



**HAL**  
open science

# Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques dans la bande III

Julie Armougom

► **To cite this version:**

Julie Armougom. Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques dans la bande III. Optique / photonique. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT : 2018GREAT077 . tel-02063345

**HAL Id: tel-02063345**

**<https://theses.hal.science/tel-02063345>**

Submitted on 11 Mar 2019

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

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

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### **DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **OPTIQUE ET RADIOFRÉQUENCES**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Julie ARMOUGOM**

Thèse dirigée par **Benoit BOULANGER, UJF**

préparée au sein du **Laboratoire ONERA**  
dans l'**École Doctorale Electronique, Electrotechnique,  
Automatique, Traitement du Signal (EEATS)**

## **Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques dans la bande III**

## **New optical sources for detection of chemical species in the LWIR**

Thèse soutenue publiquement le **26 octobre 2018**,  
devant le jury composé de :

**Monsieur BENOIT BOULANGER**

PROFESSEUR, UNIVERSITE GRENOBLE ALPES, Directeur de thèse

**Monsieur JEAN-FRANCOIS LAMPIN**

PROFESSEUR, UNIVERSITE LILLE 1, Examineur et Président du jury

**Madame VIRGINIE ZÉNINARI**

PROFESSEUR, UNIVERSITE DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE,  
Rapporteur

**Monsieur LIONEL CANIONI**

PROFESSEUR, UNIVERSITE DE BORDEAUX, Rapporteur

**Madame CHRISTELLE KIELECK**

INGENIEUR DE RECHERCHE, FRAUNHOFER ISE A FRIBOURG -  
ALLEMAGNE, Examineur

**Monsieur JEAN-MICHEL MELKONIAN**

INGENIEUR DE RECHERCHE, ONERA CENTRE DE PALAISEAU,  
Examineur





THÈSE PRÉSENTÉE POUR OBTENIR LE GRADE DE  
DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES  
Spécialité : Optique et radiofréquences

Présentée par  
Julie ARMOUGOM

Thèse dirigée par Benoit Boulanger  
Encadrée par Jean-Michel Melkonian  
Préparée au sein de l'Onera, dans l'École Doctorale Électronique, Électrotechnique,  
Automatique, Traitement du Signal (EEATS)

## Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques en bande III

Thèse soutenue publiquement le 26 octobre 2018,  
devant le jury composé de :

Jean-François LAMPIN	IEMN, Lille	Président du jury
Christelle KIELECK	IOSB, Ettlingen	Examinatrice
Lionel CANIONI	CELIA, Bordeaux	Rapporteur
Virginie ZÉNINARI	GSMA, Reims	Rapporteur
Arnaud GRISARD	TRT, Palaiseau	Invité
Benoît BOULANGER	Institut Néel, Grenoble	Directeur de thèse
Jean-Michel MELKONIAN	Onera, Palaiseau	Encadrant Onera

*À Thomas*

---

## Remerciements

Je souhaiterais remercier ici les nombreuses personnes qui ont contribué à l'aboutissement de ma thèse.

Je voudrais tout d'abord remercier chacun des membres du jury d'avoir pris le temps de lire et juger mon travail. Merci à Lionel Canioni, Virginie Zéninari, Christelle Kieleck, Jean-François Lampin, et Arnaud Grisard.

J'ai eu la chance d'avoir été accueillie dans l'équipe *Source Laser et Métrologie* de l'Onera, à Palaiseau. J'ai pu travailler dans un environnement dynamique, et soucieux de la réussite de ses doctorants. Merci à Jean-Michel Melkonian, Myriam Raybaut, Jean-Baptiste Dherbecourt, Antoine Godard, Ajmal Mohamed, Christophe Brossard, Guillaume Gorju, Jean-Pierre Faléni, et Thomas Schmid. Vous avez été une équipe formidable, et toujours à l'écoute. Merci aussi à Florence Baumgartner, Cédric Blanchard, Michael Scherman, Yannick Bidel, Nassim Zahzam, Nelly Dorval, Jean-François Roussel, Olivier Le Traon, Alexandre Bresson, et Michel Lefebvre. Une petite pensée aussi à Julien Le Gouet, qui a du subir mes demandes intempestives concernant l'analyseur de spectre.

Jean-Michel, je souhaite te remercier tout particulièrement pour ton soutien, ton écoute, et surtout ta disponibilité. Tu as su me guider, partager tes expériences, et tes connaissances pendant ses trois années. Tu as consacré beaucoup de ton temps à la réussite de ma thèse, que ce soit pour régler un problème de calcul, un code un peu bancal, une lentille mal placée, un OPO mal réglé, ou limer une pièce mal conçue (qui a parlé du NesCOPO-VBG?). Pour tout ça, et tout ce que j'oublie, je t'en suis très reconnaissante.

Je souhaiterais aussi exprimer ma profonde gratitude à Benoît Boulanger. Merci d'avoir toujours réussi à libérer un emploi du temps bien chargé pour répondre à mes questions, et me guider tout au long de ma thèse. J'ai aussi apprécié le temps que j'ai passé à Grenoble, à l'Institut Néel. À ce titre, je voudrais remercier Patricia Segonds, Véronique Boutou, Cyril Bernerd, et tout ceux que j'ai rencontrés à l'Institut.

Je n'oublie pas non plus, nos collègues de VVU en République Tchèque. Les deux semaines que j'ai passées à Vyškov, pour les premiers essais lidar de MICLID, étaient presque devenues des vacances grâce à votre accueil chaleureux.

Merci aussi à mes collègues doctorants, stagiaires, et apprentis, à commencer par Guillaume Walter, sans qui je me serai sûrement beaucoup ennuyée dans le bureau. Ta déco, ton sens accru du rangement, et des anecdotes vont me manquer! Merci aussi à Jérémy Oudin, Vincent Corbas, Thomas Hamoudi, Maxime Duquesnoy, Quentin Berthomé, Erwan Cadiou, Delphine Descloux, Quentin Clément, Guillaume Aoust, Malik Nafa, Sébastien Manglano, Quentin Damaz, Émilie Dauguet, et Dominique Mammez. Merci à Adeline Kabacinski pour son aide précieuse sur le NesCOPO-VBG.

Je donne ces noms à mesure qu'ils me viennent, et j'espère sincèrement n'avoir oublié personne. Vous avez été tellement nombreux.

Merci à ma famille, mes parents, mon frère, et ma sœur. Vous êtes peut-être à 10000 km de Palaiseau, mais votre soutien a toujours été présent quoiqu'il arrive.

Enfin, merci à Thomas. Je n'ai pas pensé une seule seconde pouvoir terminer cette thèse sans toi.

Avant de commencer la lecture de ce manuscrit, je vous laisse avec cette photo de Myriam et moi-même devant un tank à Vyškov. Et la réponse est oui, il roule encore.



FIGURE 1 – Myriam Raybaut et moi-même devant un tank en République Tchèque. Photo prise par Jean-Michel Melkonian.

## Liste des abréviations

### PROCESSUS NON LINÉAIRES

DFG	génération de différence de fréquences
OPA	amplificateur paramétrique optique
OPO	oscillateur paramétrique optique
SROPO	oscillateur paramétrique optique simplement résonnant
DROPO	oscillateur paramétrique optique doublement résonnant
NesCOPO	oscillateur paramétrique optique à cavités imbriquées

### SOURCES LASERS

QCL	laser à cascade quantique
DFB-QCL	laser à cascade quantique à rétroaction répartie
EC-QCL	laser à cascade quantique à cavité étendue
Nd:YAG	grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme
Tm <sup>3+</sup> :YAP	pérovskite d'yttrium et aluminium dopé au thulium

### ACCORD DE PHASE

BPM	accord de phase par biréfringence
QPM	quasi-accord de phase

### CRISTAUX NON LINÉAIRES

CdSe	séleniure de cadmium
PPLN	niobate de lithium retourné périodiquement
PPKTP	titanyl phosphate de potassium retourné périodiquement
OP-GaAs	arséniure de gallium orienté périodiquement
ZGP	zinc germanium di-phosphide

### MATÉRIAUX ET ÉLÉMENTS OPTIQUES

CaF <sub>2</sub>	fluorure de calcium
VBG	réseau de Bragg en volume
ZnSe	séleniure de zinc

### ESPÈCES CHIMIQUES

CH <sub>4</sub>	méthane
CO <sub>2</sub>	dioxyde de carbone
GB	gaz sarin
H <sub>2</sub> O	eau, vapeur d'eau
HD	gaz moutarde
HN <sub>3</sub>	acide azohydrique
L	lewisite

NH <sub>3</sub>	ammoniac
SF <sub>6</sub>	hexafluorure de soufre
CWA	agents chimiques de guerre
TIC	substances chimiques industrielles toxiques

## TYPE DE DÉTECTION

Lidar	<i>light detection and ranging</i>
Lidar DIAL	lidar à absorption différentielle
IP-DIAL	lidar intégré colonne
RR-DIAL	lidar résolu spatialement

## DÉTECTEURS

MCT	détecteur refroidi à l'azote liquide en HgCdTe
VIGO	détecteur photoélectromagnétique en HgCdZnTe

## SYMBOLES

$n_e$	indice de réfraction principal extraordinaire
$n_o$	indice de réfraction ordinaire
$\Delta k$	désaccord de phase
$\Delta L/L$	paramètre de dissociation
$\lambda_p, \lambda_s, \lambda_c$	longueur d'onde de pompe, signal, et complémentaire
$\omega_p, \omega_s, \omega_c$	pulsation de pompe, signal, et complémentaire

# Table des matières

Table des matières	vii
Introduction	1
<b>1 Optique non linéaire appliquée aux processus paramétriques d'ordre 2</b>	<b>5</b>
1.1 Généralités sur les processus paramétriques du second ordre . . . . .	6
1.1.1 Équations couplées . . . . .	7
1.1.2 Différence de fréquences . . . . .	9
1.1.3 Amplification paramétrique optique . . . . .	11
1.2 Oscillateurs paramétriques optiques . . . . .	12
1.2.1 Oscillateurs paramétriques optiques simplement et doublement résonnants . . . . .	14
1.2.2 Effets liés au retour de pompe . . . . .	16
1.2.3 NesCOPO : oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées	18
1.3 Accord de phase dans les cristaux non linéaires . . . . .	23
1.3.1 Accord de phase par biréfringence . . . . .	23
1.3.2 Quasi-accord de phase . . . . .	27
1.4 Cristaux non linéaires utilisés pendant la thèse . . . . .	32
<b>2 Motivations et état de l'art</b>	<b>37</b>
2.1 Établissement des spécifications laser pour les lidars en bande III . . . . .	38
2.1.1 Principe de fonctionnement du lidar à absorption différentielle . . . . .	38
2.1.2 Spécifications laser de l'émetteur lidar . . . . .	40
2.2 Le laser à CO <sub>2</sub> . . . . .	42
2.3 Le laser à cascade quantique . . . . .	43
2.3.1 Principe de fonctionnement des lasers à cascade quantique . . . . .	43
2.3.2 Affinement spectral . . . . .	44
2.3.3 Détection à distance de gaz avec des lasers à cascade quantique . . . . .	46
2.4 Les sources paramétriques pour la bande III . . . . .	47
2.4.1 Oscillateurs paramétriques optiques . . . . .	47
2.4.2 Amplification et différence de fréquences à haute énergie . . . . .	52
2.5 Choix des sources optiques pour la détection d'espèces chimiques à distance	54
<b>3 Oscillateurs paramétriques optiques nanoseconde émettant en bande III</b>	<b>57</b>
3.1 OPO à cavités imbriquées en OP-GaAs monofréquence . . . . .	58
3.1.1 Laser de pompe Tm <sup>3+</sup> :YAP . . . . .	58

3.1.2	Cristaux d'OP-GaAs . . . . .	59
3.1.3	Réalisation expérimentale . . . . .	61
3.1.4	Caractérisations de l'OPO . . . . .	63
3.1.5	Détection à distance d'ammoniac . . . . .	77
3.2	OPO simplement résonnant en CdSe taillé en forme de cylindre partiel . .	84
3.2.1	Montage expérimental . . . . .	85
3.2.2	Futures améliorations du montage optique . . . . .	90
<b>4</b>	<b>Processus paramétriques en cascade pour l'émission en bande III</b>	<b>93</b>
4.1	Différence de fréquences à partir de rayonnements monofréquences et accordables autour de $2 \mu\text{m}$ . . . . .	94
4.1.1	Principe général de l'émetteur lidar . . . . .	94
4.1.2	Laser de pompe . . . . .	94
4.1.3	Oscillateur à $2 \mu\text{m}$ . . . . .	96
4.1.4	Étages d'amplification à $2 \mu\text{m}$ . . . . .	98
4.1.5	Étage de conversion vers la bande III . . . . .	102
4.1.6	Voie de référence . . . . .	105
4.1.7	Réception du lidar . . . . .	105
4.1.8	Campagne de mesures lidar . . . . .	108
4.2	NesCOPO en PPLN de type 0, monomode proche de la dégénérescence et affiné spectralement par réseau de Bragg en volume . . . . .	113
4.2.1	Motivations . . . . .	113
4.2.2	Dimensionnement du NesCOPO de référence . . . . .	115
4.2.3	Choix du réseau de Bragg en volume . . . . .	117
4.2.4	Mise en forme du faisceau de pompe . . . . .	124
4.2.5	Caractérisation du VBG à l'aide d'un OPO simplement résonnant . .	124
4.2.6	Mise en œuvre du NesCOPO-VBG . . . . .	128
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>135</b>
	<b>Annexe A : Pompage d'un laser térahertz avec un OPO en OP-GaAs</b>	<b>139</b>
A.1	Cavité du laser térahertz . . . . .	139
A.2	Utilisation de la molécule de $\text{NH}_3$ comme milieu à gain . . . . .	140
A.3	Mesure de la longueur d'onde . . . . .	141
A.4	Pompage du laser térahertz . . . . .	145
	<b>Annexe B : Calculs de biréfringence</b>	<b>147</b>
B.1	Matrice de Jones des éléments optiques . . . . .	148
B.2	Intensité de l'onde détectée à la sortie de l'analyseur . . . . .	149
	<b>Publications et communications</b>	<b>151</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>168</b>



# Introduction

La détection rapide d'espèces chimiques en faibles proportions est une problématique importante, dans les domaines militaire, civil, et industriel. Parmi les techniques existantes, la spectrométrie laser infrarouge est une technique de choix, car elle permet la détection à distance, et ce de manière non intrusive et sélective. Des systèmes de détection fondés sur la spectrométrie laser infrarouge ont déjà porté leurs fruits sur des polluants atmosphériques, des gaz à effet de serre, ou encore pour des besoins industriels [1–5]. Par ailleurs, les lidars, pour *light detection and ranging*, permettent d'effectuer des mesures résolues spatialement le long de la ligne de visée. À ce titre, l'unité *Source Laser et Métrologie* du département *Physique, Instrumentation, Environnement, Espace* de l'Onera travaille depuis de nombreuses années sur le développement de lidars à absorption différentielle. Ces systèmes ont des applications aussi variées que la détection du CO<sub>2</sub> et de la vapeur d'eau depuis l'espace [6] ou en site industriel [7], la détection de méthane dans le cadre du projet Naomi pour Total, ou encore la détection d'agents chimiques de guerre initiée par la thèse de Quentin Clément [8], et poursuivie dans cette thèse.

