Bibliographie 105

Tableau récapitulatif des acronymes

Acronyme	Nom complet en anglais	Nom complet en français
AOPF	Amplified Optical Parametric Fluorescence	Fluorescence paramétrique optique amplifié
ASE	Amplified Spontaneous Emission	Emission spontanée amplifiée
CEP	Carrier Envelope Phase	Phase enveloppe porteuse
CEO	Carrier Envelope Offset	Décalage de fréquence enveloppe porteuse
CPA	Chirped Pulse Amplification	Amplification à dérive de fréquence
DFG	Difference Frequency Generation	Génération de différence de fréquence
DPA	Divided Pulse Amplification	Amplification par division d'impulsion
FWHM	Full Width Half Maximum	Largeur à mi-hauteur
GRIIRA	GReen Induced Infrared Absorption	Absorption infrarouge induite par le vert
GRISM	GRating + prISM	Prisme avec des réseaux gravés
GVD	Group-Velocity Dispersion	Dispersion de vitesse de groupe
GVM	Group-Velocity Mismatch	Différence de vitesse de groupe
HHG	High-Harmonics Generation	Génération d'hauts harmoniques
OPA	Optical Parametric Amplification	Amplification paramétrique
OPCPA	Optical Parametric Chirp Pulse Amplification	Amplification paramétrique optique à dérive de fréquence
PPLN	Periodically-Poled Lithium Niobate	Niobate de Lithium périodiquement inversé
RMS	Root Mean Square	Moyenne quadratique
SHG	Second Harmonic Generation	Génération de seconde harmonique
SMF	Single Mode Fiber	Fibre monomode
TOD	Third Order Dispersion	Dispersion du 3ème ordre
TSDFT	Time Stretch Dispersive Fourier Transform	Transformée de Fourier par étirement temporel dispersif

Remerciement

Et voici les traditionnels remerciements, certains font dans la sobriété, d'autre avec beaucoup d'originalité. N'étant pas un grand écrivain, je me contenterai d'essayer de les faire sans trop de fautes d'orthographe. Je m'excuse d'avance aux lecteurs uniquement intéressés par les remerciements, ainsi qu'aux personnes que je remercie qui se voient réduit à une phrase par mon manque de capacités littéraires dans ce qui suit quand un paragraphe ne serait clairement pas suffisant pour décrire à quel point j'ai apprécié les moments passés avec eux.

Je remercie tout d'abord les personnes s'occupant de l'infrastructure de laboratoire Charles Fabry qui permet de faire fonctionner ce laboratoire où j'ai passé 3 ans sur ma thèse. Je remercie de même Martine Basset et M. Charron de l'école doctorale.

Je souhaite ensuite remercier tous les membres du groupe laser parmi lesquelles j'ai passé 3 magnifiques années. Je remercie Marc pour m'avoir encadré avec humour et sérieux (non ce n'est pas contradictoire). Merci Fred pour son humour et ses vêtements divers mais souvent orange et/ou fluo. Merci à Patrick pour nous avoir apporté son expérience. Merci à François d'avoir démontré que tout pouvait être résolu avec un tableau Excel (la démonstration provenant elle-même d'un tableau Excel). Merci à Gaëlle d'incarner la féminité du groupe et de nous apporter son point de vue. Merci à Sylvie pour être toujours souriante et de bonne humeur. Merci à Xavier et Paul pour leur création, le Rikudo (Si vous ne connaissez pas, essayer !). Merci à Yoann et Florent pour m'avoir accueilli lorsque le pauvre thésard que j'étais n'avait même pas de laser pour s'amuser. Merci à Philippe pour toute l'aide qu'il m'a apporté lors de la réalisation du système, de son alignement, de son réalignement, de son réalignement […] mais également de son réalignement. Merci à Adrien, Paul, Fabien et Guillaume pour ces 3 années partagées entre travaux de thèse et pause-café. Merci à Kévin pour les délires sérieux (oui ça existe) ou non qui ont parsemés à la vie du bureau des doigts carrés. Merci à Loïc de m'avoir montré l'abime du service après-vente. Grazie a Michele. Merci à Philipp pour son accent et sa facilité à retenir les bonnes expressions françaises. Merci à Kmaies avec qui m'a aidé à envahir la salle apollon. Merci aux anciens du groupe que j'ai eu le plaisir de côtoyer, merci à Igor, J-T, Romain, Alain, Fabiola, Dimitri, Florence, Adrien A., Loïc, ainsi qu'à Julien pour sa solution du dilemme entre le pain au chocolat et la chocolatine. Merci à Gaétan de reprendre le flambeau et bon courage.

Je remercie également les membres de Fastlite qui m'ont gentiment accueilli pendant des longs mois et m'ont aidé et appris alors que je débutais, un grand merci à Nicolas, Alexandre, Raman, Gregory, Stéphanie, Laurence, Pascal, Marie-Christine, ainsi que tous les autres.

Je remercie les membres du CEA qui sont venu utiliser les résultats de ces 3 ans de travails et montrer (je l'espère) qu'on a bien bossé. Merci à Thierry et Aura pour les premières harmoniques du groupe laser.

Je remercie finalement ma famille et mes amis pour leurs encouragements, pour m'avoir supporté quand l'humeur n'y été pas, pour tous ces bons moments passés, et pour les bons moments à venir.

Introduction Générale

1960, la première réalisation expérimentale du LASER (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) a lieu. Décrit à l'origine comme "une solution à la recherche d'un problème", le laser n'a eu cesse d'évoluer depuis ces 55 dernières années, se déclinant sous de multiples formes afin de répondre aux besoins des nombreuses utilisations qui lui ont finalement été trouvées. Depuis le laser à rubis continu pompé par flash, les systèmes se sont développés et sont devenus de plus en plus performants et complexes. Des lasers continus aux lasers aux impulsions en régime femtoseconde, des lasers ultra-violets aux lasers dans le lointain infrarouge, les différentes spécifications de ces lasers ont nécessité la création d'un grand nombre de technologies, le développement de nouveaux matériaux et l'utilisation de nombreux phénomènes physiques afin de répondre à leurs objectifs et dépasser les limites des performances antérieures. En particulier, l'invention du laser est associée avec le développement de l'optique non linéaire, discipline qui a ensuite été utilisée pour mettre au point de nouvelles sources de rayonnement cohérent. Ainsi, l'optique non linéaire en régime perturbatif d'ordre 2 est à l'origine des sources basées sur l'amplification paramétrique optique, sujet qui sera largement abordé au cours de ce travail. De plus, parmi tous les phénomènes d'optique non linéaire utilisés dans le but de développer des sources inédites, la génération d'harmoniques élevés constitue l'exemple le plus récent. Permettant d'adresser le marché des impulsions toujours plus courtes dans un monde où la largeur spectrale était limitée par les bandes de gain des matériaux, la génération d'harmoniques élevés autorise de dépasser la barrière de la femtoseconde et atteindre le monde des impulsions attosecondes. Ce processus est observé lorsqu'une impulsion intense est focalisée dans un milieu, souvent un jet de gaz rare. Les propriétés du rayonnement obtenu dans le domaine spectral XUV, correspondant dans le domaine temporel à un train d'impulsions attosecondes, sont fortement dépendantes du laser excitateur utilisé, en particulier de sa durée et de sa longueur d'onde centrale. L'intérêt croissant porté à ces impulsions attosecondes a suscité le développement de nombreux lasers dont les performances sont spécifiquement tournées vers l'optimisation du processus de génération de hauts harmoniques.

Réalisée dans le cadre du projet FUI (Fond Unique Interministérielle) STAR (Source laser femTosconde Amplifiée pour application de Recherche scientifique) sous la forme d'un contrat CIFRE entre la société Fastlite et le laboratoire Charles-Fabry (UMR CNRS Institut d'Optique Graduate School), cette thèse s'attaque à la réalisation d'un laser servant de source de génération de hauts harmoniques en s'attachant à garder un système simple et efficace. Dans ce manuscrit, les différents travaux effectués pendant ces 3 ans de thèse seront présentés.

Dans un premier temps sera présentée une mise en contexte sur la course aux impulsions courtes, la place du projet dans l'atteinte de cet objectif et une description brève du cahier des charges déduit des applications. On trouvera également un état de l'art des systèmes basés sur l'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence (OPCPA) produisant des rayonnements dans le moyen infrarouge en régime femtoseconde. Dans un second temps, l'OPCPA sera décrit comme la combinaison de l'amplification paramétrique optique

(OPA) et l'amplification à dérive de fréquence (CPA). Après une description brève du CPA et de la gestion de la dispersion dans le système, le principe de l'OPA sera plus amplement détaillé à travers les équations régissant son fonctionnement. Ces dernières seront ensuite utilisées pour faire ressortir les propriétés particulières de l'OPA et comprendre l'intérêt de cette méthode pour notre projet. Seront également décrits les problèmes d'accord de phase et du choix du matériau dans la réalisation des différents étages. Viendra ensuite une étude sur les architectures possibles pour l'implémentation d'un système OPCPA et plus particulièrement sur les soucis de synchronisation temporelle des impulsions au sein du système, le régime femtoseconde rendant le système particulièrement sensible à ce problème spécifique de l'OPA. Sera également inclus une étude sur la viabilité du phénomène appelé "supercontinuum" à devenir une source de génération de signal synchrone avec la pompe.

Dans le chapitre final, nous abordons les simulations numériques réalisées pour dimensionner précisément le système. Enfin, nous examinons la réalisation expérimentale de ce système et sa caractérisation globale, étudions quelques phénomènes qui limitent ses performances, avant de conclure sur la comparaison avec les performances décrites dans le 1er chapitre.

Chapitre I

Les OPCPA femtoseconde, un outil pour la physique à haute intensité

Aperçu du chapitre

1. Les OPCPA femtoseconde, un outil pour la physique à haute intensité 8
   1.1. Vers les impulsions courtes 8
      1.1.1. Impulsions attosecondes et génération d'harmoniques élevés 9
      1.1.2. Problématique de la thèse 14
   1.2. Etat de l'art sur les OPCPA femtoseconde moyen infrarouge 17
      1.2.1. Systèmes haute énergie basse cadence 19
      1.2.2. Systèmes basse énergie haute cadence 22

1. Les OPCPA femtoseconde, un outil pour la physique à haute intensité

1.1. Vers les impulsions courtes

Depuis leur création en 1960, les lasers n'ont cessé de se diversifier. En 55 ans, ils ont vu des changements majeurs dans leurs technologies et dans les matériaux disponibles, leur permettant aujourd'hui de couvrir une gamme spectrale allant des rayons ultra-violets aux lointains infrarouges, une gamme temporelle allant du rayonnement continu aux impulsions femtoseconde. La diversité des lasers aussi bien sur leur réalisation que sur leurs performances leur a permis d'être présents sur un large champ d'applications aussi bien scientifiques qu'industrielles, militaires que civiles.

Une des caractéristiques importantes des lasers pour beaucoup d'applications est la puissance crête des impulsions délivrées. Deux solutions sont possibles pour augmenter cette valeur, soit à durée égale augmenter l'énergie, soit à énergie égale diminuer la durée. A la recherche de ces puissances crêtes toujours plus importantes, les lasers sont donc progressivement montés en énergie, mais aussi ont vu la durée de leurs impulsions diminuer drastiquement. La course aux impulsions toujours plus courtes a vu plusieurs avancées majeures avec la découverte du régime de fonctionnement déclenché (McClung & HellWarth, 1961), puis du régime à modes synchronisés passif (Demaria, Stetser, & Heynau, 1966) permettant chacun de gagner 4 ordre de grandeur sur la durée passant de 100 µs à 10 ns puis 1 ps. Les avancées suivantes ont permis de réduire progressivement cette durée à 5 fs (Steinmeyer, Sutter, Gallmann, Matuschek, & Keller, 1999). Des durées aussi courtes peuvent être comparées aux oscillations du champ électrique lumineux, et on peut alors compter la durée en "cycles optiques", soit le nombre d'oscillations du champ à la longueur d'onde mise en jeu. Ces impulsions de 5 fs sont produites dans un laser construit autour d'un cristal de Ti:Sa, un des meilleurs matériaux pour une amplification large bande par effet laser qui émet à la longueur d'onde de 800 nm, et correspond alors à seulement 2 cycles. Cependant les durées obtenues s'approchent de la frontière symbolique de la femtoseconde sans jamais l'atteindre (voir Fig. 1). En effet, la durée d'une impulsion dont le contenu spectral est centré à une certaine longueur d'onde ne peut être inférieure à un demi-cycle optique à cette longueur d'onde.

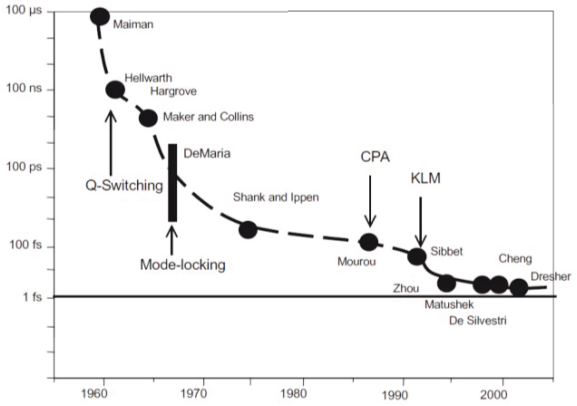


Fig. 1 : Evolution de la durée des impulsions laser depuis sa création (Agostini & DiMauro, 2004)

Pour atteindre des durées inférieures, nécessitant des bandes spectrales toujours plus larges, une nouvelle approche a dû être développée pour générer un contenu spectral à des longueurs d'onde plus courtes. Faute de matériaux laser adéquats, le processus de génération d'harmoniques élevés a été utilisé. Il consiste à créer de très nombreux harmoniques (>100) du rayonnement laser excitateur dans un milieu non linéaire, permettant d'obtenir des spectres couvrants de larges bandes spectrales allant jusqu'au domaine des XUV ($\lambda \sim 10$ nm). Afin d'obtenir des impulsions exploitables pour les applications telles que la spectroscopie ou les techniques de pompe-sonde, le rayonnement délivré se doit d'être suffisamment énergétique et les impulsions doivent être délivrées de façon contrôlées et de durée les plus courtes possibles. Cependant, la faible efficacité du processus ainsi que la physique de ce phénomène apportent des contraintes fortes sur les lasers utilisés pour la génération d'harmoniques élevés. Afin de comprendre ces contraintes nous donnons maintenant un bref aperçu de ce mécanisme.

1.1.1. Impulsions attosecondes et génération d'harmoniques élevés

L'utilisation de la lumière pour l'observation de phénomènes physiques rapides est une technique naturelle, vécue tous les jours par une majorité de la population. En science, telle la photographie diminuant les temps d'exposition pour figer des objets en mouvement, des impulsions toujours plus courtes sont nécessaires dans le but d'étudier des phénomènes toujours plus rapides. L'arrivée des impulsions femtoseconde couplée aux techniques dites pompe-sonde, technique consistant à envoyer une impulsion déclenchant un phénomène puis une deuxième impulsion plus faible pour observer le phénomène à un temps donné variable, a permis d'observer les interactions entre les molécules durant des réactions chimiques, des phénomènes se produisant sur des échelles de temps allant de 5 fs à 1 ps. Cette avancée technologique a donné lieu à la création et au développement d'un nouveau pan de la physique moderne : la femto-chimie, dont les travaux précurseurs sur le domaine ont valu à Ahmed H. Zewail le prix Nobel en 1999. Aujourd'hui le mécanisme de génération d'harmoniques élevés permet la génération d'impulsions pouvant atteindre une durées de 67 as (Zhao, Zhang, Chini, Wu, & Wang, 2012), soit environ deux fois moins que la durée de révolution d'un électron sur la première orbite de Bohr (~ 150 as), ouvrant de nouveaux champs pour la physique en débloquant l'observation des interactions intra-atomiques.

L'obtention d'impulsions courtes nécessite l'accès à un spectre large. La largeur nécessaire pour réaliser des impulsions attosecondes est impossible à obtenir à l'heure actuelle directement par effet laser de par l'absence de milieu ayant une bande de gain suffisamment large. Comme exposé ci-dessus, son obtention passe par la génération d'harmoniques élevés (HHG, High Harmonic Generation), phénomène réalisé par la focalisation d'un laser femtoseconde sur un matériau non linéaire, qui crée un spectre large dans le domaine XUV. Réalisée pour la première fois en 1977 (Burnett, Baldis, Richardson, & Enright, 1977) par la focalisation d'un laser à CO_2 dans des cibles solides, elle sera démontrée la première fois en 1987 (Chang, Rundquist, Wang, M. Murnane, & C. Kapteyn, 1987) avec une cible gazeuse, méthode la plus répandue aujourd'hui pour la génération d'impulsions attosecondes. Cette génération d'harmoniques élevés correspond dans le domaine temporel à la génération de trains d'impulsions attosecondes. La génération d'impulsions attosecondes isolées a été démontrée pour la première fois en 2001 (Hentschel, et al., 2001).

Un spectre de génération d'harmoniques élevés se compose de trois parties (voir Fig. 2) :

- Une série d'harmoniques d'intensité décroissante.
- Une série d'harmoniques d'intensité constante, appelée "le plateau", qui se fini à une fréquence dite "de coupure".
- Une nouvelle série d'harmoniques d'intensité décroissante

Fig. 2 : Spectre d'harmoniques

Le contenu spectral correspondant aux impulsions attosecondes est cette partie du spectre appelé le plateau, où les harmoniques sont d'amplitudes constantes. La réduction de la durée d'impulsion est donc liée à l'augmentation de la fréquence de coupure qui marque la fin du plateau. Or la fréquence optique d'un photon est liée à son énergie, et pour le cas de la fréquence de coupure, ces photons sont les plus énergétiques obtenus lors du processus de génération. Cette énergie peut être déterminée par une approche semi-classique (Corkum, 1993) et correspond à l'expression suivante :

$$E_{cut-off} = I_p + 3{,}17 \times U_p \ , \qquad U_p = \frac{2e^2}{c\epsilon_0 m} \times \frac{I}{4\omega_0^2}. \qquad \text{Eq.1.1}$$

Où I_P est le potentiel d'ionisation, U_P l'énergie pondéromotrice, c'est-à-dire l'énergie cinétique acquise par l'électron dans le champ laser, e est la charge élémentaire, c la vitesse de lumière, ε_0 la permittivité du vide, m la masse d'un électron, I l'intensité laser incidente et ω_0 la pulsation du laser incident.

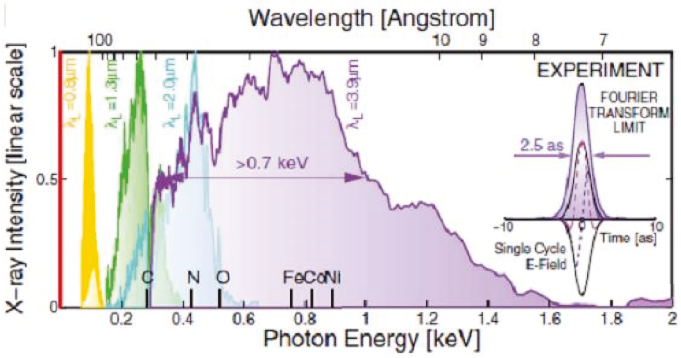


Fig. 3 : Evolution du spectre d'harmoniques en fonction de la longueur d'onde du laser excitant d'après (Popmintchev, et al., 2012).

Si on désire étendre le spectre d'harmoniques, l'équation Eq.1.1 montre que l'on possède plusieurs solutions :

- Changer le gaz afin d'augmenter le potentiel d'ionisation.
- Augmenter la longueur d'onde du laser excitateur (voir Fig. 3).
- Augmenter l'intensité du laser excitateur.

Cependant, on ne peut pas arbitrairement changer le choix du gaz. L'utilisation d'un gaz plus léger permet d'augmenter l'intensité de saturation, cependant cela diminue l'efficacité du processus ce qui amène à faire un compromis. De plus, le choix du gaz est également restreint aux gaz rares qui possèdent les potentiels d'ionisation les plus élevés. Une fois ce choix fixé, l'intensité du laser utilisée est limitée à une valeur de saturation qui correspond à une densité d'ionisation trop importante des atomes. La variable restante est la longueur d'onde. Cependant on ne peut pas non plus l'augmenter indéfiniment du fait de l'efficacité évoluant selon une loi en $\frac{1}{\lambda^{6-7}}$ (Shiner, et al., 2009), comme expliqué ci-après. On trouve donc trois paramètres importants pour le laser excitateur pour la génération d'harmoniques élevés : La **longueur d'ond**e centrale, l'**énergie par impulsion,** et la **durée d'impulsion**. Afin de pouvoir étendre le spectre d'harmoniques en augmentant la longueur d'onde et continuer à obtenir un rayonnement harmonique utilisable malgré l'efficacité du processus diminuant, l'augmentation de la **cadence de répétition** est une solution qui autorise une amélioration au niveau de la puissance moyenne des harmoniques sans changer les conditions de réalisation du processus de génération.

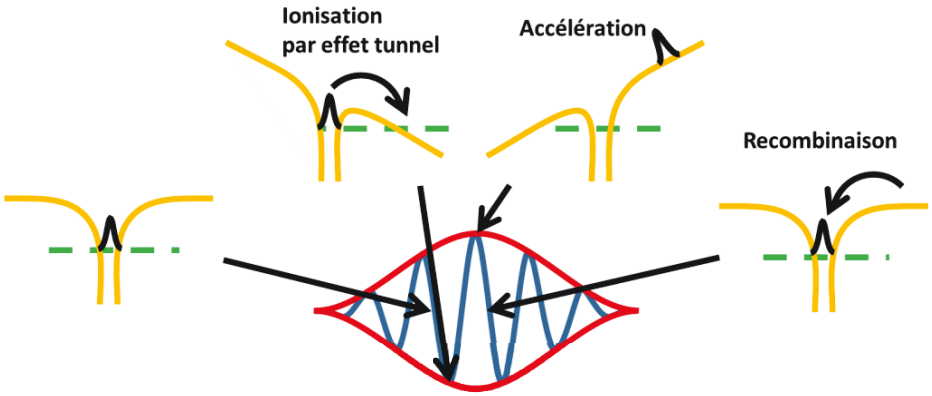


Fig. 4 : Visualisation de la fonction d'onde électronique (en noir) dans le potentiel coulombien (en jaune) durant les différentes étapes du champ électrique optique (en bleu) dans son enveloppe (en rouge) durant le processus de génération d'harmoniques élevés selon une approche semi-classique.

Afin de mieux comprendre comment et pourquoi la longueur d'onde influence l'efficacité de la génération de hauts harmoniques et l'énergie maximale des photons, une approche semi-classique est adaptée (voir Fig. 4). Le phénomène de génération se déroule sur un demi-cycle optique : le champ du laser va déformer le potentiel d'un atome permettant l'ionisation d'un électron par effet tunnel. Cet électron, alors soumis à une accélération constante par le champ électrique du laser, accumule de l'énergie cinétique proportionnelle au carré du temps de parcours, qu'il restitue sous la forme d'un photon lors de la recombinaison. La longueur d'onde influence directement le parcours de l'électron et notamment la durée du trajet de manière proportionnelle : cela explique que l'évolution de l'énergie maximale des photons générés suit une loi de proportionnalité par rapport au carré de la longueur d'onde. Du point de vue de l'efficacité, la propagation de l'électron s'accompagne également de diffusion du paquet électronique, d'autant plus importante que la distance parcourue est grande. Une augmentation de la longueur d'onde, soit de la durée d'accélération, et donc de la distance parcourue, entraine une diffusion plus importante, diminuant ainsi la probabilité de recombinaison, d'où une chute en efficacité du processus. Notons que ce modèle simple ne considère que l'interaction entre le champ du laser et un atome unique. Des considérations supplémentaires mènent à des effets collectifs tels que la notion d'accord de phase, faisant intervenir plus subtilement les paramètres de l'expérience comme les conditions de focalisation du laser excitateur, sa durée, les paramètres du gaz comme la pression et la densité d'ionisation, etc...

Pour l'utilisation des techniques de pompe-sonde, et plus généralement pour toute application résolue en temps, il est important de pouvoir générer des impulsions uniques. Comme le processus de génération se déroule sur un demi-cycle optique du laser excitateur, le nombre d'impulsions attosecondes générées à chaque impulsion source dépend de son nombre de cycles optiques. En pratique, des techniques permettent la génération d'impulsions attosecondes uniques avec des durées de **quelques cycles optiques**, relâchant un peu les contraintes sur les lasers excitateur. Elles sont les suivantes :

- Confinement temporel d'harmoniques : on utilise la dépendance en polarisation de l'efficacité de génération des harmoniques. En manipulant l'ellipticité de la polarisation du champ de l'impulsion

femtoseconde sur sa durée à l'aide d'une combinaison de lames d'onde larges bandes, on parvient à isoler un unique cycle optique correspondant à une polarisation linéaire. L'image de l'électron accéléré dans le champ du laser, puis rentrant en collision avec l'ion parent suggère facilement que ce mécanisme n'est efficace qu'en polarisation excitatrice rectiligne. Cette technique permet donc de confiner temporellement le processus de génération d'harmoniques, permettant de générer des impulsions attosecondes isolées en utilisant des impulsions excitatrices de quelques cycles (Sola, et al., 2006).

- Rayonnement harmonique : Utilisation d'une brisure de symétrie. On applique un faible rayonnement de fréquence optique double de celle du laser excitateur et en phase avec celui-ci (Pfeiter, Gallmann, J.Abel, M.Neumark, & R.Leone, 2006), ce qui change la périodicité de l'excitation d'une génération tous les demi-cycles à une génération tous les cycles.

- Phare attoseconde : Technique proposée (Vincenti & Quéré, 2012), puis réalisée (A.Wheeler, et al., 2012) en 2012. On imprime une rotation temporelle de front d'onde en focalisant un faisceau présentant une faible dispersion angulaire, permettant des directions de propagation distinctes pour les impulsions attosecondes successives que l'on peut alors filtrer spatialement (voir Fig. 5).

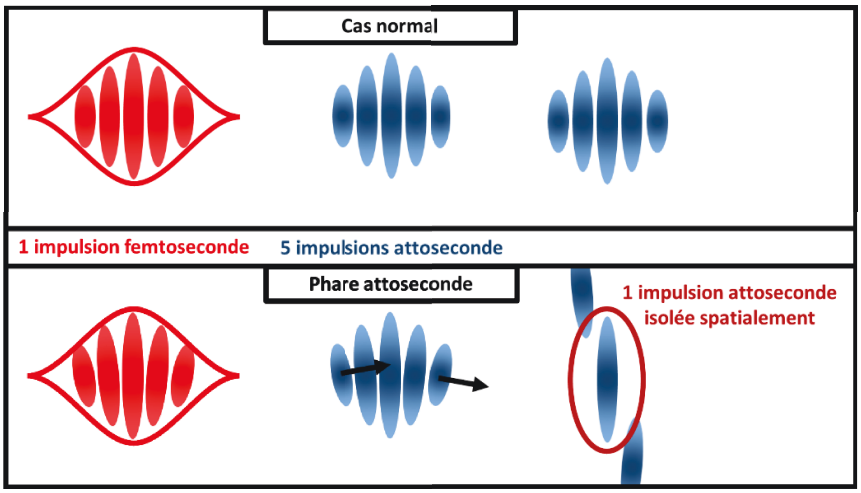


Fig. 5 : Principe du phare attoseconde

L'utilisation d'impulsions de quelques cycles optiques introduit une nouvelle variable importante : la **phase enveloppe-porteuse**, ou CEP (carrier-enveloppe phase). La CEP correspond à la relation de phase entre l'enveloppe et la porteuse de l'impulsion lumineuse et influence grandement la forme du champ électrique lorsque l'impulsion est courte (voir Fig. 6). En effet pour des impulsions courtes, le nombre d'oscillations du champ dans l'impulsion est réduit et voit directement la modulation imposée par l'enveloppe amenant à des variations très fortes de la forme du champ pouvant changer la génération des impulsions attosecondes. Typiquement, si l'impulsion (Fig. 6a) génère une impulsion attoseconde, l'impulsion (Fig. 6b), pourtant de même énergie, même longueur d'onde et même durée, génèrera deux impulsions (ou aucune). Une absence de stabilité de CEP du laser excitateur entrainera donc une instabilité sur l'unicité des impulsions attosecondes et sur le contenu spectral généré dans le domaine XUV, empêchant son utilisation dans de nombreuses applications.

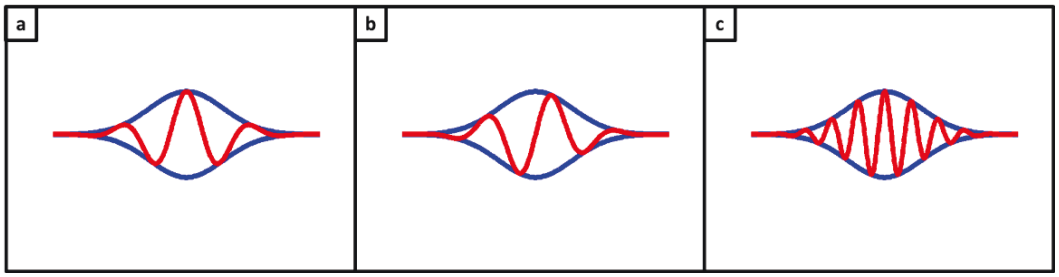


Fig. 6 : Impulsions lumineuses. En bleu l'enveloppe, et en rouge le champ électrique. a) et b) sont des impulsions courtes fortement influencées par la CEP, et c) une impulsion longue peu influencée par la CEP.

1.1.2. Problématique de la thèse

Cette thèse se réalise dans le cadre d'une collaboration CIFRE entre le Laboratoire Charles-Fabry et l'entreprise Fastlite, et est financée par le projet FUI (Fond Unique Interministériel) STAR porté par Fastlite et les partenaires Amplitudes Systèmes, Amplitudes Technologies, le Laboratoire Charles-Fabry et le CEA-IRAMIS-Equipe Attophysique. Ce projet consiste à développer une nouvelle génération de sources ultrarapides pour des applications allant du domaine des champs ultra-intenses à la spectroscopie, qui nécessite des énergies par impulsion beaucoup plus modestes. Le projet prévoit la réalisation de différentes variantes du système développées durant cette thèse, mettant en avant différentes propriétés de la source telles que l'accordabilité ou le contraste. Pour notre version, le but est d'offrir une alternative aux sources actuelles utilisées pour la physique attoseconde.

En effet, ce domaine disciplinaire fait un usage presque exclusif de sources laser basées sur le cristal de saphir dopé au titane (Ti:Sa). Ce dernier possède des propriétés exceptionnelles, notamment en termes de largeur spectrale de la bande de gain, et de conductivité thermique. En revanche, les propriétés spectroscopiques de ce matériau impliquent un pompage de haute brillance dans la région verte du spectre visible, ce qui exclut le pompage par diode pour les applications nécessitant de fortes puissances. Ceci implique également que le défaut quantique est élevé. Les paramètres typiques des systèmes Ti:Sa correspondent donc à une puissance moyenne comprise entre 1 et 10 W, un taux de répétition de l'ordre du kHz, et une durée d'impulsion de 30 fs à la longueur d'onde de 800 nm. Cette durée d'impulsion, qui est une propriété remarquable de la technologie Ti:Sa, correspond néanmoins à plus de 10 cycles optiques, et un étage de compression nonlinéaire est nécessaire pour amener ces impulsions dans le domaine des quelques cycles optiques. La stabilisation de la CEP de ces systèmes est réalisée à l'aide d'un système de mesure de type interféromètre f-2f (Kakehata, Takada, Kobayashi, & Torizuka, 2001), et en agissant sur un actuateur situé soit dans la cavité laser (méthode « feedback », historiquement développée en premier (Jones, Diddams, Ranka, Stentz, & Windeler, 2000)), soit à l'extérieur de la cavité (méthode « feedforward » utilisant un modulateur acousto-optique (Koke, et al., 2010)).

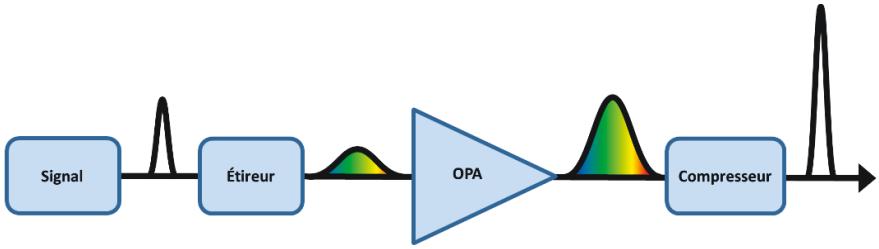


Fig. 7 : Principe de l'amplification à dérive de fréquence (CPA) : L'impulsion est étirée temporellement à l'aide d'un système dispersif afin de diminuer la puissance crête. Après amplification à faible puissance crête, le système de compression introduit une dispersion opposée à celle du système d'étirement et permet de retrouver la durée originale de l'impulsion.

A l'heure actuelle, deux technologies alternatives sont l'objet de recherche afin de pallier aux inconvénients des systèmes Ti:Sa que sont la faible puissance moyenne et l'efficacité globale, ainsi que le caractère fixe de la longueur d'onde centrale.

La première de ces alternatives consiste à utiliser des lasers femtoseconde basés sur les matériaux dopés aux ions ytterbium, qui peuvent émettre des puissances moyennes très importantes, typiquement jusqu'à 1 kW à l'heure actuelle. Cette solution présente deux inconvénients : d'une part, la largeur spectrale de la bande de gain des matériaux dopés ytterbium est bien plus faible que celle du Ti:Sa, ce qui limite la durée des impulsions à des valeurs typiques de 300 fs – 2 ps. La compression temporelle à des durées correspondant à quelques cycles optiques est possible (Rothhardt, et al., 2014), mais nécessite un système complexe comportant plusieurs étages non linéaires, qui n'a pu être démontré que récemment. D'autre part, la longueur d'onde centrale reste fixée autour de 1030 nm par la bande de gain de l'ion ytterbium. Les techniques de stabilisation de la CEP de ces systèmes sont similaires au cas des sources Ti:Sa.

La deuxième alternative consiste à utiliser ces mêmes lasers basés sur la technologie ytterbium (ou alternativement basés sur des cristaux dopés aux ions néodymes, qui peuvent également émettre de forte puissance moyenne) pour pomper des amplificateurs paramétriques optiques (OPA, Optical Parametric Amplification), incluant ou non une architecture d'amplification à dérive de fréquence (CPA, Chirped Pulse Amplification), (Strickland & Mourou, Compression of amplified chirped optical pulses, 1985). Cette dernière technique consiste à étirer temporellement l'impulsion à amplifier à l'aide de composants optiques introduisant une dispersion de vitesse de groupe, afin d'abaisser la puissance crête (cf. Fig. 7). Après amplification, l'impulsion est comprimée temporellement à une durée proche de sa valeur initiale en introduisant une dispersion opposée. Lorsque les deux méthodes OPA et CPA sont associées, on parle de systèmes « OPCPA » (Dubietis, Jonusaukas, & Piskarskas, 1992). Cette technologie, qui sera détaillée dans la suite du manuscrit, permet l'obtention de forts gains sur des bandes spectrales importantes supportant directement des impulsions de quelques cycles optiques, tout en autorisant dans une certaine mesure une montée en puissance moyenne. Ce dernier point est permis par l'absence de stockage d'énergie dans le milieu nonlinéaire qui fournit le gain au signal, bien que des effets thermiques apparaissent tout de même à forte puissance comme nous le verrons par la suite. Les OPCPA permettent également une grande flexibilité sur la longueur d'onde centrale, ce qui permet en particulier de réaliser des sources dans le moyen infra-rouge. L'inconvénient principal de ces sources est l'efficacité limitée du transfert d'énergie entre la pompe d'une

part et le signal et/ou l'idler d'autre part, ainsi qu'une complexité possible du système liée à la génération du signal initial et à la synchronisation entre pompe et signal. Toutefois, dans certaines conditions expérimentales, un avantage majeur concerne la possibilité de stabiliser la CEP de façon passive, comme détaillé ci-après.

S'appuyant sur des systèmes de pompe utilisant des sources ytterbium fournies par la société Amplitude Systèmes et l'instrumentation pour l'optique ultra-rapide de la société Fastlite, le projet dans le cadre duquel cette thèse a été réalisée a pour but de progresser vers l'implémentation d'une source OPCPA dans le moyen infra-rouge en se préoccupant particulièrement de la simplicité de l'architecture, afin d'optimiser robustesse, compacité et coût. L'objectif de ce système en termes de performances est dicté par les applications de physique à haute intensité. Ses caractéristiques sont donc liées aux paramètres importants soulevés dans la partie précédente, et les quelques chiffres suivants sont donnés à titre indicatif :

Longueur d'onde centrale :	signal autour de 1,5 μm, idler autour de 3 μm
Durée des impulsions :	~ 50 fs (5 cycles optiques à 3 μm)
Energie par impulsions :	> 20 μJ
Cadence de répétition :	> 100 kHz
CEP :	Stable passivement

1.2. Etat de l'art sur les OPCPA femtoseconde moyen infrarouge

Bien que le phénomène d'OPA soit connu depuis longtemps (Akhmanov, Kovrigin, Piskarskas, Fadeev, & Khokhlov, 1965), son utilisation pour obtenir des rayonnements dans le moyen infrarouge à des énergies suffisantes pour la réalisation d'expériences de physique à haute intensité suscite un intérêt grandissant depuis quelques années, avec une évolution vers des longueurs d'onde de plus en plus hautes pour accéder à des énergies pondéromotrices plus importantes et observer de nouveaux phénomènes.

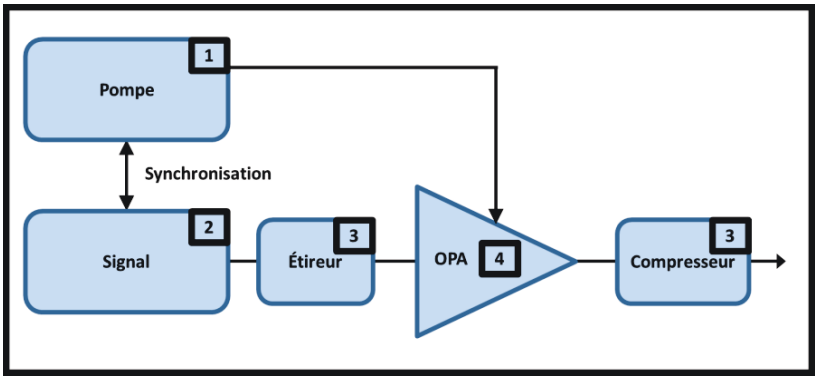


Fig. 8 : Schéma-type d'un système OPCPA.

Dans cette partie nous allons décrire l'état de l'art des systèmes OPCPA de forte puissance dans le proche/moyen infrarouge. Avant de passer en revue plusieurs exemples de tels systèmes, nous essayons ici de dégager les points clés qui vont déterminer les caractéristiques de chaque source, en nous appuyant sur un schéma de principe très général d'une source OPCPA décrit en Fig. 8.

La première brique de base est constituée par le laser de pompe. En effet, les performances d'un système OPCPA sont profondément liées aux performances en termes d'énergie, de cadence, de durée, de qualité de faisceau, et de stabilité de la pompe utilisée. La majorité des systèmes présentés utilisent des pompes de forte puissance basées sur les matériaux Yb:YAG ou Nd:YVO_4 dont la longueur d'onde est centrée aux alentours de 1 µm. La durée des impulsions de pompe est également un facteur très important pour la conception du système : elle va déterminer la durée étirée des impulsions signal, la quantité de gigue temporelle tolérable entre la pompe et le signal, et la possibilité ou non d'utiliser le phénomène de génération de supercontinuum pour générer le signal à partir de la pompe. Cette durée fait également varier le seuil de dommage des matériaux en termes d'intensité crête, ce qui a un impact sur le gain paramétrique qu'il est possible d'obtenir sur une longueur de cristal donnée.

Le deuxième élément clé est constitué par la source initiale de signal, qui doit être synchronisée avec la pompe. Essentiellement, deux choix sont possibles. Le signal peut être généré par un oscillateur indépendant de celui produisant la pompe, ce qui nécessite une synchronisation électronique des deux cavités laser verrouillées en phase. La deuxième solution est de générer le signal optiquement à partir de la pompe, ou vice versa, ce qui correspond à une situation de « synchronisation optique ». Même dans ce cas, et en fonction des détails de l'implémentation expérimentale, une stabilisation du délai entre les impulsions signal et pompe peut s'avérer nécessaire.

Le troisième élément clé correspond à la solution retenue pour gérer la dispersion, en particulier les solutions techniques pour le couple étireur / compresseur, et la gestion de la phase spectrale d'ordres élevés à la fois pour le signal et/ou pour l'idler. Les solutions possibles sont l'utilisation de matériaux massifs, d'arrangements de prismes et/ou de réseaux, et de technologies plus sophistiquées de gestion de la phase spectrale. Ces dernières incluent l'utilisation d'un miroir déformable ou d'un modulateur spatial de lumière placé dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle, ou le recours à un filtre acousto-optique dispersif programmable.

Enfin, le quatrième élément clé est constitué par le choix du matériau nonlinéaire au sein duquel l'amplification paramétrique va avoir lieu. Les considérations principales qui rentrent en ligne de compte pour ce choix sont la présence d'un accord de phase large bande à la longueur d'onde souhaitée, le type d'accord de phase, la valeur du gain paramétrique possible déterminée par la nonlinéarité du matériau, le seuil de dommage du matériau, et sa disponibilité en fonction de l'ouverture (taille) désirée.

Ces dernières considérations font toucher du doigt la complexité liée à la mise au point d'un système OPCPA. En particulier, chacune de ces briques de base est interconnectée à toutes les autres, et les performances finales d'une source sont souvent la construction d'un compromis entre les divers paramètres souhaités.

La Fig. 9 est une photographie non exhaustive d'un certain nombre de systèmes OPCPA représentatifs de la diversité de l'état de l'art actuel, classés sur un diagramme énergie de pompe / cadence d'une part, et énergie en sortie / cadence d'autre part. Une des limitations majeures de ces systèmes étant liées à la puissance moyenne de pompe disponible, on trouve principalement 2 types de pompes : les "haute énergie basse cadence", et les "basse énergie haute cadence", alignés le long d'une droite de puissance moyenne constante. On remarque qu'un des systèmes ressort de ce graphe en dessous de la courbe, ce qui s'explique par l'utilisation d'une pompe qui est déjà un OPA et donc possède donc une puissance moyenne inférieure aux autres systèmes présents dans cet état de l'art. De plus, si on compare la classification par énergie de pompe et par énergie en sortie de système, on retrouve globalement les mêmes points du fait d'une efficacité totale (signal + idler) assez similaire entre les différents systèmes, les variations les plus importantes provenant de combinaison de longueurs d'onde désavantageuse pour le rayonnement moyen infrarouge (voir (Chen, Li, Li, Guo, & Leng, 2016)) ou de systèmes de compression de faible transmission (voir (Sanchez, et al., 2016)).

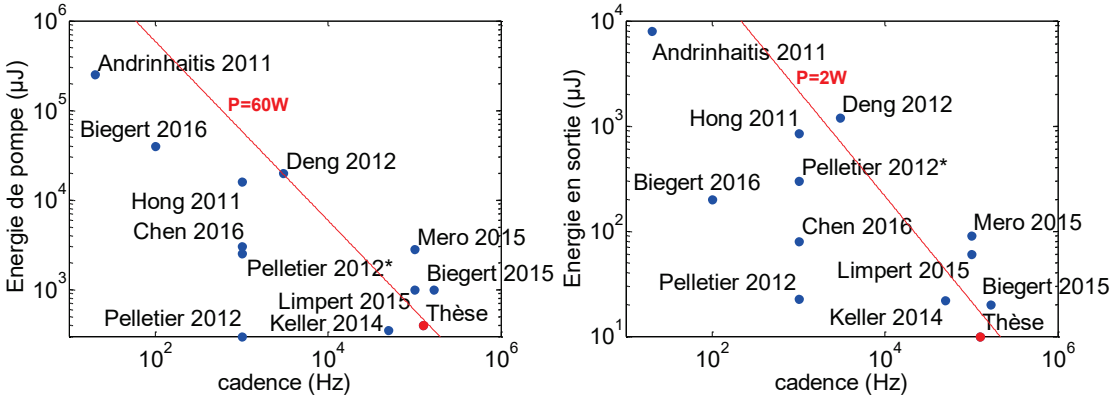


Fig. 9 : Etat de l'art classifié des OPCPA selon la cadence et l'énergie par impulsion de leurs pompes, ou selon la cadence et l'énergie dans le milieu infrarouge en sortie du système.

1.2.1. Systèmes haute énergie basse cadence

Avec des cadences montant jusqu'à quelques kHz et des énergies de l'ordre de la dizaine à plusieurs centaines de millijoules, les systèmes "haute énergie basse cadence" permettent l'obtention de puissances crêtes de plusieurs TW au prix d'une cadence faible.

Le système (Andriukaitis, et al., 2011) opère à une faible cadence de 20 Hz. Il est constitué d'un oscillateur Yb:KGW injectant 2 amplificateurs différents. Le premier est un amplificateur Yb:CaF_2 délivrant des impulsions de 1 mJ, d'une durée de 190 fs, à une longueur d'onde centrale de 1030 nm pour une cadence de 500 Hz, dont une partie est prélevée pour générer un signal à 1460 nm par supercontinuum. La majeure partie du rayonnement à 1030 nm est utilisée dans le but d'amplifier le signal en pompant 3 étages d'OPA dotés de cristaux de KTP pour l'amener à 65 µJ. Le deuxième amplificateur est celui qui limite la cadence du système à 20 Hz et est un amplificateur Nd:YAG délivrant des impulsions de 250 mJ, 70 ps à 1064 nm. En utilisant un compresseur à réseaux et à prismes (GRISM, GRating prISM), le signal amplifié sortant du premier amplificateur est envoyé dans 2 étages d'OPA dotés de cristaux de KTA ayant un seuil de dommage élevé et pompé par le deuxième amplificateur. Le système de compression final à base de réseaux perd une majorité de l'énergie laissant 8 mJ en sortie la longueur d'onde de à 3,9 µm, mais permet un contrôle de la phase jusqu'à l'ordre 4 en couplage avec le système de compression précèdent, donnant des impulsions de 83 fs très proches de la limite de Fourier.

Le système (Hong, et al., 2011) part d'un oscillateur Ti:Sa et profite de la large bande spectrale (voir Fig. 10) afin d'obtenir à la fois du rayonnement à 1 µm pour servir de pompe et un spectre très large centré à 800 nm. Une étape de différence de fréquence entre les bords de ce spectre très large permet de générer le signal à 2,1 µm. Les 3 étages d'OPA sont pompés par 2 systèmes différents d'amplification : alors que les 2 chaines d'amplification partent d'un amplificateur à fibre dopé Ytterbium, la première utilise ensuite un amplificateur régénératif Nd:YLF suivi d'un amplificateur multi-passage ; la deuxième se base elle sur un amplificateur régénératif Yb:YAG cryogénique suivi d'un amplificateur multi-passage afin de monter à de plus hautes énergies. Les cristaux utilisés pour chaque étages évoluent afin de s'adapter à la montée en puissance, commençant avec du PPLN puis du PPSLT (Periodically Poled Stoichiometric Lithium Tantalite), le dernier

étage utilisant du BBO dû au manque de cristaux périodiquement inversés avec des ouvertures suffisantes imposées par les puissances mises en jeu. L'incorporation d'un filtre dispersif acousto-optique programmable permet l'utilisation d'un système de compression à base de matériaux massifs en fin de chaine très efficace du point de vue de la transmission tout en proposant un contrôle des ordres élevés de la phase spectrale permettant une compression à 32 fs. La réalisation de la différence de fréquence tôt dans la chaine permet l'obtention d'une stabilité CEP passive de 194 mrad sur 30 secondes. Avec une efficacité d'extraction totale de 5%, le système génère des impulsions de 0,85 mJ à 2,1 μm avec une cadence de 1 kHz. Ce système a donné lieu à une autre publication. Ainsi le système (Liang, Krogen, Schunemann, & Kärtner, 2016) utilise le système précédent comme source de pompe pour un unique étage d'OPA basé sur un cristal de $CdSiP_2$, présentant l'avantage d'une transparence allant jusqu'à 10 μm et d'un d_{eff} deux fois supérieur au niobate de lithium. Il délivre des impulsions de seulement 20 μJ, évitant une amplification trop importante qui entrainerait du rétrécissement par le gain afin de conserver un spectre extrêmement large allant de 2,5 à 11 μm par combinaison du signal et de l'idler, atteignant ainsi une durée en limite de Fourier de 5 fs, soit 0,8 cycle à 5 μm.

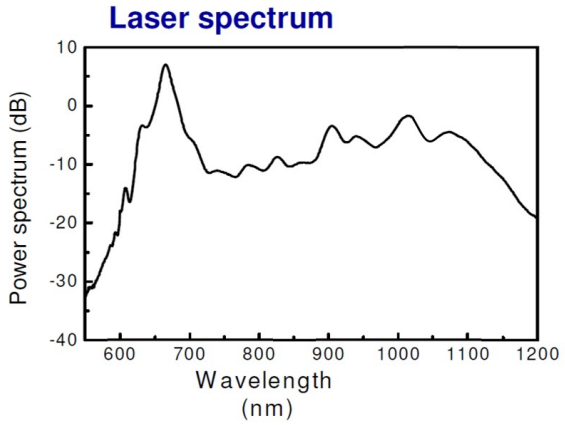


Fig. 10 : Spectre de l'oscillateur Ti:Sa dans (Hong, et al., 2011).

Tirant lui aussi partie de la large bande d'un oscillateur Ti:Sa, le système présenté dans (Deng, et al., 2012) utilise un amplificateur régénératif thin-disk Yb:YAG pour amplifier le contenu spectral à 1,03 μm produit par l'oscillateur et générer des impulsions de pompe de 20 mJ, 1,6 ps à 3 kHz. Un amplificateur Ti:Sa multi-passage permet de délivrer 1 mJ, 25 fs à la longueur d'onde de 800 nm. La sortie de cet amplificateur est envoyée dans une fibre creuse afin d'élargir son spectre et permettre une différence de fréquence dans un PPLN afin de créer un signal à 2,1 μm, utilisé ensuite pour les 3 étages d'OPA pompés par l'amplificateur Yb:YAG. Pour les deux premiers étages sont également utilisés des PPLN, alors que le troisième utilise du niobate de lithium non inversé pour des soucis d'ouverture. Tout comme (Hong, et al., 2011), ce système utilise un filtre dispersif acousto-optique programmable pour l'étirement couplé avec un matériau massif pour la compression, permettant un bon contrôle de la phase tout en maximisant la transmission du système de compression en sortie, ce qui permet la génération d'impulsions de 10,5 fs contenant 1,2 mJ.

Le système (Chen, Li, Li, Guo, & Leng, 2016) utilise lui aussi une source Ti :Sa amplifiée générant des impulsions de 3 mJ, 100 fs à la longueur d'onde de 800 nm et à la cadence de 1 kHz. Le signal est créé par génération de supercontinuum dans une lame de YAG, puis directement envoyé dans 3 étages d'OPA, dotés de cristaux de KTA. L'idler possède une énergie par impulsion de 82 µJ, malgré une bonne extraction totale de 14,6% de par la différence de longueur d'onde très importante entre le signal à 1070 nm et l'idler à 3270 nm provoquée par une pompe à 800 nm. De par la bande spectrale du signal dû au supercontinuum, le spectre obtenu pour l'idler est accordable de 2,4 µm à 4 µm (Voir Fig. 11), et supporte une impulsion de 70 fs en limite de Fourier.

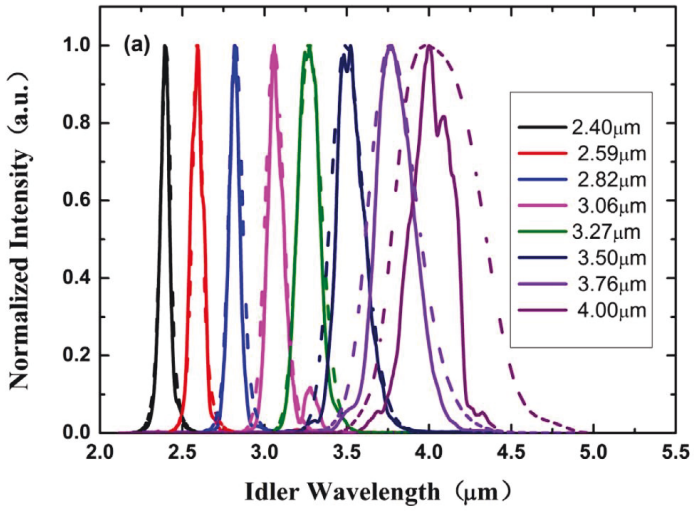


Fig. 11 : Accordabilité de l'OPCPA (Chen, Li, Li, Guo, & Leng, 2016). En trait pleins les résultats expérimentaux, et en pointillé les simulations numériques.

Partant d'un laser à fibre dopée erbium, le système (Pelletier, Sell, Leitenstorfer, & Dwayne Miller, 2012) se compose de 2 systèmes OPCPA, le premier permettant de pomper le second. Le système commence par un oscillateur délivrant des impulsions de 100 fs à une cadence de 20 MHz à la longueur d'onde de 1560 nm, et dont on sépare le faisceau en deux voies. La première voie utilise une fibre hautement non linéaire (HNLF) pour changer de longueur d'onde et arriver à 1050 nm afin d'injecter un amplificateur régénératif Nd:YLF puis un amplificateur double-passage Nd:YLF afin de produire des impulsions de pompe de 2,5 mJ, 50 ps à 1 kHz. L'autre voie est également amplifiée puis étirée avant d'être envoyée dans 2 étages d'OPCPA dotés de cristaux de KTA et pompés par les impulsions sortant de l'amplificateur Nd:YLF. Après un système de compression à réseaux, les impulsions signal possèdent une énergie de 300 µJ et une durée de 140 fs à 1600 nm. Ce premier système OPCPA sert à pomper un cristal de séléniure de gallium lithium (LGSe), nouveau cristal reprenant des caractéristiques proche du Sulfure de gallium argent (AGS) avec une meilleure conductivité thermique et un seuil de dommage de surface plus important. Le signal de ce deuxième OPCPA est constitué par l'idler ayant également été généré dans le premier OPCPA à la longueur d'onde de 3,1 µm avec une énergie de 22,6 µJ et une durée de 300 fs. Il est à noter que cet idler ayant été généré dans un étage d'OPA non colinéaire, il a été nécessaire de corriger le chirp spatial avant de l'utiliser dans le deuxième système (voir Fig. 12). L'augmentation de la durée en sortie du deuxième OPCPA

s'explique par l'utilisation de l'idler chirpé à 50 ps pour une pompe de 140 fs de laquelle résulte une perte de bande spectrale.

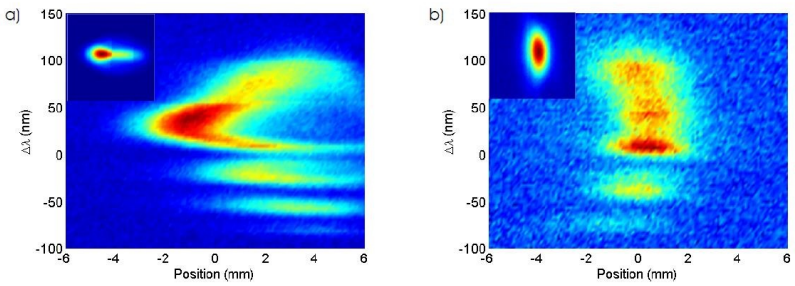


Fig. 12 : Résultat de la compensation du chirp spatial dû à l'utilisation d'un étage d'OPA non colinéaire dans (Pelletier, Sell, Leitenstorfer, & Dwayne Miller, 2012). On voit le faisceau chirpé en a), puis une fois la compensation réalisée en b). En inclusion les profils spatiaux des faisceaux.

Finalement, dans cette catégorie, on peut remarquer les travaux de (Sanchez, et al., 2016) se basant sur une source délivrant 40 mJ dans des impulsions étirées à 170 ps (11 ps à l'origine) à la longueur d'onde de 2 µm et pour une cadence de 100 Hz afin d'obtenir du rayonnement à la longueur d'onde de 7000 nm. Cette source est un amplificateur régénératif à base de Ho:YLF suivi d'un étage d'amplification cryogénique. La différence de fréquence est réalisée en début de chaine, puis l'idler est étiré à l'aide d'un matériau massif et envoyé dans 3 étages d'OPA dotés de cristaux $ZnGeP_2$. L'impulsion finale est compressée par un système à réseaux à une durée de seulement 180 fs, soit 8 cycles optiques, pour un spectre pouvant supporter une durée minimale de 85 fs. Avec de lourdes pertes dans le système de compression et une conversion totale de 5% obtenue par un rapport temporel entre l'idler et la pompe en faveur de la préservation de la bande, seulement 200 µJ par impulsions sortent du système, mais une compression plus efficace est en préparation pour obtenir 440 µJ en réduisant les pertes (transmission totale de 60-80%) grâce à des traitements adaptés.

1.2.2. Systèmes basse énergie haute cadence

Avec des cadences de l'ordre de la centaine kHz et des énergies inférieures à quelques millijoules, les systèmes "basse énergie haute cadence" s'adressent à des applications ayant des besoins en puissances crêtes plus faibles, mais dont les cadences d'acquisition sont importantes.

Le système (Mayer, Phillips, Gallmann, & Keller, 2014) est basé sur une pompe réalisée à partir d'un amplificateur de type thin-disk Nd:YVO_4 amplifiant la sortie d'un laser industriel délivrant des impulsions de 12 ps à 1064 nm. Le signal quant à lui est fourni par un module injecté par ce même laser. Doté de 3 étages d'OPCPA utilisant du niobate de lithium périodiquement inversé (PPLN), ce système fonctionne à une cadence de 50 kHz afin de permettre à l'amplificateur de fournir des impulsions de pompe de 350 µJ. Le signal à 1550 nm étant délivré avec des impulsions de 65 fs, son spectre est tout d'abord élargi dans une fibre afin de permettre des impulsions plus courtes en sortie de système. Il est ensuite mis en forme par un système 4-f et étiré par une paire de prisme afin de s'approcher de la durée de pompe. Les deux premiers étages sont pompés en géométrie colinéaire afin de pouvoir extraire l'idler non dispersé et l'injecter dans le 3ème étage. Le pompage du 3ème étage utilise une configuration achromatique basée sur une géométrie non-

colinéaire, augmentant ainsi la bande de gain, et permet d'obtenir un spectre large. L'impulsion finale est compressée par un barreau de saphir permettant une transmission maximale pour le système de compression, contrairement à un système à réseaux ou à prismes. Obtenant une très bonne extraction totale (signal + idler) de 20%, ce système délivre des impulsions de 22 µJ à 3400 nm. Cependant les fortes modulations présentes dans le spectre se retrouvent une fois l'impulsion comprimée sous la forme d'une pré-impulsion et de post-impulsions autour de l'impulsion principale dans le domaine temporel (voir Fig. 13) et ne permettant pas de descendre en dessous des 44 fs.

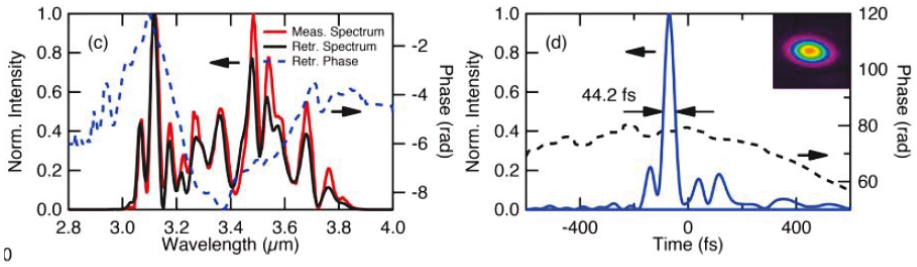


Fig. 13 : Spectre et profil temporel du système (Mayer, Phillips, Gallmann, & Keller, 2014).

Le système (Baudisch, et al., 2015) se base lui aussi sur une pompe Nd:YVO_4 délivrant 1 mJ dans 9,5 ps à une cadence de 160 kHz et une longueur d'onde de 1064 nm. Dans ce cas, l'idler est produit séparément directement en début de système à partir de la différence de fréquence entre un laser à fibre dopée erbium et une étape de génération de supercontinuum dans une fibre optique, fournissant des rayonnements à 1030 nm et 1550 nm dans le régime femtoseconde. Cet idler produit à la longueur d'onde 3050 nm est étiré à 3 ps par un barreau de 50 mm en saphir pour être envoyé dans un premier étage d'OPA doté de PPLN, puis ré-étiré par un nouveau barreau afin de passer dans 3 autres étages successifs d'OPA utilisant toujours des cristaux de PPLN. L'idler à 3050 nm est finalement compressé par un système à réseaux, pendant que le signal est compressé par un système à prismes. L'utilisation de réseaux pour la compression aura pour conséquence la perte de 50% de l'énergie obtenue, amenant l'énergie par impulsion pour l'idler à seulement 20 µJ malgré l'énergie de pompe disponible de 1 mJ. La durée d'impulsion de l'idler est de 55 fs après la compression malgré un contrôle précis de l'ordre 2 et 3 de la phase ainsi que l'utilisation de deux cristaux avec des bandes de gain décalées dans le dernier étage afin d'augmenter la bande.

Le système (Shamir, et al., 2015) est quant à lui basé sur un système Ti:Sa. Une infime partie est utilisée pour servir de signal après passage dans un système de mise en forme du faisceau et étirement par miroir chirpé, afin de passer des 5 fs du Ti:Sa à 330 fs. Le spectre du signal est accordable entre 680 nm et 810 nm, ce qui correspond à un idler entre 1,4 µm et 2,1 µm. L'autre partie est envoyée dans un amplificateur fibré à dérive de fréquence pour fournir des impulsions de 0,9 mJ, 580 fs, 100 kHz à 1030 nm et ainsi servir de pompe. Le signal est alors amplifié dans deux étages d'OPA dotés de BBO, le 1er étage étant pompé par le doublage de fréquence de la pompe, et le 2ème par la pompe elle-même. Les impulsions sont re-compressées à l'aide d'une lame de silicium, obtenant ainsi une durée d'impulsions de 33 fs grâce à la correction des ordres supérieurs pour la compression en amont au niveau du dispositif de mise en forme du faisceau. L'énergie

par impulsion obtenue est de 60 μJ pour l'idler et 75 μJ pour le signal, ce système obtient une extraction totale de 14 %.

L'OPCPA femtoseconde avec la plus grande puissance moyenne de pompe à notre connaissance est le système (Mero, Noack, Bach, Petrov, & Vrakking, 2015) avec 280 W. Il se base sur un laser à fibre dopée erbium, dont une partie sert de signal pendant que l'autre partie voit son spectre élargi avec une fibre hautement non linaire (HNLF) pour constituer la pompe à 1030 nm. Cette dernière est amplifiée dans une chaine CPA Yb:YAG pour obtenir des impulsions de pompe de 2,8 mJ, 1,1 ps, à 1030 nm et 100 kHz. On notera que seulement 470 μJ de pompe sont actuellement utilisés, permettant de pomper deux étages d'OPA, dont le premier est doté d'un PPLN et le second d'un cristal de KTA. L'utilisation de matériaux massifs pour l'étirement et la compression garantissant une perte minimale, couplée à une forte extraction totale de 28%, permet de générer une énergie par impulsion de 90 μJ pour le signal à 1550 nm. Cependant, malgré la synchronisation initiale optique, les fluctuations non stabilisées de délai dans les systèmes amplificateurs produisent une dérive de synchronisation temporelle, ce qui provoque la disparition de l'effet d'amplification en l'espace d'une vingtaine de secondes.

Ce rapide tour d'horizon des systèmes OPCPA de forte puissance dans l'infra-rouge moyen montre clairement le grand nombre de travaux menés, particulièrement pendant le déroulement de cette thèse. Ces travaux visent à trouver la solution idéale pour tirer le meilleur de cette technologie, seule capable de générer des impulsions très courtes et énergétiques dans l'infra-rouge moyen. La richesse des architectures, mettant en œuvre de nombreuses étapes d'optique nonlinéaire, nécessite la compréhension globale des mécanismes physiques impliqués. Dans la deuxième partie de ce manuscrit, nous abordons ainsi la description des formalismes utiles dans le cadre de ces systèmes, et particulièrement l'amplification paramétrique en régime ultra-rapide.

Chapitre II

Amplification Paramétrique Optique à dérive de fréquence

Aperçu du chapitre

2. Amplification Paramétrique Optique à dérive de fréquence 26
2.1. Amplification à dérive de fréquence 26
2.1.1. Systèmes d'étirement et de compression 27
2.1.2. Gestion de la dispersion dans la chaine d'amplification 28
2.2. Amplification paramétrique optique 29
2.2.1. Equation d'onde 31
2.2.2. Equations d'ondes couplées de l'amplification paramétrique optique 34
2.2.3. Solution aux équations d'onde couplées 36
2.2.4. Equations pour la phase 38
2.2.5. Prise en compte de l'aspect ultra-court 39
2.2.6. Action de la DFG sur la CEP 41
2.2.7. L'OPA dans le cadre du projet 42
2.3. Obtention de la condition d'accord de phase 43
2.3.1. Accord de phase par biréfringence 43
2.3.2. Quasi-accord de phase 44
2.4. Choix du matériau non linéaire 45
2.4.1. Mesures d'homogénéité transverse du PPLN 48
2.4.2. Déformations des faisceaux liées à la puissance 49
2.4.2.1. Effet photoréfractif 49
2.4.2.2. Lentille thermique et effet GRIIRA 51

2. Amplification Paramétrique Optique à dérive de fréquence

Le projet STAR vise à obtenir un rayonnement impulsionnel à une haute cadence et avec une énergie par impulsion élevée dans le moyen infrarouge. Pour réaliser ce type de rayonnement, nous avons vu précédemment que l'OPCPA est la solution la plus adaptée à nos besoins. Dans ce chapitre, nous détaillons le formalisme utile à la description de cette architecture, afin d'en exposer les caractéristiques et de mettre en avant les éléments importants à la mise en œuvre d'un tel système. Dans un premier temps nous décrivons la gestion de la dispersion au sein de la chaine d'amplification (partie CPA), qui nécessite d'autant plus d'attention que les bandes spectrales mises en jeu sont larges. Dans un deuxième temps nous décrivons le formalisme qui régit le phénomène d'amplification paramétrique (partie OPA). L'identification des paramètres importants dans ce phénomène nous mène ensuite au choix du cristal nonlinéaire pour notre système, le niobate de lithium périodiquement inversé dopé MgO. Enfin, quelques études préliminaires sur ce matériau concernant son homogénéité et la possibilité de montée en puissance concluent ce chapitre.

2.1. Amplification à dérive de fréquence

L'amplification à dérive de fréquence (CPA, Chirped Pulse Amplification) est une technique visant à augmenter les puissances crêtes pouvant être obtenues sans avoir à souffrir du seuil de dommage du matériau amplificateur. Introduite dans le domaine optique dans le milieu des années 80 (Strickland & Mourou, Compression of amplified chirped optical pulses, 1985), cette technique consiste en l'étirement temporel des impulsions avant leur amplification, suivi par leur compression après amplification. Ainsi, la puissance crête durant l'amplification et donc la puissance crête dans le matériau est diminuée du facteur d'étirement/compression, permettant ainsi de repousser le seuil de dommage (cf. Fig. 7). Pour l'OPCPA, cela est plus généralement utilisée afin de maximiser le recouvrement temporel entre la pompe et le signal.
L'effet de la dispersion se décrit facilement en passant par le domaine de Fourier pour travailler avec l'amplitude spectrale $\check{A}$ définit comme :

$$\check{A}(z,\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} A(z,t)e^{i\omega t}dt, \qquad \text{Eq.2.1}$$

$$A(z,t) = A(0,t)e^{i\beta z}.$$

On peut alors décomposer la constante de propagation en série de Taylor dans le domaine fréquentielle selon :

$$\begin{cases} \beta(\omega) = n(\omega)\dfrac{\omega}{c} = \beta_0 + (\omega-\omega_0)\beta_1 + \dfrac{1}{2}(\omega-\omega_0)^2\beta_2 + \dfrac{1}{6}(\omega-\omega_0)^3\beta_3 + \cdots \\ \beta_k = \left(\dfrac{d^k\beta}{d\omega^k}\right)_{\omega=\omega_0} \end{cases}. \qquad \text{Eq.2.2}$$

On écrit ainsi l'évolution de l'amplitude spectrale au cours de la propagation :

$$\check{A}(z,\omega) = \check{A}(0,\omega)\exp\left[\mathrm{i}\left(\frac{1}{2}\beta_2\omega^2 + \frac{1}{6}\beta_3\omega^3 + \cdots\right)z\right]. \qquad \text{Eq.2.3}$$

Cette expression met en avant les effets de la dispersion sur l'onde. Tout d'abord la dispersion n'introduit qu'un terme de phase spectrale $\varphi(\omega)$ et ne change donc pas le module du spectre. Les dispersions d'ordre

2 et d'ordre 3 introduisent respectivement un terme de phase quadratique et un terme de phase cubique dans le domaine spectral. Dans le domaine temporel la dispersion introduit une déformation de par les retards $T(\omega)$ des différentes longueurs d'onde par rapport à la longueur d'onde centrale.

$$T(\omega) = \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}(\omega, t). \qquad \text{Eq.2.4}$$

Ainsi une dispersion d'ordre 2 (cf. Fig. 14) introduira sur une impulsion en limite de Fourier un allongement temporel sous la forme d'un chirp linéaire.

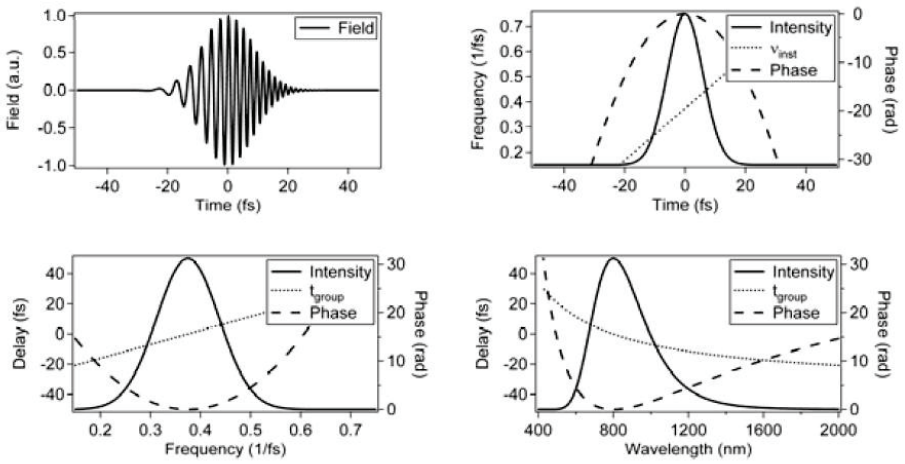


Fig. 14 : Illustration de l'effet d'une dispersion d'ordre 2 sur une impulsion. D'après (Trebino, 2012).

Une dispersion d'ordre 3 introduira une déformation de l'impulsion avec création de pré-pulse ou de post-pulse en fonction du signe de la dispersion (cf. Fig. 15).

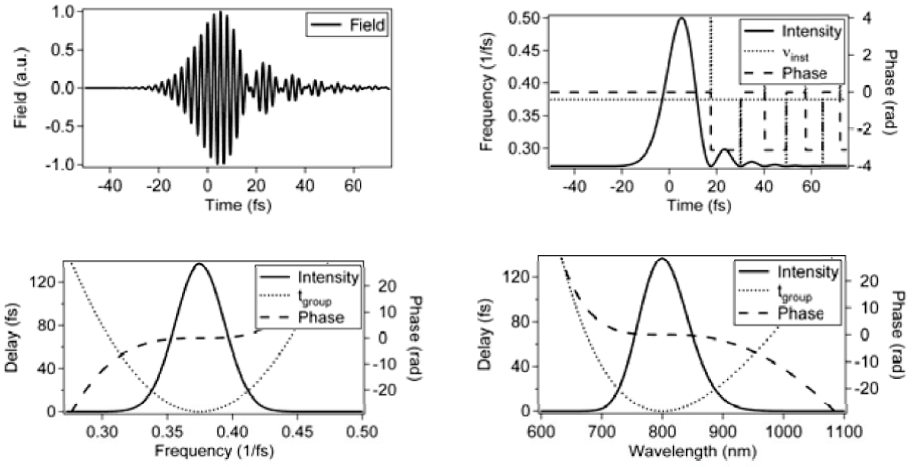


Fig. 15 : Illustration de l'effet d'une dispersion d'ordre 3 sur une impulsion. D'après (Trebino, 2012).

2.1.1. Systèmes d'étirement et de compression

Les différentes méthodes pour étirer/compresser les impulsions comprennent l'utilisation de prismes, de réseaux, de matériaux massifs ou de fibres optiques, composants optiques qui permettent tous l'introduction d'une phase spectrale quadratique dominante. L'exploitation de la forte dispersion angulaire de réseaux

permet un facteur d'étirement très important, avec une durée d'impulsion étirée pouvant atteindre plusieurs nanosecondes. En revanche, ils entrainent généralement des pertes importantes : un étireur/compresseur à réseaux aura une efficacité de l'ordre de 50%-70%. L'introduction d'une phase spectrale quadratique s'accompagne d'une quantité fixe de phase spectrale d'ordre 3, déterminée par la densité de traits des réseaux et la géométrie du système optique. Cette phase spectrale supplémentaire peut poser problème pour gérer la phase spectrale accumulée tout au long du système.

Une deuxième solution est basée sur l'utilisation de prismes, et repose sur des arrangements optiques similaires aux étireurs à réseaux. Le taux d'étirement est moindre puisque lié à la dispersion angulaire des prismes. La dispersion totale de ces compresseurs étant liée à la fois à la dispersion angulaire et à la dispersion de vitesse de groupe du matériau constituant du prisme, la quantité de phase spectrale d'ordre 3 peut être accordée dans une certaine mesure.

En associant des réseaux et des prismes, des séquences dispersives permettant d'accorder les phases spectrales quadratiques et cubiques peuvent être mises en place. Ces systèmes, appelés « grisms », présentent l'inconvénient d'être complexes à mettre en œuvre et délicats à aligner.

Autre solution très utilisée, les miroirs chirpés introduisent une dispersion contrôlée sur une bande spectrale donnée à chaque réflexion.

Enfin, une solution particulièrement simple repose simplement sur la dispersion d'un matériau, utilisé soit sous forme massive, soit sous forme fibrée. Dans ce dernier cas, la dispersion introduite par le guidage s'ajoute à la dispersion du matériau. Les fibres permettent d'utiliser une grande longueur de matériau, et donc un taux d'étirement important, mais ne permettent pas de comprimer des impulsions dont la puissance crête est importante, les effets non linéaires limitant cette dernière. En ce qui concerne les matériaux massifs, ceux-ci ne permettent ni un facteur d'étirement important (typiquement limité à quelques picosecondes), ni un contrôle de la phase spectrale d'ordres supérieurs. En revanche, ils permettent une efficacité de transmission bien plus importante, de l'ordre de plus de 90%.

2.1.2. Gestion de la dispersion dans la chaine d'amplification

Le système de compression doit en fin de chaine compenser à la fois le système d'étirement mais aussi la dispersion accumulée le long de cette chaine : la propagation des impulsions le long de la chaine d'amplification s'accompagne de dispersion due à la traversée des différentes optiques de mise en forme et de transport. Cette dispersion peut également être gênante hors du problème de la compression en changeant de façon notable la durée des impulsions en régime femtoseconde, changeant les puissances crêtes mises en jeu dans les étages d'amplification et donc les gains prévus. L'OPA présente également ce problème qui met en jeu des impulsions à trois longueurs d'ondes, contrairement à un système laser "classique", complexifiant la gestion de la dispersion suivant les schémas d'amplification considérés. Par exemple le transport du signal le long de la chaine pour une utilisation final de l'idler après le dernier étage

d'amplification nécessite de considérer la dispersion accumulée par le signal puis transférée à l'idler par la différence de fréquence (DFG, Difference Frequency Generation).

On trouvera ci-dessous (cf. Fig. 16), un tableau récapitulatif des matériaux utilisés dans le système développé durant cette thèse accompagné des paramètres importants liés à la dispersion. Il est à noter que l'utilisation de miroirs métalliques (argent) pour le transport des impulsions permet de s'affranchir de la dispersion que peuvent introduire les miroirs diélectriques, au prix de pertes plus importantes. Dans le tableau ci-dessous, le $LiNbO_3$ est le matériau non linéaire, le silicium sera utilisé pour étirer le signal à 1550 nm et comprimer l'idler à 3 µm, le BK7 est utilisé pour certaines lentilles. Le YAG, CaF_2, et la silice sont utilisés comme substrats pour les miroirs dichroïques qui permettent de combiner et séparer les faisceaux de pompe, signal et idler. La silice est également utilisée pour comprimer le signal en fin de chaine. Tous ces éléments introduisent différentes quantités de phase spectrale, dont les effets peuvent être facilement évalués en utilisant le formalisme décrit ci-dessus.

	n		GVD (fs^2/mm)		TOD (fs^3/mm)	
λ (nm)	1550	3070	1550	3070	1550	3070
LiNbO3	2.21	2.16	112	-653	390	4280
YAG	1.81	1.78	6.92	-393	159	2420
Silicium	3.48	3.42	1120	507	390	879
CaF2	1.43	1.42	-0.169	-116	50.2	662
Silice	1.44	1.42	-27.9	-589	151	4120
BK7	1.50	X	-24.6	X	156	X

Fig. 16 : Tableau récapitulatif des paramètres de dispersion des matériaux utilisés le long de la chaine d'amplification.

La manipulation de bandes spectrales importantes, associée à la génération d'impulsions de quelques cycles optiques rend le profil temporel final très sensible à de faibles quantités de phase spectrale résiduelle. Cette phase résiduelle est potentiellement plus importante lorsque le facteur d'étirement est élevé. Cet argument explique que dans la plupart des systèmes OPCPA, un système actif de correction de la phase spectrale est utilisé pour comprimer les impulsions amplifiées de manière optimale.

Nous passons maintenant à la description du phénomène d'OPA.

2.2. Amplification paramétrique optique

Effet non linéaire d'ordre 2, dépendant donc du coefficient $\chi^{(2)}$, l'OPA se traduit par l'annihilation d'un photon dit de pompe fournissant l'énergie nécessaire pour la création d'un photon dit de signal et d'un photon dit d'idler. On a ainsi un transfert d'un rayonnement pompe très énergétique et de haute fréquence (ω_p) vers un rayonnement signal faiblement énergétique et de fréquence plus basse (ω_s). Le phénomène est soumis à la conservation de l'énergie, et fait donc apparaitre un 3ème rayonnement appelé faisceau d'idler de fréquence également plus basse que celle de la pompe (ω_i) :

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i. \qquad \text{Eq.2.5}$$

On retrouve donc l'absence de stockage d'énergie dans le milieu par le caractère instantané de l'OPA. Ceci permet de réduire les problèmes thermiques, facilitant la montée en cadence des systèmes reposant sur cet effet. De plus, ce mécanisme d'amplification ne génère pas d'émission spontanée amplifié (ASE, Amplified Spontaneous Emission), remplacé par de la génération de fluorescence paramétrique amplifié (AOPF, Amplified Optical Parametric Fluorenscence). Cette génération paramétrique ne pouvant avoir lieu que lors du passage de l'impulsion de pompe dans le milieu non linéaire, aucun mécanisme d'émission parasite n'existe en dehors du profil temporel de la pompe, ce qui confère un excellent contraste incohérent aux sources OPA.

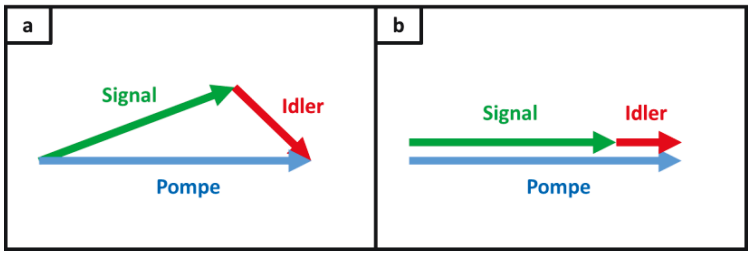


Fig. 17 : Relation entre les 3 vecteurs d'ondes en accord de phase. a) Cas non-colinéaire. b) Cas colinéaire.

L'efficacité du transfert d'énergie entre les 3 ondes mises en jeu dépend du désaccord de phase Δk :

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i. \qquad \text{Eq.2.6}$$

Avec k_p, k_s, k_i les vecteurs d'onde respectivement de la pompe, du signal et de l'idler (cf. Fig. 17). Cette condition provient de la conservation de la quantité de mouvement, et une amplification efficace ne peut avoir lieu que lorsque le désaccord de phase est proche de zéro. Lorsque que la condition $\Delta k = 0$ est remplie, on dit que l'on est en accord de phase. Pour réaliser cela, plusieurs méthodes et configurations sont possibles :

- Configuration non-colinéaire : La pompe et le signal ne sont pas colinéaires. Lorsque le signal à amplifier est large bande et que la pompe possède une bande spectrale faible devant celle du signal, ce qui est la situation dans laquelle nous nous trouvons dans le cadre de notre projet, l'idler est généré avec un chirp angulaire et est donc difficile à utiliser directement (cf. Fig. 18). L'angle entre la pompe et le signal est un degré de liberté supplémentaire permettant de faire varier l'accord de phase en plus de l'orientation du cristal.

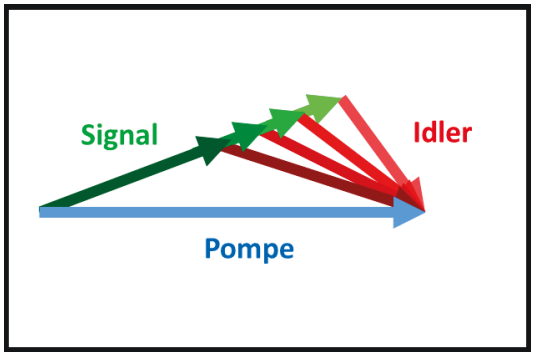


Fig. 18 : Schéma de principe du chirp angulaire de l'idler dans un OPA non-colinéaire large bande.

- Configuration colinéaire : La pompe et le signal sont colinéaires. L'idler se propage également de façon colinéaire avec la pompe et le signal, sans introduction de chirp angulaire. La gestion de l'accord de phase ne se fait qu'au niveau du cristal.

Il existe deux méthodes pour réaliser l'accord de phase d'un point de vue du cristal : l'utilisation de la biréfringence et les cristaux périodiquement inversés. Le sujet sera plus amplement développé dans la section 2.3. Après ces quelques considérations qualitatives sur le mécanisme d'OPA, nous établissons maintenant le formalisme utilisé pour le décrire plus en détails, en incluant les effets pertinents à la description de l'aspect ultra-court des impulsions mises en jeu.

2.2.1. Equation d'onde

Tout phénomène électromagnétique classique peut être décrit à partir des équations de Maxwell et de la force de Lorentz. Alors que les équations de Maxwell décrivent l'évolution des champs électromagnétiques dus aux charges, aux courants et aux champs eux-mêmes, la force de Lorentz décrit l'influence de ces champs sur les particules chargées. En utilisant les unités scientifiques internationales (SI), les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\nabla . \boldsymbol{D} = \rho/\epsilon_0 . \quad \text{Eq.2.7}$$

$$\nabla . \boldsymbol{B} = 0 . \quad \text{Eq.2.8}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = \partial_t \boldsymbol{B} . \quad \text{Eq.2.9}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \partial_t \boldsymbol{D} + \boldsymbol{J} . \quad \text{Eq.2.10}$$

où **E** et **B** sont respectivement le vecteur de champ électrique et le vecteur de champ magnétique, **D** le champ de déplacement électrique, **H** le champ de magnétisation, **J** le courant de densité de charges libres, ρ la densité de charges libres, et ϵ_0 la permittivité du vide.