Dans le domaine infrarouge, la gamme spectrale 6–14  $\mu\text{m}$ , aussi appelée *long-wave infrared* en anglais, est particulièrement intéressante, car elle contient les bandes de vibration les plus intenses et les plus caractéristiques de nombreuses espèces chimiques. Ce n'est pas le cas de la gamme 3–4  $\mu\text{m}$  par exemple qui contient surtout les bandes des liaisons C–H, O–H, ou encore N–H communes à de trop nombreuses espèces organiques (FIGURE 2). Au sein de cette gamme, la troisième bande de transparence de l'atmosphère, aussi appelée bande III, qui s'étend de 8 à 12  $\mu\text{m}$ , permet à la lumière de se propager sur plusieurs kilomètres. L'observation des propriétés de l'atmosphère peut alors s'effectuer sur différentes espèces chimiques comme : CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>, CO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, et bien d'autres encore. À titre d'exemple, la détection de SF<sub>6</sub>, qui présente une bande d'absorption intense centrée autour de 10,55  $\mu\text{m}$ , est d'un intérêt majeur pour la détection de fuites sur des installations hautes-tension [9]. La détection de HNO<sub>3</sub> permet de caractériser les propriétés des nuages d'acides, grâce à deux raies d'absorption intenses autour de 7,3 et 11,3  $\mu\text{m}$ . La détection de H<sub>2</sub>S, autour de 8  $\mu\text{m}$ , est d'un intérêt particulier dans le domaine pétrochimique pour l'exploration géologique de gisements d'hydrocarbures [10]. Dans le domaine militaire, la détection de gaz de combat, aussi appelés CWA pour *chemical warfare agents*, de substances chimiques industrielles toxiques, appelées TIC pour *toxic industrial chemicals*, d'explosifs et de leurs précurseurs est un sujet de recherche grandissant, tant pour les mesures locales qu'à distance [11–18]. Pour toutes ces applications, les propriétés des sources laser infrarouges sont cruciales, car elles impactent directement les performances finales du système de détection. La FIGURE 2 présente les spectres d'absorption des principaux agents chimiques de guerre, la transmission de l'atmosphère sur

deux kilomètres, ainsi que les liaisons chimiques mises en jeu pour certaines bandes d'absorption. Le gaz moutarde, par exemple, présente des bandes d'absorption autour de 8,3 et

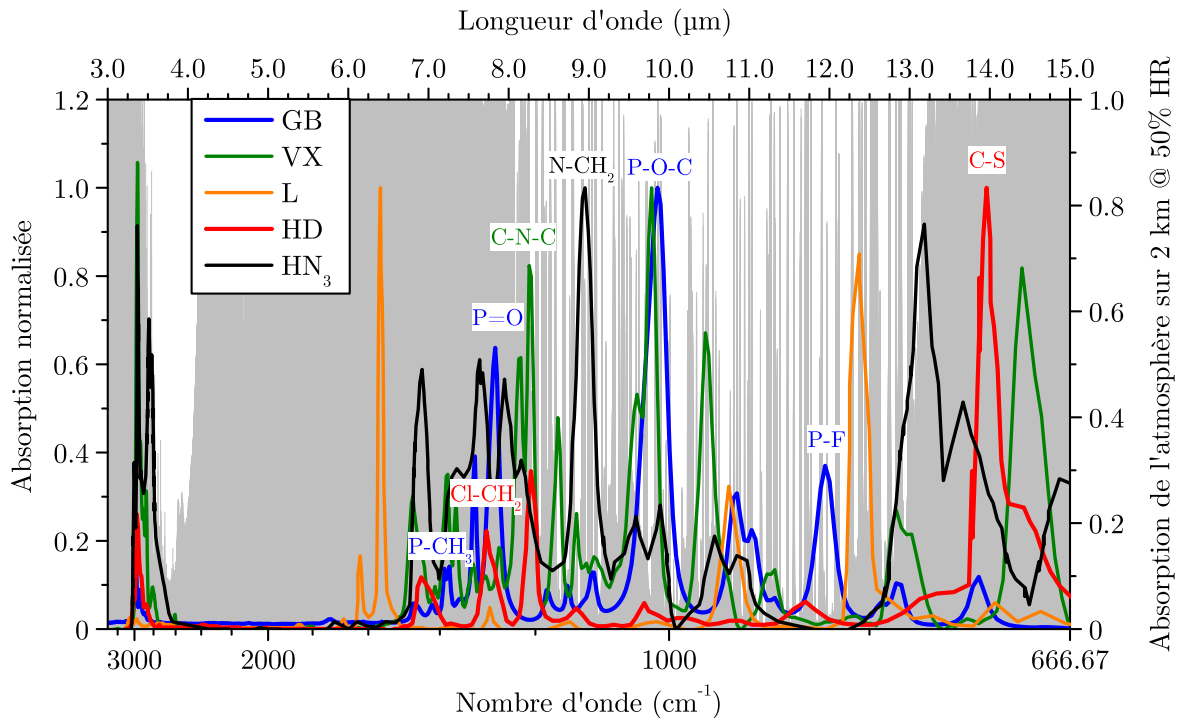


FIGURE 2 – Spectre d'absorption des principaux agents chimiques de guerre. Le spectre d'absorption de l'atmosphère est représentée en gris. Les espèces chimiques représentées sont : GB pour le gaz sarin, HD pour le gaz moutarde, VX qui est un agent innervant organophosphoré, L pour la lewisite, et  $\text{HN}_3$  pour l'acide azothydrique.

14  $\mu\text{m}$ , tandis que le gaz sarin présente une bande d'absorption intense autour de 9,8  $\mu\text{m}$ . Le VX, qui est un agent innervant organophosphoré, présente quant à lui plusieurs bandes d'absorption intenses distribuées dans la bande III. Bien que ces bandes soient larges, typiquement de l'ordre de  $50 \text{ cm}^{-1}$ , elles se recouvrent peu en bande III, comme le montre la FIGURE 2.

Les systèmes lidars existants développés pour la détection de CWA et de TIC ont des détectivités proches du besoin opérationnel [13, 14, 19] mais offrent une couverture de la menace insuffisante. En particulier, la détection du gaz moutarde n'est pas possible, faute de source laser émettant à la bonne longueur d'onde. Plus généralement, les sources lasers disponibles à l'heure actuelle sont limitées en termes d'accordabilité en longueur d'onde ou de puissance crête. Les lasers à  $\text{CO}_2$ , par exemple, qui ont souvent été utilisés dans les lidars en bande III, sont limités notamment en accordabilité en longueur d'onde, et donc en sélectivité spectrale et en nombre d'espèces simultanément détectables. En effet, les longueurs d'onde d'émission du laser à  $\text{CO}_2$  ont des valeurs discrètes qui correspondent aux branches de vibration P et R de la molécule de  $\text{CO}_2$ . Les lasers à cascade quantique, quant à eux, possèdent l'accordabilité en longueur d'onde requise pour la détection d'espèces chimiques dans la bande III. Cependant, leur faible puissance crête limite la portée de détection à quelques dizaines de mètres.

---

À l'heure actuelle, seules les sources optiques non linéaires paramétriques ont le potentiel d'allier une large plage d'accordabilité en longueur d'onde et une énergie suffisante pour la mesure à grande distance en bande III. Toutefois, le spectre d'émission des sources énergétiques est trop large pour la détection de certaines espèces [20], tandis qu'à plus faible énergie le spectre est suffisamment étroit, mais la portée s'en trouve diminuée [21]. En résumé, la détection à distance d'espèces chimiques requiert l'existence de sources émettant un rayonnement : i) largement accordable dans toute la bande III ; ii) fin spectralement afin de minimiser l'influence des interférents atmosphériques, comme la vapeur d'eau ; et iii) dont l'énergie est suffisamment élevée pour effectuer des mesures à longue portée, typiquement de l'ordre de la centaine de mètres voire de plusieurs kilomètres. Nous justifierons ces assertions par une étude bibliographique au chapitre 2.

Ainsi, nous exposons dans ce travail de thèse plusieurs concepts innovants de sources optiques répondant à ces exigences. Pour cela, le manuscrit s'articulera autour de quatre chapitres. Le chapitre 1 traitera des notions essentielles à la compréhension des processus paramétriques du second ordre. Nous discuterons en détail de l'amplification paramétrique optique, de la différence de fréquences, et de l'oscillation paramétrique optique, qui sont au centre de cette étude. Puis nous aborderons les concepts d'accord de phase par biréfringence et de quasi-accord de phase, en nous appuyant sur l'exemple des cristaux non linéaires utilisés lors de cette thèse.

Dans le chapitre 2, nous discuterons de façon plus détaillée de la problématique de la source optique. Dans un premier temps, nous détaillerons le principe de la mesure lidar, avant d'établir les spécificités de la source optique requise pour la détection d'espèces chimiques par mesure lidar en fonction de plusieurs paramètres, comme la portée de détection et l'énergie. Puis, nous donnerons un aperçu des différentes sources optiques et des architectures existant dans la bande III à travers une revue bibliographique. Enfin, nous concluons sur le choix de la source optique idéale pour la détection d'espèces chimiques à distance.

Dans le chapitre 3, nous nous intéresserons à une architecture optique permettant l'émission directe vers la bande III. Pour cela, nous détaillerons le principe de fonctionnement, et les caractéristiques de deux sources innovantes. Dans un premier temps, nous réaliserons un oscillateur paramétrique optique à cavités imbriquées, aussi appelé NesCOPO, utilisant un cristal d'arséniure de gallium orienté périodiquement. Nous caractériserons cette source en détail, puis, nous l'intégrerons dans un banc lidar pour la détection d'ammoniac. De plus, nous verrons dans l'Annexe A comment une telle source peut être utilisée pour pomper de l'ammoniac en tant que milieu à gain dans un laser térahertz. Dans un second temps, nous détaillerons le principe de fonctionnement d'un oscillateur paramétrique optique simplement résonnant à l'onde signal, et utilisant un cristal de CdSe taillé en forme de cylindre partiel. Nous verrons alors l'intérêt d'une telle géométrie sur l'alignement de l'oscillateur, et la mise en forme du faisceau de pompe. Ces deux sources, compte tenu de l'état de l'art, étant limitées en énergie, nous nous intéresserons ensuite à une architecture différente afin d'augmenter la portée de détection.

Le chapitre 4 sera consacré aux architectures en cascade pour l'émission dans la bande III. Dans un premier temps, un NesCOPO à 2  $\mu\text{m}$  est pompé par un laser énergétique et monofréquence à 1  $\mu\text{m}$ . Puis les faisceaux signal et complémentaire sont amplifiés dans un étage d'amplification paramétrique optique, avant d'être convertis vers la

bande III par différence de fréquences. Nous verrons les spécificités chaque étage composant la source optique. Finalement, la source sera intégrée dans un système lidar pour la détection d'agents chimiques de guerre testés en situation quasi réelle sur un site dédié. Dans une seconde partie, nous présenterons une amélioration de l'oscillateur à  $2\ \mu\text{m}$ . Cette nouvelle architecture consiste à affiner le spectre d'un NesCOPO utilisant un cristal de niobate de lithium retourné périodiquement et fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0, grâce à un réseau de Bragg en volume. Nous verrons toutes les étapes de la conception d'un tel oscillateur, ainsi que sa caractérisation.

# Chapitre 1

## Optique non linéaire appliquée aux processus paramétriques d'ordre 2

### Objectifs du chapitre

L'objectif de ce chapitre est de présenter les concepts d'optique non linéaire qui seront mis en jeu tout au long du manuscrit. Dans un premier temps, nous aborderons quelques rappels sur le mélange à trois ondes ainsi que les processus paramétriques de différence de fréquences et d'amplification paramétrique optique. Puis, nous détaillerons le cas spécifique des oscillateurs paramétriques optiques qui sont au centre de cette étude. Nous discuterons des propriétés des oscillateurs simplement et doublement résonnants, ainsi que des effets de retour de pompe sur la phase non linéaire. Nous détaillerons le principe de fonctionnement des oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées (NesCOPO) qui permettent l'obtention d'un faisceau monomode longitudinal et largement accordable. Pour finir, nous présenterons l'accord de phase par biréfringence, le quasi-accord de phase ainsi que les cristaux utilisés dans le cadre de cette thèse.

## 1.1 Généralités sur les processus paramétriques du second ordre

Les milieux considérés ici sont non centrosymétriques. La susceptibilité électrique  $\chi^{(2)}$  associée y est non nulle, de sorte que les mélanges à trois ondes sont possibles. Le champ électrique est réel et s'écrit comme la superposition de trois ondes aux pulsations  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  :

$$\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) = \sum_{n=1,2,3} \vec{E}_n(\vec{r}, t), \quad (1.1)$$

avec

$$\vec{E}_n(\vec{r}, t) = \mathcal{R}(\vec{E}(r, \omega_n) e^{i\omega_n t}) = \frac{1}{2} (\vec{E}(r, \omega_n) e^{i\omega_n t} + \vec{E}(r, \omega_n)^* e^{-i\omega_n t}). \quad (1.2)$$

En combinant les équations de Maxwell, il est possible de retrouver l'équation de Helmholtz satisfaite par le champ électrique dans un milieu non magnétique et sans pertes :

$$\nabla^2 \vec{\mathcal{E}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}}{\partial t^2}, \quad (1.3)$$

où le terme de polarisation  $\vec{\mathcal{P}}$  agit comme un terme source pour le champ électrique  $\vec{\mathcal{E}}$ . Il s'agit de l'équation de propagation de la lumière, dont l'intégration permet de connaître le champ électrique de la lumière en tout point de l'espace et à tout instant.

Dans le domaine de Fourier, cette équation s'écrit :

$$\forall \omega \in \mathbb{R}^+, \nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = -\frac{\omega^2}{c^2 \varepsilon_0} \vec{P}(\vec{r}, \omega), \quad (1.4)$$

avec

$$\vec{P}(\vec{r}, \omega) = \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, \omega) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega) + \dots + \vec{P}^{(n)}(\vec{r}, \omega). \quad (1.5)$$

Le terme de premier ordre  $\vec{P}^{(1)}$  correspond à la polarisation linéaire :

$$\vec{P}^{(1)}(\vec{r}, \omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega), \quad (1.6)$$

où  $\chi^{(1)}(\omega)$  est le tenseur de susceptibilité de premier ordre. Il s'agit de la transformée de Fourier de la réponse impulsionnelle du matériau au premier ordre. La partie réelle et la partie imaginaire de ce tenseur décrivent respectivement les propriétés linéaires de propagation et d'absorption d'une onde électromagnétique à la pulsation  $\omega$  dans le matériau. Le symbole  $\cdot$  correspond au produit contracté [22].

Dans le cas linéaire, l'équation de Helmholtz (1.4) s'écrit :

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi^{(1)}(\omega)) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega) = 0, \quad (1.7)$$

Le nombre de valeurs propres indépendantes du tenseur de permittivité diélectrique relative  $\varepsilon_r(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$  permet de déterminer la classe optique du cristal. Pour une valeur propre triplement dégénérée, le cristal est isotrope, pour deux valeurs propres (dont une dégénérée), le cristal est uniaxe, et pour trois valeurs propres, le cristal est biaxe.

Dans le cas du mélange à trois ondes, la relation de conservation de l'énergie s'écrit :

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2, \text{ pour } \omega_1 \leq \omega_2 < \omega_3. \quad (1.8)$$

Pour deux ondes incidentes aux pulsations  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , la pulsation résultant de la polarisation non linéaire peut prendre 6 valeurs (TABLEAU 1.1) qui correspondent aux deux différents processus physiques du mélange à trois ondes : la somme de fréquences qui comprend le cas dégénéré de la génération de seconde harmonique (à  $\omega_1$  ou à  $\omega_2$ ), et la différence de fréquences ( $\omega_1 - \omega_2$  et  $\omega_2 - \omega_1$ ) qui comprend le cas dégénéré de la rectification optique ( $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ ). Dans les sections 1.1.2, 1.1.3 et 1.2, nous discuterons plus en

Somme de fréquences	$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)$
	$\chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1)$
	$\chi^{(2)}(2\omega_2, \omega_2, \omega_2)$
Différence de fréquences	$\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2, \omega_1, -\omega_2)$
	$\chi^{(2)}(\omega_2 - \omega_1, \omega_2, -\omega_1)$
	$\chi^{(2)}(0, \omega, -\omega)$

TABLEAU 1.1 – Processus physiques mis en jeu lors du mélange à trois ondes.

détail de la différence de fréquences et des cas particuliers de l'amplification paramétrique optique et de l'oscillation paramétrique optique qui sont les processus clés de cette étude.

### 1.1.1 Équations couplées

Dans cette section, considérons le cas de trois ondes planes colinéaires aux pulsations  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  satisfaisant l'équation (1.8), et se propageant dans un cristal non centrosymétrique ( $\chi^{(2)} \neq 0$ ) selon la direction  $z$ . Ces ondes sont considérées comme polarisées linéairement selon les vecteurs  $\vec{e}_1$ ,  $\vec{e}_2$  et  $\vec{e}_3$  respectivement. La composante de Fourier du champ complexe à  $\omega_n$  s'écrit :

$$\vec{E}_n(\vec{r}, \omega_n) = A_n(z) e^{-ik_n z} \vec{e}_n, \quad (1.9)$$

où  $A_n$  est l'amplitude complexe du champ à  $\omega_n$ , et où le vecteur d'onde  $k_n$  est donné par :

$$\vec{k}_n = \frac{\omega_n}{c} n(\omega_n) = \frac{2\pi}{\lambda_n} n(\omega_n), \quad (1.10)$$

avec  $n(\omega_n)$  l'indice de réfraction du milieu « vu » par l'onde à  $\omega_n$ .

Dans le cas des processus non linéaires de second ordre,  $\vec{P}(\vec{r}, \omega)$  est décrite de façon satisfaisante par une approche perturbative de la théorie de l'oscillateur anharmonique [23]. La polarisation induite est alors écrite sous la forme d'une somme de deux termes, soit :

$$\vec{P}(\vec{r}, \omega) \approx \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, \omega) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega). \quad (1.11)$$

L'équation de Helmholtz (1.4) se réécrit de la façon suivante :

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \epsilon_r(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = -\frac{\omega^2}{c^2 \epsilon_0} \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega). \quad (1.12)$$

La polarisation non linéaire du second ordre agit alors comme un terme source additionnel dans l'équation de Helmholtz.

Pour chacune des pulsations considérées, la polarisation non linéaire peut s'écrire :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \vec{E}(\vec{r}, \omega_3) \otimes \vec{E}^*(\vec{r}, \omega_2) \\ \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \vec{E}(\vec{r}, \omega_3) \otimes \vec{E}^*(\vec{r}, \omega_1), \\ \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_3) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \vec{E}(\vec{r}, \omega_1) \otimes \vec{E}(\vec{r}, \omega_2) \end{cases} \quad (1.13)$$

où les symboles  $:$  et  $\otimes$  correspondent respectivement au produit contracté et au produit tensoriel [22]. Chacune des composantes de Fourier est obtenue par couplage entre les deux champs restants. Ainsi, la polarisation non linéaire à  $\omega_3$  est induite par les composantes de Fourier des champs à  $+\omega_1$  et  $+\omega_2$ . De même, la polarisation non linéaire à  $\omega_1$  ( $\omega_2$ ) est induite par les composantes des champs à  $+\omega_3$  et  $-\omega_2$  ( $+\omega_3$  et  $-\omega_1$ ).

Dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable, il vient :

$$\left| \frac{\partial^2 A_n}{\partial z^2} \right| \ll \left| 2ik_n \frac{\partial A_n}{\partial z} \right|. \quad (1.14)$$

La combinaison des équations (1.12), (1.13) et (1.14) conduit alors à un système de trois équations différentielles couplées relatives aux amplitudes des champs électriques des ondes en interaction. Ce système est le suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = -\frac{i\omega_1}{2n(\omega_1)c} A_3 A_2^* \chi_{\text{eff}} e^{-i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = -\frac{i\omega_2}{2n(\omega_2)c} A_3 A_1^* \chi_{\text{eff}} e^{-i\Delta k z}. \\ \frac{\partial A_3}{\partial z} = -\frac{i\omega_3}{2n(\omega_3)c} A_1 A_2 \chi_{\text{eff}} e^{i\Delta k z} \end{cases} \quad (1.15)$$

Le paramètre  $\Delta k$  correspond au désaccord de phase entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne. Il est exprimé par la relation :

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1. \quad (1.16)$$

La configuration de polarisation et la non-linéarité interviennent au niveau des trois paramètres suivants :

$$\begin{aligned} \chi(\omega_1) &= \vec{e}_1^\top \cdot \chi^{(2)} : \vec{e}_3^\top \otimes \vec{e}_2^\top \\ \chi(\omega_2) &= \vec{e}_2^\top \cdot \chi^{(2)} : \vec{e}_1^\top \otimes \vec{e}_3^\top \\ \chi(\omega_3) &= \vec{e}_3^\top \cdot \chi^{(2)} : \vec{e}_1^\top \otimes \vec{e}_2^\top \end{aligned} \quad (1.17)$$

Dans le cas d'un milieu sans absorption, ces trois termes sont égaux et définissent ce qui est appelé le coefficient effectif noté  $\chi_{\text{eff}}$ , soit :

$$\chi_{\text{eff}} = \chi(\omega_1) = \chi(\omega_2) = \chi(\omega_3). \quad (1.18)$$



Ces égalités consistent la symétrie dite d'ABDP [23].

Il est classique d'utiliser les variables réduites  $d_{\text{eff}}$ ,  $\kappa$  et  $a_n$  définies par :

$$d_{\text{eff}} = \frac{1}{2}\chi_{\text{eff}}, \quad (1.19)$$

$$\kappa = d_{\text{eff}} \sqrt{\frac{2\omega_1\omega_2\omega_3}{c^2 n(\omega_1)n(\omega_2)n(\omega_3)}} \hbar, \quad (1.20)$$

et

$$a_n = \frac{A_n}{\sqrt{2\hbar \frac{\omega_n}{n(\omega_n)}}}. \quad (1.21)$$

Le système (1.15) s'écrit alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial a_1}{\partial z} = -j\kappa a_3 a_2^* e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial a_2}{\partial z} = -j\kappa a_3 a_1^* e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial a_3}{\partial z} = -j\kappa a_1 a_2 e^{i\Delta kz} \end{cases} \quad (1.22)$$

Le paramètre  $a_n$  permet de définir facilement le courant de photons, qui est donné par :  $|a_n|^2$ . L'intensité  $I_n$  de l'onde à la pulsation  $\omega_n$  s'écrit alors :

$$I_n = \hbar\omega_n |a_n|^2 = \frac{1}{2}n(\omega_n)\varepsilon_0 c |A_n|^2. \quad (1.23)$$

À partir de l'équation (1.22), il est possible d'établir les égalités suivantes, qui constituent les relations de Manley-Rowe [24] :

$$\frac{d|a_1|^2}{dz} = \frac{d|a_2|^2}{dz} = -\frac{d|a_3|^2}{dz}. \quad (1.24)$$

Ces égalités montrent que lors du mélange à trois ondes, l'annihilation d'un photon à  $\omega_3$  est toujours associée à la création de deux photons à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . De même, l'annihilation d'un photon à  $\omega_1$  et à  $\omega_2$  est associée à la création d'un photon à  $\omega_3$ . Ainsi, la quantité totale de photons n'est pas conservée lors du processus paramétrique, contrairement à l'intensité totale des trois ondes. La conservation de cette dernière est évidente puisqu'elle est directement liée à la conservation de l'énergie.

### 1.1.2 Différence de fréquences

Jusqu'à présent, nous avons considéré trois ondes aux fréquences  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  satisfaisant l'équation (1.8). À partir de maintenant, les pulsations de ces ondes seront appelées  $\omega_p$ ,  $\omega_s$  et  $\omega_c$  respectivement pour les ondes de pompe, signal et complémentaire. La différence de fréquences consiste à générer une onde à la pulsation  $\omega_c$  à partir de deux ondes incidentes aux pulsations  $\omega_p$  et  $\omega_s$ , comme le montre la FIGURE 1.1. Généralement, les intensités de ces ondes sont comparables. En utilisant les nouvelles notations, la relation

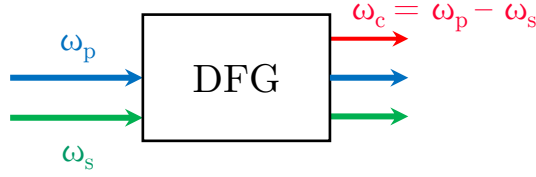


FIGURE 1.1 – Schéma de principe de la différence de fréquences entre deux ondes à  $\omega_p$  et  $\omega_s$  d'intensité comparable.

de conservation de l'énergie se réécrit :

$$\omega_c = \omega_p - \omega_s \text{ avec } \omega_c \leq \omega_s < \omega_p. \quad (1.25)$$

L'intensité de l'onde complémentaire générée dans le cristal est gouvernée par le système d'équations couplées (1.22). Dans le cas où l'efficacité de conversion est faible, l'intensité des ondes incidentes peut être considérée comme constante lors de la propagation à travers le cristal. Cette hypothèse, aussi appelée approximation de la pompe non dépeuplée, s'écrit alors :

$$\begin{cases} a_p(0) = a_p(L) \\ a_s(0) = a_s(L) \end{cases}, \quad (1.26)$$

où  $L$  est la longueur du cristal. Dans ce cas, le système d'équations couplées se réduit à une seule équation qui décrit l'évolution de l'amplitude de l'onde générée à  $\omega_c$  :

$$\frac{\partial a_c}{\partial z} = -i\kappa a_p(0)a_s(0)e^{-i\Delta kz}. \quad (1.27)$$

En sortie du cristal, l'amplitude du champ à  $\omega_c$  s'écrit :

$$a_c(L) = -i\kappa a_p(0)a_s(0)L e^{-i\frac{\Delta kL}{2}} \cdot \text{sinc}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right). \quad (1.28)$$

De même, l'intensité s'écrit :

$$I_c(L) = |a_c(L)|^2 = I_p(0)I_s(0)\kappa^2 L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right). \quad (1.29)$$

Cette équation montre que l'efficacité de conversion est maximale lorsque :

$$\Delta k = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c = 0, \quad (1.30)$$

c'est-à-dire lorsque la polarisation induite à  $\omega_c$  est en phase avec le champ qu'elle rayonne. Cette relation est appelée la relation d'accord de phase. La FIGURE 1.2 montre l'intensité normalisée de l'onde générée à  $\omega_c$  par différence de fréquences en fonction du désaccord de phase. La largeur à 40,5 % de l'intensité maximale donne l'acceptance du cristal [22]. Le paramètre  $\Delta k$  dépend de l'indice de réfraction du milieu aux pulsations  $\omega_p$ ,  $\omega_s$  et  $\omega_c$ . Il dépend donc de tout paramètre dispersif de l'indice, comme la fréquence, la température ou la direction de propagation par exemple. Nous verrons dans la section 3.1 comment

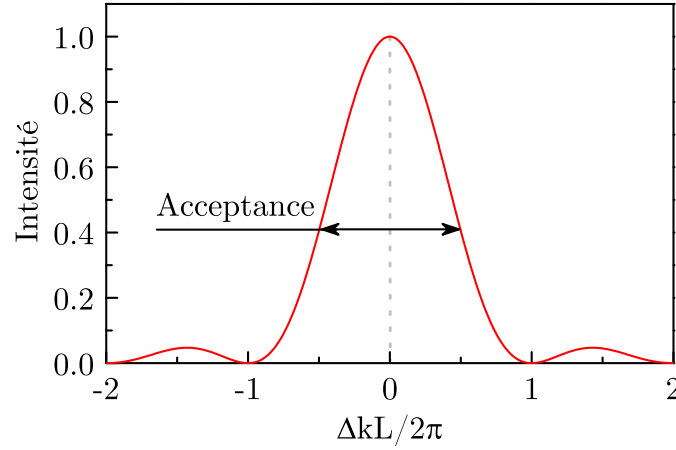


FIGURE 1.2 – Intensité normalisée de l’onde générée à  $\omega_c$  en fonction du désaccord de phase.

mesurer l’acceptance spectrale ainsi que l’acceptance en température d’un cristal. L’acceptance spectrale est un paramètre important à connaître que ce soit de manière théorique ou expérimentale. En effet selon les applications visées, il y aura un choix à faire vis-à-vis de la valeur de cette acceptance. Dans le cas d’un OPO fin spectralement par exemple, c’est plutôt une largeur spectrale étroite qu’il faudra choisir tandis que dans un OPA, cela sera plutôt une acceptance élevée afin de permettre l’amplification sur toute la plage spectrale d’un faisceau, et ce sans pour autant changer la température ou l’angle du cristal. Il est à noter que pour l’amplification paramétrique, la bande de gain peut s’approcher à son acceptance spectrale.

### 1.1.3 Amplification paramétrique optique

L’amplification paramétrique optique correspond au même schéma de principe que celui de la différence de fréquences. La seule différence tient au fait qu’on ne s’intéresse pas à l’onde à  $\omega_c$ , celle qui n’est pas incidente, mais à l’onde incidente à  $\omega_s$ , qui va connaître une amplification d’intensité au cours de la propagation dans le milieu non linéaire. Ainsi cette interaction est utilisée pour amplifier une onde signal de très faible intensité. L’intensité de l’onde de pompe est alors prise très grande, car c’est elle qui constituera le réservoir d’énergie. Le schéma de principe de l’amplificateur paramétrique optique est présenté dans la FIGURE 1.3. Ici, nous faisons l’hypothèse que seule l’onde de pompe n’est pas dépeuplée, c’est-à-dire  $a_p(0) = a_p(L)$ . Ainsi, le système d’équations couplées (1.22) devient :

$$\begin{cases} \frac{\partial a_s}{\partial z} = -j\kappa a_p(0)a_c^*e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial a_c}{\partial z} = -j\kappa a_p(0)a_s^*e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (1.31)$$

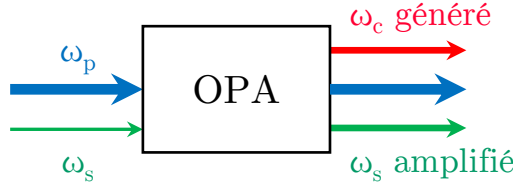


FIGURE 1.3 – Schéma de principe d'un amplificateur paramétrique optique entre deux ondes à  $\omega_p$  et  $\omega_s$  avec  $a_p \gg a_s$ .

En dérivant  $\frac{\partial a_s}{\partial z}$  et  $\frac{\partial a_c}{\partial z}$  par rapport à  $z$ , il est possible de montrer que  $a_s$  et  $a_c$  sont tous les deux solutions de la même équation différentielle partielle du second ordre :

$$\frac{\partial^2 a}{\partial z^2} + j\Delta k \frac{\partial a}{\partial z} - \gamma_0^2 a, \quad (1.32)$$

où  $\gamma_0$  est le gain paramétrique donné par  $\gamma_0^2 = \kappa^2 a_p(0)^2 = \kappa^2 \frac{I_p(0)}{h\omega_n}$ .

Lors du processus d'amplification paramétrique, tout comme pour la différence de fréquences, l'onde à  $\omega_c$  est générée à l'intérieur du cristal. Ainsi,  $a_c(0) = a_c^*(0) = 0$  à l'entrée du cristal. Cette condition initiale permet de déterminer les solutions de l'équation (1.32) :

$$\begin{cases} I_s(L) = I_s(0) \left( 1 + \frac{\gamma_0^2}{\gamma^2} \sinh^2(\gamma L) \right) \\ I_c(L) = I_s(0) \frac{\lambda_s}{\lambda_c} \frac{\gamma_0^2}{\gamma^2} \sinh^2(\gamma L) \end{cases}, \quad (1.33)$$

où  $\gamma$  est défini par  $\gamma^2 = \gamma_0^2 - (\frac{\Delta k}{2})^2$ . Ces équations montrent bien que lors du processus d'amplification paramétrique, il y a génération de l'onde complémentaire dans le cristal et amplification de l'onde signal.

Lorsque des miroirs sont placés de part et d'autre du cristal pour former un résonateur optique, il est possible de réaliser une oscillation paramétrique optique. Ce dispositif, appelé oscillateur paramétrique optique, fait l'objet de la section suivante.

## 1.2 Oscillateurs paramétriques optiques

Dans la section 1.1.3, nous avons vu que l'amplification paramétrique optique donne lieu à l'amplification d'une onde signal incidente à  $\omega_s$  et à la génération d'une onde complémentaire à  $\omega_c$ . L'oscillateur paramétrique optique (OPO), quant à lui, est destiné à générer à la fois l'onde signal et l'onde complémentaire en pompant un cristal non linéaire avec une seule onde, à la pulsation  $\omega_p$ . Il s'agit en fait d'une double amplification paramétrique, à  $\omega_s$  et  $\omega_c$ , ces deux ondes étant générées par les fluctuations quantiques du vide [25]. Le principe de fonctionnement d'un OPO est très similaire à celui d'un laser. Le milieu à gain est placé dans une cavité résonnante afin d'augmenter artificiellement la longueur d'interaction par les allers-retours successifs. Lorsque le gain est supérieur aux pertes, l'oscillation démarre et les ondes résonnantes s'amplifient par passages successifs dans le cristal. Cependant dans le cas de l'OPO, l'émission ne dépend pas des transitions

atomiques du matériau, mais de la relation d'accord de phase (1.30), ce qui permet d'obtenir une large accordabilité en longueur d'onde dictée par les propriétés du cristal. En pratique, cette accordabilité est limitée par la transmission du cristal, par les réflectivités des miroirs de cavité comme nous allons le voir dans la section 3.2, ou encore par des limitations sur l'angle de rotation du cristal ou l'excursion en température.

Dans un OPO, et plus généralement dans le cas du mélange à trois ondes, aucune énergie n'est stockée dans le milieu non linéaire. Ainsi contrairement au laser, il est impossible de « jouer » sur la dynamique de relaxation de l'énergie pour obtenir des impulsions à partir d'un pompage continu. Les caractéristiques temporelles du signal et du complémentaire seront d'abord imposées par celles du faisceau de pompe. Ainsi, selon le régime temporel choisi, l'OPO devra être pompé en régime continu ou impulsionnel.

Le pompage continu permet d'atteindre naturellement le régime stationnaire. Comme dans un laser, le mode dont le gain est le plus élevé « écrase » progressivement les autres modes pendant le régime transitoire. Le spectre émis par un OPO continu est donc généralement monofréquence, sauf pour des forts taux de pompage où des instabilités peuvent apparaître [26]. A contrario, lors du pompage en régime impulsionnel nanoseconde, le spectre n'a pas le temps de s'établir définitivement. D'un « tir » à l'autre, l'OPO redémarre sur la fluorescence paramétrique spontanée [25]. La faible compétition de mode implique que l'OPO émet plusieurs longueurs d'onde simultanément. Ces longueurs d'onde peuvent être différentes, et leur intensité peut varier tir à tir. De ce fait, un OPO pompé en régime nanoseconde est naturellement multimode, ce qui peut rendre la source très large spectralement. Il existe alors plusieurs techniques d'affinage du spectre afin d'obtenir un faisceau monomode longitudinal, comme l'utilisation d'un étalon de Fabry-Perot ou d'autres filtres intra cavité, exactement comme cela se fait pour affiner un laser. Mais dans le cadre de cette thèse, nous utiliserons une architecture d'OPO à cavités imbriquées, qui a été développée et brevetée à l'Onera, afin d'obtenir une émission monomode longitudinale et aussi largement accordable. Cette architecture sera abordée plus en détail dans la section 1.2.3.

Dans le cas des OPO en régime nanoseconde, l'idée consiste à réaliser des cavités optiques beaucoup plus courtes que l'extension spatiale de la pompe. Ainsi, le signal et le complémentaire peuvent effectuer plusieurs allers-retours dans la cavité et être amplifiés par la même impulsion de pompe à des instants différents. En revanche, pour des impulsions picosecondes et femtosecondes qui ont une extension spatiale très courte, typiquement quelques fractions de millimètres, il est impossible d'utiliser cette technique. L'oscillation est alors assurée par pompage synchrone : les longueurs de cavités sont ajustées pour qu'après un aller-retour, l'impulsion signal générée soit synchronisée avec l'impulsion de pompe suivante [27]. L'OPO émet alors un train d'impulsions dont la durée est similaire à celui de la pompe.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous concentrerons uniquement sur les processus paramétriques en régime temporel nanoseconde.

### 1.2.1 Oscillateurs paramétriques optiques simplement et doublement résonnants

Dans un OPO, deux ondes à  $\omega_s$  et  $\omega_c$  sont générées à partir d'une onde de pompe à  $\omega_p$ . La cavité peut être également choisie résonnante à une ou plusieurs ondes. Il s'agit alors d'OPO simplement résonnant (SROPO) lorsqu'une seule onde oscille dans la cavité. De même, l'OPO est doublement résonnant (DROPO) lorsque le signal et le complémentaire oscillent tous les deux dans la cavité.