De façon générale, **D** et **B** sont fonctions de **E** et **H** par des relations dépendantes du milieu dans lequel les champs interagissent, appelées relations constitutives. Dans la plupart des cas, ces relations peuvent être approximées par des fonctions simples : en supposant que la réponse du milieu aux champs électromagnétiques est rapide et localisée, on peut supposer que la connaissance de **H** et **D** en un temps donné t_0 et une position donnée r_0 est déterminée par la connaissance de **B** et **E** en ce même temps et même

position. De plus les matériaux utilisés en optique sont pour la plupart non magnétiques, ce qui permet une relation simple entre **H** et **B** :

$$\boldsymbol{H}(r,t) = \boldsymbol{B}(r,t)/\mu_0, \qquad \text{Eq.2.11}$$

où μ_0 est la perméabilité du vide. De plus nous supposons que **D** et **E** sont reliés par le vecteur de polarisation **P** selon l'expression suivante :

$$\boldsymbol{D}(r,t) = \epsilon_0 \boldsymbol{E}(r,t) + \boldsymbol{P}(r,t). \qquad \text{Eq.2.12}$$

Ce vecteur **P** décrit le champ électrique généré par les charges liées dans le milieu en réponse au champ électrique extérieur **E**. Cette équation reflète le fait que **E** et **D** sont reliés par l'interaction dans le milieu, exprimée par **P**.

En utilisant ces équations et en supposant l'absence de charges libres et de courants dans le milieu, on peut établir une relation mettant en jeu uniquement **E** et **P**, appelée équation d'onde non linéaire :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \mu_0 \epsilon_0 \partial_t^2 \boldsymbol{E} = -\mu_0 \partial_t^2 \boldsymbol{P}. \qquad \text{Eq.2.13}$$

Cette expression peut être simplifiée en développant $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla.\mathbf{E}) - \nabla^2 \boldsymbol{E}$ et en négligeant la contribution du terme $\nabla(\nabla.\mathbf{E})$, ce qui est une bonne approximation dans notre cas de milieu faiblement biréfringent. On obtient alors :

$$-\nabla^2 \mathbf{E} + \mu_0 \epsilon_0 \partial_t^2 \boldsymbol{E} = -\mu_0 \partial_t^2 \boldsymbol{P}. \qquad \text{Eq.2.14}$$

Afin de déterminer l'évolution du champ électromagnétique à partir de cette équation, il est nécessaire de décrire la relation entre **P** et **E**. Du point de vue physique, cela signifie que nous voulons savoir comment le champ électrique extérieur affecte les charges liées du milieu. Le modèle le plus simple à ce processus est que le champ extérieur agit de façon instantanée sur la distribution des charges dans le milieu, induisant un moment dipolaire oscillant. La polarisation totale est alors déduite du moment dipolaire moyen par unité de volume. Pour des champs électriques faibles, la distribution de charges autour des atomes est supposée suivre le champ électrique appliqué, impliquant une dépendance linéaire entre le moment dipolaire induit et le champ appliqué, signifiant que les atomes oscilleront et rayonneront donc à la même fréquence que le champ appliqué. Le champ électrique et la polarisation sont alors reliés par la relation :

$$\boldsymbol{P}(r,t) = \epsilon_0 \chi \boldsymbol{E}(r,t). \qquad \text{Eq.2.15}$$

où la quantité sans dimension χ est un tenseur connu sous le nom de susceptibilité électrique, dont les composantes sont les constantes de proportionnalité entre les différentes composantes du vecteur de polarisation P et du champ électrique E. Ce tenseur peut être relié à l'indice de réfraction dans ce cas du milieu isotrope par la relation $n = \sqrt{1 + Re(\chi)}$.

Cependant pour des champs plus importants, la réponse du système est plus complexe et ne peut être décrite par la relation précédente seule, la réaction de la distribution de charge s'éloignant d'une réponse linéaire. Puisque **P** est défini par la moyenne du moment dipolaire que forme les atomes du milieu, il existe deux origines possibles à la réponse nonlinéaire du milieu. La première possibilité est que la réponse des atomes

est nonlinéaire, ce qui se comprend d'après le modèle simple utilisé précédemment par une dépendance nonlinéaire de la force de réponse des charges liées au déplacement. La deuxième possibilité est que le moment dipolaire moyen, dépend de l'intensité du champ optique, ce qui est le cas dans les milieux laser par exemple.

L'optique nonlinéaire classique couvre l'utilisation de champs suffisamment forts pour que les nonlinéarités soient observables, mais suffisamment faibles pour que la photo-ionisation et autre processus de champs forts soient négligeables. Dans ce régime intermédiaire, dit régime pertubatif, on s'attend à ce que la relation en **P** et **E** soit linéaire pour des faibles valeurs de **E** et s'éloigne progressivement de cette linéarité à des valeurs de **E** grandissantes. On décompose alors **P** en série de Taylor autour de $\boldsymbol{E} = \vec{\boldsymbol{0}}$:

$$\boldsymbol{P}(r,t) = C_1\boldsymbol{E}(r,t) + \frac{1}{2}C_2\boldsymbol{E}(r,t)^2 + \frac{1}{6}C_3\boldsymbol{E}(r,t)^3 + \cdots, \qquad \text{Eq.2.16}$$

où la constante C1 est la première dérivée de **P** selon **E** à $\boldsymbol{E} = \vec{\boldsymbol{0}}$, C2 la deuxième dérivée de **P** selon **E** à $\boldsymbol{E} = \vec{\boldsymbol{0}}$, et ainsi de suite selon :

$$C_n = \left|\frac{\partial^n \boldsymbol{P}}{\partial \boldsymbol{E}^n}\right|_{\boldsymbol{E}=\vec{0}}. \qquad \text{Eq.2.17}$$

Par convention, la polarisation n'est pas écrite selon les constantes C_n, mais les constantes $\chi^{(n)}$ selon :

$$\boldsymbol{P}(r,t) = \epsilon_0\chi^{(1)}\boldsymbol{E}(r,t) + \epsilon_0\chi^{(2)}\boldsymbol{E}(r,t)^2 + \epsilon_0\chi^{(3)}\boldsymbol{E}(r,t)^3 + \cdots, \qquad \text{Eq.2.18}$$

où $\chi^{(1)}$ est appelé la susceptibilité linéaire, les $\chi^{(n)}$ suivantes sont appelés les susceptibilités nonlinéaire d'ordre n.

Pour prendre en compte la dispersion, les équations précédentes doivent être étendues au cas où la polarisation à un instant t_0 ne dépend pas uniquement du champ électrique à ce même instant, mais aussi du champ à des temps antérieurs $t<t_0$. Cela s'exprime mathématiquement par une convolution. Pour le terme linéaire et le deuxième ordre, noté $\mathbf{P}^{(1)}$ et $\mathbf{P}^{(2)}$, on écrit alors :

$$\boldsymbol{P}^{(1)}(r,t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{t} dt' \chi(t')\boldsymbol{E}(r,t-t'). \qquad \text{Eq.2.19}$$

$$\boldsymbol{P}^{(2)}(r,t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{t} dt' \int_{-\infty}^{t} dt'' \chi(t',t'')\boldsymbol{E}(r,t-t')\boldsymbol{E}(r,t-t''). \qquad \text{Eq.2.20}$$

De la même façon on peut écrire les différents $P^{(n)}$. La limite supérieure de l'intégration est la manifestation de la causalité. L'introduction des polarisations prenant en compte la dispersion dans l'équation d'onde entraîne une complexité importante de l'expression avec un mélange de dérivés et d'intégrales. Le passage dans le domaine de Fourier permet toutefois de conserver des expressions simples en transformant les convolutions en produits :

$$\boldsymbol{P}^{(1)}(r,\omega) = \epsilon_0\chi^{(1)}(\omega)\boldsymbol{E}(r,\omega), \quad \boldsymbol{P}^{(2)}(r,\omega) = \epsilon_0\chi^{(2)}(\omega)\boldsymbol{E}(r,\omega)^2, \quad \ldots \qquad \text{Eq.2.21}$$

Si on s'intéresse en particulier aux processus non linéaires d'ordre 2, on peut écrire en utilisant la notation tensorielle la relation :

$$\boldsymbol{P}^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1) : \boldsymbol{E}(\omega_1)\boldsymbol{E}(\omega_2). \qquad \text{Eq.2.22}$$

Cette relation peut être exprimée pour la i[ème] composante de la polarisation comme :

$$\boldsymbol{P}_i^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 \sum_{j\,k} \sum_{perm} \chi^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1)\, \boldsymbol{E}_j(\omega_1)\boldsymbol{E}_k(\omega_2), \qquad \text{Eq.2.23}$$

où i, j et k représentent les composantes cartésiennes des champs et perm représente les sommations de l'ensemble des permutations possibles de ω_1 et ω_2 de telle façon que $\omega_1+\omega_2 = \omega_3$.

Pour des raisons de commodité, on peut séparer explicitement la polarisation **P** en la somme d'une partie linéaire et d'une partie nonlinéaire, $\boldsymbol{P} = \boldsymbol{P}^L + \boldsymbol{P}^{NL} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P}^{NL}$, et l'introduire dans l'équation d'onde afin d'obtenir l'expression :

$$-\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2}\partial_t^2 \epsilon_r \boldsymbol{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2}\partial_t^2 \boldsymbol{P}^{NL}, \qquad \text{Eq.2.24}$$

avec $\epsilon_r = \chi^{(1)} + 1$, la constante diélectrique relative.

2.2.2. Equations d'ondes couplées de l'amplification paramétrique optique

Dans cette partie, nous allons utiliser l'équation d'onde précédemment déduite afin de décrire le processus d'OPA. Il s'agit d'un processus de mélange à 3 ondes se basant sur le $\chi^{(2)}$ dans lequel deux champs optiques oscillants à $\omega_1 > \omega_2$ sont combinés dans un milieu nonlinéaire afin de générer un 3[ème] champ à $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. La conservation de l'énergie requiert que deux photons aux fréquences ω_3 et ω_2 soient créés pour chaque photon à la fréquence ω_1 annihilé.

Pour des raisons historiques, ω_1, ω_2 et ω_3 sont respectivement appelés pompe, signal et idler. C'est pourquoi les indices p, s et i sont communément utilisés pour les noter dans les équations, notations que nous utiliserons dans ce chapitre (cf. Fig. 19). En général le signal correspond à la fréquence optique la plus élevée créée par l'OPA, tandis que l'idler correspond à la fréquence la plus faible créée, ce qui fait que les pulsations optiques vérifient $\omega_p > \omega_s > \omega_i$.

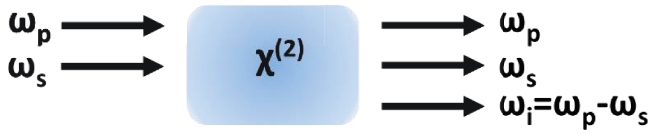


Fig. 19 : Résumé des notations pour les différents champs durant ce chapitre.

Nous repartons donc de l'équation d'onde nonlinéaire. Les opérateurs présents agissent sur chaque composante du champ électrique et de la polarisation, ce qui signifie que chaque composante vérifie l'équation d'onde de façon indépendante. En prenant le cas de champs polarisés linéairement, ce qui est le

cas le plus courant dans l'OPA, nous pouvons transformer l'équation d'onde en relation scalaire. De plus nous supposons, sans perte de généralité, une propagation selon la direction z pour des soucis de notation.

Pour des polarisations nonlinéaires négligeables, les solutions de l'équation d'onde sont des ondes planes infinies et homogènes. Par exemple, à la fréquence de l'idler, le champ électrique E_i peut être exprimé ainsi :

$$E_i(z,t) = A_i e^{i(k_i z - \omega_i t)} + c.c, \qquad \text{Eq.2.25}$$

où A_i est une constante, et $k_i = n_i \omega_i / c$. Dans le cas de polarisations nonlinéaires faibles, les solutions de l'équation d'onde seront similaires. Nous partons donc de solutions de cette forme, mais en autorisant A_i à varier au cours de la propagation selon z.

Le terme de polarisation à la fréquence de l'idler peut ainsi être écrit sous la forme :

$$P_i(z,t) = B_i e^{-i\omega_i t} + c.c, \qquad \text{Eq.2.26}$$

où l'amplitude B_i est déterminée par l'équation décrivant la polarisation en fonction de la susceptibilité. De même que pour la fréquence de l'idler, les champs électriques aux fréquences de la pompe et du signal peuvent être écrits sous une forme semblable, donnant ainsi l'expression de l'amplitude de la polarisation à la fréquence de l'idler :

$$B_i = 4\epsilon_0 d_{eff} A_p A_s^* e^{i(k_p - k_s)z}, \qquad \text{Eq.2.27}$$

où il est introduit le coefficient nonlinéaire effectif $d_{eff} = \chi_{eff}/2$, χ_{eff} étant la valeur scalaire de la susceptibilité nonlinéaire d'ordre 2 pour les composantes vectorielles d'intérêt des champs de pompe, signal, et idler.

En utilisant ces expressions dans l'équation d'onde nonlinéaire et la relation $k_i^2 = \epsilon(\omega_i)\omega^2/c^2$, on obtient :

$$\partial_z^2 A_i + 2ik_i \partial_z A_i = \frac{-4d_{eff}\omega_i^2}{c^2} A_p A_s^* e^{i(k_p - k_i - k_s)z}. \qquad \text{Eq.2.28}$$

Il est généralement utilisé à ce point une nouvelle approximation en négligeant le terme en dérivée seconde. Appelée approximation de l'enveloppe lentement variable, elle est équivalente à supposer que la variation de l'amplitude du terme Ai varie peu sur une distance d'un cycle optique. Comme le transfert d'énergie entre les champs est usuellement pertinent après une propagation bien supérieure au cycle optique, cette approximation conduit à des résultats valides dans la plupart des cas. Fait plus surprenant, cette approximation reste relativement bonne pour des impulsions en régime ultra-courts de quelques cycles optiques. Il résulte de cette approximation :

$$\partial_z A_i = \frac{2id_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2} A_p A_s^* e^{i\Delta k z}, \qquad \text{Eq.2.29a}$$

où Δk est le désaccord de phase et est défini selon $\Delta k = k_p - k_i - k_s$.

De même, pour les champs pompe et signal, on obtient des équations analogues :

$$\partial_z A_p = \frac{2id_{eff}\omega_p^2}{k_p c^2} A_s A_i e^{-i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.29b}$$

$$\partial_z A_s = \frac{2id_{eff}\omega_s^2}{k_s c^2} A_p A_i^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.29c}$$

Ces équations sont connues comme les équations d'ondes couplées, et les résoudre avec les bonnes conditions initiales permet d'obtenir l'évolution des champs impliqués dans l'interaction nonlinéaire.

Avant de résoudre ces équations, une simple manipulation de celles-ci permet de révéler une relation entre le champ du signal et de champ de l'idler :

$$\frac{dA_s}{dz} \times A_s^* \times \frac{\omega_i}{n_i} = \frac{dA_i}{dz} \times A_i^* \times \frac{\omega_s}{n_s}. \quad \text{Eq.2.30}$$

Cette expression s'intègre en la relation suivante :

$$A_i(z) - A_i|_{z=0} = [A_s(z) - A_s|_{z=0}]. \sqrt{\frac{\omega_i n_s}{n_i \omega_s}}. \quad \text{Eq.2.31}$$

Cette relation permet de retrouver que la création d'un photon de signal est accompagnée de la création d'un photon d'idler, le coefficient $\sqrt{\frac{\omega_i n_s}{n_i \omega_s}}$ représentant la différence d'énergie entre les deux types de photon.

2.2.3. Solution aux équations d'onde couplées

La solution générale aux équations d'onde couplées a été démontrée en 1962 (Armstrong, Bloembergen, Ducuing, & Pershan, 1962), puis confirmée expérimentalement en 1979 (Baumgartner & Byer, 1979). La démonstration et l'utilisation des solutions complètes des équations d'onde couplées ne sont pas nécessaires à l'établissement des caractères essentiels de l'OPA : une image physique du processus nonlinéaire peut être obtenue en faisant l'approximation, dite de "non déplétion de la pompe", que la conversion est faible et que le champ pompe reste donc constant. Pour une description plus précise incluant un grand nombre d'effets supplémentaires, on fera appel à des simulations numériques plus générales, décrites dans la partie 4. En dérivant l'équation d'onde de l'idler :

$$\partial_z^2 A_i = \frac{2id_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2} i\Delta k A_p A_s^* e^{i\Delta kz} + \frac{2id_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2} A_p \partial_z A_s^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.32}$$

En réintroduisant les équations d'ondes du signal et de l'idler, on obtient :

$$\partial_z^2 A_i = \frac{4d_{eff}^2 \omega_i^2 \omega_s^2}{k_i k_s c^4} |A_p|^2 A_i + i\Delta k \partial_z A_i. \quad \text{Eq.2.33}$$

De même on peut obtenir une équation différentielle pour le signal :

$$\partial_z^2 A_s = \frac{4d_{eff}^2 \omega_i^2 \omega_s^2}{k_i k_s c^4} |A_p|^2 A_s + i\Delta k \partial_z A_s. \quad \text{Eq.2.34}$$

Lors de la résolution de ces équations, le discriminant permet de mettre en avant une condition sur l'intensité de pompe en fonction de l'ensemble des paramètres afin que l'OPA ait lieu, condition intrinsèquement vérifiée en cas d'accord de phase :

$$\Delta = -(\Delta k)^2 + \frac{16 d_{eff}^2 \omega_i^2 \omega_s^2}{k_i k_s c^4} \left|A_p\right|^2 > 0. \quad \text{Eq.2.35}$$

Ce qui donne, avec la définition de l'intensité $I_p = 2 n_p \epsilon_0 c \left|A_p\right|^2$, et $k = n\omega/c$:

$$I_p > (\Delta k)^2 \frac{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3}{8 \omega_i \omega_s d_{eff}^2}. \quad \text{Eq.2.36}$$

Si cette condition est respectée, on obtient l'évolution du champ du signal et de l'idler au cours de sa propagation :

$$A_s(z) = \left[A_s(0) \left(ch(\gamma z) - i \frac{\Delta k}{2\gamma} sh(\gamma z) \right) + \frac{2 i d_{eff} \omega_s^2}{\gamma k_s c^2} A_i^*(0) sh(\gamma z) \right] e^{i \frac{\Delta k}{2} z}. \quad \text{Eq.2.37a}$$

$$A_i(z) = \left[A_i(0) \left(ch(\gamma z) - i \frac{\Delta k}{2\gamma} sh(\gamma z) \right) + \frac{2 i d_{eff} \omega_s^2}{\gamma k_s c^2} A_s^*(0) sh(\gamma z) \right] e^{i \frac{\Delta k}{2} z}, \quad \text{Eq.2.37b}$$

où γ est le gain paramétrique définie par $\Delta = 4\gamma^2$:

$$\gamma = \sqrt{\frac{2 \omega_i \omega_s d_{eff}^2 I_p}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3} - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2}. \quad \text{Eq.2.38}$$

On remarquera ici que le gain du processus d'OPA évolue exponentiellement avec la longueur d'interaction contrairement aux processus classiques d'ordre 2, tel que la génération de second harmonique (SHG, Second Harmonic Generation), qui évolue quadratiquement. Ce phénomène peut s'expliquer par la nature symétrique du signal et de l'idler, où la génération de photons de signal et d'idler s'accompagne toujours l'un de l'autre et stimule la génération de photons de sa contrepartie, créant ainsi un effet en cascade expliquant ce gain exponentiel.

Dans le cas de l'amplification du signal en l'absence initiale d'idler et en accord de phase parfait, l'évolution des champs est la suivante :

$$A_s(z) = A_s(0) ch(\gamma_0 z). \quad \text{Eq.2.39a}$$

$$A_i(z) = \frac{2 i d_{eff} \omega_s^2}{\gamma k_s c^2} A_s^*(0) sh(\gamma_0 z), \quad \text{Eq.2.39b}$$

où

$$\gamma_0 = \gamma(\Delta k = 0) = \frac{2 d_{eff} \omega_i \omega_s}{\sqrt{k_i k_s} c^2} \left|A_p\right|. \quad \text{Eq.2.40}$$

On comprend alors le nom de gain paramétrique, puisque que cette valeur indique directement le gain linéique des champs mis en jeu dans l'interaction nonlinéaire.

Si on ne se trouve pas dans le cas d'accord de phase, le gain paramétrique diminue d'autant plus que l'on s'éloigne de cet accord de phase. Si nous supposons alors un faible transfert d'énergie vers le signal du fait de la faible valeur du gain paramétrique, on peut alors considérer la pompe et le signal comme constant. Dans ce cas en repartant des équations d'ondes couplées on obtient :

$$\partial_z A_i = cste \times e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.41}$$

L'intégration de cette relation, puis la transposition en intensité fait apparaître une dépendance en sinus cardinal du produit entre la longueur de propagation et le désaccord de phase :

$$I_i(z) \propto sinc(\Delta kz). \quad \text{Eq.2.42}$$

L'efficacité obtenue exprime alors une dépendance non croissante avec la longueur de propagation, allant même jusqu'à s'annuler pour une distance appelé longueur de cohérence $L_c = \pi\Delta k/2$, avant d'osciller avec des valeurs maximales de plus en plus faibles.

2.2.4. Equations pour la phase

Dans le cadre des impulsions courtes, une attention particulière doit être portée sur la phase des impulsions et sur l'impact que les phénomènes nonlinéaires peuvent entrainer sur cette phase (Ross, Matousek, New, & Osvay, 2002). En utilisant la notation complexe pour exprimer $A_k = \rho_k e^{i\phi_k}, k = p, s, i$ et la partie imaginaire des équations d'ondes couplées, nous pouvons obtenir les équations régissant l'évolution de la phase de la pompe, du signal et de l'idler :

$$\partial_z \phi_p = -\frac{2d_{eff}\omega_p^2}{k_p c^2}\frac{\rho_s \rho_i}{\rho_p}\cos\left(\Delta kz + \phi_p - \phi_s - \phi_i\right). \quad \text{Eq.2.43a}$$

$$\partial_z \phi_s = -\frac{2d_{eff}\omega_s^2}{k_s c^2}\frac{\rho_p \rho_i}{\rho_s}\cos\left(\Delta kz + \phi_p - \phi_s - \phi_i\right). \quad \text{Eq.2.43b}$$

$$\partial_z \phi_i = -\frac{2d_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2}\frac{\rho_p \rho_s}{\rho_i}\cos\left(\Delta kz + \phi_p - \phi_s - \phi_i\right). \quad \text{Eq.2.43c}$$

La valeur de $\cos\left(\Delta kz + \phi_p - \phi_s - \phi_i\right)$ peut être déterminée en combinant les équations précédentes puis en intégrant :

$$\cos\left(\Delta kz + \phi_p - \phi_s - \phi_i\right) = -\frac{\left(\Gamma + \frac{\Delta k}{2\sqrt{\omega_p}\gamma_0}\frac{c^2 k_p}{8\pi\omega_p^2\rho_p^2\left(I_p + I_s + I_i\right)}\right)}{\sqrt{\frac{c^6 k_p k_s k_i}{512\pi^3\omega_p^2\omega_s^2\omega_i^2\rho_p^2\rho_s^2\rho_i^2}}}, \quad \text{Eq.2.44}$$

où Γ est déterminé par les conditions initiales.

En introduisant cette relation dans les équations de phase on obtient :

$$\partial_z \phi_p = \frac{\omega_p^{3/2}\gamma_0\left(I_p + I_s + I_i\right)}{I_p} + \frac{\Delta k}{2}. \quad \text{Eq.2.45a}$$

$$\partial_z \phi_s = \frac{\omega_s\left(\sqrt{\omega_p}\gamma_0\left(I_p + I_s + I_i\right) + \Delta k I_p/2\,\omega_p\right)}{I_s}. \quad \text{Eq.2.45b}$$

$$\partial_z \phi_i = \frac{\omega_i\left(\sqrt{\omega_p}\gamma_0\left(I_p + I_s + I_i\right) + \Delta k I_p/2\,\omega_p\right)}{I_i}. \quad \text{Eq.2.45c}$$

Dans le cadre de nos travaux, l'interaction commencera toujours avec l'absence de champ d'idler ce qui donne :

$$\partial_z \phi_s = -\frac{\Delta k}{2}\left[1 - \frac{\frac{\omega_p I_s(0)}{\omega_s I_p(0)}}{f + \frac{\omega_p I_s(0)}{\omega_s I_p(0)}}\right]. \quad \text{Eq.2.46a}$$

$$\partial_z \phi_i = -\frac{\Delta k}{2}. \quad \text{Eq.2.46b}$$

$$\partial_z \phi_p = -\frac{\Delta k}{2}\frac{f}{1-f}. \quad \text{Eq.2.46c}$$

où $f = 1 - I_p/I_p(0)$ est la fraction de déplétion de la pompe.

Ces équations permettent de remarquer un certain nombre de comportements de la phase durant l'amplification :

- La phase du signal est indépendante de la phase initiale de la pompe ce qui permet de conserver un signal de bonne qualité, même avec l'utilisation d'une pompe ayant des aberrations spatiales ou un chirp de phase temporel.

- Les changements de phase sont d'autant plus importants qu'on s'éloigne de l'accord de phase parfait, ce qui semble intuitivement raisonnable, mais néanmoins important dans le cadre d'OPA très large bande.

- La phase de l'idler ne dépend que du désaccord de phase et de la phase initiale de la pompe et du signal. Si la différence entre la phase initiale de la pompe et du signal est constante, alors la phase de l'idler est également constante.

- Dans le cas où la déplétion de la pompe est peu importante ($f \ll 1$), la phase du signal n'évolue pas.

2.2.5. Prise en compte de l'aspect ultra-court

L'utilisation d'impulsions ultra-courtes entraine des complexifications sur la mise en équations de l'interaction nonlinéaire (Cerullo & De Silverstri, 2003). En effet l'impact de la dispersion du milieu ne peut être négligé durant l'amplification. L'effet prépondérant pour des impulsions de l'ordre de la centaine de femtoseconde est la différence de vitesse de groupe $v_g = d\omega/dk$, et on négligera pour l'instant l'effet au sein de chaque champ pompe, signal et idler du deuxième ordre et des ordres supérieurs de la dispersion, en particulier sur la durée de l'impulsion. Les équations d'ondes couplées deviennent alors :

$$\partial_z A_p + \frac{1}{v_{gp}}\partial_t A_p = \frac{2id_{eff}\omega_p^2}{k_p c^2} A_s A_i e^{-i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.47a}$$

$$\partial_z A_s + \frac{1}{v_{gs}}\partial_t A_s = \frac{2id_{eff}\omega_s^2}{k_s c^2} A_p A_i^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.47b}$$

$$\partial_z A_i + \frac{1}{v_{gi}}\partial_t A_i = \frac{2id_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2} A_p A_s^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.47c}$$

On réécrit généralement ces équations en changeant la variable temporelle afin de se placer dans le référentiel de l'impulsion de pompe $\tau = t - z/v_{gp}$:

$$\partial_z A_p = \frac{2id_{eff}\omega_p^2}{k_p c^2} A_s A_i e^{-i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.48a}$$

$$\partial_z A_s + \left(\frac{1}{v_{gs}} - \frac{1}{v_{gp}}\right)\partial_t A_s = \frac{2id_{eff}\omega_s^2}{k_s c^2} A_p A_i^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.48b}$$

$$\partial_z A_i + \left(\frac{1}{v_{gi}} - \frac{1}{v_{gp}}\right)\partial_t A_i = \frac{2id_{eff}\omega_i^2}{k_i c^2} A_p A_s^* e^{i\Delta kz}. \quad \text{Eq.2.48c}$$

Malgré les simplifications réalisées afin d'établir ces équations, elles expriment clairement le problème principal lié à l'aspect ultra-court lors de l'OPA : la différence de vitesse de groupe (GVM, Group-Velocity Mismatch) entraine une dérive temporelle entre les impulsions et limite la longueur d'interaction pour le processus paramétrique, ce qui est également lié à une limitation de la bande d'accord de phase. On définit alors une longueur d'interaction utile, définie comme la distance après laquelle les impulsions se séparent temporellement en absence d'amplification :

$$L_{jp} = \frac{\tau}{\delta_{jp}} \; avec \; \delta_{jp} = \frac{1}{v_{gj}} - \frac{1}{v_{gp}} \; , \quad j = s, i, \quad \text{Eq.2.49}$$

où τ est la durée de l'impulsion de pompe. Cette distance est d'autant plus petite que la durée de la pompe se réduit et/ou que la différence de vitesse de groupe augmente. Cette dernière étant fixée par le matériau nonlinéaire et les longueurs d'onde interagissant durant le processus d'OPA, la longueur d'interaction utile permet de choisir la longueur du matériau. En choisissant une longueur de cristal plus faible, on peut en première approximation négliger l'effet de la différence de vitesse de groupe et se ramener aux équations plus simples vues en 2.2.3. Dans le cas où la longueur du milieu nonlinéaire est plus longue, on peut distinguer deux cas en fonction des signes des différentes vitesses de groupe. Dans le cas où le signal et l'idler ont une différence de groupe par rapport à la pompe de même signe, soit $\delta_{ip}\delta_{sp} > 0$, alors le signal et l'idler s'éloignent progressivement de la pompe jusqu'à la perte totale du gain. Cependant dans le cas contraire où les différences de groupe sont de signes opposés, soit $\delta_{ip}\delta_{sp} < 0$, le gain peut être maintenu durant une distance bien supérieure à la distance d'interaction utile, par un maintien artificiel du signal et de l'idler avec la pompe (cf. Fig. 20) : le signal/idler décalé temporellement avec la pompe génère de l'idler/signal qui, de par la différence de vitesse de groupe avec la pompe de signe opposé, se décale temporellement vers le centre de l'impulsion de pompe.

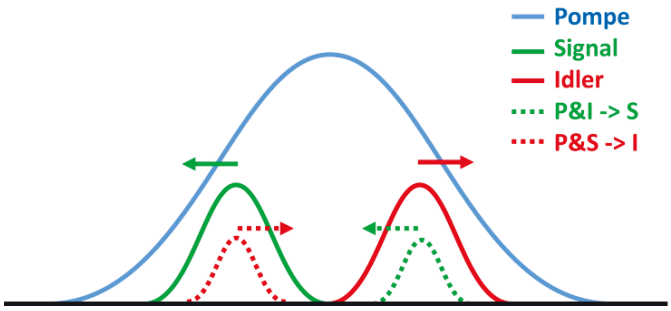


Fig. 20 : Effet de maintien des impulsions de signal et d'idler sous l'impulsion de pompe malgré la différence de groupe dans le cas où $\delta_{ip}\delta_{sp} < 0$

2.2.6. Action de la DFG sur la CEP

Une variable importante dans le domaine des impulsions ultra-courtes est la CEP. Cette phase, dans le cadre des impulsions de quelques cycles, influence grandement la forme du champ électrique. Vu dans le domaine de Fourier, le décalage de cette phase d'une impulsion du train à la suivante correspond à un décalage du peigne de fréquence correspondant d'une valeur dite fréquence CEO (Carrier Envelope Offset) (cf. Fig. 21).

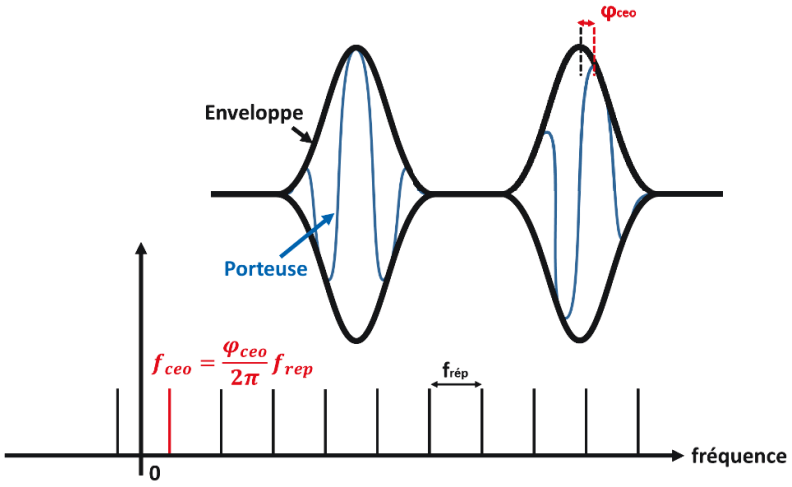


Fig. 21 : Phase entre l'enveloppe et la porteuse, dans l'espace des fréquences et l'espace temporel.

La pompe et le signal possèdent chacun une phase CEP qui peut varier dans le temps. En considérant le processus de DFG dans le domaine de Fourier, on comprend alors que la fréquence CEO de l'idler se trouve être la différence entre les fréquences CEO de la pompe et du signal. Un maintien de cette différence à une constante grâce à un asservissement du peigne de fréquence du signal sur celui de la pompe par des méthodes passives ou actives, permet alors de garantir une fréquence CEO stable pour l'idler par construction. Cela se traduit par un décalage constant de la phase CEP entre les impulsions du train pour l'idler en fonction de la valeur de la fréquence CEO. Rendre nulle cette fréquence permettrait d'obtenir une phase CEP constante. Dans la réalité, on fixe généralement la fréquence CEO à une valeur non nulle et on sélectionne les impulsions selon un cycle pour obtenir la même phase CEP sur les impulsions sélectionnées. En particulier, lorsque le signal est dérivé de la pompe par une interaction non linéaire telle que la génération de supercontinuum, et si l'on néglige les fluctuations de phase liées à cette interaction, le peigne du signal

est défini par la même fréquence CEO et le même taux de répétition que le peigne de pompe. Dans ce cas, la fréquence CEO de l'idler est automatiquement nulle.

2.2.7. L'OPA dans le cadre du projet

Dans cette partie, nous allons brièvement rappeler les principales caractéristiques du système décrites dans le chapitre 1, ainsi que les principales propriétés de l'OPA décrites dans ce chapitre, afin d'analyser la pertinence du choix de l'OPA pour ce projet.

Le système doit délivrer des impulsions entre 20 µJ et 50 µJ, à une cadence de 100 kHz, avec une durée de 30 fs à la longueur d'onde de 3 µm en respectant la condition d'être CEP stable.

Tout d'abord l'existence du faisceau d'idler permet l'accès à des longueurs d'onde diverses. Notamment la longueur d'onde de 3 µm peut être obtenue avec une pompe à 1030 nm et un signal à 1550 nm :

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad => \quad \lambda_i = \frac{1}{\frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}}, \qquad \text{Eq.2.50}$$

avec λ_p = 1030 nm et λ_s = 1550 nm, on obtient λ_i = 3070 nm.

Les performances de l'OPA dépendant grandement de la qualité de la pompe, le choix d'une pompe à 1030 nm nous permet de profiter des lasers Ytterbium qui sont produits et maîtrisés commercialement. Possédant des faisceaux de très bonne qualité et des impulsions à la fois énergétiques et avec une cadence élevée, les lasers Ytterbium présentent de bonnes caractéristiques pour servir de pompe à un OPA. L'utilisation de ce laser comme source de pompe contribue à la fiabilité du système.

L'existence du faisceau d'idler est aussi liée à l'absence d'absorption d'énergie dans le milieu nonlinéaire, évitant ainsi la génération de chaleur. Cette absorption entraine souvent la nécessité d'utiliser des systèmes de refroidissement pour les amplificateurs lasers, ainsi qu'une bonne gestion des effets thermiques, limitant la montée en puissance moyenne. Ici, les problèmes thermiques sont grandement réduits par l'absence de ces phénomènes (absence de phénomènes non radiatifs et de défaut quantique), permettant la montée en cadence tout en ayant des impulsions relativement énergétiques.

La relation de phase entre la pompe, le signal et l'idler est un grand avantage pour obtenir une CEP stable. En liant la phase de la pompe et du signal à une constante près, on obtient une CEP sur l'idler stable par construction. La relation entre la pompe et le signal peut être réalisée facilement de manière passive en utilisant la pompe ou le signal pour générer l'autre par un effet d'optique non linéaire.

Finalement les gains très importants de l'OPA par unité de longueur permettent l'utilisation de milieux à gain courts, limitant la longueur d'interaction et les effets de différence de vitesse de groupe donnant lieu à une grande acceptance spectrale. On peut ainsi amplifier une large bande spectrale et obtenir des impulsions courtes.

2.3. Obtention de la condition d'accord de phase

2.3.1. Accord de phase par biréfringence

Comme le montrent les équations décrites précédemment, l'efficacité du processus d'OPA dépend de l'accord de phase. Il est nécessaire de minimiser Δk afin de maximiser le transfert d'énergie. La méthode la plus couramment utilisée pour réaliser l'accord de phase est l'utilisation de la biréfringence d'un milieu. En effet, le chromatisme du milieu, c'est-à-dire le fait que l'indice optique varie avec la longueur d'onde, couplé avec la relation entre les longueurs d'onde $\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_i}$ mises en jeu par la conservation de l'énergie, ne rend l'accord de phase accessible qu'en utilisant différentes polarisations afin d'avoir deux indices de réfraction différents. Il existe deux types d'arrangement des polarisations pour le mélange à 3 ondes (cf. Fig. 22):

- Le type I : Configuration où le signal et l'idler sont dans les mêmes polarisations et la pompe dans la polarisation orthogonale.
- Le type II : Configuration où le signal et l'idler sont dans des polarisations orthogonales, la pompe ayant la même polarisation que le signal ou l'idler.

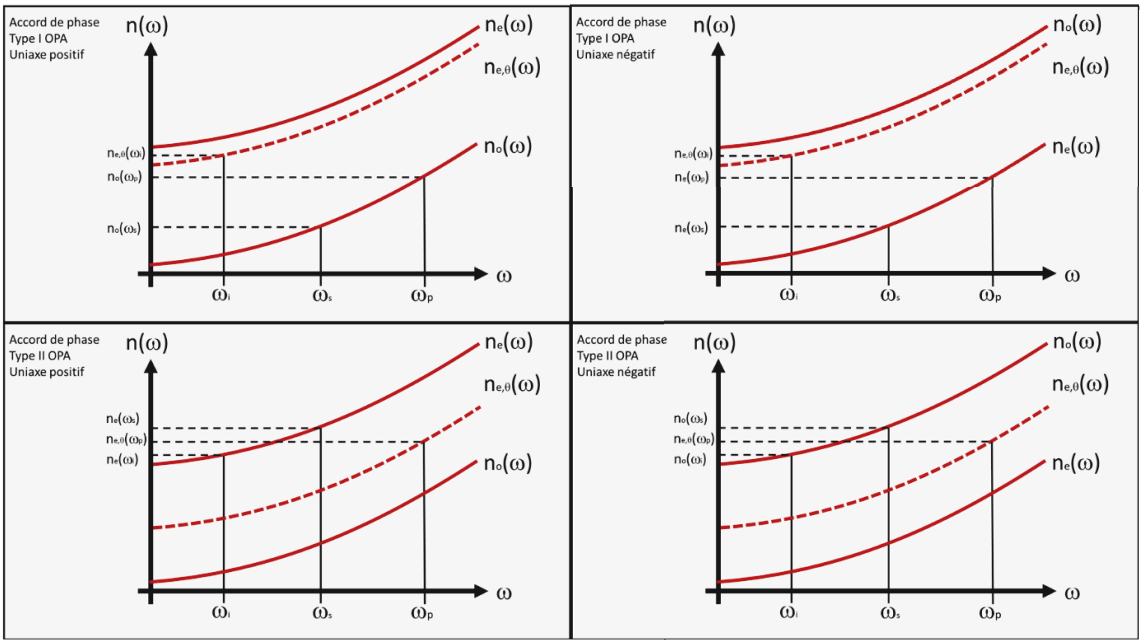


Fig. 22 : Accord de phase de type I et II pour un mélange à 3 ondes par biréfringence dans un milieu non linéaire uniaxe positif ou négatif

Cette méthode possède cependant des inconvénients. Afin de réaliser l'accord de phase on fixe l'orientation du cristal, on perd donc un degré de liberté. Cela entraine une perte de choix sur le coefficient non linéaire utilisé dans le cristal, et donc du gain pour une longueur donnée. On pourrait penser à compenser cette perte du coefficient non linéaire par une augmentation de la longueur du cristal pour obtenir un gain suffisant, cependant la différence de vitesse de groupe pour les ondes pompe, signal, idler, limite la longueur effective d'interaction. A titre d'exemple, avec un décalage temporel entre l'impulsion pompe à 1030 nm et l'impulsion signal à 1550 nm de l'ordre de 70 fs pour 1 mm de niobate de lithium, sachant qu'on travaille

avec des impulsions d'environ 300 fs, la longueur effective du cristal ne peut pas dépasser quelques millimètres. De plus, et ces deux phénomènes sont liés, la bande spectrale de gain diminue également lorsque la longueur du cristal augmente alors que l'on souhaite des impulsions courtes en fin de système (< 40 fs FWHM) ce qui nécessite un spectre suffisamment large (> 60 nm FWHM).

2.3.2. Quasi-accord de phase

Une autre méthode pour obtenir une interaction nonlinéaire efficace consiste à ne pas atteindre l'accord de phase parfait mais à utiliser la notion de longueur de cohérence pour contourner le problème (cf. Fig. 23) : Si l'accord de phase n'est pas atteint, le déphasage entre les ondes qui interagissent s'accumulant, les contributions s'ajoutant à l'onde vont progressivement devenir en opposition de phase, entrainant une interférence destructive. La distance sur laquelle cette inversion a lieu est appelée longueur de cohérence L_c:

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k}. \qquad \text{Eq.2.51}$$

De cette interférence destructive résulte une inefficacité du phénomène non linéaire. Le principe pour s'affranchir de ce problème est de changer le signe des contributions de la polarisation nonlinéaire à chaque fois que la longueur de cohérence est atteinte. Par le biais de l'inversion du coefficient non linéaire du milieu, les interférences qui auraient dû devenir destructives restent constructives, et si on répète ce procédé pour chaque distance de propagation égale à la longueur de cohérence, on obtient alors un processus efficace et on parle de quasi-accord de phase. En utilisant cette méthode on se retrouve alors avec un cristal dit "périodiquement inversé", ou "periodically poled" en anglais (Fejer, Magel, & Jundt, 1992).