#### Oscillateurs paramétriques optiques simplement résonnants

Les oscillateurs paramétriques optiques simplement résonnants sont les OPO les plus simples à concevoir. En effet dans un SROPO, seule une des ondes signal ou complémentaire est résonnante, et la cavité se compose de deux miroirs hautement réfléchissants à l'onde choisie et transparents aux deux autres ondes. Dans l'exemple présenté dans la FIGURE 1.4, c'est l'onde signal qui est résonnante dans une cavité formée par deux miroirs concaves, tandis que l'onde complémentaire est extraite à la sortie de l'oscillateur. Dans

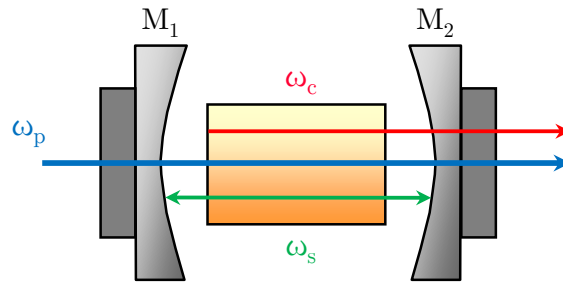


FIGURE 1.4 – Schéma de principe d'un OPO simplement résonnant à l'onde signal. En bleu, l'onde de pompe, en vert, l'onde signal, et en rouge, l'onde complémentaire.

l'approximation des ondes planes et lorsque la condition d'accord de phase est respectée, l'intensité de la pompe au seuil en régime continu est donnée par [28] :

$$I_{\text{th}} = \left( \frac{\cosh^{-1}\left(\frac{1}{\sqrt{R}}\right)}{\kappa L} \right)^2, \quad (1.34)$$

où  $\kappa$  est le coefficient défini dans l'équation (1.20),  $R$  est le coefficient de réflexion des miroirs supposés identiques pour l'onde signal, et  $L$  est la longueur du cristal. Contrairement au régime continu, la compétition de mode ne suffit pas à atteindre un fonctionnement monomode dans un SROPO en régime nanoseconde. En effet, en régime pulsé, l'OPO redémarre sur le bruit quantique de la fluorescence paramétrique d'un tir à l'autre [29]. Les modes émis varient donc tir à tir, rendant l'OPO naturellement multimode. Plusieurs techniques existent afin de rendre l'émission monofréquence comme l'insertion d'un étalon de Fabry-Perot dans la cavité [26], l'utilisation d'éléments dispersifs (réseau de Bragg en volume ou réseau de diffraction) [30, 31], ou encore l'association d'un SROPO et d'une

source d'injection spectralement fine [29, 32]. Cependant, ces sources sont souvent complexes, limitées en gamme spectrale, peuvent dégrader la qualité spatiale du faisceau, ou encore augmenter le seuil d'oscillation dans le cas d'ajout d'éléments intra cavité. Pour la détection de gaz à distance, où des sources largement accordables et fines spectralement sont nécessaires, les SROPO ne sont pas adaptés. Dans cette étude, nous restreindrons leur utilisation à la caractérisation de cristaux (section 3.1.2) ou d'éléments optiques (section 4.2.5), ainsi que pour établir des preuves de concept (section 3.2).

### Oscillateurs paramétriques optiques doublement résonnants

Dans le cas des OPO doublement résonnants, l'onde signal et l'onde complémentaire oscillent toutes les deux dans la cavité. La FIGURE 1.5 présente un exemple de DROPO où les cavités signal et complémentaire sont composées des mêmes miroirs concaves  $M_1$  et  $M_2$ . L'intensité de la pompe au seuil en régime continu et dans l'approximation des ondes

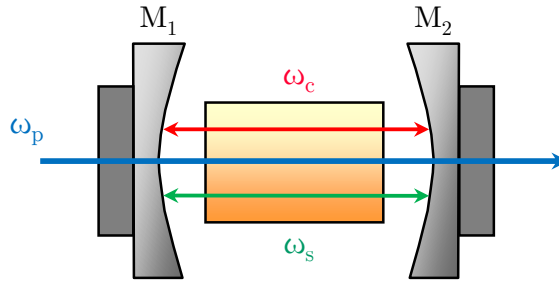


FIGURE 1.5 – Schéma de principe d'un OPO doublement résonnant où les deux ondes à  $\omega_s$  et à  $\omega_c$  oscillent dans la même cavité.

planes lorsque que la condition d'accord de phase est respectée est donnée par [28] :

$$I_{\text{th}} = \left( \frac{\ln\left(\frac{1}{\sqrt{R}}\right)}{\kappa L} \right)^2, \quad (1.35)$$

où  $R$  est le coefficient de réflexion des miroirs supposés identiques pour l'onde signal et l'onde complémentaire. L'équation (1.35) montre que pour un même système optique, c'est-à-dire même longueur de cristal, même longueur d'onde de pompe, et même coefficient de réflectivité des miroirs, un DROPO aura tendance à avoir un seuil moins élevé qu'un SROPO. Par exemple, un DROPO dont les miroirs réfléchissent 90% du signal et du complémentaire a un seuil au moins 100 fois plus faible qu'un SROPO réfléchissant 90% du signal :

$$\frac{I_{\text{th}}^{\text{SROPO}}}{I_{\text{th}}^{\text{DROPO}}} = \frac{1}{\left( \cosh\left(\frac{1}{\sqrt{0.9}}\right) \cdot \ln\left(\frac{1}{\sqrt{0.9}}\right) \right)^2} \approx 139 \Rightarrow I_{\text{th}}^{\text{SROPO}} \approx 139 I_{\text{th}}^{\text{DROPO}} \quad (1.36)$$

Afin de mieux interpréter le spectre d'émission d'un DROPO, il est nécessaire d'introduire le paramètre de dissociation. Il est défini comme l'écart relatif entre les deux

longueurs de cavité, et il s'écrit :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{L_s - L_c}{L_s}, \quad (1.37)$$

où  $L_{(s,c)}$  sont les longueurs de groupe des cavités signal et complémentaire et  $L = L_s$  par convention. Dans un DROPO à cavité commune, les peignes de modes émis ont chacun un intervalle spectral libre légèrement différent à cause de la dispersion dans le cristal. L'équation (1.37) se réécrit alors uniquement à partir des indices de groupe du matériau, soit :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{n_{g,s} - n_{g,c}}{n_{g,s}}. \quad (1.38)$$

De plus, au premier ordre et loin de la dégénérescence, la largeur de la bande de gain en double passage de pompe s'écrit :

$$\Delta\sigma = \frac{1}{2L_{\text{cri}}(n_{g,s} - n_{g,c})}, \quad (1.39)$$

où  $L_{\text{cri}}$  est la longueur du cristal. Dans ce cas, le nombre de modes émis est naturellement limité, et le spectre d'émission est plus fin que dans un SROPO. Cependant, sans configuration particulière des cavités et sans asservissement, l'émission est très instable. En effet dans un DROPO conventionnel, une légère fluctuation de la longueur de cavité peut entraîner des sauts de modes. Une application de DROPO à cavité commune est le « sheet OPO », qui a été développé pendant la thèse de Q. Clément [8]. Dans cet OPO, la longueur du cristal non linéaire est inférieure à la longueur de cohérence des interférences et les miroirs de cavité sont déposés directement sur les faces du cristal. Cette architecture permet notamment d'obtenir une bande de gain instantanée plus large que dans les OPO classiques, et d'émettre des couples de longueurs d'onde a priori interdits par l'accord de phase par biréfringence, en conservant le caractère monomode. L'accordabilité peut se faire par saut de modes, en faisant varier la longueur d'onde de pompe, la longueur de cavité ou la température du cristal. Un autre moyen de contrôler le spectre d'émission d'un DROPO est d'utiliser des OPO à cavités imbriquées (NesCOPO), comme nous allons le voir dans la section 1.2.3.

## 1.2.2 Effets liés au retour de pompe

Pour maximiser la conversion non linéaire et réduire le seuil d'oscillation dans un DROPO ou un SROPO, il est possible d'effectuer un double passage de pompe. La FIGURE 1.6 montre un exemple d'OPO doublement résonant avec double passage de pompe. Le miroir  $M_2$  est un miroir doré réfléchissant toutes les ondes. L'expression du gain théorique en régime continu, défini comme l'inverse du seuil d'oscillation, d'un DROPO à double passage de pompe s'écrit [33] :

$$G = \frac{1}{K} \left[ 1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi + \Delta kL) \right] \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta kL}{2} \right), \quad (1.40)$$

où  $R_p$  est la réflectivité en intensité du miroir  $M_2$  à l'onde de pompe,  $L$  est la longueur du cristal,  $\Delta\varphi = \varphi_p - \varphi_s - \varphi_c$  est le déphasage relatif entre les ondes au retour après



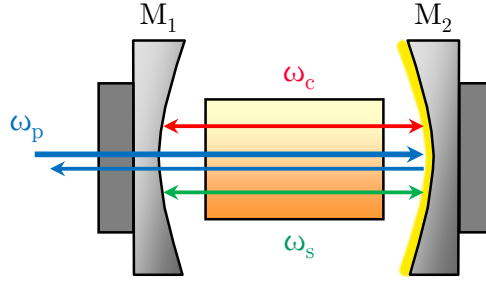


FIGURE 1.6 – Schéma de principe d'un OPO doublement résonnant avec retour de pompe où les deux ondes à  $\omega_s$  et à  $\omega_c$  oscillent dans la même cavité.

réflexion sur  $M_2$ , et  $K$  s'écrit :

$$K = 128\pi^3 d_{\text{eff}}^2 L^2 \frac{\omega_s \omega_c}{n(\omega_p) n(\omega_s) n(\omega_c) c^3}. \quad (1.41)$$

L'équation (1.40) indique que la forme de la bande de gain dépend essentiellement du coefficient de réflectivité  $R_p$  et du déphasage relatif entre les ondes  $\Delta\varphi$ .

La FIGURE 1.7 a) montre l'effet de  $R_p$  sur le gain en fonction du désaccord de phase pour un déphasage relatif optimal de  $\Delta\varphi = 0$ . Le cas où  $R_p = 0$  correspond au gain en

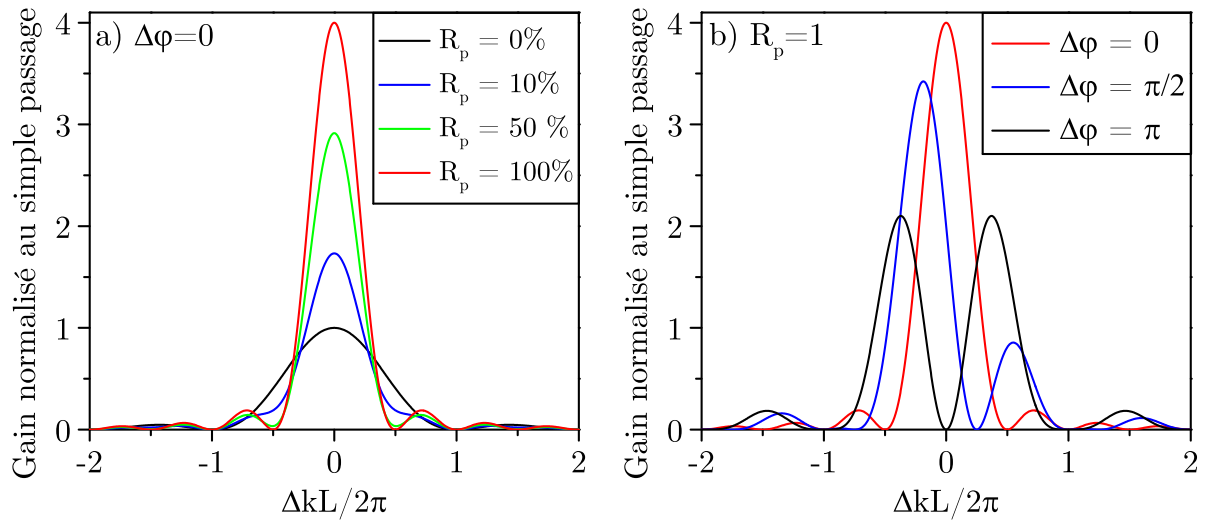


FIGURE 1.7 – a) Influence du coefficient de réflectivité  $R_p$  sur le gain théorique en fonction du désaccord de phase  $\Delta k$ , pour un déphasage relatif entre les ondes nul ( $\Delta\varphi = 0$ ). b) Influence du déphasage relatif entre les ondes  $\Delta\varphi$  sur le gain théorique en fonction du désaccord de phase, pour  $R_p = 1$ .

simple passage, qui est proportionnel au terme en sinus cardinal au carré. Dans le cas limite inverse, où  $R_p = 1$ , le gain est multiplié par un facteur 4. Ceci permet donc de diviser le seuil d'oscillation par un facteur 4. De plus, le double passage de la pompe permet

d'affiner l'acceptance spectrale d'un facteur 2, et donc de réduire le nombre de modes oscillants dans la bande de gain [33]. Cet aspect du double passage est particulièrement intéressant afin de rendre l'oscillation monofréquence.

Comme mentionné précédemment, la forme de la bande de gain dépend aussi du déphasage relatif entre les ondes. La FIGURE 1.7 b) montre l'effet de  $\Delta\varphi$  sur le gain en fonction du désaccord de phase pour  $R_p = 1$ . L'équation (1.40) montre que le terme en cosinus n'admettra pas les mêmes zéros selon la valeur de  $\Delta\varphi$ . Ceci a pour effet de moduler la bande de gain. Comme indiqué sur la FIGURE 1.7 b), lorsque  $\Delta\varphi = \pi$ , les ondes sont en opposition de phase et la bande de gain présente deux lobes. Leur intensité est deux fois moins élevée que lorsque où le déphasage relatif est idéal, c'est-à-dire pour  $\Delta\varphi = 0$ . Ceci implique un seuil deux fois plus élevé. Dans cette configuration, l'oscillation est plus difficile à atteindre, surtout dans le cas où le seuil de dommage du cristal est proche du seuil d'oscillation. Il devient donc essentiel de pouvoir contrôler la phase au retour. Une technique consiste à polir la face de sortie du cristal sous forme prismatique. Le cristal agit alors comme une lame de phase variable permettant d'ajuster la phase relative entre les ondes.

### 1.2.3 NesCOPO : oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées

Comme nous l'avons vu dans les sections 1.2.1 et 1.2.2, il est possible d'affiner le spectre d'émission en utilisant un DROPO avec double passage de pompe. Cependant, l'émission de ces OPO est très instable, de sorte qu'il est nécessaire de contrôler individuellement les peignes de modes émis. Pour cela, il a été proposé de séparer physiquement les cavités signal et complémentaire. Cette architecture – appelée NesCOPO – permet d'obtenir un faisceau monomode longitudinal et largement accordable en ajustant séparément chacune des longueurs de cavités [34]. La FIGURE 1.8 présente le schéma de principe d'un NesCOPO avec double passage de pompe. Les ondes signal et complémentaire oscillent

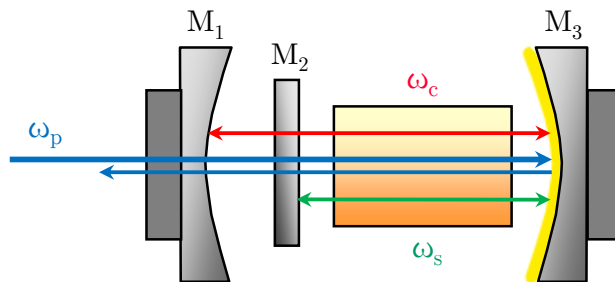


FIGURE 1.8 – Schéma de principe du NesCOPO en configuration double passage. La cavité signal est composée des miroirs  $M_2 - M_3$  et la cavité complémentaire des miroirs  $M_1 - M_3$ .

respectivement entre les miroirs  $M_2 - M_3$  et  $M_1 - M_3$ . Dans le cas du double passage, le miroir commun  $M_3$  réfléchit aussi l'onde de pompe. Ceci a pour effet de baisser le seuil d'oscillation de l'OPO et de réduire les effets de Fabry-Perot parasite [35].

Pour comprendre le mécanisme de sélection spectrale d'un NesCOPO, il est intéressant d'introduire le diagramme de Giordmaine et Miller (FIGURE 1.9) [36]. Ce diagramme

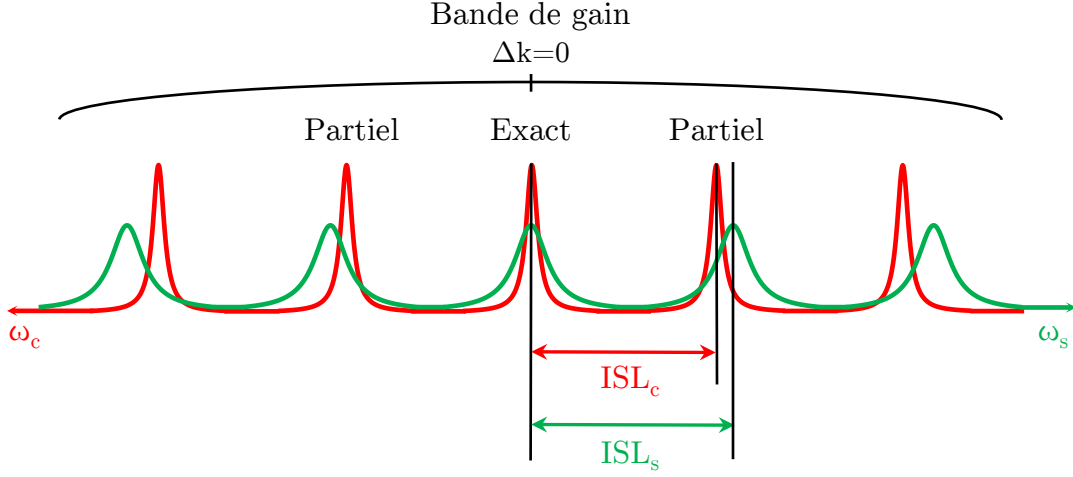


FIGURE 1.9 – Illustration de la sélection de mode dans un NesCOPO en utilisant le diagramme de Giordmaine et Miller [36]. Les modes signal (vert) et complémentaire (rouge) sont représentés avec des axes de directions opposées de façon à ce qu'une ligne verticale corresponde à la relation de conservation d'énergie. L'acronyme ISL correspond à « intervalle spectral libre ».

permet de représenter la répartition des doubles coïncidences au sein de la bande de gain pour un OPO doublement résonnant. Les peignes de modes signal et complémentaire, respectivement en vert et en rouge, y sont représentés avec des axes de directions opposées de façon à ce qu'une ligne verticale corresponde à la relation de conservation de l'énergie (1.25) :  $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ . Ainsi, un mode signal ne peut osciller que s'il est en coïncidence avec un mode complémentaire. Mathématiquement, la condition de double oscillation peut s'écrire de la façon suivante :

$$\begin{cases} \omega_s = q_s \frac{\pi c}{L_s} \\ \omega_c = q_c \frac{\pi c}{L_c} \end{cases} \quad (1.42)$$

où  $L_{(s,c)}$  sont les longueurs optiques des cavités signal et complémentaire, et  $q_{(s,c)}$  sont des nombres entiers. La coïncidence est qualifiée d'exacte lorsqu'un mode signal se superpose à un mode complémentaire avec un recouvrement maximum. Lorsque le recouvrement n'est pas total, mais suffisant pour initier l'oscillation, c'est-à-dire lorsque le gain est supérieur aux pertes, alors des modes voisins peuvent osciller. Les coïncidences sont alors dites partielles.

Dans un NesCOPO, le contenu spectral de l'émission peut être contrôlé en ajustant le paramètre de dissociation donné par l'équation (1.37). En considérant une dispersion négligeable autour de chaque fréquence porteuse, l'écart entre deux coïncidences s'écrit alors :

$$\Delta\omega_{s,c} \simeq \frac{L}{\Delta L} \cdot \frac{\pi c}{n_{g,(s,c)} L} = \frac{L}{\Delta L} \cdot 2\pi \text{ISL}_{(s,c)}, \quad (1.43)$$

avec  $n_{g,(s,c)}$  l'indice de groupe de l'onde considérée et où  $ISL_{(s,c)}$  est l'intervalle spectral libre exprimé en Hz. D'après l'équation (1.43), les coïncidences sont plus proches lorsque le paramètre de dissociation est élevé. Dans cette configuration, plusieurs coïncidences

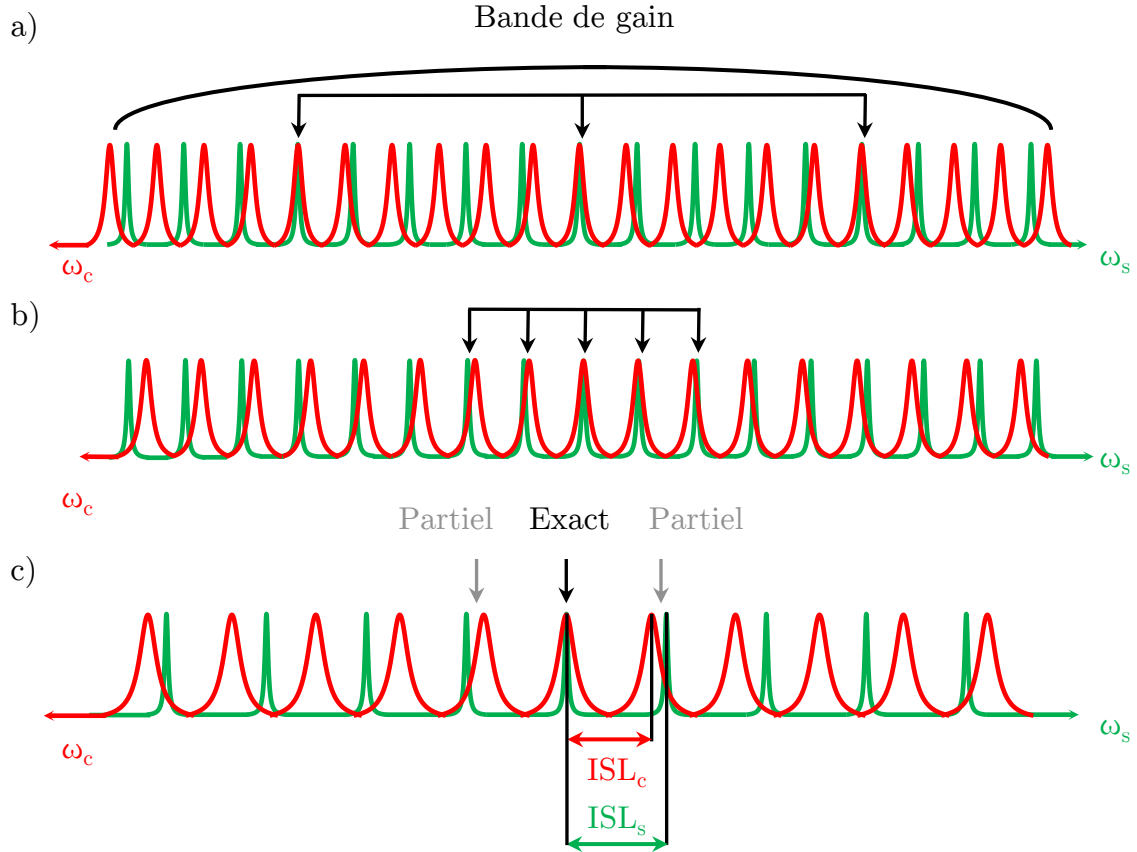


FIGURE 1.10 – Effet du paramètre de dissociation sur le spectre d'émission. a) Dissociation élevée : plusieurs coïncidences exactes existent dans la bande de gain (émission multimode). b) Faible dissociation : émission de clusters de mode (émission multimode). c) Dissociation intermédiaire : une seule coïncidence exacte existe dans la bande de gain (émission monomode).

exactes peuvent alors osciller dans la bande de gain, ce qui donne lieu à une émission multimode (FIGURE 1.10 a)). Inversement, une faible valeur du paramètre de dissociation permet de séparer les coïncidences exactes les unes des autres, mais augmente le recouvrement entre les modes voisins : le NesCOPO émet alors un cluster de modes qui comprend plusieurs coïncidences partielles (FIGURE 1.10 b)). Dans les deux cas, le spectre d'émission est multimode. Afin d'avoir un fonctionnement monomode longitudinal, il est nécessaire de choisir une valeur intermédiaire du paramètre de dissociation de façon à avoir une seule coïncidence exacte dans la bande de gain, et ce tout en s'affranchissant des coïncidences partielles (FIGURE 1.10 c)). En pratique, il est possible de déterminer la valeur adéquate du paramètre de dissociation par simulation numérique [37, 38]. Cela revient à calculer l'intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en tenant compte de la finesse des cavités, de la largeur de la bande de

gain, et du taux de pompage. Un exemple de simulation est donné dans la FIGURE 1.11 pour les paramètres suivants : coefficients de finesse de 28 et 11 pour les cavités signal et complémentaire respectivement, bande de gain de  $10,5 \text{ cm}^{-1}$ , et taux de pompage de 2.

La FIGURE 1.11 (haut) montre l'intégrale de recouvrement entre les modes signal et leur mode complémentaire le plus proche en fonction du paramètre de dissociation  $\Delta L/L$  et du nombre de modes signal  $n$ . Les points en rouge sont ceux pour lesquels le recouvrement entre les modes est maximal : il s'agit des coïncidences exactes représentées sous la forme de branches d'hyperboles. Pour déterminer le contenu spectral de l'OPO, seuls les recouvrements intervenants dans la bande de gain sont à prendre en compte : dans cet exemple, 40 modes signal au maximum peuvent osciller dans la bande de gain. Afin de rendre ce graphe plus exploitable, il est intéressant d'effectuer sa projection sur l'axe  $\Delta L/L$ . La FIGURE 1.11 (bas) représente l'intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en fonction du paramètre de dissociation pour 40 modes signal. La ligne rouge représente le seuil au-delà duquel les coïncidences partielles peuvent osciller pour le taux de pompage choisi. Dans cet exemple numérique, le comportement multimode de la FIGURE 1.10 a) est obtenu dans la zone (3) pour une valeur élevée du paramètre de dissociation. De même, le cluster de modes de la FIGURE 1.10 b) est obtenu lorsque le paramètre de dissociation est faible (zone (1)). Finalement, pour obtenir un fonctionnement monomode longitudinal, il est nécessaire de fixer le paramètre de dissociation à quelques pourcents (zone (2)).

Une fois le paramètre de dissociation fixé afin d'obtenir l'oscillation monomode, il est possible d'effectuer un accord fin en longueur d'onde en ajustant finement les longueurs de cavités. D'après l'équation (1.42), changer la longueur de cavité revient à changer les peignes de fréquence émis. Plus précisément, cela revient à dilater l'intervalle spectral libre de la cavité. Au premier ordre et à l'échelle de quelques modes, cet effet peut être approximé à une translation dans le diagramme de Giordmaine et Miller. Dans le cas du NesCOPO, l'ajustement fin des longueurs de cavité est obtenu grâce à des cales piézo-électriques montées sur les miroirs  $M_1$  et  $M_3$ . Déplacer  $M_1$ , revient à changer la longueur de la cavité complémentaire, ce qui crée des sauts de mode dans la bande de gain. Ainsi, un jeu discret de longueurs d'onde peut être émis. Lorsque  $M_3$  est déplacé, les deux longueurs de cavité changent, ce qui donne accès à un nouveau jeu de longueurs d'onde. Ce mécanisme est l'équivalent optique de l'effet Vernier. Il est également possible d'étendre l'accordabilité des NesCOPO en chauffant le cristal non linéaire pour décaler la longueur d'onde centrale de la bande de gain. Il est intéressant de noter que dans un NesCOPO, tout comme dans un DROPO conventionnel, la relation d'accord de phase n'est pas stricte, car le mécanisme de sélection par sauts de modes permet l'émission d'un faisceau monofréquence dans toute la bande de gain.

Pour des taux de pompage élevés, des phénomènes de saturation dus à la reconversion des ondes signal et complémentaire vers la pompe apparaissent, ce qui a pour effet de créer de nouvelles fréquences. Il est donc difficile d'extraire une énergie élevée d'un DROPO tout en restant monofréquence par mélanges croisés. Une technique pour la détection de gaz à longue distance, où des énergies de l'ordre du millijoule sont nécessaires, consiste à émettre un faisceau monomode longitudinal grâce à un NesCOPO, puis de l'amplifier dans des étages d'amplification paramétrique. Dans le cadre de cette thèse nous aborderons un exemple d'une telle architecture dans la section 4.1.

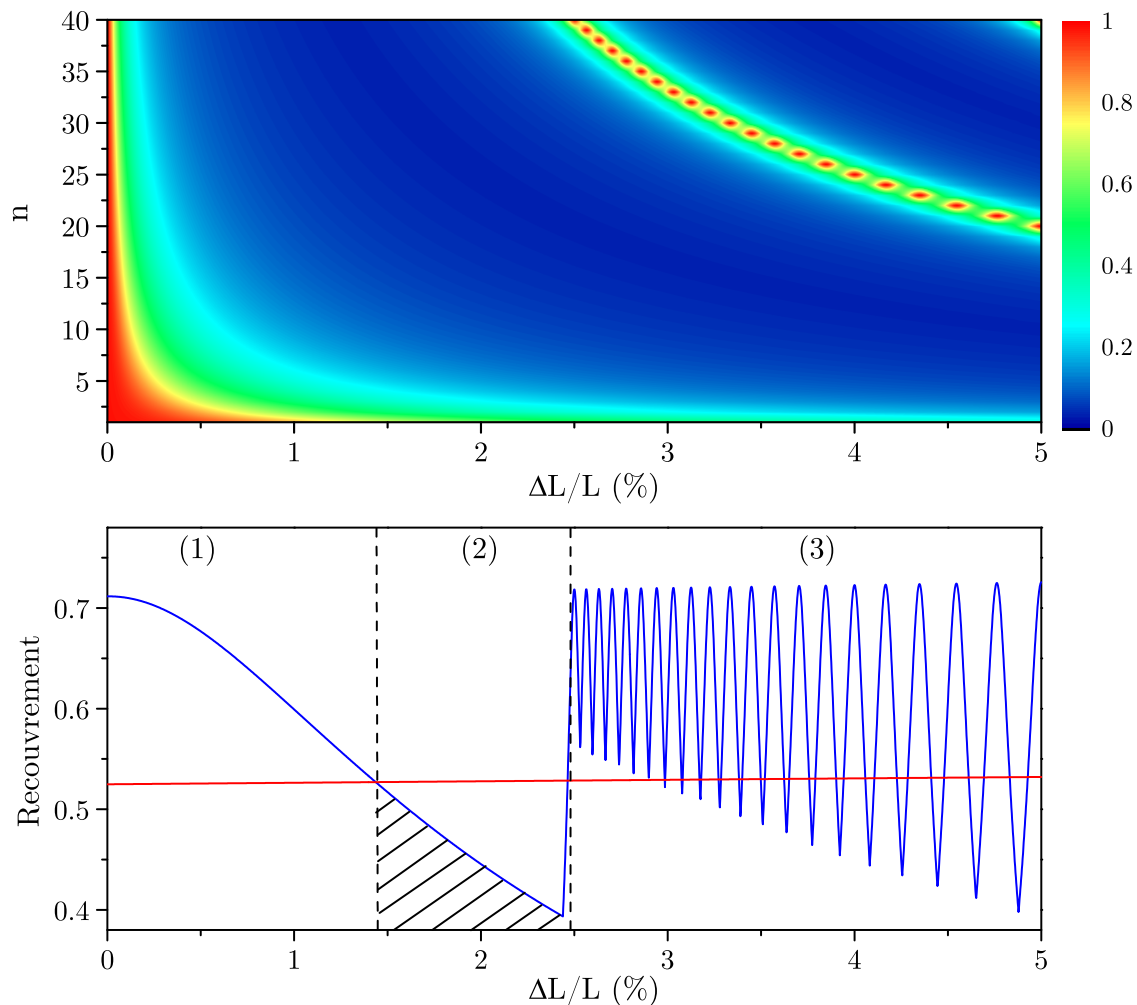


FIGURE 1.11 – Haut : intégrale de recouvrement entre les modes signal et leur mode complémentaire le plus proche en fonction du paramètre de dissociation et du nombre de modes signal. Bas : intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en fonction du paramètre de dissociation  $\Delta L/L$ . La ligne rouge correspond au recouvrement minimal au-dessus duquel les modes voisins peuvent osciller pour un taux de pompage de 2. Zone (1) : émission d'un cluster de modes, zone (2) : fonctionnement monomode stable et zone (3) : fonctionnement multimode comprenant plusieurs coïncidences exactes.

## 1.3 Accord de phase dans les cristaux non linéaires

Comme nous avons pu le voir précédemment, les ondes qui se propagent dans le milieu non linéaire doivent vérifier à la fois la relation de conservation de l'énergie (1.8) et la condition d'accord de phase (1.30). Dans cette section, nous présentons les deux principales méthodes permettant de réaliser la condition d'accord de phase : l'accord de phase dit par biréfringence, et le quasi-accord de phase. Pour chacune de ces deux méthodes, nous aborderons uniquement les concepts théoriques nécessaires à la compréhension des différents cristaux utilisés pendant cette étude. Le TABLEAU 1.3 (page 35) à la fin de ce chapitre récapitule tous les cristaux utilisés, leur gamme spectrale d'émission, le type d'accord de phase utilisé, ainsi que les processus paramétriques dans lesquels ils sont mis en jeu.

### 1.3.1 Accord de phase par biréfringence

Dans une direction quelconque d'un milieu anisotrope, l'indice de réfraction peut prendre dans le cas général deux valeurs différentes, elles sont notées  $n^+(\lambda)$  ou  $n^-(\lambda)$  avec  $n^+(\lambda) > n^-(\lambda)$  par convention. À chacun de ces deux indices correspond un état de polarisation spécifique noté  $\vec{E}^+$  et  $\vec{E}^-$  respectivement [22]. La quantité  $n^+(\lambda) - n^-(\lambda)$  est appelée « biréfringence ». Dans le cas où les vecteurs d'onde des trois ondes en interaction sont colinéaires, la relation d'accord de phase par biréfringence s'écrit [39] :

$$\Delta k = \frac{n^{+,-}(\lambda_p, \theta, \varphi)}{\lambda_p} - \frac{n^{+,-}(\lambda_s, \theta, \varphi)}{\lambda_s} - \frac{n^{+,-}(\lambda_c, \theta, \varphi)}{\lambda_c} = 0, \quad (1.44)$$

où  $(\theta, \varphi)$  sont les angles de coordonnées sphériques de la direction de propagation repérée dans le repère diélectrique du cristal noté  $(O, x, y, z)$ . Il existe trois configurations possibles pour cette équation en fonction de l'état de polarisation des ondes : ils sont appelés types I, II, et III. Le type I caractérise les interactions pour lesquelles les deux ondes dont les pulsations sont sommées ou différenciées ont la même polarisation (+ ou -). Pour des polarisations différentes, il s'agira d'accord de phase de type II ou de type III, sans qu'il y ait de convention particulière pour les distinguer.