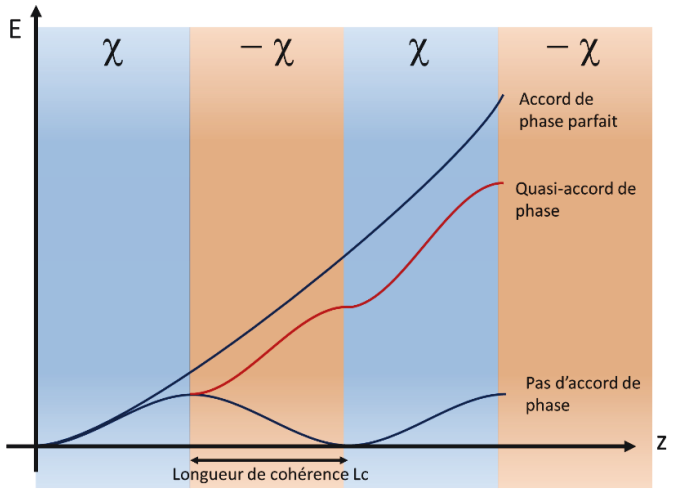


Fig. 23 : Illustration de l'évolution de l'amplitude du champ d'un phénomène non linéaire selon la longueur de propagation en fonction des cas d'accord de phase. χ représente le coefficient nonlinéaire du milieu.

Le processus n'est alors pas aussi efficace qu'un accord de phase parfait : comme montré ci-après, pour une interaction donnée, le coefficient d_{eff} est réduit d'un facteur $\frac{2}{\pi}$.

Si on intègre les différentes contributions de la polarisation non linéaire en cas de désaccord le long d'une distance égale à la longueur de cohérence on obtient :

$$\int_0^{L_c} e^{i\Delta k z}.dz = \frac{1}{i\Delta k}.\left[e^{i\Delta k z}\right]_{z=0}^{z=\frac{\pi}{\Delta k}} = \frac{2i}{\Delta k}. \qquad \text{Eq.2.52}$$

à comparer avec le cas d'un accord de phase parfait sur une même distance :

$$\int_0^{L_c} e^{i.0.z}.dz = [z]_{z=0}^{z=\frac{\pi}{\Delta k}} = \frac{\pi}{\Delta k}. \qquad \text{Eq.2.53}$$

Le rapport des deux expressions révélant le rapport de réduction de $\frac{2}{\pi}$. Ce rapport se retrouve également facilement avec une approche plus géométrique comme exposé en Fig. 24.

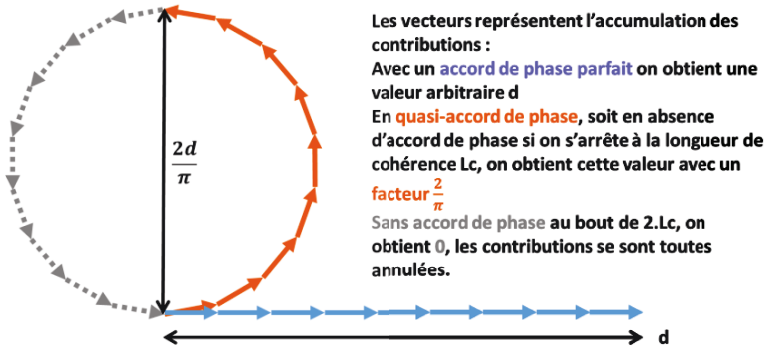


Fig. 24 : Approche géométrique du quasi-accord de phase.

Cependant les avantages offerts en échange compensent cet inconvénient. Tout d'abord, la direction d'utilisation du cristal n'étant plus bloquée par le choix lié à la biréfringence, on peut donc choisir le coefficient non linéaire le plus grand du cristal. Ceci permet de limiter la longueur du cristal pour un gain constant, donnant accès à de larges spectres pour nos impulsions. Finalement les 3 ondes mises en jeu peuvent avoir la même polarisation, c'est pourquoi on parle aussi d'accord de phase de type 0 en référence aux types I et II des accords par biréfringence.

2.4. Choix du matériau non linéaire

Le choix du matériau pour notre système, comme tout système, passe par l'analyse des différentes propriétés de ces cristaux que sont les d_{eff}, les seuils de dommage, la possibilité d'accord de phase large bande, ainsi que la transparence du milieu pour les longueurs d'ondes utilisées. Un grand nombre de cristaux sont disponibles pour des applications OPCPA large bande dans le domaine du moyen infrarouge (cf. Fig. 25) :

Mid-IR nonlinear crystals	Transparency range (μm)	d_{eff} (pm/V)
Oxide crystals		
$KNbO_3$ (KNO)	0.4–4.5	8
$KTiOAsO_4$ (KTA)	0.4–4.0	2.1
$KTiOPO_4$ (KTP)	0.4–4.5	2.3
$LiIO_3$ (LIO)	0.3–6.0	2
$LiNbO_3$ (LNO)	0.3–5.5	4
$LiTaO_3$ (LTO)	0.3–5.5	7
Non-oxide crystals		
$AgGaS_2$ (AGS)	0.5–1.3	23
$AgGaSe_2$ (AGSe)	0.7–18	41
$CdSiP_2$ (CSP)	0.7–9.0	85
GaSe	0.7–18	54
$HgGa_2S_4$ (HGS)	0.5–13	31
$LiGaS_2$ (LGS)	0.3–11	10
$LiGaSe_2$ (LGSe)	0.4–13	18
$LiInS_2$ (LIS)	0.4–12	16
$LiInSe_2$ (LISe)	0.5–12	10
$ZnGeP_2$ (ZGP)	2.0–11	75

Fig. 25 : Liste des cristaux non linéaires utilisés pour les processus paramétriques dans le moyen infrarouge (le d_{eff} correspond à leurs utilisations dans une configuration donnée). Origine : (Pires, Baudisch, Sanchez, Hemmer, & Biegert, 2015)

L'influence de ces paramètres sur les performances finales du système est importante : un d_{eff} important autorise des cristaux plus courts, ce qui limite les problèmes de GVM et facilite une amplification large bande. Les seuils de dommage définissent les limites d'intensité sur les cristaux et donc le gain permis en un étage. La biréfringence du cristal définit l'accord de phase et la largeur spectrale du gain. Finalement la transparence du cristal limite l'utilisation en longueur d'onde. Il est à noter également que les cristaux sont aussi plus ou moins aboutis du point de vue de la maitrise de la croissance, du polissage, et de la faisabilité des traitements optiques. Cet aspect influence aussi grandement les performances dans le cadre d'une utilisation dans un système. Malgré un problème de seuil de dommage relativement faible, le niobate de lithium utilisé en quasi-accord de phase présente un d_{eff} important. C'est un matériau très connu, et possédant de nombreuses propriétés remarquables (nonlinéarité optique, piézo-électrique, pyroélectrique, etc..) utilisé notamment en optique intégrée pour fabriquer des modulateurs électro-optiques dans le contexte des télécommunications. Sa fabrication est donc très maitrisée. De plus une fois dopé MgO et chauffé, il ne présente plus d'effet photoréfractif, une de ses principales limitations.

Pour notre projet, le choix du cristal s'est donc porté sur le niobate de lithium (LiNbO3, cf. Fig. 26) congruent dopé à 5% de Magnésie (MgO). Ce cristal dont la biréfringence est hautement dépendante de la température, est uniaxe négatif (indice ordinaire supérieur à l'indice extraordinaire). Il est transparent sur une plage allant de 300 nm à 5000 nm, englobant ainsi les longueurs d'onde du projet, et présente des coefficients non linéaires élevés. Il reste cependant relativement fragile du point de vue de seuil de destruction aux intensités, de quelques 100 GW/cm² pour des impulsions ~300 fs.

La susceptibilité non linéaire d'ordre 2 du niobate de lithium est représentée par un tenseur dont la forme contractée est la suivante :

$$\chi^{(2)}_{i,j,k} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \qquad \text{Eq.2.54}$$

Le coefficient le plus élevé est le d_{33} avec 25 pm/V à 1560 nm. Pour comparaison, le BBO et le KTP possèdent des coefficients de l'ordre de quelques pm/V. Nous aurons donc un coefficient non linéaire beaucoup plus important avec le PPLN qu'avec un BBO ou un KTP malgré la perte due au quasi-accord de phase.

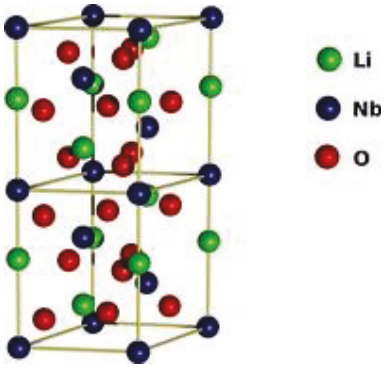


Fig. 26 : Maille cristalline du Niobate de Lithium

Les inversions périodiques des domaines ferroélectriques dans le niobate de lithium sont réalisées grâce à la combinaison d'une haute tension et de la photolithographie afin de délimiter les périodes. La difficulté technique augmente donc avec les dimensions du PPLN que l'on souhaite réaliser et notamment avec sa hauteur. Pour notre projet, le dernier étage d'amplification paramétrique implique des faisceaux de grand diamètre dans le cristal du fait de la relative fragilité du niobate de lithium et nécessite donc des PPLN avec une grande surface, chaque période d'accord de phase étant réalisée sur une ouverture de 3 mm × 3 mm. De tels PPLN ne sont pas disponibles en tant que produit générique et représentent une réelle difficulté à réaliser (Ishizuki, Taira, Kurimura, Ro, & Cha, 2003). Ils peuvent donc présenter des défauts et notamment des défauts d'homogénéité au sein des périodes, ce qui entrainerait une inhomogénéité de l'efficacité du processus non linaire recherché. Or, travaillant en faisceaux collimatés, les défauts d'efficacité s'imprimeraient directement sur le profil du faisceau final (cf. Fig. 27). De ce fait, une caractérisation des cristaux de PPLN est nécessaire et a été réalisée afin de mesurer les éventuelles inhomogénéités.

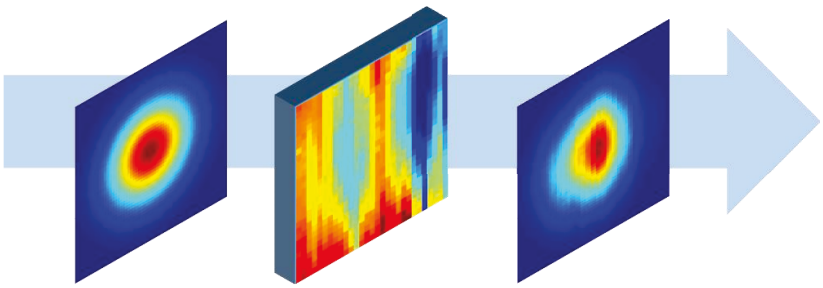


Fig. 27 : Déformation d'un faisceau dû à l'inhomogénéité du gain dans le PPLN (Simulation).

2.4.1. Mesures d'homogénéité transverse du PPLN

L'expérience ayant été conduite avant la réception du laser de pompe prévu pour le projet, elle a été réalisée à l'aide d'un couple de modules présenté plus amplement en 3.1.1, délivrant des impulsions femtoseconde à 1030 nm et 1550 nm à une cadence de 80 MHz. Le dispositif est représenté en Fig. 28. L'utilisation d'une lame de silicium de 30 mm permet de disperser le spectre large du faisceau à 1550 nm, décalant les longueurs d'onde dans le temps et ainsi réduisant le spectre effectif durant l'OPA par filtrage temporel, afin de se prémunir de problèmes liés à des accords de phase multiples. On superpose les deux faisceaux à 1030 nm et 1550 nm spatialement et temporellement grâce à une ligne à retard. Les deux faisceaux sont ainsi focalisés à l'aide d'une lentille (f=100 mm) sur un diamètre de 15 µm dans les cristaux de PPLN à tester, qui sont à l'intérieur d'un four chauffé à 180°C et placés sur deux platines de translations commandées par moteurs, permettant de les déplacer dans le plan transverse à la propagation. On recollimate les faisceaux en arrière du cristal, et on filtre le rayonnement à l'aide d'un miroir dichroïque afin de ne récupérer que le rayonnement généré à 3 µm dans un photo-détecteur MCT (Tellure de mercure-cadmium).

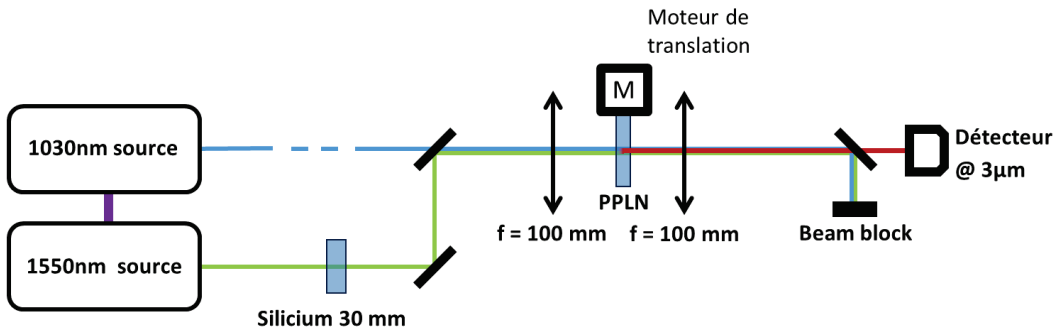


Fig. 28 : Schéma du montage pour la réalisation des cartes d'homogénéité.

Ainsi en utilisant les translations motorisées (pas de 100 µm) pour couvrir toute la surface du PPLN, on obtient une carte d'efficacité d'environ 30 px par 100 px du processus de différence de fréquence générant un rayonnement à 3 µm. Les cartes, normalisées de 0 à 1 en intensité, montrent les 3 zones de 3 mm x 3 mm présentant les différentes périodes disponibles dans un même cristal. Ce qui nous importe est l'homogénéité dans une même période. La différence d'intensité entre deux zones différentes s'explique par le changement de période modifiant l'accord de phase et donc l'efficacité du phénomène entre les différentes zones. Cette expérience a montré des résultats intéressants : parmi les 30 cristaux étudiés, pourtant tous de même spécification et fabriqués par un unique fournisseur, les homogénéités peuvent être très différentes (cf. Fig. 29), ce qui conduit à un choix des cristaux entre les différents étages : les cristaux les plus homogènes seront conservés pour les derniers étages où cette homogénéité est la plus critique.

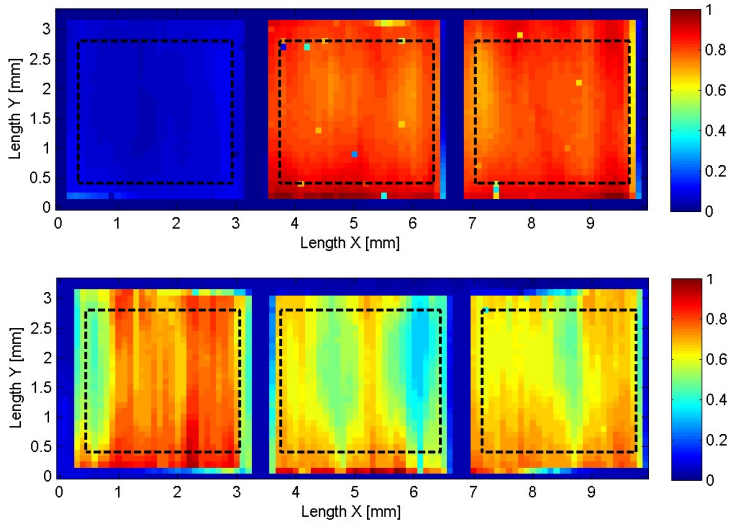


Fig. 29 : Deux cartes d'homogénéité pour des cristaux différents.
Sur la figure du haut le cristal est très homogène, alors qu'en bas le cristal est assez inhomogène.

Faisant suite à cette caractérisation spatiale des cristaux utilisés pour le projet, nous abordons maintenant une étude préliminaire réalisée pour évaluer les effets éventuels de la propagation de fortes puissances moyennes dans ces cristaux.

2.4.2. Déformations des faisceaux liées à la puissance

L'existence de problèmes liés aux hautes puissances est inévitable et notre système n'en est pas exempt. Malgré l'utilisation de l'OPA qui nous permet d'éviter les problèmes thermiques liés au stockage d'énergie, les puissances mises en jeu (plusieurs dizaines de Watts) font que l'absorption résiduelle dans le niobate de lithium peut ne pas être négligeable, entrainant un dépôt de chaleur et donc une lentille thermique. Le niobate de lithium est aussi connu pour avoir des propriétés photoréfractives, ce qui est une autre source possible de déformations du faisceau. Bien que le dopage en MgO réduise considérablement cet effet, des doutes subsistent quant au caractère néfaste de cet effet sur la propagation de faisceaux de forte puissance moyenne. Dans cette partie nous tentons d'étudier et quantifier les différents effets, et discutons des paramètres importants pour la mise en place de notre expérience.

2.4.2.1. Effet photoréfractif

L'effet photoréfractif est un effet provenant de la modification locale de l'indice de réfraction d'un milieu provoqué par le passage d'une onde lumineuse intense (Günter & Huignard, 1987). Cet effet a pour conséquence qu'un rayonnement suffisamment intense modifiera sa propre propagation dans le milieu, et ainsi modifie son profil spatial en sortie.

Lors du passage de l'onde lumineuse, les porteurs de charge dans le cristal sont excités pour ensuite être déplacés par les effets combinés de la diffusion et du champ de l'onde lumineuse. Cela entraine une distribution non-uniforme des charges dans le milieu créant ainsi un champ électrique, appelé "champ de charge d'espace", qui par effet électro-optique linéaire (effet Pockels) crée une modification de l'indice de réfraction du milieu. Il est à noter que l'effet photoréfractif est fortement dépendant de la longueur d'onde

et du milieu : des photons plus énergétiques (longueur d'onde plus basse) provoqueront plus facilement l'excitation des porteurs de charge, et générerons donc plus facilement de l'effet photoréfractif. Le doublage parasite pouvant avoir lieu dans le PPLN pourra donc, malgré une puissance moins élevée que le faisceau principal, avoir une forte influence.

Pour le niobate de lithium, le déplacement des charges introduit une baisse de l'indice de réfraction dans les zones éclairées. On se retrouve donc avec un indice plus fort hors du faisceau, créant ainsi une lentille à gradient d'indice divergente centrée sur le chemin de propagation du faisceau dans son passage dans le PPLN (cf. Fig. 30).

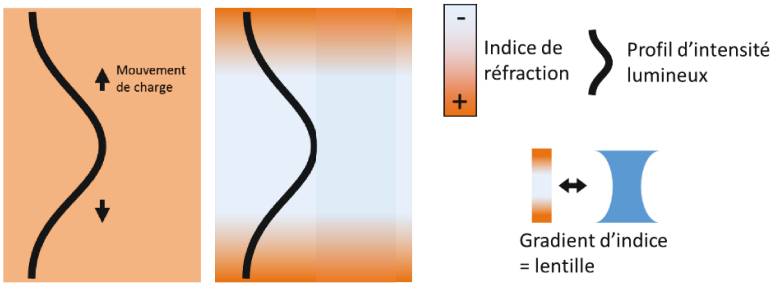


Fig. 30 : Lentille à gradient d'indice divergente introduite par l'effet photoréfractif.

Le champ de charge d'espace associé à une onde lumineuse incidente gaussienne de la forme $I_0 e^{\frac{-r^2}{\omega_0^2}}$, s'écrit (Jingjun, Junmin, Guangyin, & Simin, 1992) & (Günter & Huignard, 1987) :

$$E_{SC} = \frac{-2.K_B.T.(1+\Sigma)^{-1}}{e.\pi.\omega_0} \times r \times e^{\frac{-r^2}{\omega_0^2}}, \qquad \text{Eq.2.55}$$

où $\Sigma = \frac{\sigma_d}{\sigma_p} = \frac{n_d.h.\nu}{\phi\tau\alpha I_0}$, avec n_d la densité de charge excitée thermiquement en l'absence d'illumination, $h\nu$ l'énergie d'un photon, ϕ l'efficacité quantique d'excitation de charge, α la constante d'absorption, τ le temps de vie d'une charge excitée, I_0 l'intensité, K_B la constante de Boltzmann, T la température, e la charge élémentaire et ω_0 le diamètre du faisceau.

En inspectant l'amplitude du champ de charge d'espace, on en déduit 2 régimes de fonctionnement pour l'effet photoréfractif : un régime faible intensité où l'effet est proportionnel à l'intensité mise en jeu, et un régime haute intensité où l'effet est indépendant de l'intensité. Le régime est déterminé par la valeur de Σ. Pour notre application, nous nous situons dans le régime haute intensité, soit $\Sigma \ll 1$. Dès lors l'impact de l'effet sur les différents étages ne dépendra pas de l'intensité mais uniquement de la surface de focalisation : Une même variation d'indice sur une distance plus courte signifie un plus fort gradient et donc une lentille induite plus forte. En suivant ce raisonnement, l'effet le plus important est attendu dans le 1er étage, où la focalisation sera la plus importante. Cependant une évaluation numérique du champ de charge d'espace maximum pouvant être atteint dans cet étage montre que la variation d'indice de réfraction associée est négligeable. La différence de chemin optique produit par le masque de phase associé à l'effet photoréfractif

est bien inférieure à la longueur d'onde et l'effet photoréfractif ne semble pas représenter un effet pertinent pour notre système. Nous nous tournons donc vers d'autres effets pouvant occasionner une dégradation spatiale du faisceau à forte puissance moyenne.

2.4.2.2. Lentille thermique et effet GRIIRA

Lors du passage du faisceau dans un cristal, il subit de l'absorption. Cette absorption entraine la création d'un dépôt de chaleur, et donc d'une distribution non homogène de température à l'équilibre thermique. Par le biais des coefficients thermo-optiques, cette distribution de température provoque une distribution d'indice de réfraction, créant une lentille à gradient d'indice. Cette lentille est appelée lentille thermique.

Les cristaux de niobate de lithium utilisés sont transparents dans notre gamme de longueur d'onde. Cependant, il subsiste de l'absorption résiduelle qui peut entrainer un échauffement du matériau non négligeable dû aux puissances moyennes importantes utilisées. De plus, la présence de SHG parasite vient complexifier l'analyse de ce phénomène d'absorption du faisceau : le faisceau vert à 515 nm possède une absorption plus importante que l'infrarouge à 1030 nm. De plus, la présence du faisceau vert influence le coefficient d'absorption dans l'infrarouge : il s'agit de l'effet GRIIRA (GReen Induced Infrared Absorption). On ne peut donc pas négliger l'influence de la génération parasite d'un faisceau vert dans l'apport à la lentille thermique (Batchko, Miller, Alexandrovski, Fejer, & Byer, 1998).

Afin d'observer ces phénomènes et d'évaluer leur importance pour notre projet, une étude a été réalisée (cf. Fig. 31). L'expérience est composée d'une source à 1030 nm dont on peut régler l'intensité à l'aide d'un couple polariseur/lame demi-onde et d'une lentille focalisant ce faisceau dans un cristal de PPLN placé dans son four. On place une caméra derrière le dispositif afin de mesurer la taille de faisceau de pompe en champ lointain. La source délivre des impulsions de durée 400 fs à 500 kHz, avec une énergie par impulsion de 20 µJ à la longueur d'onde de 1030 nm. Le faisceau est focalisé sur 400 µm de diamètre, le PPLN est peu chauffé (40°C), et deux périodes d'inversion de domaines sont choisies afin d'obtenir une SHG parasite plus ou moins importante : une période de 29,52 µm correspond à une période proche de l'optimum pour l'OPA entre 1030 nm et 1550 nm, et une période de 31,59 µm plus proche d'un accord de phase parasite pour la SHG.

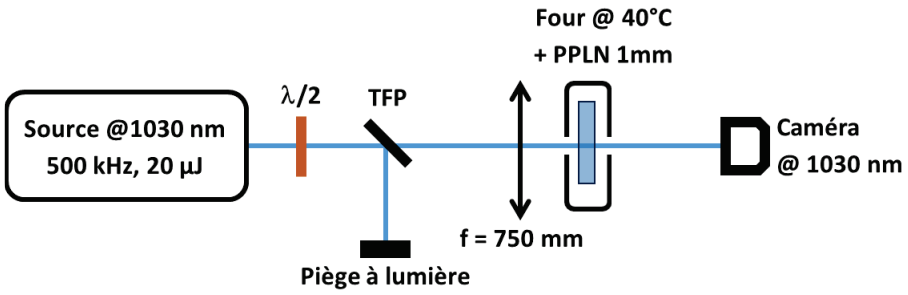


Fig. 31 : Expérience sur la lentille thermique.

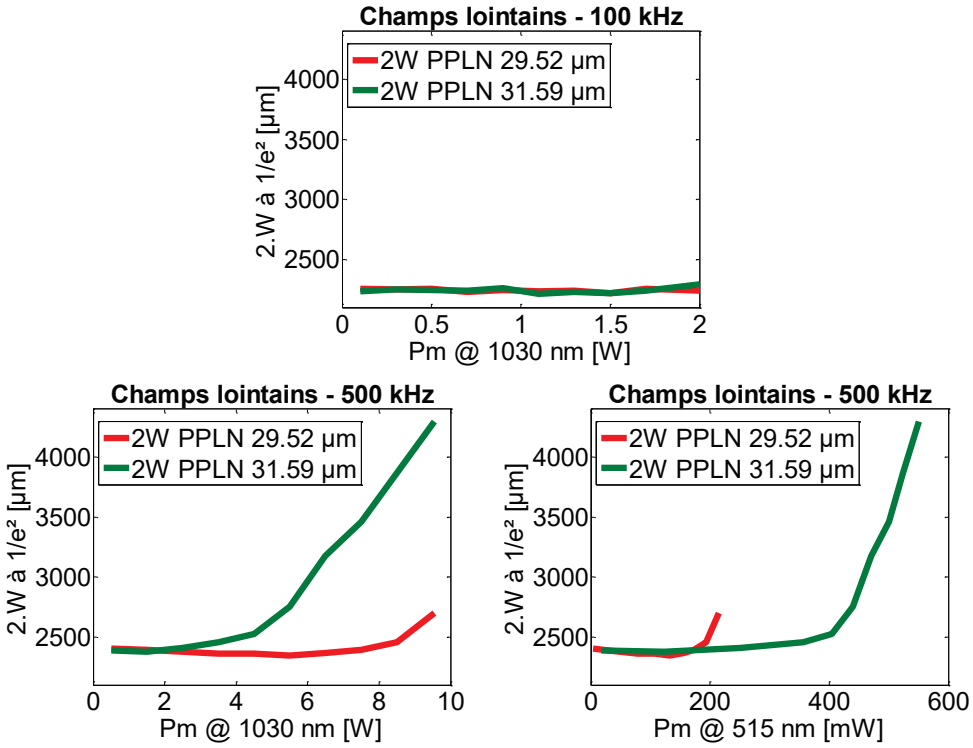


Fig. 32 : Evolution du diamètre (à 1/e²) en fonction de la puissance d'infrarouge et/ou de la puissance de vert parasite pour deux cadences.

Les résultats de cette mesure sont présentés en Fig. 32, et donnent l'évolution de la taille de faisceau en champ lointain en fonction de la puissance moyenne utilisée à 1030 nm et générée de façon parasite à 515 nm, à deux cadences différentes de 100 kHz et 500 kHz. Ces deux cadences ont été utilisées afin de détecter une sensibilité éventuelle du phénomène de modification spatiale à la puissance moyenne se propageant dans le cristal. A 100 kHz, la puissance moyenne infrarouge est limitée à 2 W puisque l'énergie maximale disponible pour cette expérience est de 20 µJ. On n'observe pas de modification du diamètre de faisceau dans ce cas. A 500 kHz, la puissance moyenne dans l'infrarouge peut être augmentée jusqu'à une valeur de 10 W. Dans ce cas, on observe une augmentation de la taille de faisceau à mesure que la puissance est augmentée, dont le comportement est très différent selon la période d'inversion de domaine sélectionnée. Dans le cas de faible génération parasite de faisceau vert (période de 29,52 µm), l'augmentation de taille n'apparait que pour une puissance de 8 W et reste très limitée. En revanche, pour une période de 31,59 µm, la taille de faisceau augmente dès 3 W de puissance moyenne dans l'infrarouge, et est presque doublée à 10 W. Afin de déterminer plus précisément l'origine du phénomène, l'évolution de la taille de faisceau en fonction de la puissance moyenne à 515 nm est tracée en Fig. 32. On voit clairement que le phénomène ne dépend pas que de la puissance moyenne générée à 515 nm, ce qui tend à montrer que l'absorption linéaire résiduelle à cette longueur d'onde n'est pas l'unique cause de la modification observée.

Afin d'exploiter les courbes obtenues plus quantitativement (cf. Fig. 32), nous faisons les hypothèses suivantes, assez raisonnables dans notre contexte :

- La puissance dioptrique de la lentille thermique est proportionnelle à la puissance absorbée dans le milieu. Cette hypothèse est vérifiée pour un grand nombre d'études des effets thermo-optiques dans le cadre du développement de lasers de puissance.

- La taille des faisceaux en champ lointain est proportionnelle à cette puissance dioptrique. Là aussi, la lentille thermique étant introduite au waist du faisceau incident, cette hypothèse est aisément justifiable.

Ces hypothèses étant faites, nous pouvons écrire une relation entre la taille du faisceau $\Delta\Phi_{faisceau}$, la focale thermique f_{Th}, les absorptions linéaires à 1030 nm et 515 nm α_ω et $\alpha_{2\omega}$, le coefficient de GRIIRA α_G et les intensités à 1030 nm et 515 nm I_ω et $I_{2\omega}$:

$$\Delta\emptyset_{faisceau} \propto \frac{1}{f_{Th}} \propto ((\alpha_\omega + \alpha_G \times I_{2\omega}) \times I_\omega + \alpha_{2\omega} \times I_{2\omega}). \qquad \text{Eq.2.56}$$

En utilisant les courbes à 500 kHz où les effets sont les plus marqués, on peut placer dans l'expression précédente les valeurs numériques obtenues pour les deux périodes. On a dès lors deux équations reliant les paramètres α_ω, $\alpha_{2\omega}$, et α_G.

Les valeurs de ces paramètres sont variables selon la boule et le fournisseur. En effet, elles sont reliées à des impuretés dans le cristal dont les concentrations peuvent varier en fonction du processus de fabrication. On trouve cependant dans la littérature un rapport des absorptions entre le visible et l'infrarouge plutôt constant et de l'ordre de $\frac{\alpha_{2\omega}}{\alpha_\omega} \approx 10$. Cette relation forme donc une troisième équation qui nous permet d'évaluer la valeur des trois paramètres d'absorption. La valeur obtenue pour le coefficient de GRIIRA est de α_G = 0,025 cm/MW, assez conforme aux grandeurs qui peuvent être trouvées dans la littérature. Pour un niobate de lithium non dopé, une valeur de ce coefficient rapportée dans la littérature est de 0,044 cm/MW (Hirohashi, Tago, Nakamura, Miyamoto, & Furakawa, 2008). D'autre part, un dopage en MgO de 5% tend à faire diminuer le coefficient α_G d'un facteur 2 (Furukawa, et al., 2001), ce qui est en bon accord avec notre estimation expérimentale. Il est à noter que les relations utilisées pour trouver cette valeur du coefficient GRIIRA, permettent également de trouver la valeur de l'absorption linéaire à 1030 nm. Avec un coefficient α_ω de $2{,}7.10^{-3}$ cm^{-1}, on retrouve une valeur semblable aux valeurs trouvées dans la littérature.

En conclusion sur la déformation des faisceaux liée à la puissance optique à 1030 nm pour nos étages d'OPA, nous aurons peu de déformations aux puissances utilisées, de par une cadence plus faible que les 500 kHz utilisé dans cette étude et des tailles de faisceaux envisagées pour les étages d'OPA de puissance plus grandes (de l'ordre de 1 mm de diamètre). En outre, le phénomène dominant sera la lentille thermique

assistée par l'effet GRIIRA. En conséquence, il faudra rester attentif au choix des périodes dans les PPLN afin d'éviter au maximum les accords de phase parasite de la SHG.

Chapitre III

Architecture : Le supercontinuum pour la synchronisation optique des OPA

Aperçu du chapitre

3. Architecture : Le supercontinuum pour la synchronisation optique des OPA. 56
3.1. La synchronisation et ses implications sur l'architecture 56
3.1.1. Architecture à synchronisation pré-amplification 57
3.1.1.1. Mesure de la dérive temporelle 59
3.1.2. Architecture à synchronisation post-amplification 63
3.2. Le supercontinuum 64
3.2.1. Explication du phénomène du supercontinuum 64
3.2.2. Paramètres pour l'optimisation d'un supercontinuum dans des matériaux massifs 66
3.2.3. Stabilité du Supercontinuum 67
3.2.3.1. Stabilité à long terme 67
3.2.3.2. Stabilité à court terme 68
3.2.3.2.1. "Time Stretch Dispersive Fourier Transform" (TSDFT) 69
3.2.3.2.2. Expérience sur la stabilité tir à tir 70
3.2.3.2.3. Résultats de l'expérience 71
3.2.3.2.4. Caractérisations spatiales du supercontinuum 74
3.2.3.2.5. Supercontinuum comme source de signal pour un OPA 75
3.3. Conclusion 75

3. Architecture : Le supercontinuum pour la synchronisation optique des OPA.

Dans ce chapitre, plusieurs expériences et considérations préliminaires sont présentées dans le but d'aboutir à la définition de l'architecture finale retenue pour la source. Dans un premier temps, nous présentons des résultats sur la mesure des dérives temporelles entre impulsions signal et pompe dans une configuration du système initialement envisagée incluant un amplificateur régénératif pour amplifier le signal de pompe. Ces mesures nous mènent à repenser l'architecture, et à étudier la génération de supercontinuum à partir d'impulsions de quelques centaines de femtoseconde à 1030 nm dans un matériau massif. Cette étude a pour but d'évaluer la faisabilité d'utiliser le contenu spectral à 1550 nm du supercontinuum en tant que signal d'OPA. Ces études débouchent sur l'architecture finale mise en place, et les spécificités de cette architecture par rapport à l'état de l'art sont détaillées en fin de chapitre.

3.1. La synchronisation et ses implications sur l'architecture

Comme vu lors du chapitre précédent, une des caractéristiques de l'effet OPA est la nécessité du passage synchrone de la pompe et du signal dans le cristal non linéaire. Dans la réalisation d'un système OPCPA, la synchronisation entre la pompe et le signal est donc un point essentiel et se doit d'être réfléchie lors de la structuration du système. Le meilleur moyen pour garantir cette synchronisation est de créer la pompe à partir du signal, ou inversement, et ce à l'aide d'un effet non linéaire. L'effet le plus souvent utilisé est la génération de supercontinuum qui sera plus amplement étudiée dans la suite du chapitre. La question restante est celle de la position de la séparation entre la pompe et le signal. On peut opposer deux types d'architectures :

- Architecture à synchronisation pré-amplification (cf. Fig. 33 A):
On part d'un système oscillateur + génération de supercontinuum pour obtenir les deux rayonnements pompe et signal faiblement énergétiques. Le rayonnement de pompe à 1030 nm est ensuite étiré et amplifié, alors que le rayonnement à 1550 nm est directement utilisé en tant que signal.

- Architecture à synchronisation post-amplification (cf. Fig. 33 B):
On part d'une source amplifiée délivrant directement un rayonnement à 1030 nm suffisamment énergétique pour servir de pompe au système. Le supercontinuum est réalisé à partir d'un prélèvement de cette pompe afin de créer le signal. Cette génération n'est possible que sous certaines conditions, en particulier l'impulsion de pompe doit être suffisamment courte pour permettre la génération de supercontinuum à un niveau de fluence inférieur à la fluence de dommage du matériau.

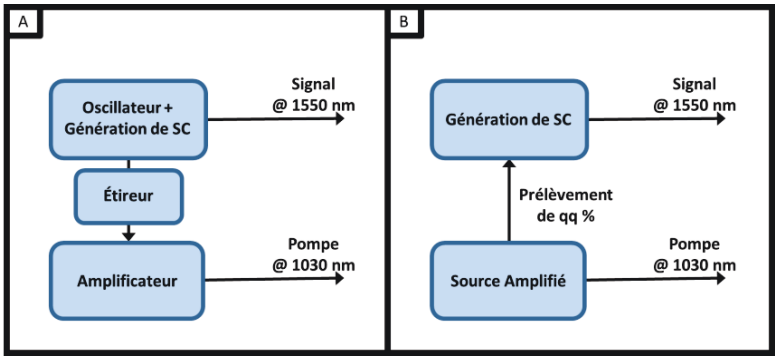


Fig. 33 : Schéma des architectures à synchronisation pré-amplification en A, et post-amplification en B.

Cette première partie du chapitre va se concentrer sur les problèmes de synchronisations liées à la position de la séparation de la voie de pompe et de la voie signal. En particulier, nous étudions la configuration A ci-dessus, qui a été initialement envisagée puisque souvent utilisée dans la littérature.

3.1.1. Architecture à synchronisation pré-amplification

Cette architecture se base sur un oscillateur à fibre dopée erbium délivrant des impulsions très courtes à 1550 nm. Cet oscillateur est ensuite amplifié et comprimé, et une partie de ces impulsions est utilisée pour générer un supercontinuum dans une fibre optique. La partie du supercontinuum générée autour de la longueur d'onde de 1030 nm est ensuite filtrée sur une largeur spectrale de quelques nanomètres, correspondant à une durée d'impulsion de plusieurs centaines de femtoseconde. Ces impulsions à 1030 nm sont ensuite amplifiées dans un amplificateur à fibre dopée ytterbium. Le système comporte donc deux sorties optiques, aux deux longueurs d'onde de 1550 nm et 1030 nm. Ces sorties étant issues du même oscillateur initial, elles sont synchronisées optiquement. Le système entier correspond à un produit commercial de la société Toptica (Femtofiber Pro IRS) que nous avons utilisé pour réaliser les expériences de cette partie.

Les caractéristiques de ce système sont les suivantes : il délivre des impulsions de 1,5 nJ à 1030 nm pour une cadence de 80 MHz, correspondant à une puissance moyenne de 120 mW. Les impulsions synchrones à 1550 nm possèdent une énergie de 3,5 nJ, ce qui correspond à une puissance moyenne de 280 mW. Les spectres et autocorrélations des deux sorties sont visibles en Fig. 34, et montrent que les impulsions amplifiées à 1550 nm correspondent à un spectre très large couvrant la plage spectrale 1400 – 1700 nm, pour une durée d'impulsion de l'ordre de 50 fs. La sortie à 1030 nm, quant à elle, correspond à des impulsions dont le spectre fait 5 nm à mi-hauteur et dont la durée est estimée à 700 fs en supposant que leur forme est gaussienne pour déconvoluer l'autocorrélation. Dans les deux cas, les spectres montrent des signes d'un effet d'automodulation de phase non négligeable accumulé dans les amplificateurs de puissance.

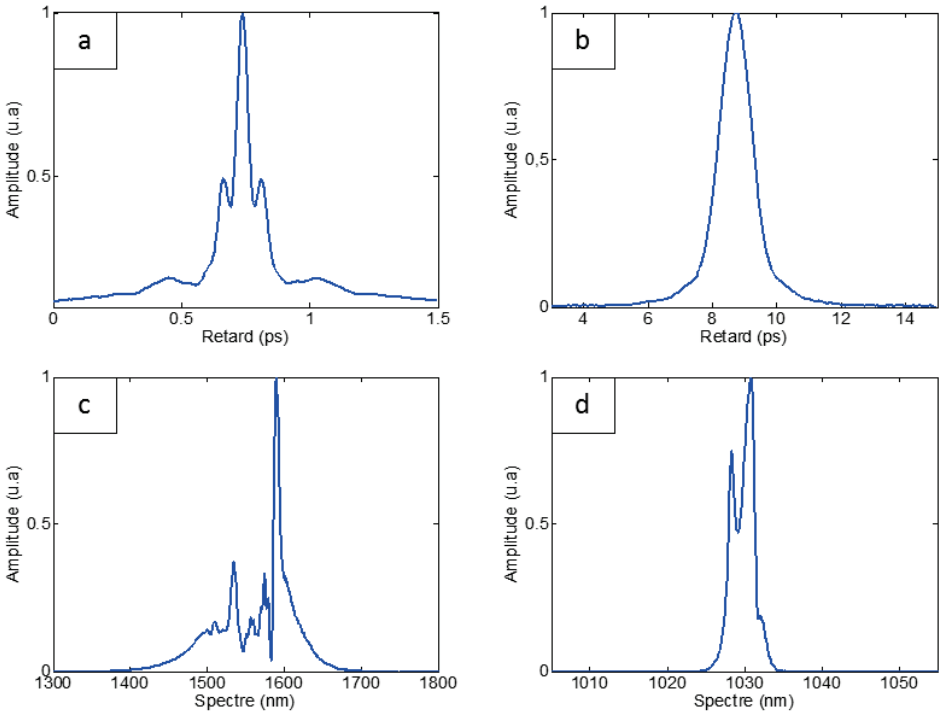


Fig. 34 : Autocorrélation (a) et Spectre (c) du rayonnement à 1550 nm.
Autocorrélation (b) et spectre (d) du rayonnement à 1030n.

L'énergie par impulsion délivrée à 1030 nm est tout à fait insuffisante pour être utilisée directement comme pompe d'un système OPCPA tel qu'envisagé dans ce travail. Une solution couramment utilisée pour amplifier ces impulsions, comme réalisée dans (Baudisch, et al., 2015), (Biegert, et al., 2015) et (Mayer, Phillips, Gallmann, & Keller, 2014), consiste à utiliser un amplificateur régénératif afin d'atteindre une énergie supérieure à 100 µJ nécessaire à l'OPA. Nous avons utilisé un amplificateur régénératif commercial (Amplitude Systemes S-pulse) basé sur un cristal de Yb:KGW afin d'amplifier ces impulsions. L'amplificateur réalise simultanément une fonction de réduction de cadence. Ainsi, le train d'impulsion à 1030 nm en sortie d'amplificateur possède un taux de répétition de 20 kHz, une énergie par impulsion de 150 µJ, correspondant à une puissance moyenne de 3 W.