### Accord de phase par biréfringence dans les cristaux uniaxes : cas de ZGP et CdSe

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons uniquement aux cristaux uniaxes. Dans ce cas, la surface des indices, qui est la distribution angulaire de l'indice de réfraction, est une surface de révolution à deux nappes montrée dans la FIGURE 1.12 : la nappe ordinaire est une sphère de rayon  $n_o$ , qui correspond à l'indice de réfraction ordinaire. La nappe extraordinaire est un ellipsoïde dont l'équation est :

$$\frac{1}{n_e^2(\lambda, \theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\lambda, 0)}. \quad (1.45)$$

$n_e^2(\lambda, \theta)$  correspond à l'indice de réfraction extraordinaire dans la direction de propagation considérée faisant un angle  $\theta$  avec l'axe  $Oz$  du repère diélectrique ;  $n_e$  est l'indice de

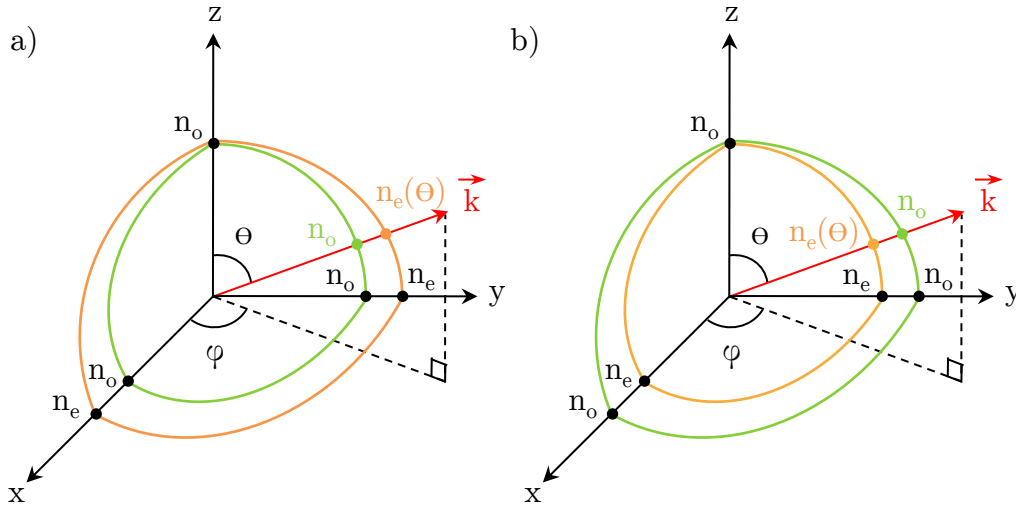


FIGURE 1.12 – Surface des indices pour : a) un cristal uniaxe positif  $n_e > n_o$ , b) un cristal uniaxe négatif  $n_e < n_o$ . En vert, la nappe ordinaire, et en orange, la nappe extraordinaire.

réfraction principal extraordinaire. Seul l'angle  $\theta$  apparaît comme une variable angulaire dans l'équation (1.45) car l'ellipsoïde est de révolution autour de l'axe  $Oz$ . L'axe  $Oz$  est alors appelé « axe optique ». L'équation (1.45) montre que pour  $\theta = 0$  l'indice de réfraction extraordinaire est égal à l'indice de réfraction ordinaire. Il n'y a donc pas de biréfringence selon l'axe  $Oz$ . Par contre, l'équation (1.45) montre aussi que la biréfringence est maximale lorsque  $\theta = \pi/2$ , ce qui correspond à une propagation dans le plan  $(xOy)$  de la surface des indices. Ainsi, en faisant tourner le cristal dans tout plan contenant l'axe optique, il est possible de faire varier la biréfringence entre deux valeurs extrêmes : 0 et  $n_o - n_e$  ou  $n_e - n_o$  selon que l'uniaxe est de signe optique négatif ( $n_e < n_o$ ) ou positif ( $n_e > n_o$ ). C'est de cette façon qu'est obtenue l'accordabilité angulaire d'un cristal non linéaire uniaxe. Une direction d'accord de phase pour un triplet de longueurs d'onde donné  $(\lambda_p, \lambda_s, \lambda_c)$  existera lorsque la biréfringence permettra de compenser la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction. Les relations correspondantes sont données dans le TABLEAU 1.2 pour différents types d'accord de phase, et ce dans le cas des deux signes optiques.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons uniquement à l'accord de phase de type II dans les cristaux de zinc germanium diphosphide (ZGP) d'une part, et de sélénure de cadmium (CdSe) d'autre part, tous deux étant des uniaxes de signe optique positif.

Le cristal de ZGP possède une fenêtre de transparence allant jusqu'à  $12 \mu\text{m}$  dans l'infrarouge, bien que sa transmission décroisse significativement à partir de  $10 \mu\text{m}$  du fait de l'absorption multi phonon. Son tenseur de susceptibilité non linéaire du second ordre à  $10,6 \mu\text{m}$ , est donné par [40] :

$$d_{\text{ZGP}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 75,4 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 75,4 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 75,4 \end{bmatrix} \quad (1.46)$$



Type I	$\frac{n_e(\lambda_p, \theta)}{\lambda_p} = \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} + \frac{n_o(\lambda_c)}{\lambda_c}$
Type II	$\frac{n_e(\lambda_p, \theta)}{\lambda_p} = \frac{n_e(\lambda_s, \theta)}{\lambda_s} + \frac{n_o(\lambda_c)}{\lambda_c}$
Type III	$\frac{n_e(\lambda_p, \theta)}{\lambda_p} = \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} + \frac{n_e(\lambda_c, \theta)}{\lambda_c}$

(a) Cristaux uniaxes négatifs ( $n_e < n_o$ )

Type I	$\frac{n_o(\lambda_p)}{\lambda_p} = \frac{n_e(\lambda_s, \theta)}{\lambda_s} + \frac{n_e(\lambda_c, \theta)}{\lambda_c}$
Type II	$\frac{n_o(\lambda_p)}{\lambda_p} = \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} + \frac{n_e(\lambda_c, \theta)}{\lambda_c}$
Type III	$\frac{n_o(\lambda_p)}{\lambda_p} = \frac{n_e(\lambda_s, \theta)}{\lambda_s} + \frac{n_e(\lambda_c)}{\lambda_c}$

(b) Cristaux uniaxes positifs ( $n_e > n_o$ )

TABLEAU 1.2 – Conditions d'accord de phase de types I, II et III dans les cristaux uniaxes positifs et négatifs.

où chaque coefficient est en pm/V. Du fait de son coefficient non linéaire très intense, ZGP est un matériau très intéressant pour la conversion non linéaire dans la bande III.

Cependant, à cause de l'absorption résiduelle dans le proche infrarouge, son pompage est limité à des longueurs d'onde supérieures à 1,9  $\mu\text{m}$ . Dans cette étude, des cristaux de ZGP fonctionnant en accord de phase de type II seront utilisés pour obtenir un faisceau accordable entre 7 et 10  $\mu\text{m}$  par différence de fréquences entre le signal et le complémentaire d'un NesCOPO émettant autour de 2  $\mu\text{m}$  (voir section 4.1). La FIGURE 1.13 présente la courbe d'accord de phase d'un cristal de ZGP en accord de phase de type II pour la différence de fréquences entre deux ondes accordables respectivement entre 1,86–1,94  $\mu\text{m}$  et 2,48–2,35  $\mu\text{m}$ .

De même que ZGP, le cristal de CdSe est un cristal semi-conducteur. Sa fenêtre de transparence s'étend entre 0,8  $\mu\text{m}$  et 23  $\mu\text{m}$ . Son tenseur de susceptibilité non linéaire de second ordre à 10,6  $\mu\text{m}$ , est donné par [40] :

$$d_{\text{CdSe}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 18 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 18 & 0 & 0 \\ 18 & 18 & 36 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.47)$$

Le cristal de CdSe possède de plus faibles coefficients non linéaires que ZGP et aussi une plus faible biréfringence, cette dernière caractéristique n'étant a priori pas favorable pour obtenir un accord de phase. En effet, la faible biréfringence du CdSe implique de devoir tourner le cristal sur une plage angulaire élevée afin d'explorer toute la zone d'accordabilité permise. En pratique, cette accordabilité est limitée par l'ouverture des cristaux et par le désalignement de faisceaux, notamment lorsque le cristal est utilisé en cavité. Une

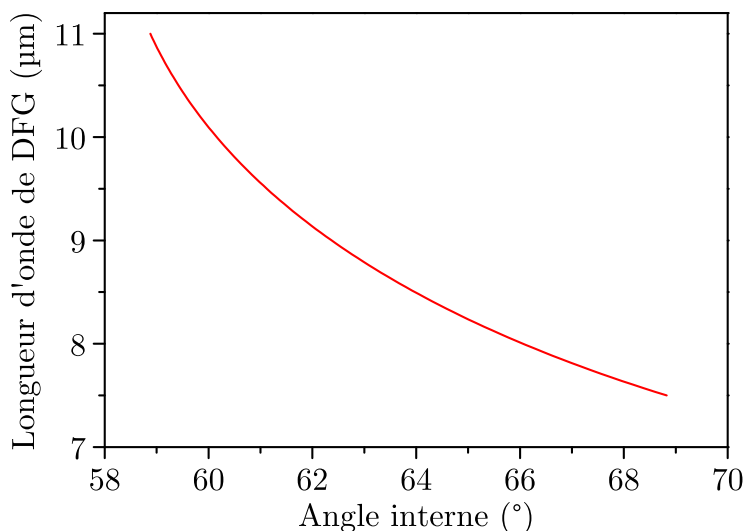


FIGURE 1.13 – Courbe d'accord de phase de différence de fréquences de type II d'un cristal de ZGP en fonction de l'angle interne calculée à partir des relations de Sellmeier établies par Barnes et al. [41].

solution à ce problème consiste à polir les faces du cristal en forme cylindre partiel [42]. Cette configuration permet de tourner le cristal sur toute son ouverture sans désaligner le faisceau de pompe, car ce dernier est toujours en incidence normale sur le cristal. Nous verrons dans la section 3.2, un exemple de cristal poli en forme cylindre partiel. La FIGURE 1.14 présente la courbe d'accord de phase de type II d'un cristal de CdSe pompé à 2050 nm.

### Walk-off spatial

Lorsqu'une onde se propage dans un milieu anisotrope, le vecteur d'onde n'est en général pas colinéaire au vecteur de Poynting qui correspond à la direction de propagation de l'énergie. Dans le cas des cristaux uniaxes, la colinéarité entre ces deux vecteurs n'existe que pour une propagation selon l'axe  $Oz$  ou pour une direction contenue dans le plan  $(xOy)$ . L'angle entre ces deux vecteurs est appelé « angle de double réfraction » ou *spatial walk-off* en anglais. Sa valeur est déterminée par la relation [44] :

$$\tan \alpha = \frac{n_e^2(\lambda, \theta)}{2} \left( \frac{1}{n_e^2(\lambda)} - \frac{1}{n_o^2(\lambda)} \right) \sin(2\theta). \quad (1.48)$$

Cette équation montre que l'angle de double réfraction dépend de la biréfringence du cristal : plus la biréfringence est élevée, plus l'angle de double réfraction l'est également. Un angle de double réfraction important peut très vite altérer le recouvrement entre les faisceaux, surtout lorsque les cristaux sont longs et les diamètres de faisceaux faibles. Lorsque l'accord de phase est réalisé dans une direction où l'angle de double réfraction est nul, alors l'acceptance angulaire associée est très grande. L'accord de phase est alors qualifié de « non-critique en angle » [22].

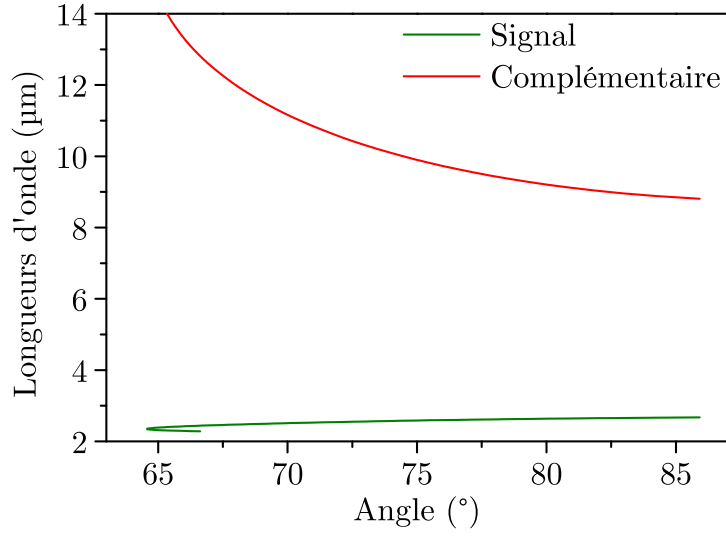


FIGURE 1.14 – Courbe d'accord de phase de type II d'un cristal de CdSe pompé à  $2,05 \mu\text{m}$  calculée à partir des relations de Sellmeier établies par Bhar et al. [43].

### 1.3.2 Quasi-accord de phase

Lorsque la condition d'accord de phase (1.30) entre les trois ondes ne peut pas être obtenue, l'intensité des ondes générées ne peut pas croître de façon monotone dans le cristal. Loin de l'accord de phase ( $\Delta k \neq 0$ ), l'intensité des ondes signal et complémentaire varie alors en sinus au carré de la longueur parcourue. Le maximum d'intensité est atteint au bout d'une longueur de cohérence, définie par :

$$L_{\text{coh}} = \frac{\pi}{\Delta k}, \quad (1.49)$$

et se répète tous les  $(2n + 1)L_{\text{coh}}$ , où  $n$  est un entier naturel. Le principe du quasi-accord de phase consiste à rattraper périodiquement le déphasage relatif entre les ondes au bout d'une longueur de cohérence en inversant le signe du coefficient non linéaire [23, 45, 46]. Pour compenser ce déphasage relatif, la période du réseau de quasi-accord de phase doit être égale à deux fois la longueur de cohérence :

$$\Lambda_{\text{QPM}} = 2L_{\text{coh}} = \frac{2\pi}{\Delta k}. \quad (1.50)$$

La relation de quasi-accord de phase s'écrit alors :

$$\Delta k_{\text{QPM}} = \Delta k - \frac{2\pi}{\Lambda_{\text{QPM}}} = 0. \quad (1.51)$$

La FIGURE 1.15 montre l'évolution de l'intensité de l'onde signal (ou complémentaire) lors de la propagation dans un cristal biréfringent placé hors accord de phase (rouge) et en quasi-accord de phase (bleu). Dans la situation hors accord de phase, les ondes interfèrent constructivement pour atteindre un maximum du couplage non linéaire au bout d'une longueur de cohérence  $L_{\text{coh}}$ . À cet emplacement la polarisation non linéaire est exactement

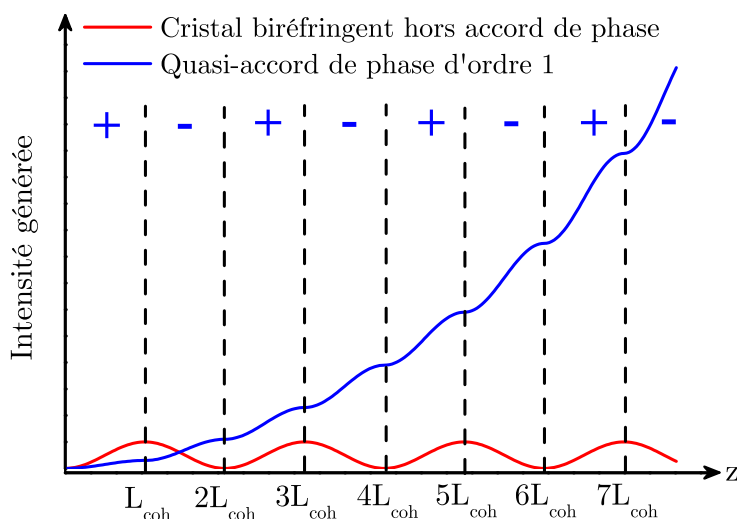


FIGURE 1.15 – Évolution de l'intensité de l'onde signal (ou complémentaire) lors de la propagation dans un cristal biréfringent. En rouge, le cristal est placé hors accord de phase et en bleu le cristal fonctionne en quasi-accord de phase.

en opposition de phase avec le champ qu'elle rayonne. Ainsi au-delà de  $L_{\text{coh}}$ , les ondes vont interférer destructivement et leur intensité va s'annuler au bout de  $L_{\text{coh}}$ . Cet effet se répète ensuite périodiquement sur toute la longueur du cristal. Le maximum de couplage est donc obtenu pour tous les multiples impairs de la longueur de cohérence :  $L_{\text{coh}}$ ,  $3L_{\text{coh}}$ ,  $5L_{\text{coh}}$ , etc. De plus, le rendement de conversion  $\gamma$  est faible, car la longueur de cohérence est faible, de l'ordre de quelques micromètres à quelques dizaines de micromètres. Dans le cas du quasi-accord de phase, l'intensité croît tout au long du cristal. Dans l'exemple présenté, le quasi-accord de phase est dit à l'ordre 1. Les ordres supérieurs de quasi-accord de phase consistent à inverser le signe du coefficient effectif tous les  $(2n + 1)$  domaines. La période de quasi-accord de phase s'écrit alors :  $\Lambda_{2n+1} = (2n + 1)\Lambda_{\text{QPM}}$ . Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons uniquement au quasi-accord de phase d'ordre 1, qui est le plus efficace. Le quasi-accord de phase peut être réalisé dans les cristaux biréfringents comme dans les cristaux isotropes.

### Quasi-accord de phase dans les cristaux biréfringents : cas de PPLN et de PPKTP

Dans le cas des cristaux biréfringents, le quasi-accord de phase permet d'exploiter le coefficient  $d_{33}$ , qui est souvent celui dont l'amplitude est la plus élevée. Il correspond au coefficient  $d_{zzz}$ , ce qui implique des polarisations similaires pour les trois ondes, à savoir selon l'axe  $Oz$  du cristal. Le quasi-accord de phase est alors qualifié de type 0 [45]. Il peut être intéressant de travailler en quasi-accord de phase de type II afin de profiter à la fois d'une acceptation spectrale plus faible et d'un angle de double réfraction nul. Il est toutefois important de noter que pour un cristal en quasi-accord de phase, le coefficient de susceptibilité non linéaire est diminué d'un facteur  $2/\pi$ , et ce quel que soit le type.