Le principe d'un amplificateur régénératif consiste à faire circuler un grand nombre de fois une impulsion initiale dans une cavité contenant un milieu à gain, ce qui permet d'obtenir un gain total très important. Les cavités optiques utilisées possédant une longueur optique de l'ordre de quelques mètres, le temps d'amplification, correspondant à quelques dizaines de recirculation dans la cavité, est rapidement de l'ordre de plusieurs dizaines de microseconde. Dans le système OPCPA, ce délai d'amplification est accumulé entre les impulsions pompe et signal, et doit être compensé. Afin d'éviter le recours à une ligne à retard de plusieurs dizaines de mètres, très difficile à mettre en œuvre en pratique, l'amplificateur paramétrique est réalisé en faisant interagir des impulsions de signal et pompe correspondant à différentes impulsions du train initial à la cadence de l'oscillateur, comme illustré sur la Fig. 35.

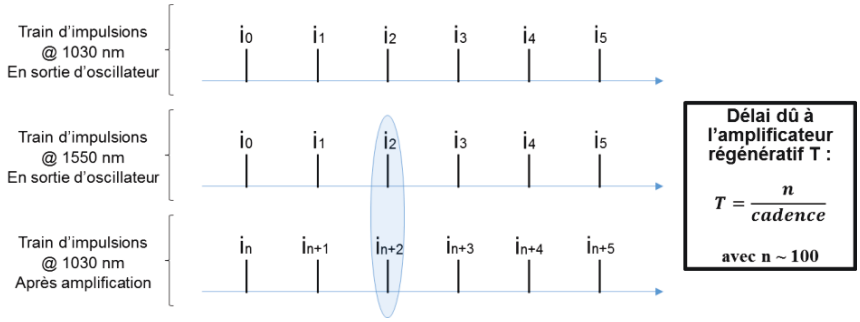


Fig. 35 : Retard introduit par l'amplificateur régénératif et conséquence sur la synchronisation.

L'utilisation d'impulsions différentes du train pour générer le signal et la pompe fait apparaitre un couplage entre le taux de répétition initial de l'oscillateur et le retard relatif entre les impulsions pompe et signal : une variation de la cadence de répétition de l'oscillateur entraine une fluctuation temporelle entre pompe et signal. Ceci est illustré sur la Fig. 36 : le temps entre deux impulsions étant dépendant de la cadence, une variation de celle-ci entraine une variation du temps entre les impulsions précédemment synchrones. Ce problème est récurrent dans le monde des OPCPA, obligeant l'utilisation d'une synchronisation électronique avec une boucle de rétroaction ((Ahmad, 2011), (Ahmad, et al., 2009)).

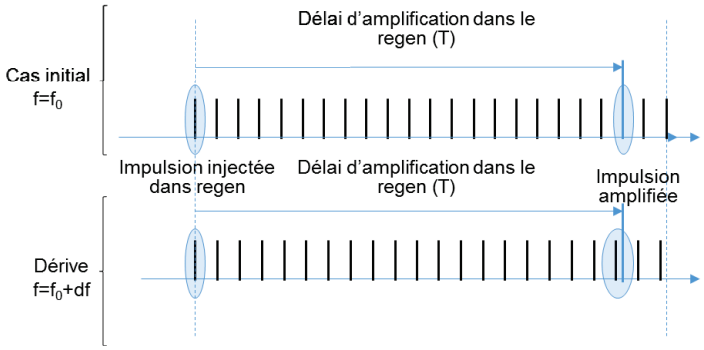


Fig. 36 : Gigue temporelle due aux dérives de fréquence de l'oscillateur.

En plus des fluctuations de fréquence de l'oscillateur, le retard accumulé dans l'amplificateur régénératif peut lui-même être une source de gigue temporelle. Nous avons donc conduit une expérience afin de mesurer et caractériser ces deux sources de gigue afin d'en connaitre l'impact sur l'amplification paramétrique : travaillant avec des impulsions de pompe d'une durée de l'ordre de 500 fs, la fenêtre temporelle de gain est d'environ 250-300 fs. Pour éviter un effet trop important, il faut limiter les dérives temporelles au dixième de cette plage, soit environ 25-30 fs.

3.1.1.1. Mesure de la dérive temporelle

Afin de mesurer les deux sources de gigue, deux montages sont mis en place. Le premier consiste en la mise en place d'un fréquencemètre permettant d'obtenir avec précision (± 0,1 Hz) la fréquence de l'oscillateur. Combiné avec la connaissance du délai introduit par l'amplificateur régénératif, plus précisément du nombre de périodes de l'oscillateur utilisées pour compenser ce retard, on peut estimer la gigue introduite par la

variation de fréquence. Le deuxième montage permet de mesurer la gigue temporelle totale (cf. Fig. 37) entre le signal et la pompe. Son principe consiste à faire interagir l'impulsion de pompe en limite de Fourier avec l'impulsion signal préalablement étirée à une durée de plusieurs dizaine de ps dans un cristal de BBO, afin de réaliser une somme de fréquence. L'étirement temporel du signal est réalisé par passage dans une séquence dispersive, et est donc associé à une dérive de fréquence optique. La longueur d'onde centrale de la somme de fréquence varie donc en fonction du délai entre les deux impulsions, et la réalisation d'un étalonnage permettra de relier le délai entre les deux impulsions et la longueur d'onde de la somme de fréquence.

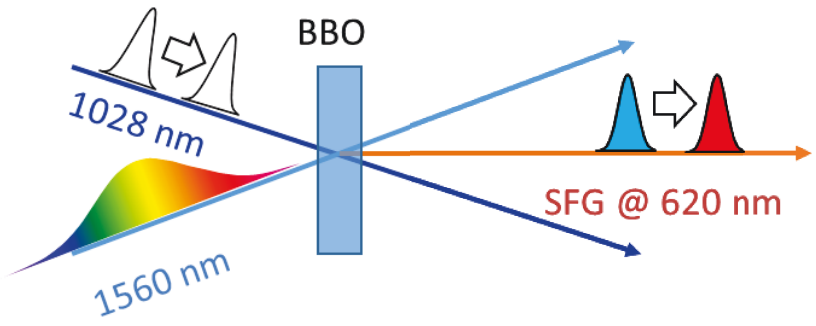


Fig. 37 : Schéma de principe pour la mesure de la gigue temporelle totale.

En balayant le délai entre le signal et la pompe à l'aide d'une ligne à retard motorisée (cf. Fig. 38), on détermine expérimentalement la relation entre le délai et la longueur d'onde du signal de somme de fréquence mesuré :

$$\tau = 0{,}0067 * \lambda^2 - 7.077 * \lambda + Cst, \qquad \text{Eq.3.1}$$

où λ est exprimé en nm et τ en ps. Cette relation correspond à la dispersion de vitesse de groupe et à la dispersion de troisième ordre introduite dans l'étireur du signal.

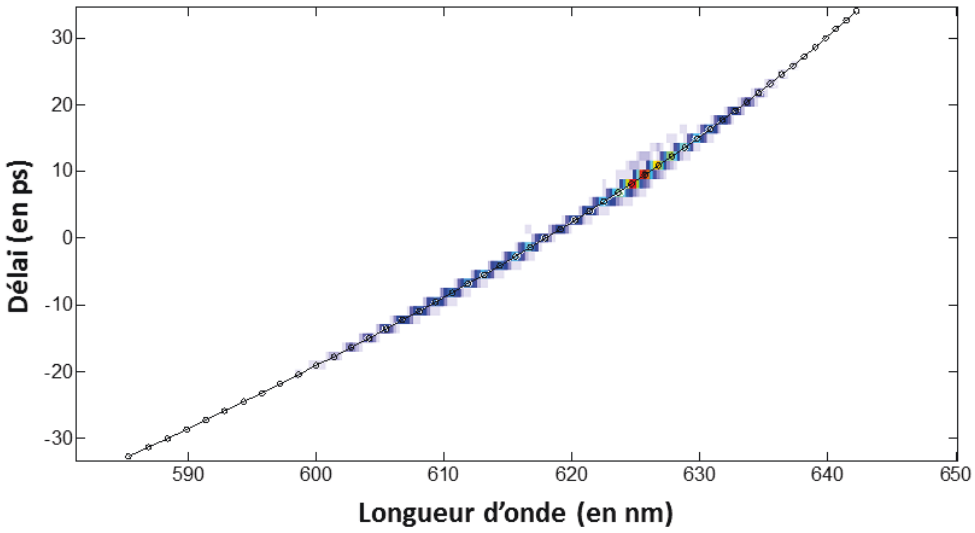


Fig. 38 : Délai en fonction de la longueur d'onde de la somme de fréquence.

Il est nécessaire de noter quelques limitations de la mesure effectuée. Tout d'abord, il ne s'agit pas d'une mesure de fluctuations de délai tir à tir du fait que le spectromètre a un temps d'intégration de 2 ms alors que la cadence est de 20 kHz. On intègre donc la mesure sur 40 impulsions, gommant les fluctuations dont la fréquence est supérieure à 250 Hz. Le temps d'acquisition du spectromètre vers l'ordinateur est environ de 8 ms, ce qui limite encore d'avantage la bande passante de la mesure de délai à une fréquence inférieure à 50 Hz environ. Enfin la résolution du spectromètre utilisé est de 0,3 nm ce qui, une fois convertie en délai, donne une résolution de 300 fs. On réussit toutefois avec une méthode de moyenne pondérée à gagner un ordre de grandeur sur la résolution, atteignant ainsi la valeur critique de 30 fs, objectif à ne pas dépasser en dérive pour le bon fonctionnement de l'OPA.

Ces deux expériences ont été lancées sur une période de 24h, afin de totaliser un cycle jour/nuit.

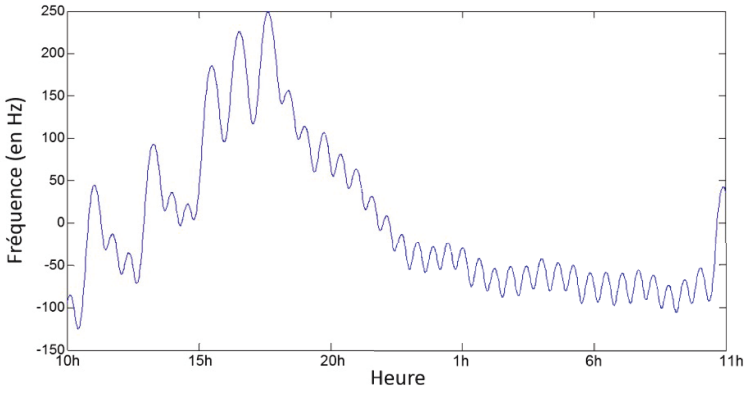


Fig. 39 : Dérive de fréquence de l'oscillateur sur 24 h. ***Entre 10 h du matin et 11 h du matin le lendemain.***

La mesure des fluctuations de fréquence de l'oscillateur révèle plusieurs variations (cf. Fig. 39):

- Une variation lente d'une amplitude d'environ 250 Hz sur un temps d'environ 8 h.

- Des oscillations d'amplitude 150 Hz de période environ 50 min.
- Des oscillations d'amplitude 50 Hz de période environ 35 min.

La différence entre le jour et la nuit est flagrante, pointant la température comme cause de la dérive de fréquence : la grande dérive correspond au cycle jour/nuit, alors que les oscillations sont liées au système de climatisation travaillant plus longtemps et plus fort de jour que de nuit. Une modélisation simple de l'oscillateur permet de retrouver des résultats cohérents avec ces mesures. Si l'on considère que la cavité laser est constituée par une simple fibre optique de longueur 1,9 m (en lien avec la cadence de 80 MHz) avec un coefficient de dilatation thermique de $5.10^{-6}/°C$, qui est celui de la silice, on trouve qu'une variation de température d'un demi-degré Celsius correspond à une dérive de 200 Hz sur la cadence. Les variations observées sont donc dues à des changements de température de cet ordre de grandeur, ce qui correspond bien aux caractéristiques de la climatisation.

Afin de déterminer si ces variations sont gênantes pour l'OPA, il faut convertir ces variations de fréquence en délai. Pour cela, on exprime le délai entre les impulsions de pompe et de signal T en fonction de la fréquence f_0 et du nombre d'impulsions d'écart N utilisées pour compenser le délai d'amplification régénérative :

$$T = \frac{N}{f_0} \quad \rightarrow \quad dT = \frac{-N \times df}{f_0^2} = \frac{-N}{f_0} \times \left(\frac{df}{f_0}\right) = -T \times \left(\frac{df}{f_0}\right). \qquad \text{Eq.3.2}$$

Dans notre système expérimental, les valeurs numériques sont les suivantes : f_0 = 80 MHz et T = 1580 ns. Cela correspond à un coefficient de conversion de -19,7 fs/Hz. Une fois appliqué à nos mesures, on observe donc une dérive lente sur une journée d'environ 5 ps et des oscillations de délai d'amplitudes 3 ps et 1 ps. Si on compare ces valeurs à la limite de 25-30 fs exposée en début de partie, on est deux ordres de grandeurs au-dessus de cette limite dans les variations obtenues. Pour garder de bonnes conditions de synchronisation pour l'OPA, les variations de cadence de l'oscillateur ne devraient pas dépasser quelques Hz.

Le 2ème montage, celui de mesure du délai total, fait apparaître que le délai introduit par la dérive de fréquence n'est pas le seul présent dans le système (cf. Fig. 40) : Un délai d'une ampleur comparable est introduit dans l'amplificateur régénératif. Similaire au problème survenant dans l'oscillateur, la dilatation de pièces mécaniques dans l'amplificateur régénératif introduit des faibles variations de distance parcourue s'accumulant durant les allers retours, devenant ainsi non négligeables.

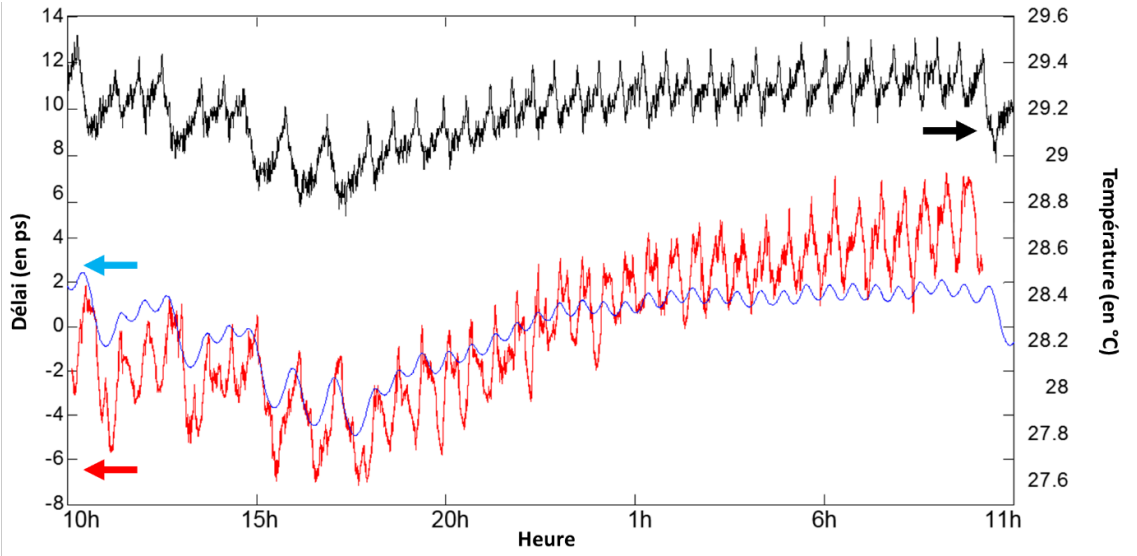


Fig. 40 : Mesure du délai : En rouge, le délai total ; En bleu, le délai dû aux dérives de fréquence. En noir, la température pour comparaison.

La comparaison entre la température et le délai total confirme que la température est bien également le facteur à l'origine des dérives temporelles dans l'amplificateur régénératif avec un coefficient de 3,5 ps/°C. Cette valeur est relativement élevée quand on la compare à celles obtenues dans des systèmes basés sur des architectures semblables (Ahmad, et al., 2009).

En conclusion de cette étude, l'architecture à synchronisation optique pré-amplification pose des problèmes de gigue temporelle pour la réalisation d'un OPCPA peu étiré (Mero, Noack, Bach, Petrov, & Vrakking, 2015). Son utilisation sera donc souvent liée à des impulsions plus longues, et/ou couplées avec un système de rétroaction sur le contrôle du délai en fonction du type d'amplificateur utilisé. En effet les dérives observées sont assez lentes puisque issues d'effets thermiques, et sont donc corrigeables facilement avec un système asservi.

3.1.2. Architecture à synchronisation post-amplification

Cette architecture se base sur une source amplifiée délivrant un rayonnement de pompe énergétique à 1030 nm. On se sert directement d'un prélèvement de cette source afin de créer le signal à 1550 nm par génération de supercontinuum. Elle présente le grand avantage de ne pas introduire de délai important entre la voie de pompe et la voie de signal, permettant de faire interagir la même impulsion au sein du train et de se débarrasser de la gigue temporelle observée dans la partie précédente.

La possibilité d'utiliser cette architecture dépend des propriétés temporelles des impulsions de voie de pompe. Pour réaliser un supercontinuum dans un matériau massif présentant une extension spectrale non négligeable au-delà de 1550 nm, il est nécessaire de focaliser une impulsion courte dans ce matériau, dont la durée est bien inférieure à 1 ps (Calendron, Cankaya, Cirmi, & Kärtner, 2015). Les observations expérimentales tendent en effet à montrer que plus la durée augmente, plus la marge de sécurité entre l'observation de la génération de supercontinuum et l'endommagement du matériau se réduit. Ceci empêche

l'utilisation de cette architecture pour des amplificateurs délivrant des impulsions picosecondes, par exemple les systèmes basés sur des cristaux de Nd:YVO4 tels que ceux décrits dans l'état de l'art comme (Mayer, Phillips, Gallmann, & Keller, 2014) ou (Baudisch, et al., 2015). A l'heure actuelle, les systèmes lasers délivrant à la fois de fortes puissances moyennes et une énergie par impulsion importante sont basés sur le matériau Yb:YAG, qui délivre le plus souvent des impulsions amplifiées de durée supérieure à la picoseconde, et sont donc à la limite de compatibilité avec la génération de supercontinuum. En revanche, les sources de forte puissance moyenne basées sur les fibres optiques dopées Yb sont capables de générer des impulsions de durée inférieure à 500 fs, mais d'énergie limitée à quelques centaines de μJ.

Ultimement, le choix du type d'architecture repose donc sur le choix de la pompe : une pompe courte permet l'utilisation de la synchronisation post-amplification, s'affranchissant d'importants problèmes de gigue temporelle ; alors qu'une pompe plus longue sera utilisée dans une configuration pré-amplification et nécessitera une synchronisation électronique avec une boucle de rétroaction.

Pour notre système final, nous utiliserons une source amplifiée délivrant des impulsions de 400 μJ, 500 fs à une cadence de 125 kHz. Cette pompe autorise l'utilisation d'une architecture à synchronisation post-amplification, s'inscrivant ainsi bien dans le projet d'utiliser des impulsions peu étirées. Il est donc possible de générer un contenu spectral à 1550 nm servant de signal par génération de supercontinuum dans un matériau massif. De nombreux systèmes utilisant la génération de supercontinuum dans des matériaux massifs sont décrits dans la littérature scientifique pour concevoir des OPCPA (Cerullo & De Silverstri, 2003). En revanche, au début de ce travail de thèse, aucune étude systématique n'avait été faite sur les propriétés du contenu spectral infrarouge d'un supercontinuum généré à partir d'une longueur d'onde de 1 μm. Dans la partie suivante, nous menons une telle étude, en nous focalisant sur les propriétés de stabilité du rayonnement généré.

3.2. Le supercontinuum

Dans cette partie, nous allons nous intéresser plus en profondeur au phénomène de génération de supercontinuum permettant la production du signal OPCPA à partir de la pompe. Un intérêt croissant a été porté aux supercontinua comme générateur de la voie signal pour les systèmes OPA depuis les années 1990 (K.Reed, K. Steiner-Shepard, & K.Negus, 1994). Si les phénomènes permettant la génération du supercontinuum sont connus et compris dans leurs individualités, leurs interactions demeurent complexes (Galinis, et al., 2015). Les études sur les supercontinua dans les matériaux massifs à partir d'un rayonnement à 1 μm dans le régime femtoseconde sont peu nombreuses (Bradler & Riedle, 2014) (Majus & Dubietis, 2013). Il est dès lors nécessaire d'étudier le phénomène par le biais des expériences afin de caractériser les qualités du rayonnement obtenu.

3.2.1. Explication du phénomène du supercontinuum

Le supercontinuum est un phénomène qui se traduit par un important élargissement spectral pouvant aller jusqu'à plusieurs octaves. Observé pour la première fois en 1970 (Alfano & Shapiro, 1970 (2)), il avait été généré à partir d'un laser délivrant des impulsions de 5 mJ et de quelques picosecondes à 530 nm dans une

lame de verre BK7. Apparaissant sous la forme d'un spectre s'étalant sur l'ensemble du domaine visible donnant ainsi naissance à une lumière blanche (Alfano & Shapiro, 1970), il en tire son autre appellation : le white-light. Le supercontinuum sera observé et étudié ensuite dans les fibres optiques où les puissances nécessaires à sa génération sont moindres, permettant la génération de supercontinuum dans plusieurs régimes temporels allant du continu au femtoseconde et ouvrant de nombreuses applications (Dudley, Genty, & Coen, 2006). Ce phénomène est provoqué par les importantes puissances crêtes obtenues, provoquant une accumulation d'effets non linéaires, auxquels s'ajoutent des effets linéaires. On retrouvera principalement dans les phénomènes physiques pertinents la dispersion, l'automodulation de phase, le mélange à 4 ondes, l'autofocalisation, la diffusion Raman et la génération de plasma en différentes proportions selon les propriétés spécifiques des milieux (fibres, cristal, liquide, gaz) et du régime temporel (femtoseconde, picoseconde) choisi pour la génération. Ce choix influence donc la dynamique de génération du supercontinuum, ce qui lui donnera des propriétés différentes comme nous le verrons par la suite. L'intérêt pour la génération de supercontinuum dans les matériaux massifs a considérablement augmenté ces dernières années de par son potentiel à servir de signal dans un système d'OPA large bande, puisqu'en plus d'apporter un large spectre cohérent correspondant à une durée d'impulsion très courte, il garantit la synchronisation optique entre le signal et la pompe. C'est dans ce but que nous nous intéressons dans le cadre de cette thèse à la réalisation d'un supercontinuum dans une lame de YAG à partir d'un rayonnement femtoseconde à 1030 nm pour obtenir une plage de bande spectrale aux alentours de 1550 nm.

Fig. 41 : Filament dans un cristal de YAG d'un centimètre de long avec des impulsions picosecondes à 1030 nm (Réalisé à Fastlite).

Dans le cas de la génération de supercontinuum dans un milieu non guidé, un phénomène du nom de filamentation se produit (cf Fig. 41). L'indice d'un milieu est influencé par l'intensité lumineuse le traversant, par le biais de son indice de réfraction non linéaire n_2, selon la relation :

$$n = n_0 + I \times n_2. \qquad \text{Eq.3.3}$$

Ce phénomène, appelé effet Kerr, appliqué à un faisceau gaussien, provoque une augmentation de l'indice au centre du faisceau, créant ainsi une copie du profil du faisceau sous forme d'une variation d'indice. En première approximation, au voisinage du centre du faisceau, on peut comparer ce profil gaussien à une parabole, ce qui correspond à une lentille convergente (lentille de Kerr) dans le milieu. Lorsqu'une certaine

puissance critique est atteinte, cet effet Kerr domine le phénomène de diffraction, entrainant l'autofocalisation du faisceau et on observe alors l'effondrement du faisceau sur lui-même. Cela permet d'obtenir des intensités suffisantes pour la création d'un plasma dans le milieu. Cette ionisation partielle influence aussi l'indice du milieu mais avec une contribution opposée à celle de l'effet Kerr : on parle de défocalisation induite par les électrons libres. On peut alors observer des régimes de propagation dans lesquels ces deux effets se compensent pour localiser l'intensité sur une distance bien supérieure à la longueur de Rayleigh d'un faisceau Gaussien, formant ainsi un filament. Cet effet, qui confine spatialement l'impulsion, permet d'obtenir d'importantes puissances crêtes sur une longueur d'interaction élevée, donnant lieu aux nombreux effets non linéaires qui réalisent le supercontinuum. Il est important de noter que ce phénomène se produit pour des intensités proches du seuil de dommage (de ~20 GW/cm² pour le YAG en régime femtoseconde) et que l'on peut distinguer deux régimes en fonction de l'énergie de l'impulsion incidente : La mono-filamentation, où le filament est unique, et la multi-filamentation, pour laquelle le seuil de filamentation est atteint en plusieurs points spatiaux créant ainsi plusieurs filaments.

3.2.2. Paramètres pour l'optimisation d'un supercontinuum dans des matériaux massifs

La génération d'un supercontinuum dans un matériau massif est grandement dépendante d'un certain nombre de paramètres. Tout d'abord les paramètres du laser comme sa longueur d'onde, la durée des impulsions et l'énergie par impulsion. La longueur d'onde détermine le point de départ de l'extension du spectre, extension qui n'est pas symétrique : lorsque la longueur d'onde de pompe se trouve dans la zone de dispersion normale du matériau, l'extension vers les basses longueurs d'onde (pour nous, vers le domaine visible) est très rapide avant d'atteindre une limite basse qui est fixe, alors que l'extension vers les hautes longueurs d'onde (pour nous, vers le proche infrarouge) est plus progressive avec une absence de cet effet de seuil observée pour l'extension dans le visible. La durée des impulsions est aussi déterminante de par les puissances crêtes nécessaires, on réalise donc des supercontinua en régime femtoseconde et picoseconde quand il s'agit de génération dans les matériaux massifs. Finalement l'énergie par impulsion jouera un rôle important, de par les puissances crêtes à atteindre. Dans le régime femtoseconde, l'énergie typique utilisée est de l'ordre de quelques microjoules. Le réglage de cette énergie par impulsion a une grande influence sur l'extension vers le domaine proche infrarouge ainsi que sur le phénomène de filamentation. Vient ensuite le choix du cristal. Les paramètres importants sont son seuil de dommage, son domaine de transparence, ses coefficients de non linéarité, son énergie de gap. Le choix du cristal fixe donc également la limite basse en longueur d'onde atteignable avec le supercontinuum mentionné précédemment, puisque directement liée à l'énergie de gap (Brodeur & Chin, 1999) : l'extension vers les basses longueurs d'onde est essentiellement due au plasma, or les propriétés du plasma dépendent directement de l'énergie de gap du milieu, fixant ainsi l'extension maximale pour un milieu donné. Pour le YAG, cette limite se situe à 470 nm (Bradler, Baum, & Riedle, 2009). Finalement, les derniers paramètres importants sont la vergence de la lentille utilisée pour focaliser dans le cristal, ainsi que la position du point focal dans le cristal. Il a été établi empiriquement qu'une focalisation lâche permet une meilleure extension du spectre vers les hautes longueurs d'onde (Jukna, Galinis, Tamosauskas, Majus, & Dubietis, 2014). Cependant cela nécessite une augmentation de l'énergie

par impulsion pour compenser la baisse de puissance crête occasionnée et ainsi atteindre le seuil pour la filamentation. On remarque aussi de façon empirique que la position du point focal dans le cristal influence la forme du spectre du supercontinuum. Le spectre que nous obtenons typiquement après optimisation pour la zone 1400 nm – 1600 nm peut être vue ci-dessous (cf. Fig. 42) :

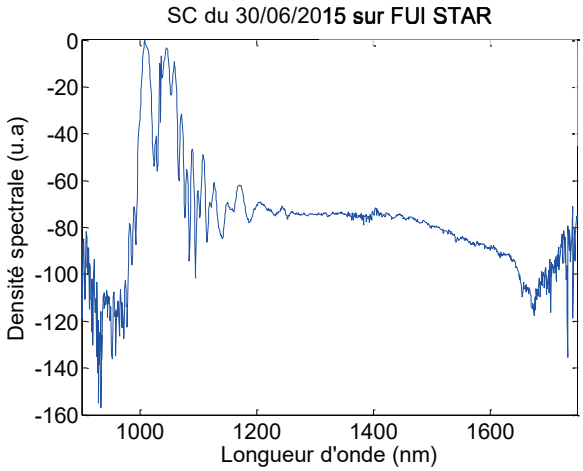


Fig. 42 : Spectre du supercontinuum en début de chaine de FUI STAR. Les remontés de densité spectrales sur les zones extrêmes sont dues aux limites de l'analyseur de spectre et ne représente pas une présence réelle de spectre dans ces zones.

3.2.3. Stabilité du Supercontinuum

La génération de supercontinuum est un phénomène non linéaire complexe qui se réalise près du seuil de dommage du cristal, d'où des craintes quant à sa stabilité ou à des effets de vieillissement du matériau. Il est connu que lors de la génération de supercontinuum dans une fibre, selon les conditions d'excitation, la répétabilité tir à tir du spectre, ainsi que la cohérence du supercontinuum peuvent être dégradées. Cette génération dans le cas d'impulsions picoseconde dans un milieu massif engendre un effet de vieillissement lié à la proximité du seuil de dommage (Gorza, et al., 2014). La littérature n'étant pas très développée dans notre cas d'impulsions femtoseconde à 1030 nm dans les matériaux massifs, nous avons décidé de réaliser l'étude des propriétés de stabilité du supercontinuum, en particulier autour de 1550 nm.

3.2.3.1. Stabilité à long terme

La première étude concerne la stabilité du supercontinuum à long terme, soit à l'échelle de quelques jours. Cette étude est motivée par le fait que la génération de supercontinuum dans les matériaux massifs à partir d'impulsions picoseconde a montré un effet de vieillissement du cristal de par la proximité des intensités utilisées avec le seuil de dommage optique du cristal.

Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé un laser à fibre dopée ytterbium délivrant des impulsions d'une durée égale à 400 fs, d'une énergie de plusieurs microjoules à 1030 nm, à un taux de répétition de 1 MHz. Après un système composé d'une lame demi-onde et d'un polariseur, permettant d'ajuster l'énergie envoyée, le faisceau de 1.5 mm de diamètre à mi-hauteur passe dans une lentille ayant une focale de 125 mm afin d'être focalisé dans une lame de YAG de 10 mm générant ainsi le supercontinuum. Le rayonnement est ensuite envoyé à un analyseur de spectre optique après injection dans une fibre optique monomode. Un

programme informatique réalisé en language C# permet enfin d'enregistrer un spectre toute les 2 minutes et ce pour une durée de plus de 40 heures. Le résultat de la mesure est visible en Fig. 43. Sur la durée totale de 40 h, le laser utilisé pour la génération du supercontinuum a vu sa puissance délivrée légèrement augmenter, entrainant une légère extension du supercontinuum vers l'infrarouge. A l'exception de ce fait, le supercontinuum est resté stable et n'a pas montré l'apparition du phénomène de vieillissement craint. Avec le recul acquis lors des expériences d'amplification paramétrique décrites dans le chapitre suivant, nous pouvons sereinement affirmer que les conditions de génération du supercontinuum dans lesquelles nous opérons le système d'OPCPA (énergie 5 μJ, durée d'impulsion 400 fs, taux de répétition 125 kHz) n'engendre pas de phénomène de vieillissement à l'échelle de plusieurs mois et montre une excellente reproductibilité en termes de contenu spectral et d'énergie.

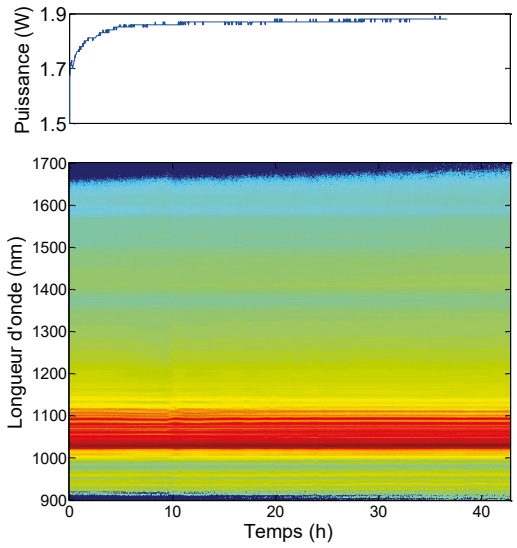


Fig. 43 : En haut une mesure de la puissance du laser (il ne s'agit pas de la puissance envoyée dans le supercontinuum). En bas le supercontinuum s'étendant de 900 nm à presque 1700 nm sur une échelle de 40h.

Bien que ce premier résultat soit concluant en ce qui concerne l'évolution sur le long terme du spectre moyen généré, il n'est pas représentatif de la reproductibilité tir à tir du spectre : le temps d'acquisition est de l'ordre de la seconde, et le spectre est donc moyenné sur des milliers d'évènements de génération.

3.2.3.2. Stabilité à court terme

Cette deuxième étude concerne la stabilité à court terme, soit les fluctuations du spectre généré à chaque impulsion. Cette étude est liée au fait que l'utilisation finale requiert une excellente reproductibilité du champ optique à 1,55 μm produit par chaque évènement de génération. Elle est aussi motivée par le fait que, dans certaines conditions d'excitation, le supercontinuum généré dans une fibre optique peut présenter

d'importantes fluctuations entre les impulsions successives malgré une bonne stabilité sur le long terme (Dudley, Genty, & Coen, 2006).

Pour réaliser cette étude, il est nécessaire de mesurer le spectre des impulsions du supercontinuum une à une. Le problème technique de cette expérience est la mesure d'un spectre à une cadence de 1 MHz. En effet, un analyseur de spectre ne peut pas réaliser des mesures aussi rapidement et son utilisation entrainerait donc un effet de moyenne. Il est donc nécessaire de trouver une autre technique pour être capable d'acquérir autant de spectres du supercontinuum que d'impulsions dans un intervalle de temps donné.

3.2.3.2.1. "Time Stretch Dispersive Fourier Transform" (TSDFT)

Cette technique a été récemment utilisée dans le contexte des supercontinua à fibre (Wetzel, et al., 2012) (Godin, et al., 2013) (Ren, Xu, Qiu, Wong, & Tsia, 2014) dans le but de faire des mesures tir à tir des propriétés spectrales. Son principe réside dans l'utilisation de la dispersion d'une fibre afin d'obtenir une réplique du spectre de chaque impulsion dans le domaine temporel : une fois l'impulsion injectée dans la fibre, elle subit la dispersion chromatique qui va l'étirer temporellement. En toute rigueur, et si la propagation est purement linéaire, ce que nous supposerons par la suite, la forme temporelle obtenue à la sortie de la fibre dépend du champ initial ainsi que de la dispersion de la fibre. Toutefois, lorsque le facteur d'étirement est très important et que la relation de dispersion est inversible, on peut remonter au spectre de l'impulsion entrant dans la fibre à partir la forme temporelle de l'impulsion sortant de la fibre.

Considérons le cas d'une impulsion U(t) de durée τ, de transformée de Fourier $\widetilde{U}(t)$, traversant un milieu de longueur z et caractérisé par une dispersion de vitesse de groupe pure β_2. En utilisant le théorème de la phase stationnaire (Tsia, Goda, Capewell, & Jalali, 2010), valable si la durée étirée est largement supérieure à la durée initiale, on peut alors montrer que le champ en sortie est proportionnel à

$$U(t) \propto e^{\frac{-it^2}{2\beta_2 z}} \times \widetilde{U}\left(\frac{t}{\beta_2 z}\right). \qquad \text{Eq.3.4}$$

Ainsi, l'impulsion en sortie présente une dérive de fréquence linéaire importante, ainsi qu'un profil temporel proportionnel à son spectre, avec une relation d'homothétie déterminée par la quantité de phase spectrale d'ordre 2 accumulée :

$$|U(t)|^2 \propto \left|\widetilde{U}\left(\frac{t}{\beta_2 z}\right)\right|^2. \qquad \text{Eq.3.5}$$

Dans notre expérience, on part d'impulsions dont la durée est de l'ordre de 400 fs pour arriver à une durée étirée de l'ordre de la dizaine de ns, ce qui valide l'hypothèse de fort étirement. Dans notre expérience, la dispersion est introduite par un tronçon de 260 m de fibre à compensation de dispersion utilisée dans le contexte des télécommunications pour compenser la propagation dans des longueurs de fibre optique standard de plusieurs kilomètres. Sur les plages spectrales importantes qui nous intéressent, on ne peut pas supposer que la dispersion soit purement une dispersion de vitesse de groupe, et une mesure de calibration du délai de groupe introduit par la fibre en fonction de la longueur d'onde est nécessaire. Pour ce faire nous

avons comparé la mesure temporelle en sortie de fibre dispersive avec une mesure indépendante du spectre mesuré sur un analyseur de spectre. En identifiant certains pics très distincts dans ce spectre, la relation de dispersion est ainsi interpolée (cf. Fig. 44). Pour information, la fibre utilisé est un ensemble composé d'une fibre de 100 m avec un β_2 de 0,1855 ps^2m^{-1}, β_3 de -0,00112 ps^3m^{-1} et d'une 2ème fibre de 160 m avec un β_2 de 0,1159 ps^2m^{-1}, β_3 de -0,00231 ps^3m^{-1}.

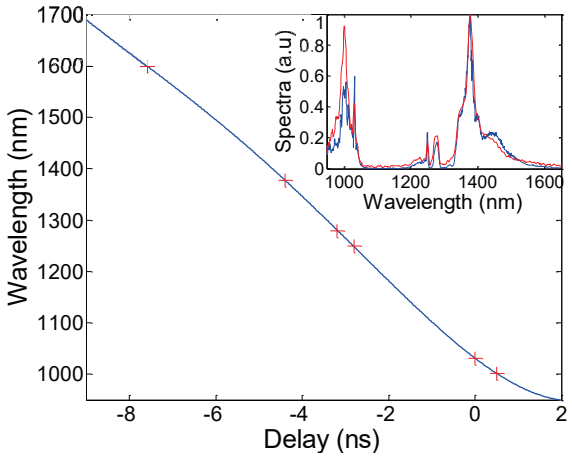


Fig. 44 : Relation de dispersion pour la fibre utilisée pour la TSDFT. Les points rouges représentent des mesures expérimentales. La courbe bleue est une interpolation polynomiale. Inclusion : Comparaison entre un spectre retrouvé par oscilloscope et mesuré par un analyseur de spectre.

On voit que l'évolution du délai de groupe en fonction de la longueur d'onde est monotone sur la plage 1 µm - 1.7 µm, ce qui permet d'inverser la relation afin de déduire le spectre de la forme temporelle de l'impulsion étirée (cf. inclusion de la Fig. 44). On observe également clairement la non-linéarité de la dérive de fréquence sur cette large plage. Enfin, la fibre dispersive possède un zéro de dispersion de vitesse de groupe vers 900 nm, il faudra donc nous assurer de supprimer le contenu spectral inférieur à cette longueur d'onde, qui pourrait parasiter le spectre mesuré en se repliant à des délais de groupes égaux aux longueurs d'onde supérieures.

3.2.3.2.2. Expérience sur la stabilité tir à tir

L'implémentation de l'expérience est décrite en Fig. 45.

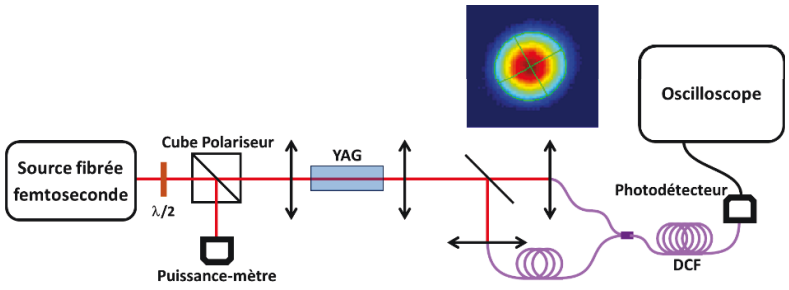


Fig. 45 : Montage expérimental. DCF : fibre à compensation de dispersion.
Insert : Profil spatial (champ lointain) du supercontinuum enregistré avec une camera InGaAs après un filtre passe-haut à 1400 nm.

Une lame demi-onde couplée à un polariseur est utilisée pour prélever 1,8 µJ d'un amplificateur à fibre rod-type dopé Ytterbium (Tangerine, Amplitude Systèmes). Ce laser délivre des impulsions de 400 fs à 1030 nm, avec une bande de 6 nm à une cadence de 1 MHz. Le faisceau de diamètre 1,5 mm (FWHM) est focalisé dans une lame de YAG de 10 mm avec une lentille de focale 125 mm pour générer le supercontinuum dans un régime de mono-filamentation. Le supercontinuum est ensuite collimaté par une autre lentille de même focale, filtré afin de supprimer la pompe à 1030 nm et isoler la bande spectrale dans le proche infrarouge, avant d'être séparé en deux faisceaux à l'aide d'une lame séparatrice large bande. Chaque faisceau est focalisé sur un diamètre de 150 µm (FWHM) où sont localisées des fibres standard SMF28 (Single Mode Fiber). La différence de diamètre entre le faisceau focalisé et les cœurs de 9 µm de diamètre des fibres permet de sélectionner spatialement la partie du faisceau qui va être injectée, laissant accès à des mesures de spectre résolues spatialement. Pour le bon déroulement des mesures de corrélations spatiales, les deux fibres sont couplées à une même fibre à l'aide d'un coupleur fibré après l'ajout d'un délai relatif entre les deux voies de 25 ns correspondant à 5 m de fibre supplémentaire sur l'une des voies. Les impulsions sont ensuite couplées à la fibre à compensation de dispersion de 260 m caractérisée ci-dessus, afin de réaliser la transformation dispersive du spectre vers le domaine temporel. Un photodétecteur rapide InGaAs et un oscilloscope rapide, avec une bande passante globale de 8 GHz, sont ensuite utilisés pour mesurer le profil temporel en sortie de fibre.

Lors des mesures de corrélation spectrale et d'homogénéité spectrale du faisceau, une seule voie spatiale est utilisée. Les deux voies ont ensuite été utilisées pour la réalisation des corrélations spatiales afin de pouvoir comparer la même impulsion à deux positions spatiales différentes du faisceau.