Dans cette thèse, nous n'utiliserons que l'accord de phase de type 0, dans le niobate de

lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ) et dans le titanyl phosphate de potassium ( $\text{KTiOPO}_4$ ) qui sont tous les deux des cristaux ferroélectriques. Ces cristaux sont polaires, c'est-à-dire qu'ils possèdent un moment dipolaire intrinsèque formant ce qui est appelé la polarisation spontanée. Cette polarisation spontanée constitue l'axe polaire du cristal, qui définit par convention l'axe  $Oz$  du repère diélectrique. Nous appellerons ces deux cristaux respectivement PPLN et PPKTP, où le préfixe PP- correspond à *periodically poled*. Notons toutefois que les cristaux de niobate de lithium retournés périodiquement utilisés pendant cette thèse sont des cristaux dopés à 5% d'oxyde de magnésium (5%MgO :PPLN), et seront abrégés PPLN pour plus de simplicité.

La technique d'inversion de domaine consiste à appliquer un champ électrique statique intense le long de l'axe polaire du cristal ferroélectrique via une galette d'électrodes [47] comme présenté dans la FIGURE 1.16. La période de retournement, typique-

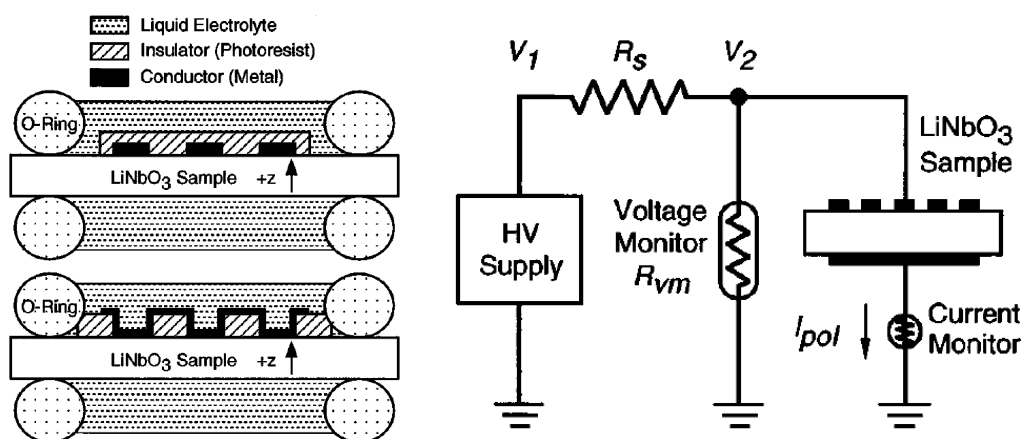


FIGURE 1.16 – Exemple de configuration d'électrodes (gauche) et schéma électrique typique (droite) utilisés lors de l'inversion de domaines par application d'un champ électrique statique intense. Cette figure a été reproduite à partir de la référence [48].

ment de quelques dizaines de microns, est obtenue par photolithographie. Le retournement de domaine s'effectue, lorsque le champ électrique appliqué dépasse l'intensité du champ coercif du matériau utilisé : il s'agit du champ à partir duquel il est possible d'inverser le sens de la polarisation spontanée.

Parmi les cristaux adaptés au retournement périodique par champ électrique, le plus connu est PPLN, notamment grâce à son coefficient  $d_{33}$  très élevé. Dans l'infrarouge moyen, la fenêtre de transparence du niobate de lithium est limitée autour 4–5  $\mu\text{m}$ . De ce fait, ce cristal ne pourra pas être utilisé comme convertisseur direct vers la bande III. En revanche, pour des architectures en cascade où un faisceau énergétique est d'abord émis à 2  $\mu\text{m}$  avant d'être converti dans la bande III, son utilisation devient intéressante. Dans la section 4.2, nous présenterons une nouvelle architecture de NesCOPO utilisant un cristal de PPLN en type 0 et un réseau de Bragg en volume comme miroir de cavité pour affiner le spectre d'émission. Son tenseur de susceptibilité non linéaire de second ordre à 1,5  $\mu\text{m}$

est donné par [49] :

$$d_{\text{LiNbO}_3} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & -4,6 & -2,6 \\ -2,6 & -2,6 & 0 & -4,6 & 0 & 0 \\ -4,6 & -4,6 & -25 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.52)$$

Le coefficient  $d_{33}$  vaut  $-25$  pm/V, ce qui donne un coefficient effectif de :  $d_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi}d_{33} = -15,9$  pm/V. La FIGURE 1.17 présente les courbes d'accord de phase pour un cristal de PPLN pompé à  $1,064 \mu\text{m}$  en type 0 pour une période de retournement de  $32,03 \mu\text{m}$  (courbe a)), et en type II pour une période de retournement de  $14,7 \mu\text{m}$  (courbe b)).

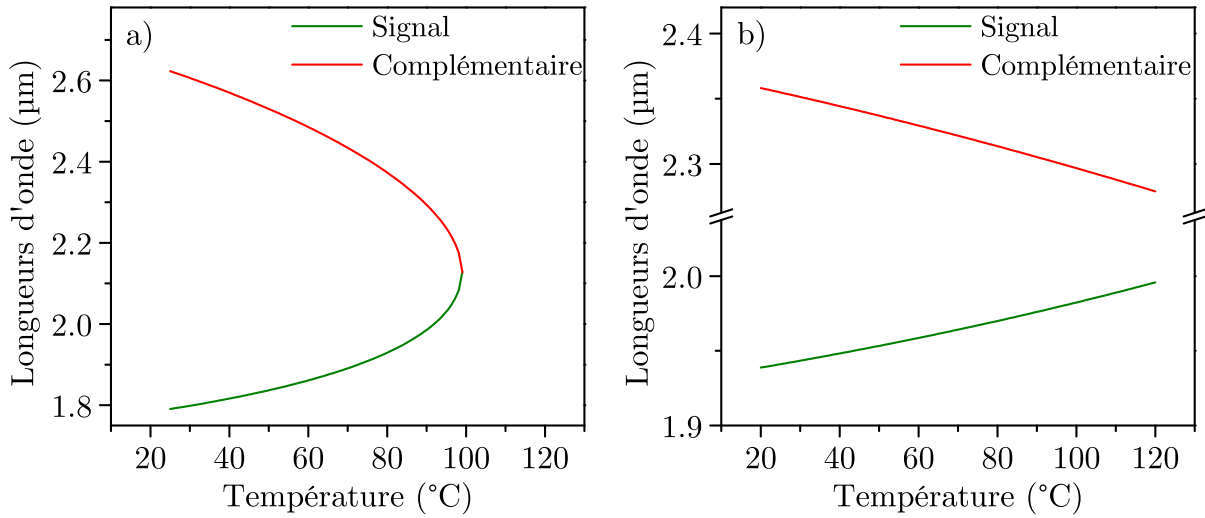


FIGURE 1.17 – Courbes de quasi-accord de phase d'ordre 1 d'un cristal de PPLN pompé à  $1,064 \mu\text{m}$ . a) Accord de phase de type 0 calculé à partir des relations de Sellmeier établies par Gayer et al. [50] pour une période de retournement de  $32,03 \mu\text{m}$ . b) Accord de phase de type II calculé à partir des relations de Sellmeier établies par Zelmon et al. [51] pour une période de retournement de  $14,7 \mu\text{m}$ .

Le deuxième cristal utilisé dans le cadre de cette thèse est PPKTP. Son tenseur de susceptibilité non linéaire de second ordre à  $532 \text{ nm}$  est donné par [52] :

$$d_{\text{KTP}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 1,4 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2,65 & 0 & 0 \\ 1,4 & 2,65 & 10,7 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.53)$$

Son coefficient  $d_{33}$  vaut  $10,7$  pm/V, ce qui donne un coefficient effectif de  $6,8$  pm/V. Dans le KTP, l'absorption multi phonon apparaît vers  $3\text{--}4 \mu\text{m}$ . Tout comme PPLN, il ne peut être utilisé pour l'émission dans la bande III. En revanche sa forte non-linéarité, son seuil de dommage élevé et sa large acceptation spectrale en font un bon candidat pour l'amplification d'un faisceau à  $2 \mu\text{m}$ , comme nous pourrions le voir dans la section 4.1. La FIGURE 1.18 présente la courbe d'accord de phase pour un cristal de PPKTP de type 0 pompé à  $1,064 \mu\text{m}$  pour une période de retournement de  $38,52 \mu\text{m}$ .

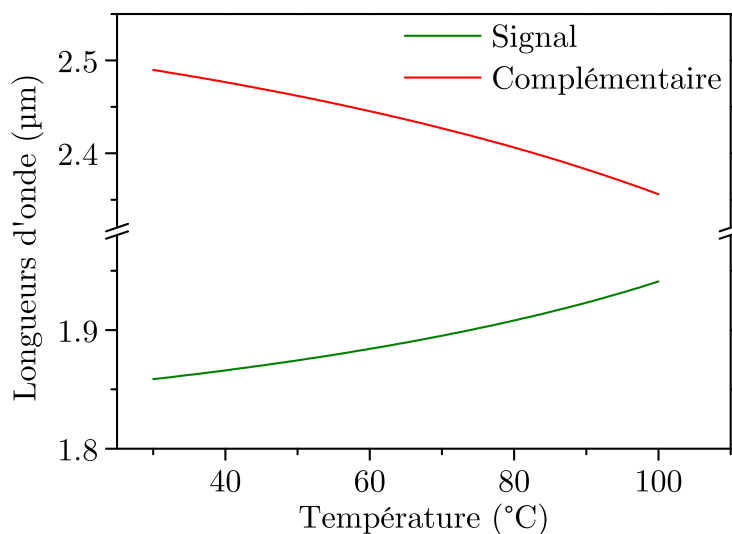


FIGURE 1.18 – Courbe de quasi-accord de phase d’ordre 1 d’un cristal de PPKTP de type 0 pompé à  $1,064 \mu\text{m}$  pour une période de retournement de  $38,52 \mu\text{m}$  calculée à partir des relations de Sellmeier établies par Fradkin et al. [53].

### Quasi-accord de phase dans les cristaux isotropes : cas du cristal de GaAs

Le deuxième intérêt du quasi-accord de phase est l’utilisation de matériaux isotropes non centrosymétriques où l’accord de phase par biréfringence est strictement impossible, justement parce qu’ils ne présentent pas de biréfringence. Comme nous l’avons vu dans le paragraphe précédent, l’absorption multi phonon ne permet pas d’atteindre la bande III dans le cas des oxydes ferroélectriques PPLN et PPKTP. Une alternative consiste alors à utiliser des matériaux semi-conducteurs. En effet dans ces matériaux, l’absorption infrarouge est obtenue pour des énergies de phonon plus faibles. L’arséniure de gallium (GaAs) est le cristal isotrope qui a été utilisé pendant la thèse.

Initialement, les cristaux de GaAs fonctionnant en quasi-accord de phase étaient obtenus en empilant des plaques minces de GaAs. Puis celles-ci étaient liées entre elles par pression et par diffusion entre les couches adjacentes. Cependant, ces structures ont souffert de pertes par diffusion aux interfaces entre les domaines [54]. Plus récemment, des techniques de croissance par épitaxie ont permis de résoudre ces problèmes, offrant des cristaux plus efficaces pour la conversion paramétrique [55–58]. Dans le cadre de cette thèse, les cristaux de GaAs sont obtenus par croissance par épitaxie en phase vapeur. Ils ont été élaborés par Thales Research & Technology dans le cadre du projet MUSTARD [55] qui sera abordé plus en détail dans la section 3.1. La FIGURE 1.19 montre les premières étapes de croissance. Elles consistent à superposer deux couches de GaAs de directions cristallographiques opposées sur un substrat de GaAs (étapes 1 et 2). Puis les domaines sont définis par photolithographie et la structure est gravée dans le matériau, laissant ainsi des bandes de GaAs orientées périodiquement sur toute la longueur du cristal (étapes 3 et 4). Finalement, le matériau croît sur environ  $500 \mu\text{m}$  par épitaxie en phase vapeur (étape 5). Le matériau ainsi obtenu est appelé OP-GaAs, pour *Orientation-Patterned GaAs*.

Le tenseur de susceptibilité de second ordre à  $4 \mu\text{m}$  du cristal de GaAs est donné

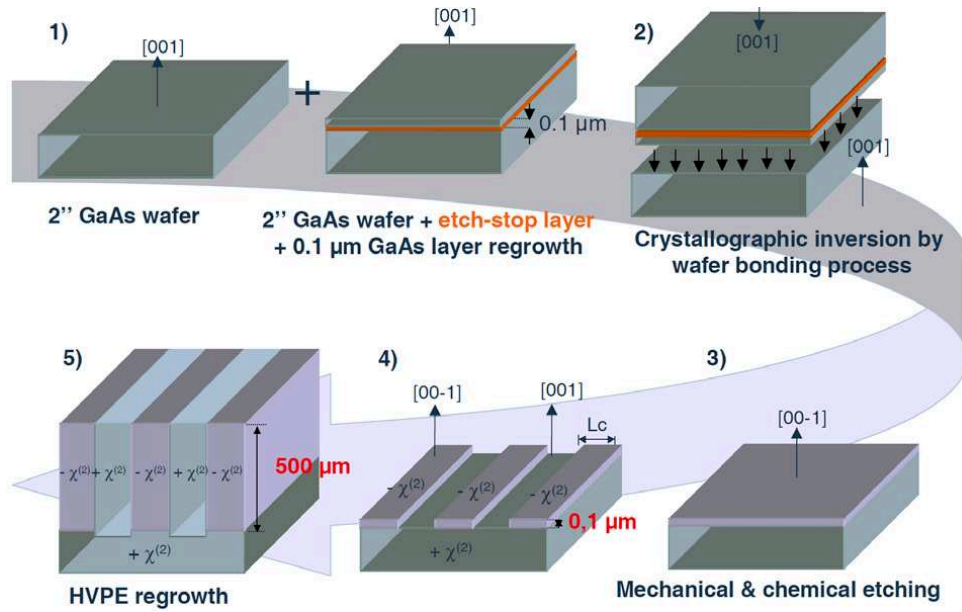


FIGURE 1.19 – Étapes du processus de croissance des cristaux d'OP-GaAs par épitaxie en phase vapeur.

par [59] :

$$d_{\text{GaAs}} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 94 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 94 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 94 \end{bmatrix} \quad (1.54)$$

La fenêtre de transparence de ce cristal s'étend jusqu'à  $17 \mu\text{m}$ , avec un léger déclin à partir de  $12 \mu\text{m}$  dû l'absorption à trois phonons. De plus, le cristal de GaAs est particulièrement intéressant pour les processus de conversion paramétrique. En effet, en plus de sa large fenêtre de transparence dans l'infrarouge, il possède un coefficient non linéaire très élevé :  $d_{14} = 94 \text{ pm/V}$  [59], ainsi que d'excellentes propriétés thermiques et mécaniques. La FIGURE 1.20 présente les courbes d'accord de phase dans un cristal d'OP-GaAs pompé à  $1,938 \mu\text{m}$  et présentant : a) une période de retournement de  $72,6 \mu\text{m}$ , b) des périodes de retournement de :  $\Lambda_1 = 66 \mu\text{m}$ ,  $\Lambda_2 = 64,8 \mu\text{m}$  et  $\Lambda_3 = 63,6 \mu\text{m}$ .

## 1.4 Cristaux non linéaires utilisés pendant la thèse

Dans cette section, nous expliquons plus en détail nos critères de choix des cristaux non linéaires utilisés lors de la thèse. Selon les architectures que nous souhaitons mettre en œuvre et les gammes spectrales visées, le choix des cristaux peut être différent. En effet, plusieurs paramètres entrent en jeu lors de la conception de la source paramétrique, comme : la fenêtre de transparence, la condition d'accord de phase, l'angle de walk-off, les dimensions du cristal, ou encore le seuil d'endommagement.

Pour qu'il y ait une interaction non linéaire efficace, il est nécessaire d'utiliser des cristaux dont la fenêtre de transparence couvre toute la gamme spectrale d'émission choi-



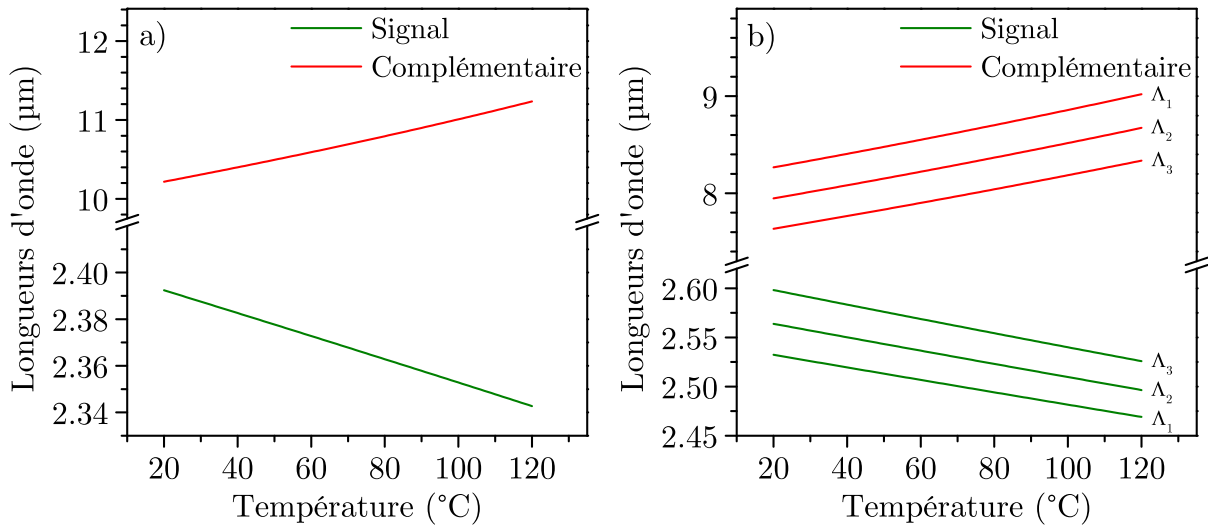


FIGURE 1.20 – Courbes de quasi-accord de phase d’ordre 1 d’un cristal d’OP-GaAs pompé à  $1,938 \mu\text{m}$  calculées à partir des relations de Sellmeier établies par Skauli et al. [59] pour : a) une période de retournement de  $72,6 \mu\text{m}$  b) des périodes de retournement de :  $\Lambda_1 = 66 \mu\text{m}$ ,  $\Lambda_2 = 64,8 \mu\text{m}$  et  $\Lambda_3 = 63,6 \mu\text{m}$ .

sie. Dans notre cas, l’émission autour de  $2 \mu\text{m}$  se fera grâce à des oxydes ferroélectriques (PPLN ou PPKTP) qui sont des cristaux matures technologiquement. De plus, ils ont l’avantage de pouvoir être pompés à  $1 \mu\text{m}$  par des lasers solides conventionnels comme le laser Nd:YAG. En revanche, pour l’émission vers la bande III nous avons opté pour des cristaux semi-conducteurs, comme ZGP, CdSe ou OP-GaAs, dont la fenêtre de transparence est plus étendue dans l’infrarouge que pour les oxydes.