Pour la précision des mesures réalisées, il est à noter que le bruit de détection de l'oscilloscope est évalué à 0,4 % RMS de l'échelle totale de détection. La résolution sur le spectre obtenue est de 10 nm, calculée à l'aide de la relation de dispersion et de la bande passante de l'oscilloscope. Finalement, les fluctuations d'énergie des impulsions de pompe à 1030 nm ont été mesurées séparément avec une valeur typique de 1% RMS.

3.2.3.2.3. Résultats de l'expérience

Pour réaliser les graphes de cette section, un ensemble de 500 impulsions consécutives a été utilisé, et un traitement des données a permis d'obtenir les spectres de ces 500 impulsions consécutives. A partir de ces données, nous pouvons définir la corrélation spectrale entre deux longueurs d'onde λ_1 et λ_2 comme (Wetzel, et al., 2012):

$$\rho(\lambda_1, \lambda_2) = \frac{\langle I(\lambda_1) \times I(\lambda_2)\rangle - \langle I(\lambda_1)\rangle \times \langle I(\lambda_2)\rangle}{\sqrt{(\langle I^2(\lambda_1)\rangle - \langle I(\lambda_1)\rangle^2) \times (\langle I^2(\lambda_2)\rangle - \langle I(\lambda_2)\rangle^2)}}. \qquad \text{Eq.3.6}$$

La corrélation spectrale varie sur la plage $-1 < \rho < 1$, et peut être interprétée comme suit :

- Une corrélation positive correspond au fait que les intensités aux deux longueurs d'onde considérées augmentent et diminuent simultanément. Evidemment, on observe une corrélation

parfaite et positive $\rho = 1$ le long de la diagonale positive pour laquelle $\lambda_1=\lambda_2$. Un exemple de phénomène physique engendrant une corrélation positive entre deux bandes spectrales est l'instabilité de modulation qui crée des bandes latérales de part et d'autre d'une longueur d'onde de pompe en régime de dispersion anormale.

- Une corrélation négative correspond à une intensité à la longueur d'onde λ_1 qui augmente alors que celle à la longueur d'onde λ_2 diminue et vice-versa. Par exemple, lorsqu'un soliton se décale vers les hautes longueurs d'onde par effet Raman, une corrélation négative est observée entre les extrémités spectrales de l'impulsion puisqu'une augmentation de l'intensité de pompe provoque un décalage spectral plus important. Ceci diminue le contenu aux courtes longueurs d'onde et augmente le contenu aux grandes longueurs d'onde.

- Une corrélation nulle correspond à des fluctuations indépendantes, observées lors d'une perte totale de cohérence du phénomène.

La fonction de corrélation est symétrique le long de la diagonale $\rho(\lambda_1,\lambda_2)= \rho(\lambda_2,\lambda_1)$.

Par soucis de comparaison, une première mesure a été réalisée en retirant le cristal de YAG et le filtre supprimant la longueur d'onde de pompe pour réaliser un supercontinuum dans les quelques premiers mètres de la fibre SMF28. La carte de corrélation obtenue pour le supercontinuum fibré (cf. Fig. 46) concorde avec les travaux déjà existant (Ren, Xu, Qiu, Wong, & Tsia, 2014). Les résultats des mesures pour le supercontinuum massif sont visibles en Fig. 47, qui montre la carte de corrélation, ainsi que la superposition des 500 spectres mesurés. Le point sur lequel nous souhaitons mettre l'accent est la forte variabilité des spectres mesurés pour un supercontinuum fibré, caractérisée par des fluctuations particulièrement importantes aux longueurs d'onde autour de 1100 nm (13.8% RMS).

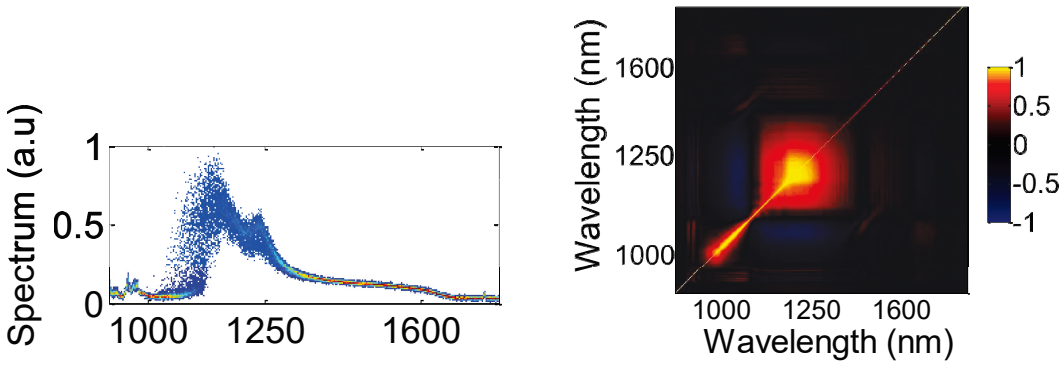


Fig. 46 : A gauche, une courbe de superposition de spectres de supercontinuum réalisés dans une fibre ; A droite la carte de corrélation spectrale du supercontinuum associé.

Pour la mesure du supercontinuum généré dans le cristal de YAG, un dichroïque est utilisé afin de supprimer la pompe à 1030 nm et de s'assurer de l'absence d'effets non linéaires dans la fibre hautement dispersive. Il est à noter que la transmission du filtre n'est pas plate sur la totalité de la plage spectrale étudiée,

mais que cela n'influence pas les propriétés statistiques du supercontinuum mesurées. La première différence qui frappe en comparant les deux générations de supercontinuum est la stabilité observée sur la courbe des spectres accumulés. La deuxième différence est que la corrélation est toujours élevée sur toute la plage spectrale et expose deux comportements différents : une alternance rapide de zones corrélées et de zones anti-corrélées pour les longueurs d'ondes proches de la pompe, et une large zone corrélée pour les longueurs d'onde après 1,4 µm. Un comportement similaire a déjà été observé dans le visible avec un supercontinuum dans du YAG à partir d'un laser Ti:Sa à 775 nm (Bradler & Riedle, 2014).

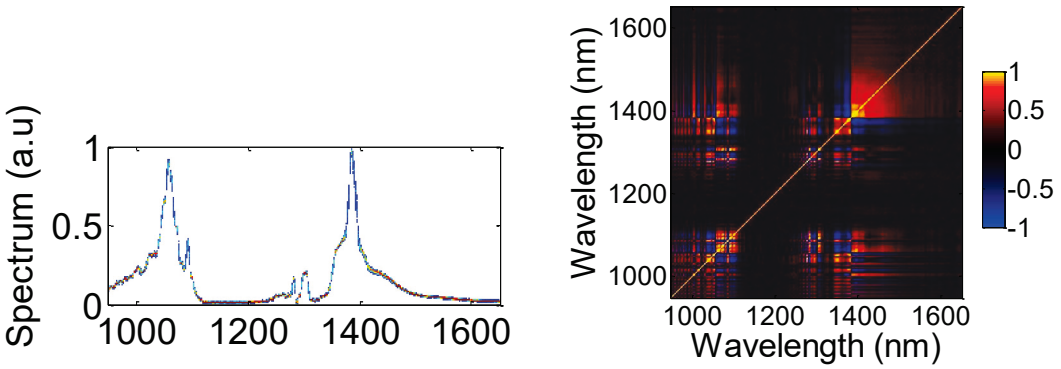


Fig. 47 : A gauche, une courbe de superposition de spectres de supercontinuum réalisé dans un matériau massif ; A droite la carte de corrélation spectrale du supercontinuum associé.

Le miroir dichroïque est ensuite remplacé par un filtre passe long à 1,4 µm afin de pouvoir observer au mieux la bande infrarouge avec un meilleur rapport signal à bruit et une meilleure fidélité sur les longueurs d'onde. La carte correspondante peut être vue en Fig. 48, et indique clairement que les fluctuations sont corrélées positivement, ce qui correspond à une forme spectrale stable. La diminution du coefficient de corrélation autour de 1700 nm est due à la diminution du rapport signal à bruit de la mesure dans cette zone. Le bruit relatif d'intensité à la longueur d'onde de 1550 nm est de 3,4%, valeur à comparer au bruit d'intensité de la pompe de 1,2% RMS. Cette valeur trois fois plus élevée indique que le mécanisme de génération à 1550 nm, du point de vue des fluctuations, est équivalent à un processus non linéaire à 3 photons dont l'intensité serait ainsi proportionnelle à l'intensité incidente au cube.

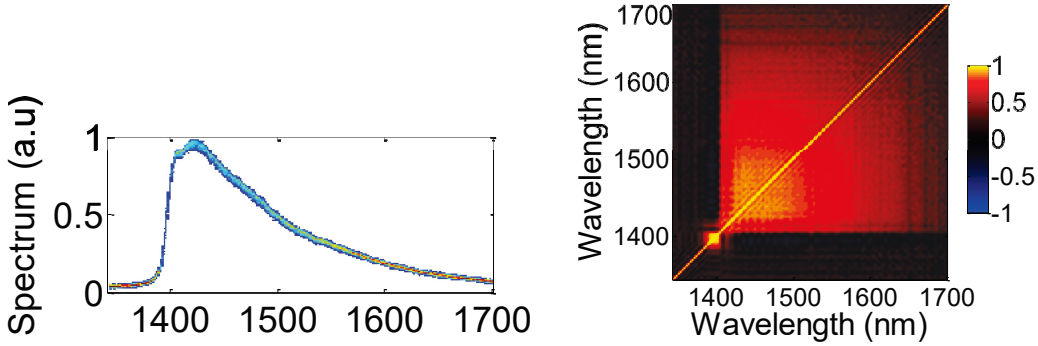


Fig. 48 : A gauche, une courbe de superposition de spectres de supercontinuum filtré réalisé dans un matériau massif ; A droite la carte de corrélation spectrale du supercontinuum associé.

3.2.3.2.4. Caractérisations spatiales du supercontinuum

Lors de l'observation d'un supercontinuum généré dans un matériau massif, le domaine visible du spectre présente une grande inhomogénéité spatiale puisqu'il est possible de distinguer les différentes couleurs du visible à l'œil sous la forme d'anneaux concentriques. L'existence d'une telle inhomogénéité serait très gênante pour les applications du supercontinuum en tant que source de signal d'un OPCPA. L'utilisation des deux voies spatiales dans l'expérience précédente permet de mesurer le spectre d'une même impulsion à deux endroits spatiaux différents et ainsi étudier la corrélation spatiale du faisceau définie comme :

$$\rho(x_1, x_2, \lambda) = \frac{\langle I(x_1,\lambda) \times I(x_2,\lambda)\rangle - \langle I(x_1,\lambda)\rangle \times \langle I(x_2,\lambda)\rangle}{\sqrt{(\langle I^2(x_1,\lambda)\rangle - \langle I(x_1,\lambda)\rangle^2) \times (\langle I^2(x_2,\lambda)\rangle - \langle I(x_2,\lambda)\rangle^2)}}. \qquad \text{Eq.3.7}$$

Cette valeur de corrélation est similaire à la corrélation spectrale définie ci-dessus : elle indique si deux zones distinctes du faisceau fluctuent ensemble ou pas.

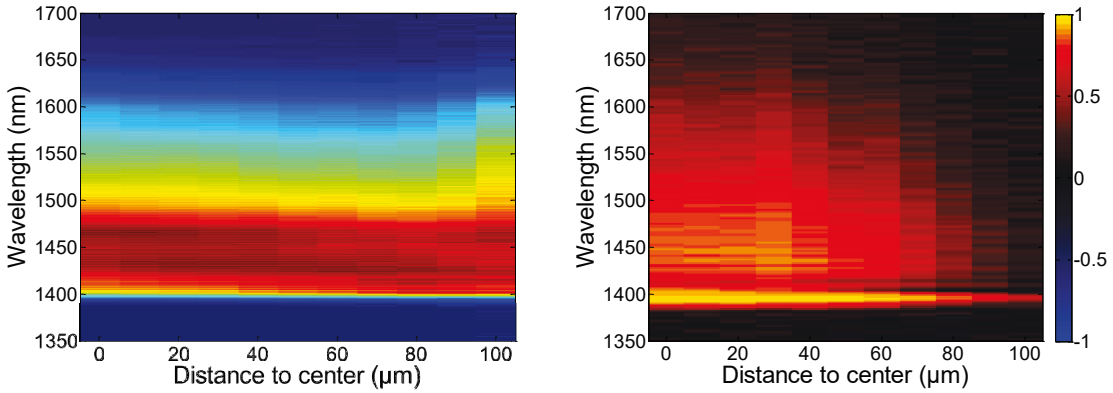


Fig. 49 : A gauche : Le spectre moyen du supercontinuum selon la coordonnée radiale dans le faisceau ; A droite : La corrélation spatiale entre le centre du faisceau et un point de coordonnée radiale donnée.

La carte de corrélation (cf. Fig. 49) montre un faisceau fortement corrélé positivement sur la totalité de sa plage spatiale et spectrale, la diminution du coefficient de corrélation étant ici lié à des problèmes de rapport signal à bruit : sur le bord du faisceau le bruit de détection n'est pas négligeable et entraine la baisse du coefficient de corrélation. Ceci indique que la forme du faisceau reste constante, seule son intensité globale change avec les fluctuations de l'intensité de pompe.

D'autre part, en mesurant simplement le contenu spectral en fonction de la position de la fibre optique collectrice dans le faisceau supercontinuum, on accède à l'homogénéité spectro-spatiale et à l'observation d'éventuels couplages, comme ceux observés dans le domaine visible du spectre à l'œil nu. Cette mesure est présentée en Fig. 49, et montre que la partie infra-rouge du spectre autour de 1550 nm présente une excellente homogénéité.

Les résultats présentés dans cette partie sur la caractérisation du supercontinuum ont donné lieu à une publication (van de Walle, et al., 2015).

3.2.3.2.5. Supercontinuum comme source de signal pour un OPA

En conclusion, nous avons vu qu'une des problématiques majeures des OPA est le problème de synchronisation entre le signal et la pompe. Le supercontinuum est un effet permettant de générer du spectre sur une large bande autour de la longueur de pompe, bande assez large pour couvrir le spectre du signal. Ceci permet donc une synchronisation « tout – optique » entre pompe et signal initial, qui peut ou non être dégradée par la propagation dans le système, en particulier les étages amplificateurs pour la pompe. Le faible rendement de la génération de supercontinuum n'est pas un problème grâce aux importants gains qu'offrent l'OPA et la différence d'énergie mise en jeu entre la pompe et le signal dans le 1er étage. Les études décrites dans ce chapitre confortent l'idée de l'utilisation du supercontinuum comme source de signal pour un OPA : Le supercontinuum femtoseconde dans un matériau massif est stable à la fois dans le long et le court terme, il présente une homogénéité spectrale sur toute son ouverture, ainsi qu'une corrélation spectrale élevée. Bien qu'une étude de la cohérence et de la compressibilité n'ait pas été réalisée dans ce travail, nous verrons au chapitre suivant que le contenu spectral du signal peut être comprimé proche de sa limite de Fourier. Le supercontinuum tirant ses qualités spatiales du faisceau le générant, son utilisation comme signal renvoie les problèmes de qualité du signal sur la qualité de la pompe, transfert qui avait déjà lieu de par l'utilisation de l'OPA. L'utilisation d'une pompe utilisant un amplificateur à fibre optique garantit cette qualité spatiale.

3.3. Conclusion

Ce chapitre a permis d'établir les bases de notre système. Il expose les raisons de notre choix de l'architecture à synchronisation post-amplification, lié à la gigue temporelle évitée et à la pompe utilisée. Il montre les caractéristiques avantageuses du supercontinuum comme source de signal stable, large bande et synchrone pour l'OPA. Ainsi le design final du système a pu être fixé (cf. Fig. 50):

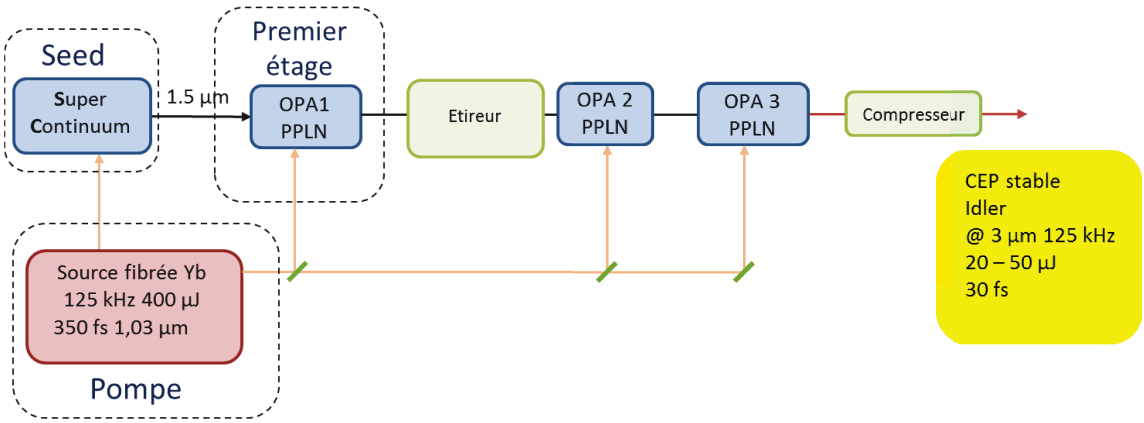


Fig. 50 : Schéma du système final.

Cette architecture se distingue nettement de celle utilisée jusqu'ici pour mettre au point les systèmes OPCPA haute cadence autour de 3 µm comme (Mayer, Phillips, Gallmann, & Keller, 2014) ou (Baudisch, et al., 2015). Elle est en effet basée sur une source de pompe qui n'est disponible que depuis très récemment, constituée par un amplificateur à fibre délivrant des impulsions énergétiques plus courtes que les systèmes

Nd:YVO4 ou Yb:YAG à haute cadence. Cette durée d'impulsion de pompe réduite permet plusieurs simplifications par rapport aux architectures citées ci-dessus :

- Comme nous l'avons vu lors de ce chapitre, la génération de supercontinuum est robuste et fiable à partir de l'impulsion amplifiée pour constituer le signal, ce qui affranchit totalement des problèmes de synchronisation temporelle. Ce signal est généré avec un spectre large et lisse, contrairement aux solutions utilisant un oscillateur à fibre erbium amplifié comme signal initial. L'énergie disponible est en revanche inférieure d'environ un ordre de grandeur (quelques centaines de pJ contre quelques nJ).

- Les seuils de dommage sont beaucoup plus élevés en termes d'intensité crête dans le cas d'impulsions fs que dans le cas d'impulsions ps puisque la fluence de dommage évolue comme la racine carrée de la durée d'impulsion. Ceci permet d'atteindre un gain plus élevé pour une longueur de cristal plus faible.

- La bande spectrale d'amplification est donc également plus importante puisqu'on peut utiliser des cristaux de longueur plus faible.

- Enfin, la durée de la pompe étant de quelques centaines de femtoseconde pour une durée signal de quelques dizaines de femtoseconde, le facteur d'étirement est d'environ 5, ce qui permet d'utiliser de courtes longueurs de matériau massif pour réaliser le couple étireur / compresseur. Ceci réduit considérablement l'impact potentiellement néfaste des dispersions d'ordre 3 et supérieures accumulées lors de l'utilisation de différents matériaux à différentes longueurs d'onde.

Ces avantages sont à équilibrer avec un inconvénient majeur de notre système, qui est la limite en énergie liée à la technologie de pompe basée sur les fibres optiques. Il est difficile d'envisager une source de pompe délivrant une énergie de l'ordre de 10 mJ, à moins d'un recours important à la combinaison cohérente de plusieurs amplificateurs. D'autres solutions hybrides impliquant une source à fibre et un amplificateur massif à gain réduit sont à l'étude, mais ces travaux sortent du cadre de ce travail de thèse. D'autre part, les étages d'amplification paramétrique doivent accommoder cette augmentation d'énergie. Cela nécessite une augmentation de la taille des cristaux, soit en poussant la technologie de fabrication du PPLN, soit en utilisant d'autres matériaux comme le KTA. Le chapitre suivant aborde le cœur du travail effectué, la réalisation et la caractérisation de la source paramétrique ultracourte à 3 μm.

Chapitre IV

Mise en œuvre expérimentale de la source MIR OPCPA

Aperçu du chapitre

4. Mise en œuvre expérimentale de la source MIR OPCPA 78
4.1. Simulations 78
4.1.1. Formalisme des simulations 78
4.1.2. Simulation du 1er étage 80
4.1.3. Simulation du 2ème étage 81
4.1.4. Simulation du 3ème étage et compression 82
4.2. Mise en œuvre expérimentale de la source 84
4.2.1. Laser de pompe 84
4.2.2. 1er étage : filtrage spectral du supercontinuum et mise en forme de l'impulsion signal 85
4.2.3. 2ème étage : Montée en énergie 88
4.2.4. 3ème étage : Extraction de l'énergie 90
4.2.5. Compression du signal et de l'idler 93
4.3. Conclusion 95

4. Mise en œuvre expérimentale de la source MIR OPCPA

Dans ce chapitre, nous allons détailler l'intégralité du système OPCPA mis en place, basé sur l'architecture définie dans le chapitre précédent. Il se composera d'une pompe, d'une étape de génération de supercontinuum, de trois étages d'OPA colinéaires et d'un système d'étirement/compression basé sur des matériaux massifs. En premier lieu, sera présentée la méthode de simulation utilisée pour le dimensionnement des étages d'amplification, puis chaque étage sera décrit dans son implémentation, ses performances et sur sa différence par rapport aux simulations, ainsi que sur les raisons de ces différences. Nous conclurons ce chapitre par la comparaison du système final par rapport à l'objectif fixé dans le cadre du projet FUI STAR et sur l'apport de ce travail par rapport à l'état de l'art.

4.1. Simulations

La structure du système est fixée par le chapitre précédent. Il reste cependant à le dimensionner, en vérifiant notamment le nombre d'étages d'amplification nécessaires, les tailles de faisceaux et la répartition de l'énergie sur les différents étages pour obtenir les gains et extractions souhaités. L'observation des déformations spatiales et spectrales / temporelles dues à l'amplification, et les configurations pour les minimiser, sont également à réaliser. Pour cela, des simulations numériques ont été développées afin de déterminer un ensemble de paramètres pouvant servir de base à la réalisation expérimentale.

4.1.1. Formalisme des simulations

Les simulations du phénomène d'OPA en régime ultra-rapide se basent pour la plupart sur une méthode de split-step. Cette technique consiste à séparer les phénomènes de propagation en deux catégories : les phénomènes linéaires tels que la dispersion, dont les effets sont pris en compte dans le domaine de Fourier, et les effets non linéaires, implémentés dans le domaine temporel. Cette technique permet de résoudre efficacement les équations de propagation en utilisant la fonction de transformée de Fourier rapide disponible dans la plupart des logiciels de calcul numérique. Toutes les simulations présentées ici ont été réalisées avec le logiciel Matlab.

Le plus souvent, les simulations du phénomène d'amplification paramétrique se font en utilisant trois équations d'ondes distinctes et couplées correspondant aux ondes pompe, signal et idler. Chaque onde étant gérée séparément, cela nécessite l'ajout de nouvelles équations pour chaque phénomène que l'on souhaite rajouter. Par exemple, dans notre système, nous observons expérimentalement la génération parasite de second harmonique de la pompe (faisceau vert) et de somme de fréquences entre la pompe et le signal (faisceau rouge). Pour prendre en compte ces deux phénomènes avec des équations d'onde multiples et couplées, il faudrait ajouter deux autres équations décrivant la propagation de ces deux ondes. La méthode de modélisation choisie pour cette thèse est différente. Elle est adaptée de la méthode (2+1) D décrite par (Lang, et al., 2012), développée dans le cadre d'OPA ultrarapide à 800 nm dans le BBO, et qui utilise uniquement deux équations différentielles décrivant l'interaction entre les champs d'états de polarisation ordinaire et extraordinaire. Chaque équation décrit la propagation du champ à toutes les fréquences optiques d'intérêt et prend en compte les effets de la dispersion, de la diffraction dans le plan non colinéaire, et du

walk-off. Elle présente l'avantage de prendre en compte toutes les interactions d'ordre 2, en particulier tous les accords de phase parasites, y compris en géométrie non colinéaire, avec un minimum d'équations et aucune présupposition sur l'importance relative des différents effets. Cette méthode a été adaptée pour notre cas d'OPA colinéaire avec des faisceaux à symétrie radiale et de même polarisation linéaire, et en négligeant la diffraction. Cette dernière hypothèse est largement justifiée en pratique, puisque nous verrons que les diamètres des faisceaux dans les cristaux non linéaires sont toujours supérieurs à 200 µm, ce qui correspond aux longueurs d'onde considérées, à une longueur de Rayleigh bien supérieure à la longueur maximale des cristaux utilisés de 1 mm. On obtient alors un unique champ qui englobe toutes les longueurs d'ondes et les temps, une équation de propagation prenant en compte la dispersion et une équation décrivant l'évolution du champ due aux effets de 2ème ordre :

$$\partial_z E_e(f_t) = E_e(f_t) exp\left(i\sqrt{|k(f_t, n_e)|^2}\right). \quad \text{Eq.4.1}$$

$$\partial_z E_e(t) \frac{n_e c}{\pi f_t d_{eff}} = -i(2E_e E_e^* + E_e E_e + (E_e E_e)^*), \quad \text{Eq.4.2}$$

où n_e est l'indice extraordinaire, c la vitesse de la lumière, f_t la fréquence optique. L'inversion des domaines dans le PPLN est simulée directement en changeant le signe de la non-linéarité dans l'équation de propagation en fonction de z, une non-homogénéité peut donc facilement être incluse. Les dispersions, les accords de phase, recherchés ou parasite, les écarts de vitesse de groupe, sont naturellement introduits sur tout le domaine spectral en utilisant les équations de Sellmeier pour les matériaux utilisés, sans hypothèse sur l'importance relative des divers effets. A chaque étage, les divers paramètres importants pour le phénomène d'amplification sont ajustés afin d'obtenir un résultat conforme à nos attentes en termes de gain, efficacité d'extraction, bande spectrale, compressibilité des impulsions finales. Ces paramètres incluent les tailles des faisceaux de pompe et de signal, l'énergie des impulsions de pompe utilisées, ainsi que le décalage temporel initial entre pompe et signal. Ce dernier paramètre permet d'optimiser le recouvrement temporel dans les cristaux dont la longueur peut varier, modifiant ainsi le décalage temporel introduit par GVM.

Bien que dans les simulations les champs temporels soient calculés pour des intensités initiales correspondant à chaque point spatial des faisceaux en entrée afin d'évaluer rigoureusement l'efficacité, et d'éventuelles distorsions spatiales dues à la déplétion de la pompe, seuls les champs en milieu de faisceaux sont passés d'un étage au suivant. La simulation n'est donc pas strictement spatio-temporelle. On pourra donc observer la déplétion au centre du faisceau, et/ou la génération d'un faisceau amplifié top-hat dû à la saturation des étages, mais ce profil ne sera pas pris en compte pour l'étage suivant. Cette limitation est raisonnable dans notre cas puisque la majorité des effets de déformation spatiale ont lieu dans le dernier étage, là où l'extraction d'énergie est significative.

Il est important de noter que ces simulations ont été réalisées afin de dégrossir l'espace des paramètres de design de cette source, bien avant que la source finale de pompe soit disponible. On observera donc des divergences notables entre les valeurs utilisées dans ces simulations et les valeurs finales décrites ci-après

dans la partie expérimentale, résultat d'une optimisation basée sur les mesures réelles à chaque étage. Néanmoins, nous verrons que mis à part un phénomène apparaissant au dernier étage à forte puissance moyenne / crête, ces simulations nous ont permis de définir un point de départ valable pour l'architecture.

4.1.2. Simulation du 1er étage

Une des difficultés majeure de cette simulation concerne l'incertitude quant à la représentation fidèle de la condition initiale, obtenue expérimentalement par génération de supercontinuum. Nous ferons l'hypothèse très simple que ce signal est représenté de façon fidèle par une impulsion gaussienne de 20 fs totalement cohérente centrée à 1550 nm, couvrant ainsi la région spectrale allant de 1400 nm à 1700 nm, portant une énergie de 1 nJ. Cela correspond grossièrement aux observations expérimentales faites au chapitre précédent. Ce spectre étant généré dans un cristal de YAG de 1 cm de long, nous ajoutons la dispersion correspondante. Enfin, ce signal initial est étiré à une durée de 450 fs, durée comparable à celle des impulsions de pompe, par l'ajout d'une lame de silicium de 2 mm de long, qui constituera le seul étireur du système.

La durée des impulsions de pompe est fixée à 500 fs, avec un profil gaussien. La période des PPLN est fixée à 29,62 µm, et on considère un coefficient non linéaire associé de 25 pm/V. Ces paramètres restent les mêmes pour les étages suivants. On notera également que les tailles de focalisation sont exprimées en rayon à $1/e^2$.

Les paramètres choisis pour ce premier étage sont les suivants. Le signal est focalisé sur 100 µm. L'énergie de pompe choisie est de 7 µJ. Ces impulsions de pompe sont focalisées sur 200 µm, permettant d'atteindre une intensité de 30 GW/cm² dans le PPLN de 0,5 mm de long (seuil de dommage estimé à 50 GW/cm²). Il en résulte en sortie un signal de 56 nJ avec une bande spectrale de 100 nm, sélectionnée dans le spectre initial très large par la largeur de bande de l'accord de phase dans le PPLN (cf. Fig. 51).

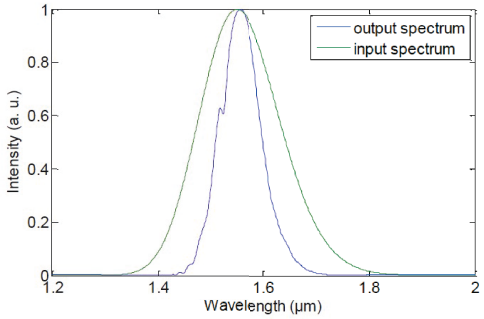


Fig. 51 : Spectre en entrée et en sortie du 1er étage.

On s'arrête bien avant la saturation (cf. Fig. 52) puisque les qualités spatiale et temporelle sont les points importants de cet étage, cela entraine une valeur de gain proche du gain petit signal et une faible extraction énergétique. Le signal est focalisé plus petit que la pompe afin de profiter d'un gain homogène sur l'intégralité du faisceau.

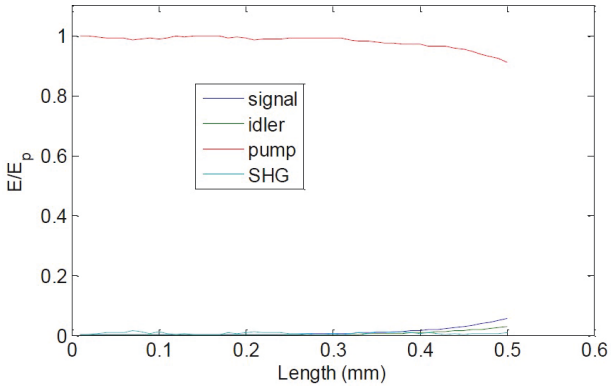


Fig. 52 : Evolution de l'énergie de la pompe, du signal et de l'idler au cours de la propagation dans l'OPA 1normalisée par rapport à l'énergie de pompe initialement mise en jeu.

4.1.3. Simulation du 2ème étage

Pour la condition initiale du deuxième étage, nous reprenons le champ temporel obtenu pour le signal en milieu de faisceau en sortie du premier étage, avec une énergie de 25 nJ, soit un peu moins de la moitié de l'énergie de sortie à l'étage précédent. Cette différence correspond à la prise en compte de pertes introduites par les divers composants optiques (lentilles, miroirs, dichroïques), surestimées afin d'avoir une marge de sécurité. Ce signal est focalisé sur 400 µm dans un PPLN de 0,75 mm de long. La pompe investie dans ce deuxième étage est de 40 µJ, ce qui représente une partie non négligeable de l'énergie totale disponible, avec une focalisation de 500 µm. Il en résulte en sortie un signal portant une énergie de 5,2 µJ avec une bande de 120 nm. Dans cet étage on atteint la saturation, mais on la limite uniquement au centre du faisceau à la fois temporellement et spatialement (cf. Fig. 53) : on cherche à mieux extraire l'énergie que dans l'étage précédent, sans introduire de déformation nuisible dans le faisceau. Ici le signal devient légèrement top-hat spatialement.

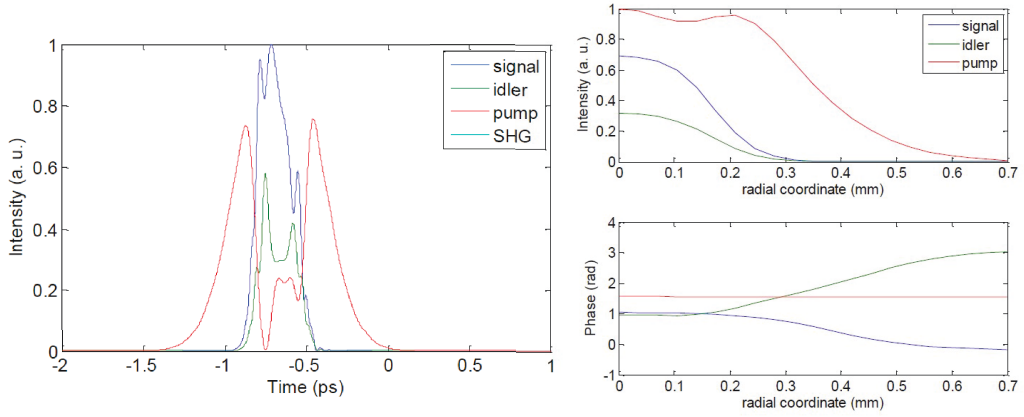


Fig. 53 : Résultat en sortie d'OPA 2 : Profils temporels au centre des faisceaux à gauche. Profils spatiaux en intensité et en phase des faisceaux à droite.

On observe clairement sur la Fig. 53 le phénomène principal limitant l'efficacité du transfert d'énergie entre la pompe et le signal / l'idler dans cet étage : étant donné que les profils spatiaux et temporels sont grossièrement gaussiens, si le phénomène est efficace au centre de l'impulsion / du faisceau, il l'est rapidement moins à mesure que l'on se décale temporellement dans l'impulsions ou spatialement dans le

profil de faisceau. Etant donné les tailles de faisceaux et les largeurs d'impulsions considérées, cela limite l'efficacité du transfert d'énergie vers le signal à 13% (cf. Fig. 54).

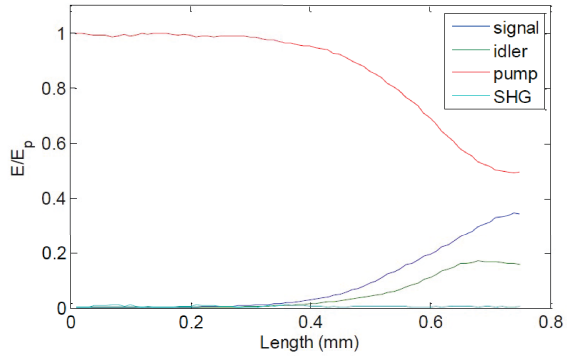


Fig. 54 : Evolution de l'énergie de la pompe, du signal et de l'idler au cours de la propagation dans l'OPA 2 normalisée par rapport à l'énergie de pompe initialement mise en jeu.

On observe aussi un décalage de la longueur d'onde centrale du signal vers les basses longueurs d'onde (cf. Fig. 55). Cela est le résultat du décalage temporel initial entre la pompe et le signal utilisé pour compenser la GVM et maximiser l'efficacité du processus d'OPA.

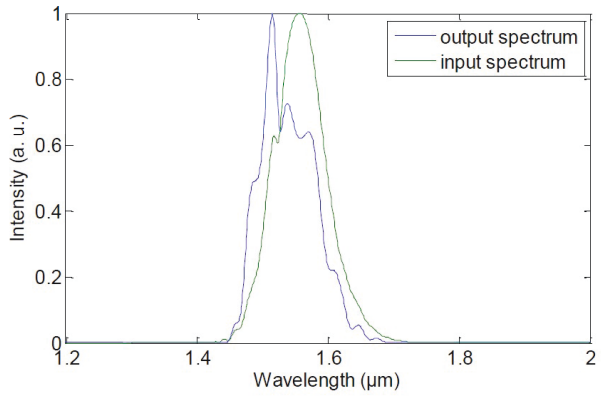


Fig. 55 : Comparaison entre le spectre du signal en entrée et en sortie du 2ème étage d'OPA.

4.1.4. Simulation du 3ème étage et compression

Les paramètres choisis pour cet étage sont les suivants. Le signal est reporté du champ temporel obtenu en sortie d'étage 2, avec une énergie ajustée à 1 µJ, là encore pour prendre en compte les pertes d'un système réel et s'autoriser une certaine marge d'erreur. L'énergie de la pompe pour ce troisième étage est de 250 µJ, ce qui correspond à une énergie totale de pompe de 300 µJ. Cette valeur correspondait à l'énergie minimale du laser de pompe commandé pour le projet au moment où les simulations ont été réalisées. Les tailles de faisceaux dans le PPLN sont respectivement de 1500 µm et 1300 µm pour le signal et la pompe, dans un PPLN de longueur 0,75 mm. Ces tailles de faisceaux correspondent à une intensité de pompe de 24,5 GW/cm², et sont clairement à la limite de ce qui est réalisable avec des cristaux de 3 mm d'ouverture. Il en résulte en sortie un signal de 48 µJ et un idler de 25 µJ. Ici la saturation est poussée jusqu'à l'apparition de

back-conversion au centre du faisceau, clairement observable aussi bien dans le domaine temporel (cf. Fig. 56) que dans le domaine spatial.

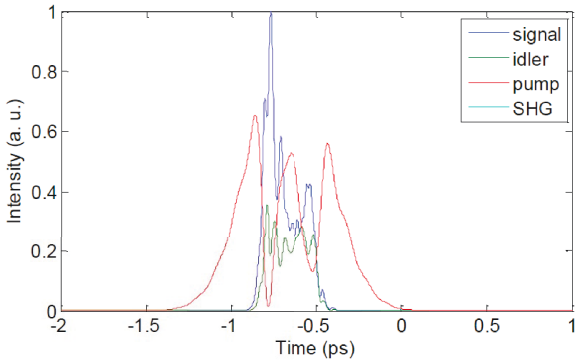


Fig. 56 : Profil temporel en sortie d'OPA 3.

Cette saturation entraine un profil spatial plat pour le signal et l'idler (cf. Fig. 57). L'extraction maximale est atteinte après ce point de back-conversion puisque pendant que l'on rend de l'énergie à la pompe au centre du faisceau et de l'impulsion, on continue d'en extraire plus sur la périphérie. Ces paramètres permettent d'atteindre un transfert d'énergie de la pompe de 18.9% vers le signal et 10.1% vers l'idler, soit une extraction totale de 29 %.

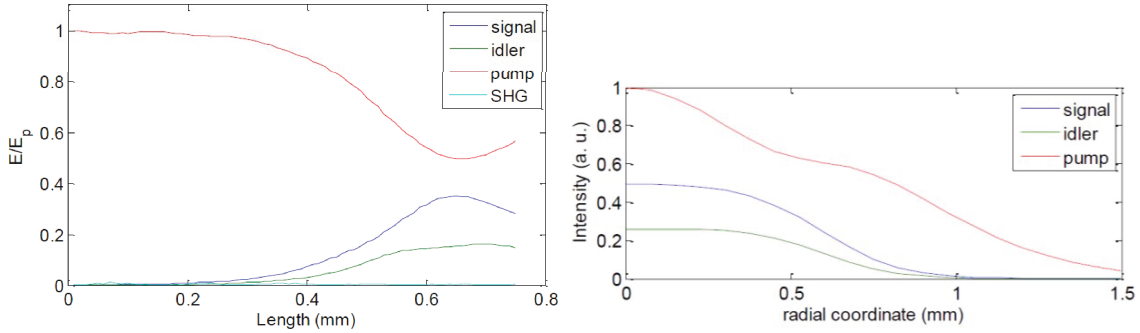


Fig. 57 : Evolution de l'énergie de pompe, de signal et d'idler durant l'OPA 3 à gauche. Profil spatiaux des faisceaux en fin d'étage à droite.

D'un point de vue spectral, le signal est encore une fois légèrement décalé vers les longueurs d'onde basse et l'idler se retrouve centré à 3,2 µm (cf. Fig. 58) avec l'intégralité de son spectre dans la bande 2,7 µm – 3,7 µm qui représente la fenêtre optimale afin d'éviter les raies d'absorption atmosphérique.

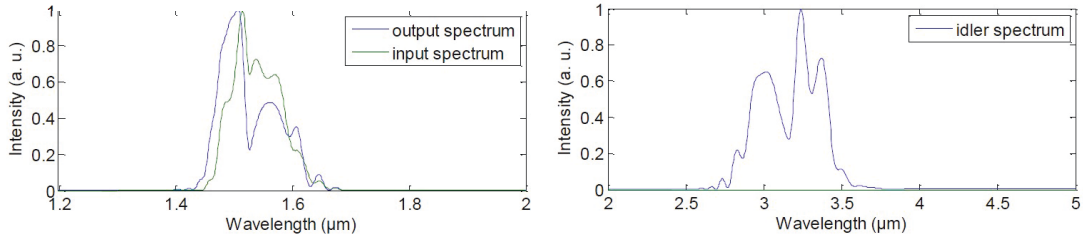


Fig. 58 : Comparaison du spectre du signal en entrée et en sortie du l'OPA 3 à gauche. Spectre de l'idler en sortie de l'OPA 3 à droite.

La compression de l'idler à l'aide d'une lame de silicium est également simulée. Après prise en compte de la dispersion accumulée le long de la chaine, telle que le YAG pour le supercontinuum, l'étireur en silicium, les substrats des dichroïques, les PPLN et la phase OPA, la simulation délivre une impulsion comprimé à 40 fs avec 5,3 mm de silicium (cf. Fig. 59). Cela permet d'obtenir une puissance crête de 480 MW en considérant 90% de transmission dans le compresseur. Ces valeurs obtenues par simulations sont à prendre avec précautions : de nombreux éléments ne sont pas pris en compte car ils sont mal connus, par exemple la dispersion introduite par les traitements des dichroïques, ou les propriétés exactes de la condition initiale en terme de phase spectrale.

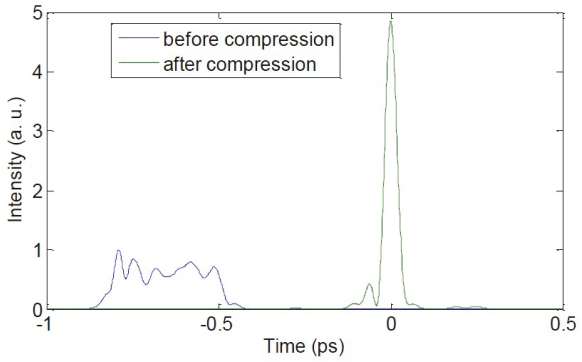


Fig. 59 : Simulation de la compression de l'idler en fin de chaine.

4.2. Mise en œuvre expérimentale de la source

La simulation a permis de dimensionner l'état initial du système à développer. L'implémentation finale et les résultats cependant diffèrent avec ces simulations. La raison principale est un problème de déformation de faisceau rencontré dans le 3ème étage et sera développé dans la partie correspondante. On peut aussi noter des différences avec les conditions initiales, notamment parce que les spécifications du laser de pompe livré diffèrent légèrement de l'hypothèse faite pour les simulations. Nous décrivons donc maintenant le système final réalisé, en commençant par le laser de pompe, puis en détaillant les 3 étages d'amplification réalisés. Enfin, nous nous attachons à caractériser le plus complètement possible les faisceaux délivrés par la source en sortie aux deux longueurs d'onde signal et idler.

4.2.1. Laser de pompe

Comme exposé dans le chapitre précédent, un système OPCPA est en grande partie déterminé par sa source de pompe qui détermine la région de cadence/énergie du système et les techniques disponibles pour sa réalisation, notamment sur la génération de la source de signal. Notre pompe est un Tangerine (Amplitudes systèmes), laser à fibre dopée Ytterbium utilisant la technologie de combinaison cohérente temporelle dénommée Divided-Pulse Amplification (DPA) (Zaouter, et al., 2013). Il délivre des impulsions de 400 µJ, 400 fs à la longueur d'onde de 1030 nm et pour une cadence de 125 kHz. Ces caractéristiques présentent des impulsions plus courtes et plus énergétiques que dans les simulations. La Fig. 60 montre le spectre et l'autocorrélation mesurés en sortie du laser. Il apparait que les impulsions présentent un piédestal dans le

domaine temporel qui va réduire l'intensité crête estimée à partir de la durée à mi-hauteur et de l'énergie par impulsion. Néanmoins les performances du système utilisé sont uniques pour un laser à fibre femtoseconde industriel. Une autre caractéristique intéressante de ce système laser est la présence d'un modulateur acousto-optique en sortie, ce qui permet de modifier le taux de répétition des impulsions émises sans modifier leurs caractéristiques (énergie, durée, profil spatial etc..).

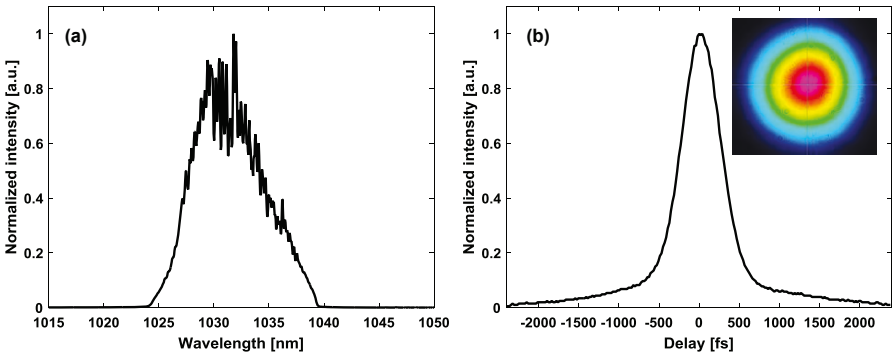


Fig. 60 : Caractéristiques de la source de pompe. A gauche le spectre. A droite l'autocorrélation avec le profil spatial en inclusion.

Dans la suite de ce chapitre les différents étages vont être décrits dans leurs implémentations et dans leurs performances. Une comparaison sera faite avec les simulations, accompagnée d'une explication sur les modifications réalisées et leurs conséquences sur les performances des étages.

4.2.2.1er étage : filtrage spectral du supercontinuum et mise en forme de l'impulsion signal

Le premier étage amplifie directement le spectre provenant de l'étape de génération de SC, dont le schéma est inchangé par rapport à celui décrit dans le chapitre précèdent. Cet étage sélectionne ainsi la longueur d'onde centrale, la largeur spectrale et la durée du signal. Cet étage se concentre donc sur l'obtention d'un signal avec une bande spectrale suffisamment importante pour obtenir des impulsions courtes malgré le rétrécissement par le gain qui sera subi dans les étages suivants. On visera également à conserver un profil spatial et temporel avec le moins de défauts possibles. On évitera donc la saturation qui déformerait le faisceau temporellement et spatialement, ce qui entrainerait une faible extraction dans cet étage. On cherchera néanmoins à avoir un grand gain pour délivrer un faisceau suffisamment énergétique au deuxième étage.

Deux schémas résumant l'étage sont visibles en Fig. 61 pour l'implémentation, et en Fig. 62 pour les performances. Cet étage utilisant un PPLN de 1 mm de long permet de passer d'une énergie par impulsion estimée à environ 1 nJ dans la bande spectrale "utile" du supercontinuum à une valeur de 100 nJ par impulsion dans la bande spectrale désirée, soit un gain de 100. Les impulsions obtenues sont centrées à 1530 nm avec une bande de 113 nm à mi-hauteur, ce qui permettrait de supporter des impulsions de 31 fs en limite de Fourier. L'autocorrélation du signal en sortie montre une durée à mi-hauteur de 66 fs, soit une durée d'impulsion d'environ 50 fs. On voit donc que notre hypothèse de parfaite cohérence spectrale est

vérifiée, puisque la durée mesurée est compatible avec le léger étirement provoqué par la propagation dans le YAG, les lentilles, le substrat du miroir dichroïque, ainsi que le cristal de PPLN. Les étages suivants risquant de réduire la bande spectrale, on commence avec cette bande spectrale un peu supérieure à celle nécessaire pour la durée visée en sortie de système. Le signal à la longueur d'onde de 1550 nm avec une bande de 113 nm correspond selon l'équation 4.3 à un idler de longueur d'onde centrale 3070 nm avec une bande de 435 nm.

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \;\rightarrow\; \Delta\lambda_i = \frac{\lambda_i^2}{\lambda_s^2}\Delta\lambda_s \qquad \text{Eq.4.3}$$

Cela permet d'avoir l'intégralité du spectre entre 2,7 μm et 3,7 μm, bande spectrale optimale au vu de l'absorption atmosphérique. La pompe investie dans cet étage est de 10 μJ, l'extraction de cet étage est donc très faible (~1%) ce qui s'explique notamment par un signal d'entrée extrêmement faible. Cela n'est cependant pas un problème puisque l'extraction n'est pas recherchée pour ce premier étage où l'on privilégie la mise en forme spectrale de l'impulsion. Afin que l'efficacité globale du système soit essentiellement dictée par l'extraction du dernier étage, on minimise l'usage de l'énergie dans les étages précédents. Cela passe par une focalisation relativement importante, avec un diamètre de 180 μm à $1/e^2$ pour le signal et de 230 μm à $1/e^2$ pour la pompe, afin d'obtenir les puissances crêtes surfaciques nécessaire au fort gain dans le PPLN sans un investissement massif d'énergie de pompe. Le diamètre de focalisation du signal est légèrement plus petit que celui de la pompe dans un souci de garder un profil spatial de l'impulsion le plus exempt de défaut. La qualité spatiale de l'impulsion en début de chaine est garantie pour sa provenance d'un faisceau de bonne qualité et un nettoyage par le phénomène de filamentation liée à la génération de SC. Cette qualité spatiale de l'impulsion initiale est primordiale pour maintenir des faisceaux exploitables en fin de chaine d'amplification, et permettre les applications nécessitant des focalisations importantes où les défauts de profil spatiaux entraineraient des complications.

Depuis la réalisation des simulations, le seuil de dommage réel s'est révélé plus élevé qu'attendu, permettant une augmentation de la puissance crête par une focalisation plus forte et un investissement en énergie de pompe plus important. Le cristal est plus long et le recouvrement spatial entre le signal et la pompe a été également augmentée d'un facteur 2. Cela permet au final d'obtenir un gain supérieur aux simulations, malgré le décalage de l'étirement après le 1er étage ce qui réduit fortement le recouvrement temporel.

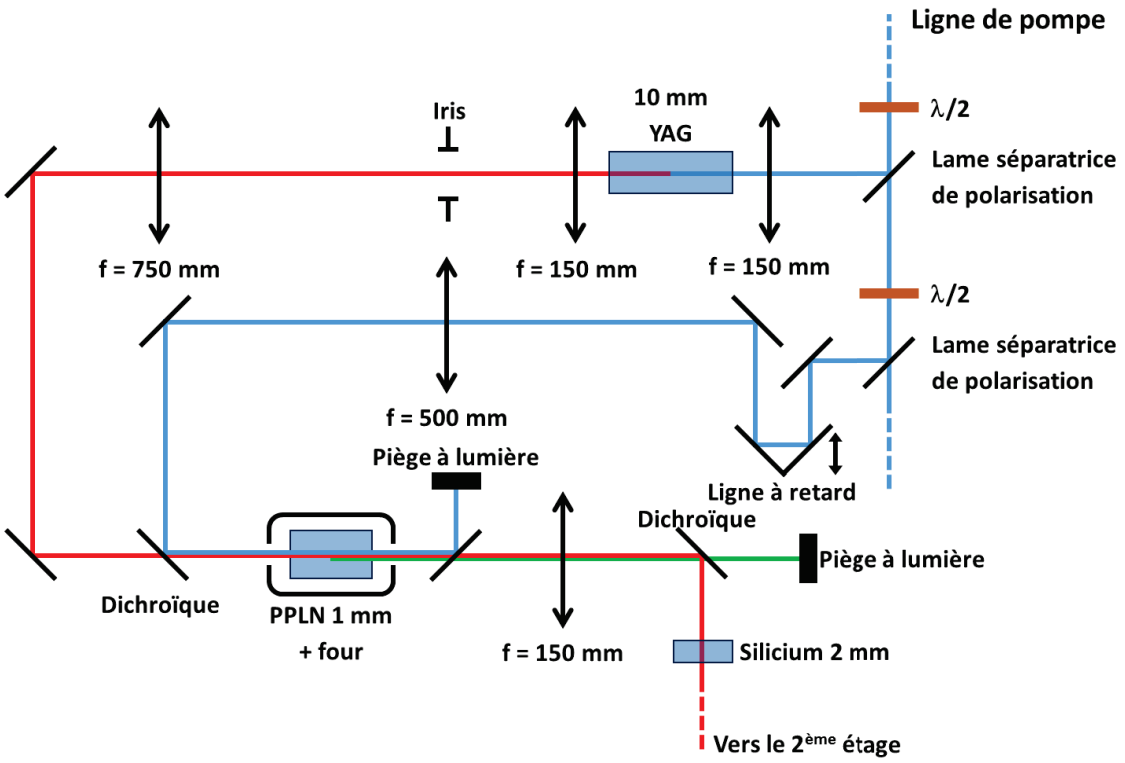
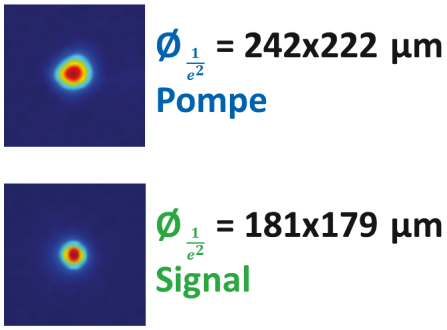


Fig. 61 : Récapitulatif de l'implémentation du 1er étage.



$Ø_{\frac{1}{e^2}}$ = 242x222 µm
Pompe

$Ø_{\frac{1}{e^2}}$ = 181x179 µm
Signal

	Pompe	Signal en entrée	Signal en sortie
Diamètre de focalisation (µm)	242x222	181x179	X
Energie	10 µJ	1 nJ	125 nJ
Durée	350 fs	X	66 fs
Largeur Spectrale (nm)	6	X	113
Longueur d'onde centrale (nm)	1030	X	1550
PPLN	Δ = 30,16 µm	L = 1 mm	T = 150°C

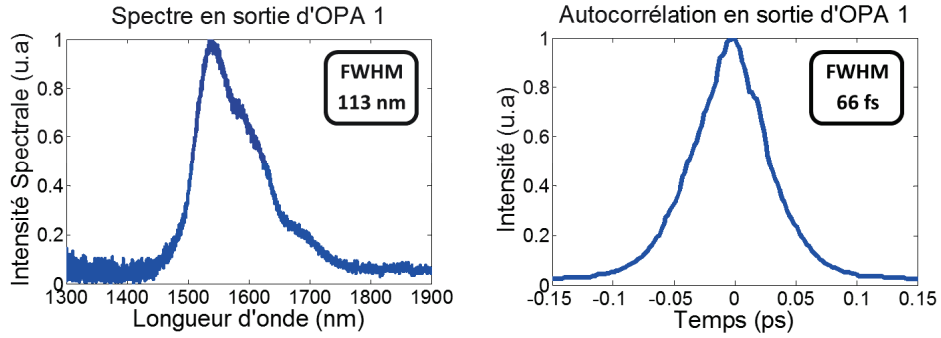


Fig. 62 : Récapitulatif des performances du 1er étage.

Entre le 1er et le 2ème étage, l'étirement temporel du signal est réalisé. A l'aide d'une lame de silicium traitée antireflet autour de 1,55 µm d'une épaisseur de 2 mm, on étire les impulsions de signal qui passent d'une durée de 66 fs à 287 fs (cf. Fig. 63) afin d'améliorer le recouvrement temporel entre la pompe et le signal, ce qui maximisera l'extraction. La dispersion du silicium à cette longueur d'onde est positive, et pourra donc être compensée en fin de chaine amplificatrice par une épaisseur de silice, dont la dispersion est négative à 1,55 µm.

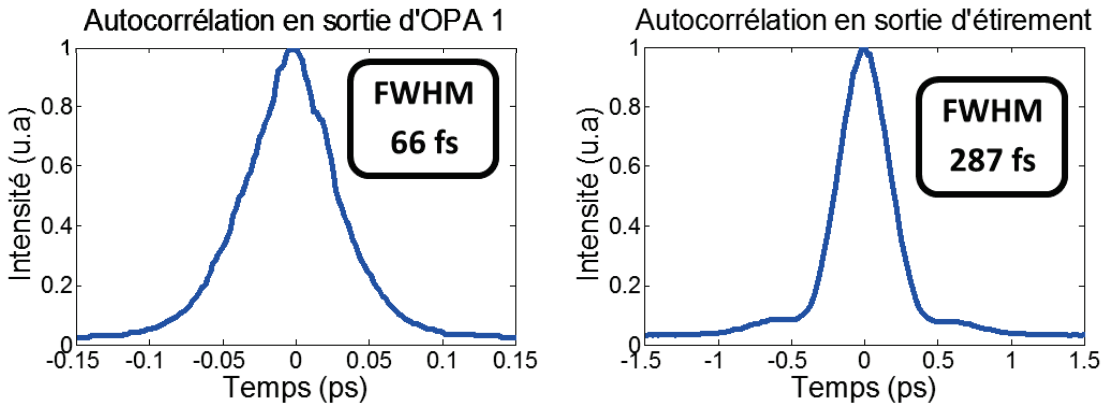


Fig. 63 : Traces d'autocorrélation des impulsions signal en sortie du 1er étage, avant puis après le passage dans la lame de silicium.

4.2.3. 2ème étage : Montée en énergie

Le deuxième étage est un étage intermédiaire, on cherche à conserver un faisceau de bonne qualité comme au premier étage mais cette fois-ci, on cherche également à obtenir des niveaux d'énergie plus importants en préparation pour le dernier étage où le gain sera faible. On limite alors la saturation de l'étage d'OPA aux portions centrales du faisceau à la fois spectralement et spatialement.

Deux schémas résumant l'étage sont visibles en Fig. 64 pour l'implémentation, et en Fig. 65 pour les performances. Cet étage utilisant un PPLN de 0,75 mm de long permet de monter l'énergie par impulsion à 3,2 µJ, soit un gain d'environ 30, plus faible que l'étage précédent puisque l'on échange ici du gain contre de l'extraction par rapport au 1er étage sans chercher à maximiser l'extraction comme cela sera fait dans le 3ème étage. Les impulsions voient leur spectre légèrement décalé vers 1560 nm lors du processus d'optimisation. La bande spectrale atteint pour sa part 131 nm à mi-hauteur. Le changement de période par rapport à l'étage précédent permet cet élargissement spectral en décalant la bande de gain vers les grandes longueurs d'onde par rapport au spectre injecté. La pompe investie dans cet étage est de 60 µJ, ce qui représente une part non négligeable de l'énergie disponible. La focalisation des faisceaux est la même pour le signal et la pompe, soit de 1000 µm à $1/e^2$. En effet l'utilisation de plus de pompe nécessite l'augmentation du diamètre de focalisation pour respecter les seuils de dommage dans le PPLN. D'autre part, dans cet étage où une extraction d'énergie plus importante est visée, on ajuste les diamètres de faisceaux de pompe et de signal à la même valeur.

Par rapport aux simulations, le signal injecté est plus fort. Les tailles des faisceaux ont aussi été augmentées dans le but d'améliorer l'extraction. Cet étage a globalement évolué en réponse à des problèmes rencontrés dans le 3ème étage, qui seront développés ultérieurement, le poussant vers une utilisation plus importante de l'énergie de la pompe. On trouve donc naturellement un gain moindre que dans les simulations. L'énergie en sortie est également plus faible, mais reste dans les marges de sécurité prévues lors des simulations (injection de 1µJ dans le 3ème étage dans les simulations). On retrouve une augmentation de la bande spectrale accompagnée d'un décalage de la longueur d'onde centrale. Cependant, contrairement à la simulation, ce décalage a lieu vers les hautes longueurs d'onde et provient de l'optimisation des périodes et températures des PPLN qui décalent la bande de gain.

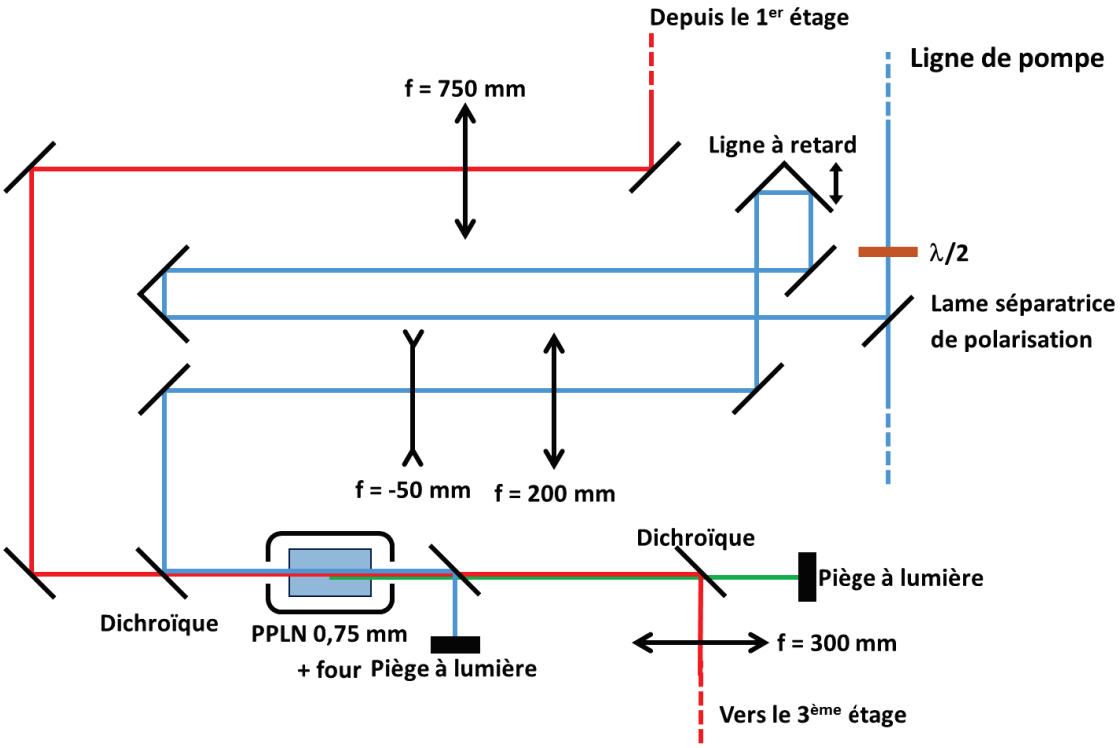
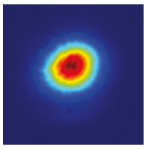
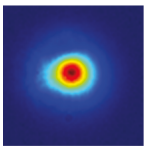


Fig. 64 : Récapitulatif de l'implémentation du 2ème étage.



$\emptyset_{\frac{1}{e^2}}$ = 1050x970 µm
Pompe



$\emptyset_{\frac{1}{e^2}}$ = 1130x930 µm
Signal

	Pompe	Signal en entrée	Signal en sortie
Diamètre de focalisation (µm)	1050x970	1130x930	X
Energie	85 µJ	125 nJ	3,2 µJ
Durée	350 fs	287 fs	292 fs
Largeur Spectrale (nm)	6	113	131
Longueur d'onde centrale (nm)	1030	1550	1580
PPLN	Δ = 29,62 µm	L = 0,75 mm	T = 150°C

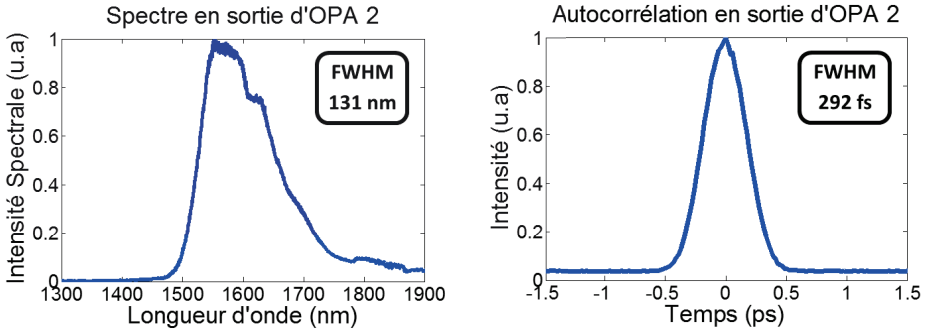


Fig. 65 : Récapitulatif des performances du 2ème étage.

4.2.4. 3ème étage : Extraction de l'énergie

Le troisième étage est l'étage final de la chaine. Dans cet étage, on essaie d'extraire le plus d'énergie possible de la pompe sans introduire trop de déformations temporelles ou spatiales. La saturation sera poussée jusqu'à la présence de back-conversion au centre du faisceau, afin de maximiser l'extraction. Avec l'importante énergie de pompe encore disponible d'un peu plus de 300 µJ, on commence à exploiter pleinement la taille transverse des cristaux de PPLN disponibles.

Un schéma résumant le 3ème étage est visible en Fig. 67. Une lame de 1 mm de silicium a été ajoutée en entrée pour étirer de nouveau le signal afin d'améliorer le recouvrement temporel avec la pompe, augmentant ainsi l'extraction. Cet étage, utilisant un PPLN de 1 mm de long, permet de monter l'énergie par impulsion du signal à 23 µJ, soit un gain un peu supérieur à 7, et à 11 µJ par impulsion pour l'idler. Ce gain est relativement faible, mais il provient du fait que l'énergie du signal est non négligeable par rapport à celle de la pompe, ce qui permet une extraction totale assez importante (15%). Ce gain est toutefois suffisamment élevé pour justifier le transport du signal et non de l'idler entre les étages : plus le gain est grand, moins l'apport qu'aurait eu l'énergie de l'idler en entrée d'étage se ressent sur l'énergie finale en sortie de l'étage. Dans le cas présent, cela représenterait une augmentation d'environ 15% de l'énergie de l'idler. Le spectre de l'idler est centré à 3080 nm avec une largeur spectrale de 290 nm à mi-hauteur et supporte ainsi des impulsions de 35 fs, pendant que le spectre du signal est centré à 1540 nm avec une largeur spectrale de 110 nm supportant des impulsions de 40 fs. Ces spectres ont la particularité d'être extrêmement lisses, ce qui est du à l'utilisation du supercontinuum comme signal initial, ce qui représente un avantage important

par rapport aux systèmes utilisant des oscillateurs à fibre Erbium ayant des spectres élargis par effet non linéaire. En effet, nous vérifierons que cette forme spectrale bien maitrisée se traduira par un bon contraste temporel cohérent des impulsions. Pour obtenir ces résultats la totalité de la pompe restante a été utilisée soit 320 µJ. Dans le PPLN, la taille des faisceaux est respectivement pour le signal et la pompe de 1250 µm à $1/e^2$ et 1300 µm à $1/e^2$. La taille des faisceaux est similaire entre le signal et la pompe dans le but de maximiser l'extraction.

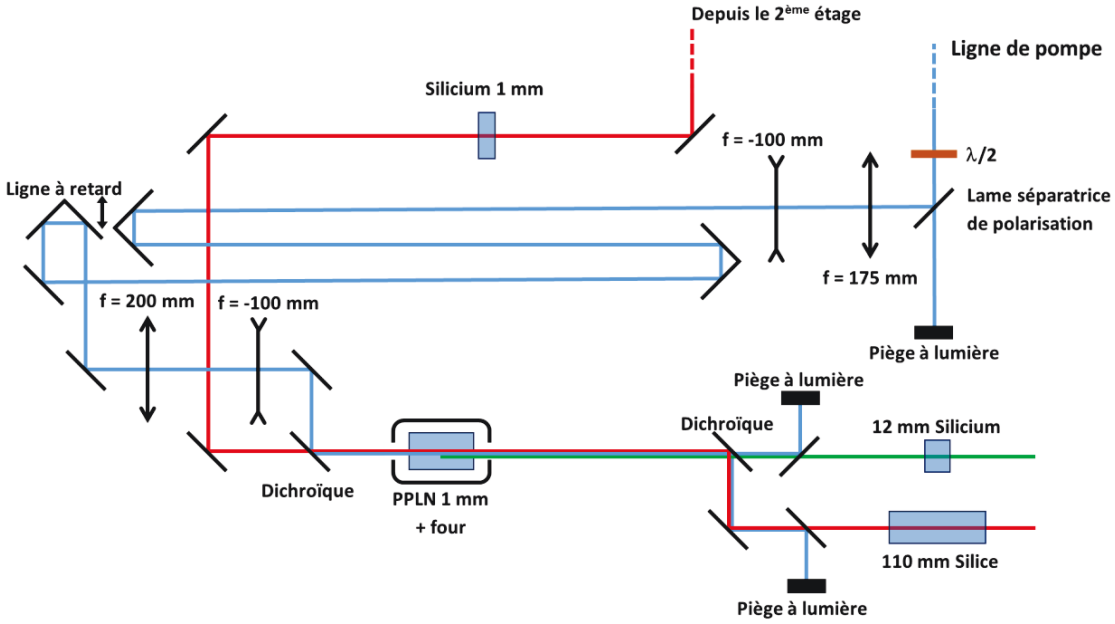
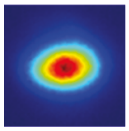
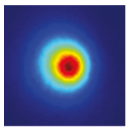


Fig. 66 : Récapitulatif de l'implémentation du 3ème étage.



Ø $\frac{1}{e^2}$ = 1520x1110 µm
Pompe



Ø $\frac{1}{e^2}$ = 1200x1310 µm
Signal

	Pompe	Signal en entrée	Signal en sortie	Idler en sortie
Diamètre de focalisation (µm)	1520x1110	1200x1310	X	X
Energie	290 µJ	3,2 µJ	23 µJ	11 µJ
Durée	350 fs	292 fs	X	X
Largeur Spectrale (nm)	6	131	110	231
Longueur d'onde centrale (nm)	1030	1580	1540	3080
PPLN	Δ = 29,6 µm	L = 1 mm	T = 185°C	

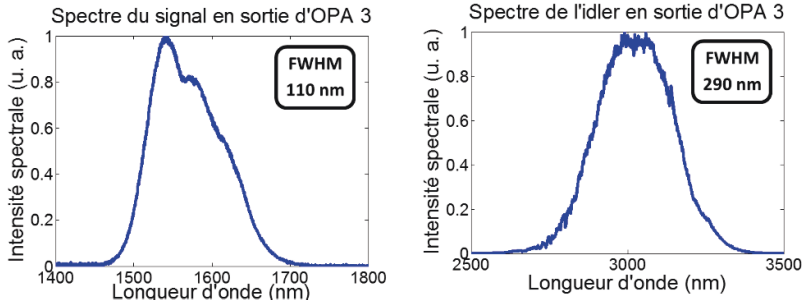


Fig. 67 : Récapitulatif des performances du 3ème étage.

Par rapport aux simulations effectuées précédemment, l'extraction obtenue est relativement faible. Cela semble lié à l'apparition d'une déformation spatiale du faisceau lorsque l'on augmente la puissance de pompe, comme montrée en Fig. 68. Pour tenter de comprendre l'origine physique de cette déformation, nous avons mesuré son seuil d'apparition en termes de puissance moyenne de pompe en fonction de la cadence de répétition du laser dans une configuration où l'étirement temporel du signal était réduit. La courbe obtenue (cf. Fig. 69) semble indiquer que cette déformation provient d'un phénomène complexe qui semble dépendre à la fois de la puissance crête et de la puissance moyenne. Par exemple, un phénomène d'absorption non linéaire pourrait expliquer un tel comportement.

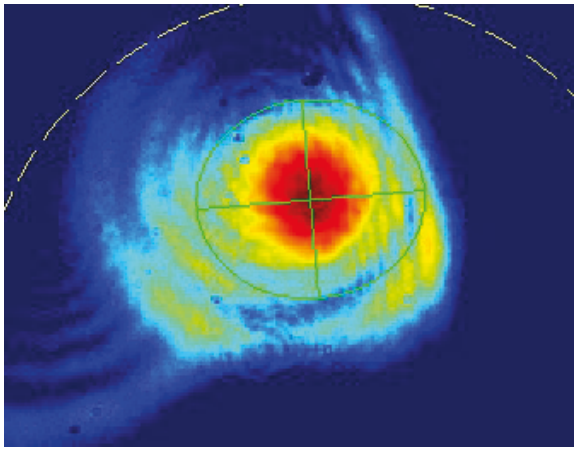


Fig. 68 : Déformation du faisceau observée en sortie du 3ème étage d'OPA.

Le deuxième élément permettant de faire le tri dans les effets pouvant provoquer cette dégradation spatiale est le suivant : en utilisant la ligne à retard du 3ème étage pour décaler temporellement le signal et la pompe afin d'éteindre l'amplification, la déformation disparait dans le même temps. Ce dernier fait indique qu'il ne s'agit pas de l'effet GRIIRA étudié précédemment, mais tendrait plus à lier l'effet à la présence d'un signal et/ou d'un idler de forte puissance moyenne / crête au sein du cristal. Il est à noter que l'apparition de cette dégradation spatiale a déjà été rapportée par d'autres groupes (Baudisch, Hemmer, Pires, & Biegert, 2014), sans qu'une explication définitive de son origine ne puisse être donnée.

Ce phénomène non prédit par les simulations entraine des résultats bien en deçà de ceux escomptés en énergie. Pour essayer de contourner ce problème, un cristal de KTA a été commandé et sera testé pour remplacer le PPLN dans le dernier étage. Ce cristal possède un seuil de dommage plus élevé que le niobate de lithium, autorisant une focalisation plus forte. En revanche, il possède des propriétés moins intéressantes en ce qui concerne le coefficient non linéaire et la largeur spectrale de l'accord de phase, surtout s'il est utilisé en configuration colinéaire. Une étude expérimentale sera menée dans les mois qui viennent pour déterminer l'opportunité d'utiliser un tel cristal sur le 3ème étage, et des résultats de publications récentes nous encouragent dans ce sens (Mero, Noack, Bach, Petrov, & Vrakking, 2015).

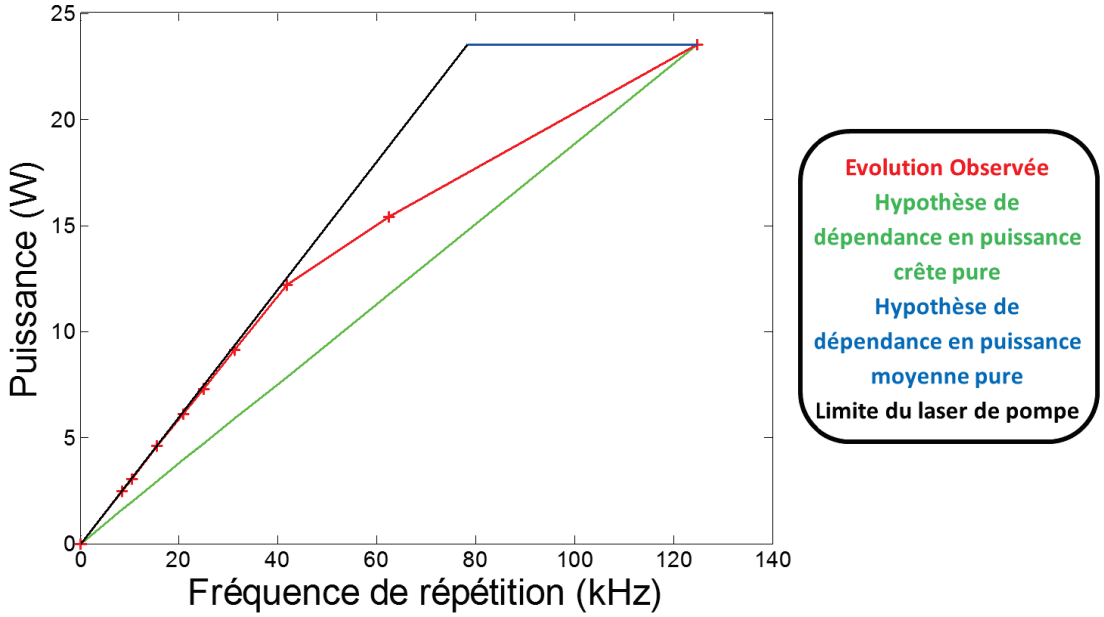


Fig. 69 : Evolution du seuil de puissance de pompe seuil d'apparition des déformations du faisceau.

4.2.5. Compression du signal et de l'idler

Le signal sortant du 3ème étage est toujours sous l'effet de l'étirement introduit par les deux lames de silicium, ainsi que la dispersion des optiques traversées. L'idler est également étiré de par le transfert des propriétés du signal par le processus d'OPA. Afin d'être exploités, les faisceaux doivent passer par une étape de compression afin de réduire leurs durées et atteindre les quelques cycles optiques visés. Notre système utilise de simples barreaux de matériau afin d'introduire la dispersion nécessaire à la re-compression des impulsions. Cette technique présente l'avantage d'être simple et d'avoir une transmission très importante de l'ordre de 90% par rapport à l'utilisation de systèmes à réseaux et/ou de prismes ayant des transmissions de l'ordre de 50-60%. Cependant, la correction des ordres supérieurs de la dispersion ne sera pas aussi bonne qu'avec des outils de gestion active de la phase spectrale comme des filtres programmables acousto-optiques, produisant ainsi des impulsions notablement plus longues que leurs limites de Fourier.

Le signal a été étiré à l'aide de 3 mm de silicium (2 mm après le 1er étage et 1 mm après le 2ème étage) introduisant ainsi +3360 fs^2 d'ordre 2 et +1170 fs^3 d'ordre 3 de dispersion. Le reste du système introduit environ une centaine de fs^2 d'ordre 2 et près de +3000 fs^3 d'ordre 3. En utilisant de la silice pour compenser la dispersion du 2ème ordre, à raison de -28 fs^2/mm, il faudrait environ 120 mm de silice. Cependant, la silice dispose d'une dispersion d'ordre 3 du même signe que celle déjà introduite par le système. Dû à la large bande spectrale, l'optimum de compression ne se présente donc pas à la compensation exacte du 2ème ordre mais à un compromis entre le 2ème ordre et le 3ème ordre avec 110 mm de silice. Nous arrivons ainsi à une impulsion de 49 fs, soit environ sept cycles optiques, comme montré en Fig. 70. Les pertes du compresseur descendent l'énergie du signal à 20 µJ par impulsion.

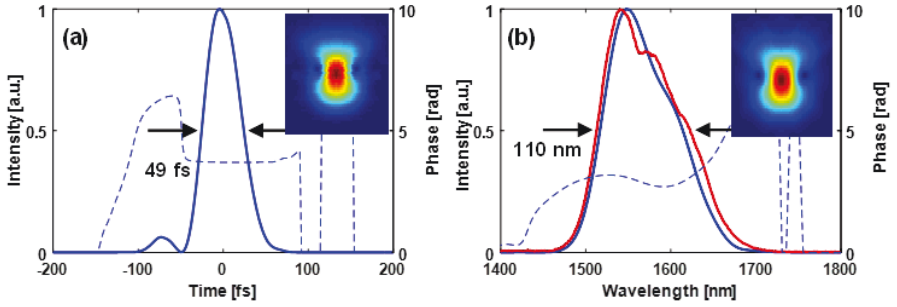


Fig. 70 : Compression du signal en sortie du 3ème étage. A gauche la forme temporelle retrouvée en trait plein et la phase en pointillé (en bleu). A droite le spectre retrouvé en trait plein (en bleu), la phase en pointillé et le spectre réelle (en rouge). En insert la figure frog.

L'idler à la sortie du 3ème étage possède la même phase spectrale que le signal mais avec un signe opposé si on néglige la largeur spectrale de la pompe, ce qui est largement raisonnable dans notre cas. Viennent ensuite les optiques de mise en forme telles que des lentilles en CaF_2 et des dichroïques en substrat de YAG, introduisant environ -2500 fs^2 d'ordre 2 et +11000 fs^3 d'ordre 3. En utilisant du silicium pour la compression, qui possèdent une GVD positive deux fois moins importante à la longueur d'onde de l'idler par rapport à celle de signal, on peut re-compresser l'impulsion à l'aide de 12 mm de silicium. La "transformation" de la TOD positive accumulée dans le système en TOD négative autorise sa compensation partielle durant la compression, permettant d'obtenir une impulsion assez proche de sa limite de Fourier, soit 72 fs pour une limite de 46 fs. La durée d'un cycle optique à la longueur d'onde de 3 µm étant de 10 fs, cette durée correspond donc à sept cycles optiques. Une meilleure compression est possible en réduisant l'énergie de sortie. Cela peut s'expliquer par des phénomènes nonlinéaires dans le compresseur ou dans le PPLN, et cette hypothèse sera vérifiée prochainement. Les pertes du compresseur descendent l'énergie de l'idler à 9,4 µJ par impulsion.

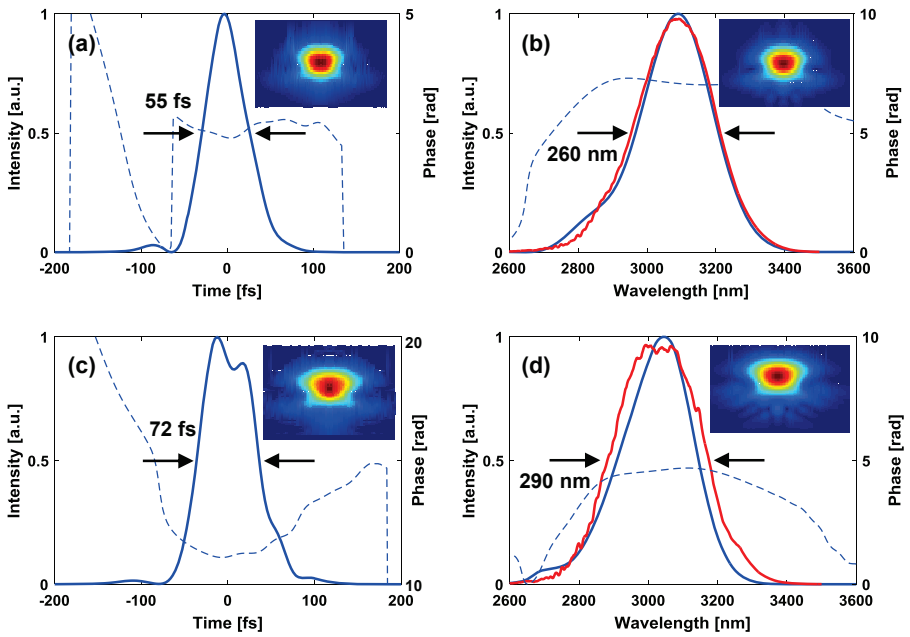


Fig. 71 : Compression de l'idler en sortie du 3ème étage. En haut à la moitié de l'énergie maximum. En bas au maximum d'énergie. A gauche la forme temporelle retrouvée en trait plein et la phase en pointillé (en bleu). A droite le spectre retrouvé en trait plein (en bleu), la phase en pointillé et le spectre réelle (en rouge). En insert la figure frog.

4.3. Conclusion

En plus des caractéristiques scientifiques et techniques rapportées au cours de ce chapitre, il est important lors d'un travail en collaboration avec un partenaire industriel de s'intéresser à la robustesse et à la facilité d'opération du montage expérimental réalisé. Comme montré sur les Fig. 72, le système est de taille relativement importante (~ 1,5 m x 2 m) et sensible à l'alignement, des précautions doivent être prises quant aux fluctuations d'air, et/ou sur les temps de chauffe des optiques, des montures et de la source de pompe afin de retrouver des performances stables à chaque allumage. C'est dans cette optique que le système est capoté et doit être allumé pendant environ 1h avant son utilisation. Une éventuelle évolution du système passerait par une amélioration de la compacité dans le but de le rendre moins sensible aux flux d'air, cela a été réalisé en partie sur les versions industrielles développées en parallèle au sein de l'entreprise Fastlite. Cela aurait également un effet positif sur la stabilité de la CEP de l'idler, les fluctuations de celle-ci provenant des différences de phase ayant lieu entre la voie de pompe et la voie de signal. Cette stabilité en CEP pourrait également être améliorée par le transport de l'idler entre les étages au lieu du signal, mais entrainerait plus de complexité sur la gestion de la dispersion dans le système et dans la compression, ainsi que d'éventuelles modifications spectrales durant la propagation par l'absorption atmosphérique, en fonction de la bande spectrale exacte considérée.

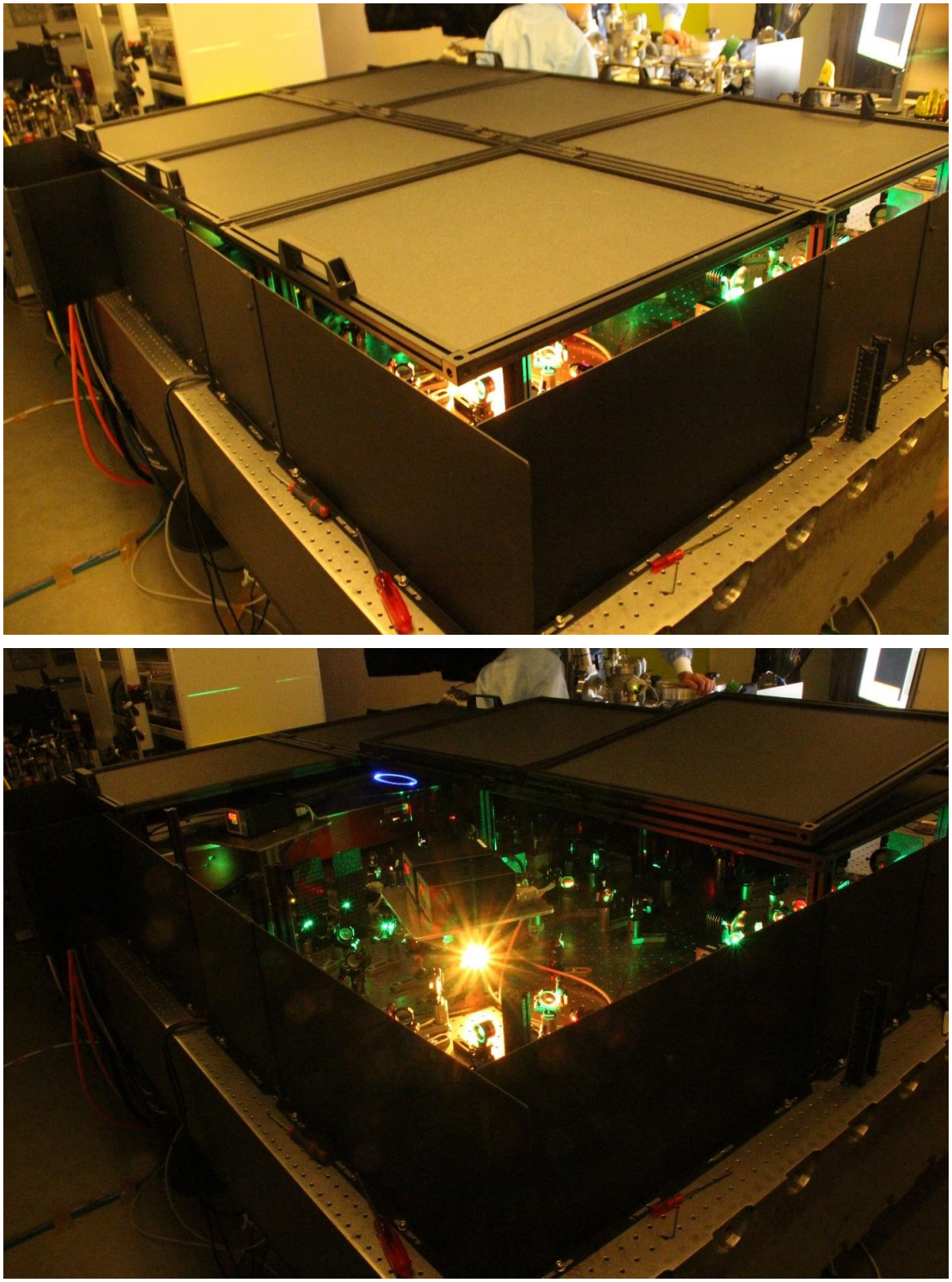


Fig. 72 : Montage expérimental fermé et ouvert.

En sortie de notre système sont délivrés un signal centré à 1530 nm avec des impulsions de 20 µJ contenu dans 49 fs, et un idler centré à 3080 nm avec des impulsions de 9,4 µJ contenues dans 72 fs, tous deux à la cadence de 125 kHz. Cela correspond à des puissances moyennes de 2.5 W pour le signal et 1.18 W pour

l'idler. Les objectifs fixés pour le projet FUI STAR étaient des impulsions de plus de 20 µJ dans 50 fs à une cadence de plus de 100 kHz pour l'idler. Si on compare les performances obtenues et celle visées (cf. Fig. 73), on observe que les objectifs ne sont pas encore atteints. Cependant seul le 3ème étage pose problème dans ces performances avec l'apparition de la déformation des faisceaux. Des pistes mentionnées précédemment sont cependant en cours d'exploration afin de dépasser ce problème et fournir les performances visées, ce qui représente une extraction totale d'environ 20% sur le dernier étage.

	Système réel	Objectif
Durée	72 fs	~ 50 fs
Energie	9,4 µJ	> 20 µJ
Cadence	125 kHz	> 100 kHz

Fig. 73 : Comparaison des paramètres entre le système réel et l'objectif.

Bien que les objectifs ne soient pas encore atteints, cette thèse apporte une nouvelle approche sur les chaines d'OPCPA femtoseconde pour le moyen infrarouge. Doté d'une structure simple grâce à la génération de supercontinuum dans des matériaux massifs comme source de signal synchronisée et un faible étirement simplifiant le système d'étirement/compression et maximisant sa transmission, le système met également à profit l'utilisation de la configuration colinéaire des étages pour obtenir à la fois le signal et l'idler en sortie. Nous allons maintenant lors de la conclusion générale de ce travail récapituler les points importants et évoquer les perspectives, à la fois pour des évolutions de la source et sur ses applications à divers domaines.

Conclusion générale

Les études préliminaires ont permis de mettre en place une architecture nouvelle dont les points forts sont sa simplicité, son efficacité et sa grande flexibilité dans son utilisation. L'utilisation de cristaux nonlinéaires de grandes ouvertures permet un système d'étirement/compression léger et simple. De plus, la synchronisation entre les impulsions pompe et signal est obtenue de façon robuste grâce à la combinaison entre un signal dérivé d'un processus de génération de supercontinuum et une séparation pompe/signal post-amplification. Le système valide ces études grâce à l'obtention de bons résultats si on fait exception du problème rencontré dans le 3ème et dernier étage. Le système en l'état délivre deux faisceaux à la cadence de 125 kHz. Un premier faisceau à la longueur d'onde centrale de 1550 nm avec 23 µJ dans des impulsions de 50 fs de durée, et un deuxième faisceau à la longueur d'onde centrale de 3080 nm avec 12 µJ dans des impulsions de 61 fs de durée. Même si le cahier des charges n'est pas respecté à la date de rédaction de ce manuscrit, des travaux sont en cours afin de résoudre les problèmes rencontrés et vise à obtenir les performances souhaitées. La piste principale consiste à exploiter dans le dernier étage un matériau non linéaire dont la littérature montre qu'il est plus robuste à la montée en énergie / puissance moyenne, le KTA.

Le système développé durant cette thèse est actuellement en cours d'utilisation dans une expérience de HHG menée en collaboration avec une équipe du laboratoire dynamique, interaction, laser (LIDyL) du CEA. Cette expérience est basée sur notre source, mais a également nécessité des développements importants pour adapter les chambres à vide d'interaction et de détection à notre système, qui opère à plus basse énergie, plus haute cadence, et plus haute longueur d'onde qu'une source Ti:Sa. Ceci mène à l'utilisation d'une focalisation plus forte du laser excitateur dans le gaz, afin d'obtenir une intensité de quelques 10^{13} W/cm², et conduit également à la génération de jets de gaz à forte pression, afin de mettre un grand nombre d'atomes dans le volume d'interaction. Ces fortes pressions de gaz doivent être pompées efficacement afin de garantir un vide convenable pour réaliser la détection du spectre harmonique dans la chambre dédiée. Dans l'expérience en cours, l'utilisation d'une galette de micro-canaux nécessite l'obtention d'un vide de 10^{-6} mbar dans la chambre de détection, à comparer avec une pression de quelques bars dans le jet situé dans la chambre d'interaction, ce qui constitue un défi expérimental.

D'autres applications sont également concernées par le type de sources développées dans cette thèse. En effet, l'architecture développée possède une grande flexibilité, notamment en termes de longueurs d'onde, pour s'adapter à divers usages. Par exemple, le projet FUI STAR comprend le développement d'un front-end pour système Ti:Sa haute énergie basé sur la même architecture avec l'ajout de deux doublages de fréquence : la longueur d'onde délivrée est aux alentours de 800 nm ce qui correspond à un doublage de fréquence du signal à 1550 nm. Afin d'obtenir la stabilité de la CEP à cette longueur d'onde, on double en fréquence l'idler en sortie de 1er étage pour servir de signal dans les étages suivants afin d'obtenir la CEP sur le signal et non l'idler. En fin de chaine, on double en fréquence de nouveau afin d'arriver à la longueur d'onde souhaitée pour l'injection dans le Ti:Sa. Ce front-end, réalisé en parallèle à la source de cette thèse

au sein de l'entreprise Fastlite, a été caractérisé précisément en termes de contraste et de fluctuations de la CEP, deux aspects qui n'ont été qu'effleurés dans ce travail par manque de temps. Les résultats sont extrêmement prometteurs, avec un durée d'impulsion obtenue de 27 fs, une excellente stabilité CEP de l'ordre de 80 mrad et un contraste mesuré après un étage d'amplification dans le Ti :Sa de l'ordre de 2×10^{13}. Ces caractéristiques sont bien au-delà de ce qui peut être réalisé dans un front-end basé sur un oscillateur Ti :Sa.

Enfin, un projet basé sur la même architecture de source, mais très différent du point de vue de l'application visée, est en cours au laboratoire Charles Fabry, et constitue un volet du projet Labex Morphoscope. Il s'agit de réaliser un laser spécialement adapté à des expériences de microscopie multiphotonique en configuration « light sheet illumination ». Les tissus biologiques que l'on veut imager étant principalement constitués d'eau, les longueurs d'onde d'intérêt se trouvent dans des zones de relative transparence de l'eau, mais on a également tendance à vouloir opérer à grande longueur d'onde pour limiter le phénomène de diffusion. Ainsi, deux longueurs d'onde se détachent : 1,3 μm et 1,7 μm. D'autre part, la configuration d'illumination consiste à éclairer toute une tranche de l'échantillon de façon orthogonale à la direction de collection de la lumière, ce qui nécessite une énergie / puissance moyenne assez élevée par rapport aux sources utilisées habituellement dans ce contexte : typiquement, une énergie de l'ordre du μJ, à une cadence de 1 MHz. L'architecture développée au cours de ce travail répond bien à ces besoins, en étant capable de délivrer simultanément les deux longueurs d'onde : on décale la longueur d'onde du signal à 1,7 μm en jouant sur la période / température du PPLN, ce qui correspond à un idler à 2,6 μm, qui, une fois doublé, fournit un faisceau à la longueur d'onde de 1,3 μm.

Ainsi, et en guise de perspectives, notre architecture peut être adaptée à de nombreuses applications, en optimisant plus particulièrement certaines propriétés de la source, comme sa puissance moyenne, l'énergie par impulsion, la longueur d'onde centrale, la stabilité de la phase CEP, ou le contraste. La double sortie en longueur d'onde peut aussi permet de réaliser une synthèse d'impulsions entre le signal et l'idler et ainsi obtenir une impulsion de spectrale extrêmement large. Une dernière application, qui ne fait pas l'objet d'un projet de recherche connexe à ce travail, mais dont les besoins pourraient être particulièrement bien satisfaits par une source similaire à celle étudiée dans ce manuscrit, concerne la spectroscopie moléculaire multidimensionnelle, qui permet d'étudier les dynamiques moléculaires à des échelles de temps inférieures à la picoseconde.

Annexe : Expérience préliminaire de mesure de f_{CEO} sur une source laser à fibre non stabilisée par battement « f – 2f »

L'aspect "CEP stable" est un point important de notre système et plus généralement dans les systèmes développés dans le cadre du projet FUI STAR. Bien que l'architecture de construction garantisse cette stabilité à travers le mécanisme de DFG, les fluctuations de phase rencontrées sur les voies entre la différenciation du signal et de la pompe et la recombinaison finale au 3ème étage diffèrent. Ces fluctuations vont entrainer des variations de la CEP, et il est alors important de mesurer et caractériser ces variations.

Une des méthodes pour mesurer la phase CEP est la méthode dite du "f-2f" (cf. Fig. 74). Cette méthode consiste à mesurer le signal d'interférence entre 2 ondes issues d'un unique peigne de fréquence initial. L'une des ondes est générée par doublage de fréquence d'une région spectrale du spectre initial. L'autre onde est constituée soit directement par le peigne initial, soit par élargissement spectral via le mécanisme de génération de supercontinuum. Afin de mesurer le signal d'interférence, ces deux ondes doivent se retrouver à la même longueur d'onde centrale, il faut donc pour réaliser cette expérience disposer d'une largeur spectrale supérieure à une octave. Vus dans l'espace de Fourier les trains d'impulsions sont représentés par des peignes de fréquence. Le peigne de fréquence associé au signal doublé possède une fréquence CEO double par rapport à celui du laser originel, alors que le peigne associé à la deuxième onde (signal originel si la largeur spectrale initiale est supérieure à l'octave, ou signal généré par supercontinuum) possède la même fréquence CEO que le laser originel. La fréquence de battement obtenue par heterodynage sur une photodiode permet de faire apparaître ainsi la fréquence CEO dans un domaine de fréquence observable avec un analyseur de spectre RF.

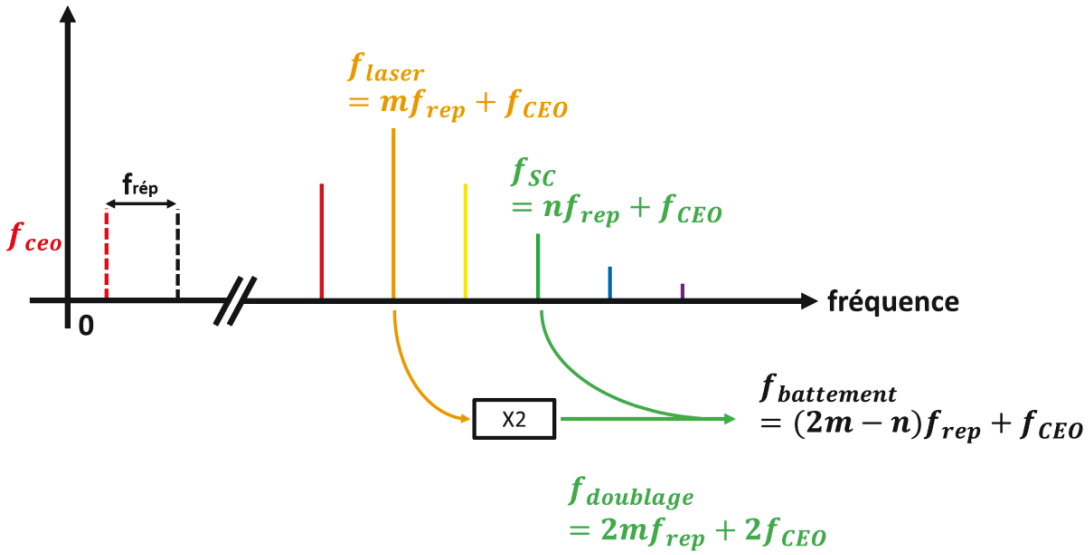


Fig. 74 : Schéma explicatif de la méthode f-2f. La fréquence de battement est un multiple de la fréquence de répétition du laser à la fréquence CEO près. Un choix judicieux de la fréquence SC permet d'observer ce battement dans le domaine RF en réalisant la condition (2m-n) proche de 0.

Pour cela, et chronologiquement bien avant le début de la mise en place du système OPCPA, un montage expérimental basé sur cette méthode a été mis en place afin de se confronter aux aspects pratiques de ce types de mesure (cf. Fig. 75). On utilise pour ce montage une source laser à 1030 nm délivrant 10 W à 2 MHz dont nous allons tenter d'observer la fréquence CEO. Une majorité de l'énergie de la source est envoyé dans un cristal de BBO afin de réaliser un doublage de fréquence. L'autre partie est utilisée dans une étape de génération de supercontinuum dont on recueille le rayonnement autour de 515 nm, longueur d'onde du doublage. On recombine les deux voies à l'aide d'un miroir HR à 515 nm : les 2 faisceaux ayant la même longueur d'onde ne permettent pas une recombinaison sans perte. On souhaite, pour maximiser le battement par rapport aux signaux incidents, avoir une puissance semblable entre les 2 faisceaux. Hors nous sommes limités en énergie dans le SC, alors que le doublage peut être très efficace, d'où la possibilité d'utiliser ce miroir HR à 515 nm. Une fois combinés, les faisceaux sont envoyés dans un prisme couplé à une fente afin de filtrer le contenu spectral du supercontinuum et obtenir uniquement les longueurs d'onde autour de 515 nm provenant à la fois du SC et du doublage. On observe finalement le spectre RF sur l'analyseur de spectre, après détection sur une photodiode Si amplifiée. Le battement entre le SC et le doublé contient la fréquence CEO et peut-être observé dans ce spectre RF quand la ligne à retard est bien réglée. En effet, l'observation de cette fréquence de battement nécessite un recouvrement temporel entre les impulsions issues du SC et les impulsions doublées.

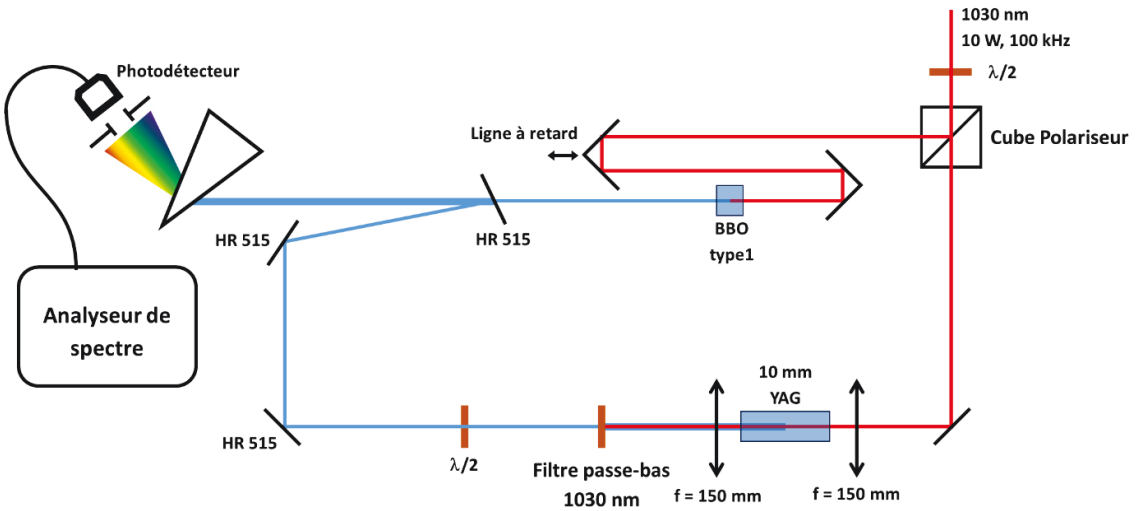


Fig. 75 : Schéma du montage de mesure CEP.

L'observation des spectres RF (cf. Fig. 76) obtenus pour les signaux SC et doublés pris indépendamment montre des fréquences facilement indentifiables comme la cadence de répétition du laser, mais aussi des fréquences beaucoup plus basses signature de l'existence de faibles variations de cette cadence. Lors de la superposition des deux faisceaux, et uniquement si les conditions de polarisation, de recouvrement spatial

et temporel sont remplies, on voit apparaître un fond continu environ 20 dB au-dessus du bruit spectral. Ce fond correspond au signal recherché, c'est-à-dire l'observation de la fréquence CEO. Cette forme spectrale, constante en fréquence contrairement à un pic comme attendu, provient de la variation importante de la fréquence CEO durant le temps d'acquisition (100 µs). En effet la stabilité de la CEP n'est pas une caractéristique du laser ayant été utilisé lors de cette expérience. En particulier, l'oscillateur à fibre utilisé dans la source n'a fait l'objet d'aucune précaution d'isolation des bruits acoustiques. Il est à noter que la résolution est ici de 691 points et qu'un pic fin dans le cas d'une fréquence CEP stable aurait dans ce cas montré un niveau de signal à environ de 40 dB au-dessus du bruit de détection.

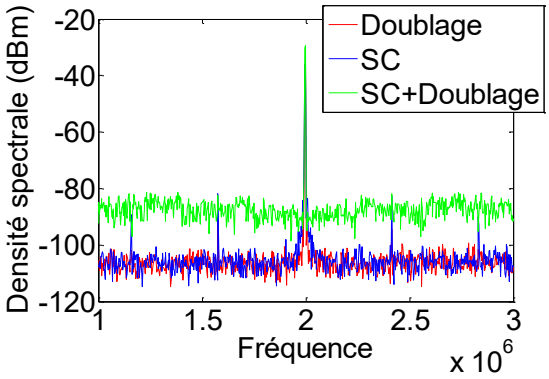


Fig. 76 : Signaux observées sur l'analyseur de spectre.

Ce montage a permis d'obtenir de l'expérience sur la mise en place de cette méthode du f-2f, ainsi qu'une première approche sur les procédures pour régler la synchronisation temporelle. La méthode a été ainsi validée et sera utilisée pour mesurer la stabilité de la CEP sur notre système prochainement.

Bibliographie

A.Wheeler, J., Borot, A., Monchocé, S., Vincenti, H., Ricci, A., Malvache, A., . . . Quéré, F. (2012). *Attosecond lighthouses from plasma mirrors.* Nature Photonics Vol6 : 829-832.

Agostini, & DiMauro, F. (2004). *The physics of attosecond light pulses.* Rep. Prog. Phys. 67 : 813-855.

Ahmad, I. (2011). *Development of an optically synchronized seed source for a high-power few-cycle OPCPA system.* Munich.

Ahmad, I., Trushin, S., Major, Z., C.Wandt, Klingebiel, S., Wang, T.-J., . . . Karsch, S. (2009). *Frontend light source for short-pulse pumped OPCPA system.* Appl Phys B 97 : 529-536.

Akhmanov, S., Kovrigin, A., Piskarskas, A., Fadeev, V., & Khokhlov, R. (1965). *Observation of parametric amplification in the optical range.* Jetp Lett Vol.2, p.458.

Alfano, R. R., & Shapiro, S. (1970 (2)). *observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses.* Phys Review Lett. Vol24 n°11 : 592-594.

Alfano, R. R., & Shapiro, S. (1970). *Emission in the region 4000 to 7000 a via four-photon coupling in glass.* Phys. Review Lett. Vol24 n°11 : 584-587.

Andriukaitis, G., Balciunas, T., Alisaukas, S., Pugzlys, A., Baltuska, A., Popmintchev, T., . . . Kapteyn, H. C. (2011). *90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier.* Optics Lett. Vol36 n°15 : 2755-2757.

Armstrong, J., Bloembergen, N., Ducuing, J., & Pershan, P. (1962). *Interactions between light waves in non linear dielectric.* Phys. Rev. Vol127 n°6 : p.1928-1939.

Batchko, R. G., Miller, G. D., Alexandrovski, A., Fejer, M. M., & Byer, R. L. (1998). *Limitations of high-power visible wavelength periodically poled lithium niobate devices due to green-induced infrared absorption and thermal lensing.* CLEO 98 Technical Digest : p75-76.

Baudisch, M., Hemmer, M., Pires, H., & Biegert, J. (2014). *Performance of MgO:PPLN, KTA, and KNbO3 for mid-wave infrared broadband parametric amplification at high average power.* Optics Letter VOL39 N°20 : 5802-5805.

Baudisch, M., Pires, H., Ishizuki, H., Taira, T., Hemmer, M., & Biegert, J. (2015). *Sub-4-optical-cycle, 340MW peak power, high stability mid-IR source at 160kHz.* J. Opt. 17.

Baumgartner, R., & Byer, R. (1979). *Optical Parametric Amplification.* IEEE Quant. Elect. Vol15 n°6 : p432-444.

Biegert, J., Sánchez, D., Hemmer, M., Baudisch, M., Zawilski, K., Schunemann, P., . . . Holzwarth, R. (2015). *High energy mid-IR OPCPA at 7 µm with 2 µm pump.* ASSL.

Bradler, M., & Riedle, E. (2014). *Temporal and spectral correlations in bulk continua and improved use in transient spectroscopy.* J. Opt. Soc. Am. B vol31 n°7 : 1465-1475.

Bradler, M., Baum, P., & Riedle, E. (2009). *Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-μJ pump pulses.* Appl Phys B 97 : 561-574.

Brodeur, A., & Chin, S. (1999). *Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media.* J. Opt. Soc. Am. N Vol16 n°4 : 637-650.

Burnett, N., Baldis, H., Richardson, M., & Enright, G. (1977). *Harmonic generation in CO2 laser target interaction.* Appl. Phys. Lett. Vol31 n°3 : 172-174.

Calendron, A.-L., Cankaya, H., Cirmi, G., & Kärtner, F. (2015). *White-light generation with sub-ps pulses.* Optics express Vol 23, n°11 ; p13866-13879.

Cerullo, G., & De Silverstri, S. (2003). *Ultrafast optical parametric amplifiers.* Rev. Scien. Inst. Vol 74 n°1.

Chang, Z., Rundquist, A., Wang, H., M. Murnane, M., & C. Kapteyn, H. (1987). *Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics.* Phys. Review Lett. Vol79 n°16 : 2967-2970.

Chen, Y., Li, Y., Li, W., Guo, X., & Leng, Y. (2016). *Generation of high beam quality, high-energy and broadband tunable mid-infrared pulse from a KTA optical parametric amplifier.* Optical Communications 365 : 7-13.

Corkum, P. (1993). *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization.* Phys. Review Lett. Vol71 n°13 : 1994-1997.

Demaria, A., Stetser, D., & Heynau, H. (1966). *Self mode-locking of lasers with saturable absorbers.* Appl. Phys. Lett Vol8 n°7 : 174-176.

Deng, Y., Schwarz, A., Fattahi, H., Ueffing, M., Gu, X., Ossiander, M., . . . Karpowicz, N. (2012). *Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μm.* Optics Lett. Vol36 n°23 : 4973-4975.

Dubietis, A., Jonusaukas, G., & Piskarskas, A. (1992). *Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal.* Optics Communications 88 : 437-440.

Dudley, J., Genty, G., & Coen, S. (2006). *Supercontinuum generation in photonic crystal fiber.* Review of modern physics Vol78 : 1135-1184.

Fejer, M., Magel, G., & Jundt, D. B. (1992). *Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances.* Journal of Quantum Electronics Vol26 n°11 : 2631-2654.

Furukawa, Y., Kitamura, K., Alexandrovski, A., Route, R., Fejer, M., & Foulon, G. (2001). *Green-induced infrared absorption in MgO doped LiNbO3.* Appl. Phys. Lett. vol78 n°14 : 1970-1972.

Galinis, J., Tamosaukas, G., Grazuleviciute, I., Keblyte, E., Jukna, V., & Dubietis, A. (2015). *Filamentation and supercontinuum generation in solid-state dielectric media with picosecond laser pulses.* Phys. review A Vol92.

Godin, T., Wetzel, B., Sylvestre, T., Larger, L., Kudlinski, A., Mussot, A., . . . Dudley, J. (2013). *Real time noise and wavelength correlations in octave-spanning supercontinuum generation.* Optics Express Vol21 n°15 : 18452-18460.

Gorza, S., Leo, F., Kuyken, B., Selvaraja, S., Roelkens, G., R., B., . . . Safioui, J. (2014). *Supercontinuum generation in hydrogenated amorphous silicon waveguides in femtosecond regime.* CLEO.

Günter, P., & Huignard, J. (1987). *Photorefractive Materials and their applications.* Optical Sciences.

Hentschel, M., Kienberger, R., Spielmann, C., Reider, G., Milosevic, N., Brabec, T., . . . Krausz, F. (2001). *Attosecond metrology.* Nature Vol414 : 509-513.

Hirohashi, J., Tago, T., Nakamura, O., Miyamoto, A., & Furakawa, Y. (2008). *Characterization of GRIIRA properties in LiNbO3 and LiTaO3 with different compositions and doping.* Proc. of SPIE Vol6875 : 687516.

Hong, K., Huang, S., Moses, J., Fu, X., Lai, C., Cirmi, G., . . . Kartner, F. (2011). *High-energy, phase-stable, ultrabroadband kHz OPCPA at 2.1 μm pumped by a picosecond cryogenic Yb:YAG laser.* Optics Express Vol19 n°16 : 15538-15548.

Ishizuki, H., Taira, T., Kurimura, S., Ro, J. H., & Cha, M. (2003). *Periodic Poling in 3-mm-Thick MgO:LiNbO3 Crystals.* J. Appl. Phys. Vol98, p.92.

Jingjun, X., Junmin, L., Guangyin, Z., & Simin, L. (1992). *Lens-Like Effect in LiNbO3: Fe Photorefractive Crystal.* Chinese Phys. Lett. Vol10 n°5 : 306-309.

Jones, D., Diddams, S., Ranka, J., Stentz, A., & Windeler, R. (2000). *Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis.* Science Vol288 : p635-639.

Jukna, V., Galinis, J., Tamosauskas, G., Majus, D., & Dubietis, A. (2014). *Infrared extension of femtosecond supercontinuum generated by filamentation in solid-state media.* Appl. Phys. B Vol116 : 477-483.

K.Reed, M., K. Steiner-Shepard, M., & K.Negus, D. (1994). *Widely tunable femtosecond optical parametric amplifier at 250 kHz with a Ti:sapphire regenerative amplifier.* Optics Lett. Vol19 N°22 : 1855-1857.

Kakehata, M., Takada, H., Kobayashi, Y., & Torizuka, K. (2001). *Single-shot measurement of carrier-envelope phase changes by spectral interferometry.* Optics Letters Vol26 N°18 : p.1436-1438.

Koke, S., Grebing, C., Frei, H., Anderson, A., Assion, A., & Steinmeyer, G. (2010). *Direct frequency comb synthesis with arbitrary offset and shot-noise-limited phase noise.* Nature Photonics Vol4 : p462-465.

Lang, T., Harth, A., Matyschok, J., Binhammer, T., Schultze, M., & Morgner, U. (2012). *Impact of temporal, spatial and cascaded effects on the pulse formation in ultra-broadband parametric amplifiers.* Optics Express Vol21, n°1 : p949-959.

Liang, H., Krogen, P. Z., Schunemann, P., & Kärtner, F. H. (2016). *Phase-stable sub-single-cycle pulses from parametric amplification covering the entire range of 2.5-10 µm.* HILAS 2016 (JT3A).

Majus, D., & Dubietis, A. (2013). *Statistical properties of ultrafast supercontinuum generated by femtosecond Gaussian and Bessel beams: a comparative study.* J. Opt. Soc. Am. B Vol30 n°4 : 994-999.

Mayer, B., Phillips, C., Gallmann, L., & Keller, U. (2014). *Mid-infrared pulse generation via achromatic quasi-phase-matched OPCPA.* Optics Express Vol22 n°17 : 20798-20808.

McClung, F., & HellWarth, R. (1961). *Giant Optical Pulsations from Ruby.* Appl. Phys. Vol33 n°3 : 828-829.

Mero, M., Noack, F., Bach, F., Petrov, V., & Vrakking, M. (2015). *High-average-power, 50-fs parametric amplifier front-end at 1.55 µm.* Optics Express Vol23 N°26 : 33157-33163.

Pelletier, E., Sell, A., Leitenstorfer, A., & Dwayne Miller, R. (2012). *Mid-infrared optical parametric amplifier based on a LGSe crystal and pumped at 1.6 µm.* Optics Express Vol20 n°25 : 27456-27464.

Pfeiter, T., Gallmann, L., J.Abel, M., M.Neumark, D., & R.Leone, S. (2006). *Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field.* Optics Lett. Vol31 n°7 : 975-977.

Pires, H., Baudisch, M., Sanchez, D., Hemmer, M., & Biegert, J. (2015). *Ultrashort pulse generation in the mid-IR.* Progress in Quant. Elec. Vol 43.

Popmintchev, T., Chen, M., Popmintchev, D., Arpin, P., Brown, S., Alisaukas, S., . . . C.Kapteyn, H. (2012). *Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers.* Science Vol336 : 1287-1291.

Ren, Z., Xu, Y., Qiu, Y., Wong, K., & Tsia, K. (2014). *spectrally-resolved statistical characterization of seeded supercontinuum supression using optical time-stretch.* Optics Express Vol22 n°10 : p11849-11860.

Ross, I., Matousek, P., New, G., & Osvay, K. (2002). *Analysis and optimization of optical parametric chirped pulse amplification.* J. Opt. Soc. Am. B Vol19 n°12 : p2945-2956.

Rothhardt, J., Hädrich, S., Klenke, A., Demmler, S., Hoffmann, A., Gotschall, T., . . . Tünnermann, A. (2014). *53 W average power few-cycle fiber laser system generating soft X rays up to the water window.* Optics Lett. Vol39 : p5224-5227.

Sanchez, D., Hemmer, M., Baudisch, M., Cousin, S., Zawilski, K., Schunemann, P., . . . Biegert, J. (2016). *7 µm, ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 µm.* Optica Vol3 n°2 : 147-150.

Shamir, Y., Rothhardt, J., Hädrich, S., Demmler, S., Tschernajew, M., Limpert, J., & Tünnermann, A. (2015). *High-average-power 2 µm few-cycle optical parametric chirped pulse amplifier at 100 kHz repetition rate.* Optics Lett. Vol40 n°23 : 5546-5549.

Shiner, A., Trallero-Herrero, C., Kajumba, N., Bandulet, H.-C., Comtois, D., Légaré, F., . . . Villeneuve, D. (2009). *Wavelength Scaling of High Harmonic Generation Efficiency.* Phys. Review Lett. VOL103 : 073902.

Sola, I. M., Elouga, L., Constant, E., Strelkow, V., Poletto, L., Villoresi, P., . . . Nisoli, M. (2006). *Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating.* Nature Vol2 : 319-322.

Steinmeyer, G., Sutter, D., Gallmann, L., Matuschek, N., & Keller, U. (1999). *Frontiers in ultrashort pulse generation: pushing the limits in linear and nonlinear optics.* Science Vol286 : 1507-1512.

Strickland, D., & Mourou, G. (1985). *Compression of amplified chirped optical pulses.* Optics comm. Vol56 n°3 : p219-221.

Strickland, D., & Mourou, G. (1985). *Compression of amplified chirped optical pulses.* Optcis Communications Vol56 n°3 : 219-221.

Trebino, R. (2012). *Frenquency-resolved optical gating : the measurement of utlrashort laser pulses.* Springer Science & Business Media.

Tsia, K., Goda, K., Capewell, D., & Jalali, B. (2010). *Performance of serial time-encoded amplified microscope.* Optics Express Vol18 n°10 : p10016-10028.

van de Walle, A., Hanna, M. G., Zaouter, Y., Thai, A., Forget, N., & Georges, P. (2015). *Spectral and spatial full-bandwidth correlation analysis of bulk-generated supercontinuum in the mid-infrared.* Optics Lett. Vol40 n°4 : 673-676.

Vincenti, H., & Quéré, F. (2012). *Attosecond Lighthouses: How To Use Spatiotemporally Coupled Light Fields To Generate Isolated Attosecond Pulses.* Phys. Review Lett. Vol108 : 113904.

Wetzel, B., Stefani, A., Larger, L., Lacourt, P., Merolla, J., Sylvestre, T., . . . Dudley, J. (2012). *Real-Time full bandwidth measurement of spectral noise in supercontinuum generation.* Nature, Scientific Reports 2 : 882.

Zaouter, Y., Guichard, F., Daniault, L., Hanna, M., Morin, F., Hönninger, C., . . . Georges, P. (2013). *Femtosecond fiber chirped- and divided-pulse amplification system.* Optics Lett Vol38 n°2 : 106-108.

Zhao, K., Zhang, Q., Chini, M., Wu, Y., & Wang, X. C. (2012). *Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch.* Optics Lett. Vol37 n°18 : 3891-3893.

université PARIS-SACLAY | ÉCOLE DOCTORALE Ondes et Matière (EDOM)

Titre : Source paramétrique dans l'infrarouge moyen à haute cadence

Mots clés : OPCPA, Moyen-infrarouge, quelques cycles, haute cadence

Ce manuscrit décrit l'étude et la mise en œuvre d'une source laser ultrarapide à taux de répétition élevé dans l'infra-rouge moyen, pour des applications à la physique des champs forts et à la spectroscopie moléculaire multidimensionnelle. Cette source est basée sur le phénomène d'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence, qui permet la génération d'impulsions de quelques cycles optiques.

Tout d'abord, nous présentons les applications de ces sources, ainsi que leurs paramètres importants, débouchant sur un cahier des charges pour la source à l'étude. Un état de l'art des sources paramétriques présentées dans la littérature scientifique nous permet ensuite d'appréhender la diversité des architectures et des performances atteintes. En particulier, nous soulignons les points cruciaux que sont la nature et les performances du laser de pompe, le mécanisme de génération du signal à amplifier, ainsi que la robustesse de la synchronisation temporelle entre le signal et la pompe.

Nous étudions ensuite la possibilité d'émettre un signal autour de la longueur d'onde de 1,55 µm à partir d'impulsions femtoseconde de pompe à 1,03 µm par génération de supercontinuum dans un cristal massif de YAG. Nous menons ainsi une étude détaillée des propriétés de la partie infra-rouge du supercontinuum obtenu, en termes de contenu spectral, cohérence, propriétés statistiques tir à tir et long terme, et propriétés spatiales. Cette étude nous permet de conclure sur la validité de cette approche pour générer le signal à amplifier.

Nous arrivons donc à définir une architecture inédite basée sur l'utilisation d'un laser de pompe basé sur un amplificateur à fibre dopée ytterbium de forte énergie délivrant des impulsions de 300 fs 400 µJ à la cadence de 125 kHz. La durée courte rendue possible par le choix de cette technologie de pompe nous permet de bénéficier d'un certain nombre d'avantages importants : la génération efficace de supercontinuum autour de 1,55 µm, ce qui entraine une synchronisation temporelle très robuste entre pompe et signal. D'autre part le couple étireur – compresseur est constitué de simples lames de matériaux massifs, ce qui permet une grande efficacité et une gestion simplifiée de la phase spectrale. Enfin, la courte durée de pompe augmente le seuil de dommage en intensité crête, ce qui permet l'utilisation de cristaux non linéaires courts et augmente la bande spectrale d'amplification. Des expériences supplémentaires sont menées pour étudier les phénomènes limitant la puissance au sein des cristaux de MgO:PPLN. Les étages d'amplification sont tous réalisés en géométrie colinéaire, ce qui permet d'utiliser le signal et l'idler sans introduction de chirp angulaire. Toutes ces caractéristiques permettent la génération de deux faisceaux en sortie portant des impulsions de 50 fs 20 µJ à 1550 nm et 70 fs 10 µJ à 3,1 µm.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France

université PARIS-SACLAY | ÉCOLE DOCTORALE Ondes et Matière (EDOM)

Title : Parametric mid-IR source at high repetition rate

Keywords : OPCPA, mid-IR, few cycle, high repetition rate

This thesis describes the design and construction of an ultrafast high repetition rate laser source in the mid-IR, for applications in strong-field physics and multidimensional molecular spectroscopy. This source is based on optical parametric chirped-pulse amplification, allowing the generation of few-cycle pulses.

We first present some applications of these lasers, along with important parameters, to define specifications for the considered source. We then briefly outline the state of the art of similar ultrafast sources described in the literature, to highlight the variety of architectures and performances. In particular, several key points are identified, namely the nature and performances of the pump laser source, the method to generate a seeding signal, and the robustness of temporal synchronization between pump and signal pulses.

We proceed to study the possibility of emitting a seed signal around 1.55 μm wavelength by supercontinuum generation in a bulk YAG crystal from femtosecond pump pulses at 1.03 μm. A detailed analysis of the properties of the infrared spectral content of the supercontinuum is carried out, focusing on spectral bandwidth, coherence, shot-to-shot and long term stability, and spatial properties. This work allows us to conclude that supercontinuum generation is a valid approach to generate the seed signal.

This leads us to define a novel architecture built around an ytterbium-doped fiber femtosecond pump source delivering 300 fs 400 μJ pulses at a repetition rate 125 kHz. The short pump pulse duration compared to bulk Yb:YAG or Nd:YVO4 based systems results in a number of important advantages. First, it allows efficient seeding at 1550 nm using supercontinuum generation directly from the pump pulses in a bulk YAG crystal, resulting in extremely robust passive pump – signal synchronization. The short pump pulse duration also allows the use of millimeter to centimeter lengths of bulk materials to provide stretching and compression for the signal and idler, which minimizes the accumulation of higher-order spectral phase. Finally, the shorter pump pulse duration increases the damage peak intensity, permitting the use of shorter nonlinear crystals to perform the amplification, which increases the spectral bandwidth of the parametric process. Additional experiments are performed to sort out the phenomena that limit power scaling in MgO:PPLN crystals. The OPCPA stages are all operated in collinear geometry, allowing the use of both signal and idler without the introduction of angular chirp on the latter. These points result in the dual generation of 70 fs 23 μJ signal pulses at 1550 nm and 60 fs 10 μJ idler pulses at 3070 nm from a simple setup.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France