Le choix du type d’accord de phase, quant à lui, dépend du processus paramétrique utilisé. Pour l’amplification de faisceaux largement accordables en longueur d’onde, une bande de gain très large est recommandée. En effet, avec une acceptation spectrale élevée, l’amplification paramétrique pourra s’effectuer de façon efficace pour toutes les longueurs d’onde sans pour autant avoir besoin de chauffer ou de tourner le cristal. Ainsi pour l’OPA, ce sont plutôt des cristaux fonctionnant en accord de phase de type I ou de type 0 qui seront choisis. En effet, comme le montre la FIGURE 1.17 par exemple, la courbe d’accord de phase de type 0 présente des points de rebroussement. Au niveau de ces points, l’acceptation spectrale est très grande : un grand nombre de longueurs d’onde peuvent être émises simultanément, ce qui va naturellement élargir la bande de gain. En revanche, lorsque des sources fines spectralement sont nécessaires, pour la détection de gaz par exemple, le choix se portera plutôt sur des accords de phase en type II pour lesquels les points de rebroussement sont moins marqués, voire inexistant, la bande de gain sera alors plus étroite. Comme nous le verrons dans la section 4.1, nous avons opté pour PPLN en type II pour l’émission d’un faisceau fin spectralement et largement accordable autour de  $2 \mu\text{m}$ , et pour PPKTP en type 0 pour leur amplification.

Un autre paramètre critique dans le choix du cristal non linéaire est l’angle de walk-off, qui peut altérer le recouvrement des faisceaux lors de la propagation dans le cristal. Par exemple, pour un angle de walk-off de  $10 \text{ mrad}$ , ce qui correspond typiquement à un

crystal de ZGP en type II, des faisceaux de 100 micromètres de diamètre seront totalement séparés au bout de 10 mm. Dans ce cas, il est nécessaire d'adapter la longueur du cristal et les tailles de faisceaux. Nous verrons un exemple de cristal non linéaire, où l'angle de walk-off peut être un facteur limitant dans la section [3.2](#).

TABLEAU 1.3 – Tableau récapitulatif des cristaux utilisés lors de la thèse.

Cristal	PPLN		PPKTP	ZGP	CdSe	OP-GaAs
Classe optique	Uniaxe ( $< 0$ )		Biaxe	Uniaxe ( $> 0$ )	Uniaxe ( $> 0$ )	Isotrope
Type d'accord de phase	II	0	0	II	II	x
Gamme spectrale (complémentaire)	2,35 – 2,48 $\mu\text{m}$ 2,34 – 2,37 $\mu\text{m}$	2,20 – 2,22 $\mu\text{m}$	2,35 – 2,48 $\mu\text{m}$	7,3 – 10,5 $\mu\text{m}$	9 – 14 $\mu\text{m}$	7,6 – 9 $\mu\text{m}$ 10,2 – 11,2 $\mu\text{m}$
Longueur	16 et 50 mm	4 et 12 mm	7 mm	7 et 4 mm	30 mm	6 et 10 mm
Période de retournement	14,8 – 15,14 $\mu\text{m}$ (16 pistes) et 14,7 $\mu\text{m}$	31,93/32,03 $\mu\text{m}$ et 32,2 $\mu\text{m}$	38,52 $\mu\text{m}$	x	x	72,6/66/64,8/ 63,6 $\mu\text{m}$
Processus paramétrique	NesCOPO SROPO	NesCOPO SROPO	OPA	DFG	SROPO	NesCOPO
Section abordée	3.1 & 4.1	4.2	4.1	4.1	3.2	3.1

## Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté les bases théoriques fondamentales de l'optique non linéaire appliquée aux processus paramétriques d'ordre 2 : les équations couplées, la relation de conservation de l'énergie, la relation d'accord de phase, et les équations de Manley-Rowe. Puis, nous avons abordé les processus de différence de fréquences, et d'amplification paramétrique optique. Nous nous sommes intéressés au cas particulier des oscillateurs paramétriques optiques en configuration simplement et doublement résonante, qui sont au centre de cette étude. Nous avons analysé l'effet d'un retour de pompe sur la phase non linéaire. Enfin, nous avons détaillé le principe de fonctionnement d'un oscillateur paramétrique optique à cavités imbriquées (NesCOPO) qui permet d'obtenir un faisceau monomode longitudinal et largement accordable. Nous avons abordé les concepts d'accord de phase par biréfringence et de quasi-accord de phase, qui sont deux techniques utilisées pour accorder la longueur d'onde d'un faisceau. Nous avons présenté les propriétés de chaque cristal non linéaire utilisé lors de cette thèse, à savoir ZGP, CdSe, PPLN, PPKTP et OP-GaAs. Nous avons vu que les cristaux de PPLN et de PPKTP étaient les plus adaptés à la génération de faisceaux autour de  $2 \mu\text{m}$ . Nous verrons deux exemples d'utilisation de ces cristaux dans les sections 4.2 et 4.1. De plus, nous avons pu voir que les cristaux de ZGP, CdSe et OP-GaAs étaient adaptés à la génération de faisceaux dans la bande III, notamment grâce à leur large fenêtre de transparence dans l'infrarouge. Nous verrons des exemples d'utilisation de ces cristaux dans les sections 3.1, 3.2, et 4.1.

# Chapitre 2

## Motivations et état de l'art

### Objectifs du chapitre

L'objectif de ce chapitre est de présenter les différents types de sources pouvant être utilisées pour la détection d'espèces chimiques à distance dans la bande III. Dans un premier temps, nous détaillerons le principe de fonctionnement des lidars à absorption différentielle résolus spatialement et intégrés colonne. Puis, nous établirons les spécifications lasers requises pour la détection à distance d'espèces chimiques pour la bande III, en fonction de la portée et du type de détection. Dans un second temps, nous comparerons les différentes technologies permettant d'obtenir un faisceau dans la bande III à travers une étude bibliographique. Nous discuterons des performances de ces sources optiques en termes de puissance, accordabilité en longueur d'onde et pureté spectrale.

## 2.1 Établissement des spécifications laser pour les lidars en bande III

### 2.1.1 Principe de fonctionnement du lidar à absorption différentielle

La détection d'espèces chimiques dans l'infrarouge se base sur la spectrométrie différentielle d'absorption. Lorsqu'un rayonnement traverse un milieu présentant des raies d'absorption, correspondant à des modes d'excitation rotationnelle ou vibrationnelle des liaisons chimiques d'une ou de plusieurs molécules, l'intensité décroît suivant la loi de Beer-Lambert :

$$T(\lambda) = \frac{I(\lambda)}{I_0} = e^{-(\sigma(\lambda)C + \gamma(\lambda))L} = 10^{-OD} \quad (2.1)$$

où  $T$  est la transmission,  $\sigma$  le coefficient d'absorption (en  $\text{ppm}^{-1}\text{m}^{-1}$ ),  $C$  la concentration (en ppm),  $L$  la longueur d'absorption (en m),  $\gamma$  le coefficient d'atténuation dû à d'autres phénomènes comme la diffusion, et OD la densité optique. La mesure différentielle consiste à émettre deux longueurs d'onde : une longueur d'onde dite « ON », absorbée par l'espèce mesurée et une longueur d'onde dite « OFF », pas ou peu absorbée, comme présenté dans la FIGURE 2.1. En connaissant les sections efficaces aux longueurs d'onde ON et OFF, il est possible de remonter à la concentration moyenne du gaz en appliquant la formule suivante :

$$CL = \frac{1}{\sigma(\lambda_{\text{ON}}) - \sigma(\lambda_{\text{OFF}})} \ln \left( \frac{T_{\text{OFF}}}{T_{\text{ON}}} \right), \quad (2.2)$$

et en supposant que le coefficient d'atténuation  $\gamma$ , et les paramètres intrinsèques de la source ou du système lidar, comme la divergence ou la transmission des optiques, sont les mêmes aux longueurs d'onde ON et OFF, ou étalonnés en conséquence.

La FIGURE 2.2 présente le schéma de principe d'un lidar à absorption différentielle (haut) et un exemple de signal mesuré (bas), dans le cas d'une détection directe du flux. Un faisceau laser est envoyé vers le nuage à sonder. Puis le faisceau est rétro-diffusé et collecté par un télescope avant d'être focalisé sur un photodétecteur mono élément. Le lidar est dit résolu spatialement (RR-DIAL pour *Range-Resolved Differential Absorption Lidar*) lorsque le signal est rétro-diffusé par différentes entités : l'atmosphère, le nuage lui-même via la diffusion de Mie par des gouttelettes ou des poussières, la diffusion Rayleigh dans le visible et l'ultraviolet. Le flux collecté par un lidar RR-DIAL peut s'écrire de la façon simplifiée suivante :

$$P(z, \lambda) = \frac{P_0}{z^2} 2\pi A \cdot \beta(\lambda) T(\lambda) \Delta z, \quad (2.3)$$

où  $P_0$  est la puissance incidente,  $z$  la distance (en m),  $A$  la surface de la pupille de réception (en  $\text{m}^2$ ),  $\beta$  le coefficient de rétro-diffusion (en  $\text{m}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ ) supposé isotrope pour simplifier le propos,  $T$  la transmission de l'atmosphère sur un aller-retour et  $\Delta z = c\tau/2$

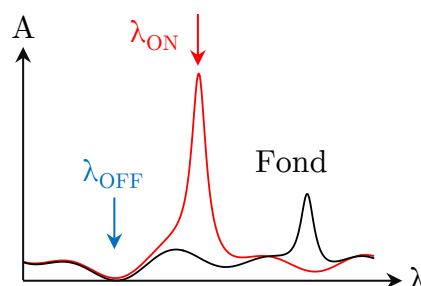


FIGURE 2.1 – Schéma de principe de l'absorption différentielle.

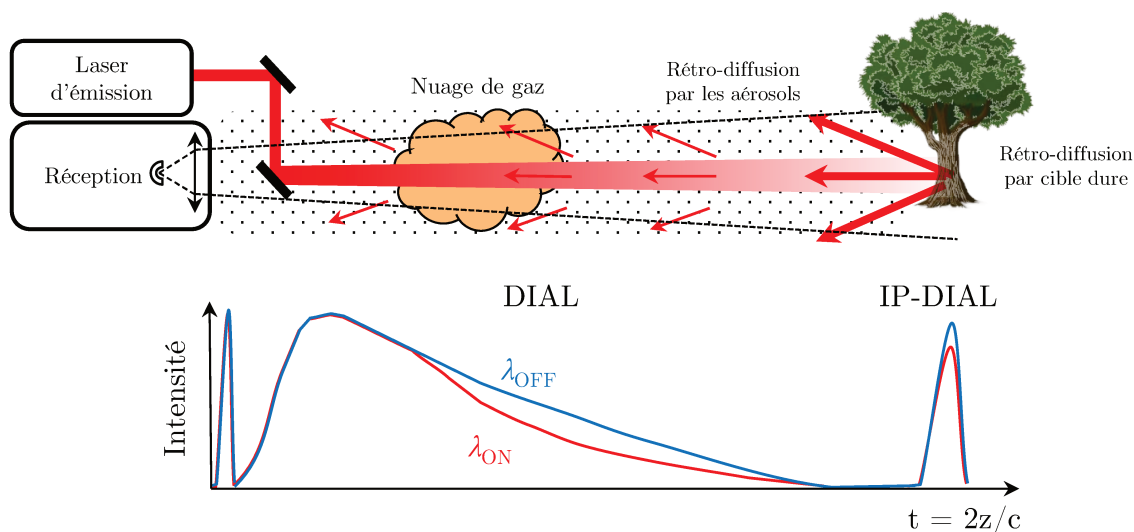


FIGURE 2.2 – Haut : Schéma de principe du lidar à absorption différentielle. Bas : Exemple de signal détecté pour la mesure IP-DIAL et RR-DIAL.

la résolution spatiale du lidar (en m) avec  $\tau$  le temps de réponse du détecteur, ou la durée de l'impulsion laser si celle-ci est plus longue. Dans un lidar, l'emploi d'une source impulsionnelle est indispensable afin de pouvoir élever le signal au-dessus des bruits électroniques et lumineux. Le régime pulsé est aussi particulièrement adapté à la détection à longue distance, car il permet d'effectuer des mesures avec une bonne résolution spatiale. En effet, pour de la lumière parcourant 29,98 m en 100 ns, ce qui équivaut à 14,99 m pour un aller-retour, alors des impulsions de 10 ns offrent une résolution spatiale de 1,5 m. Cependant, la résolution spatiale de la mesure peut être dégradée par le temps de réponse du détecteur. En effet, pour un détecteur dont le temps de réponse est de 200 ns, la résolution spatiale est limitée à 30 m. Il est donc nécessaire de choisir la rapidité du détecteur et la durée d'impulsion en fonction de la résolution spatiale souhaitée lors de la conception de l'instrument.

Dans un lidar RR-DIAL, le signal détecté permet de remonter à la concentration de l'espèce chimique en tout point de la ligne de visée (voir FIGURE 2.2 (bas)). La concentration mesurée s'exprime typiquement en partie par million (ppm). Lorsque la résolution est suffisante, il est aussi possible de caractériser les inhomogénéités à l'intérieur du nuage de gaz, la taille du nuage, ainsi que les mouvements si la cadence de répétition de la mesure le permet.

Le lidar est qualifié d'intégré colonne (IP-DIAL pour *Integrated-Path Differential Absorption Lidar*) lorsque le signal est rétro-diffusé par une cible dure (représentée par un arbre dans la FIGURE 2.2) ou lorsque la résolution spatiale est insuffisante pour la mesure RR-DIAL. Le flux collecté est alors donné de façon simplifiée par :

$$P(z, \lambda) = \frac{P_0}{z^2} A \cdot \rho(\lambda) T(\lambda), \quad (2.4)$$

où  $\rho$  est l'albédo de la cible. La mesure IP-DIAL permet d'obtenir le produit concentration-distance, en ppm · m. Les inhomogénéités à l'intérieur du nuage de gaz, la taille du nuage,

et les mouvements sont ainsi perdus lors du processus d'intégration. Le signal mesuré en IP-DIAL présente typiquement un maximum d'intensité à la position de la cible dure, comme présenté sur la FIGURE 2.2 (bas). L'écart entre les deux maximums aux longueurs d'onde ON et OFF permet de remonter à la concentration moyenne de l'espèce chimique le long de la ligne de visée. Nous verrons dans la section 4.1, un exemple de système IP-DIAL pour la détection de gaz de combat à distance.

Un autre type de détection qui n'est pas abordé dans ce manuscrit est la détection hétérodyne. Le signal rétro-diffusé est mélangé avec celui émis par un oscillateur local. La spectrométrie d'absorption est alors effectuée en comparant le ratio entre les signaux ON et OFF après démodulation du battement entre les deux signaux. Le décalage Doppler de la fréquence de battement peut être utilisé pour mesurer la vitesse du vent dans le cas où la source est très stable en fréquence [60]. Comparée à la détection directe, la détection cohérente à longue distance nécessite des bandes de gain électronique plus larges. En effet, pour un vent de 10 m/s faisant face au lidar et une source laser émettant à  $\lambda = 10 \mu\text{m}$ , le décalage Doppler est de  $2\nu_{\text{vent}}/\lambda = 2 \text{MHz}$  [61]. De plus, la mesure est plus sensible aux bruits de speckle car la cohérence temporelle des rayonnements doit être très grande, particulièrement en IP-DIAL [62, 63]. Typiquement, la finesse spectrale de la source doit être inférieure à 5 MHz, ce qui est bien plus faible que la limite imposée par la spectroscopie, la finesse spectrale des raies typiques à pression atmosphérique étant de l'ordre de 100 MHz. Pour ces raisons, notre choix s'est porté sur la détection directe. Toutefois, la détection hétérodyne reste une technique de détection très sensible et naturellement adaptée aux sources continues ou avec des taux de répétition élevés obtenus par des sources continues. La détection cohérente peut aussi être utilisée avec des impulsions nanoseconde afin d'obtenir une mesure résolue spatialement [64].

## 2.1.2 Spécifications laser de l'émetteur lidar

Le TABLEAU 2.1 donne les spécifications typiques de la source laser requise pour la détection à distance par mesure IP-DIAL ou RR-DIAL en bande III d'un nuage de gaz. Les valeurs présentées sont issues d'une réflexion d'équipe, par le croisement de simulations, d'expériences, et de publications d'autres équipes sur le sujet [14, 65–68]. L'idée de cette partie est de donner une vue d'ensemble des principaux paramètres clés de la détection lidar au lecteur. Ces valeurs sont bien entendu susceptibles d'évoluer avec de nouvelles avancées technologiques ou de nouveaux besoins applicatifs. Notons toutefois que le paramètre clé qui dimensionne l'énergie de l'émetteur lidar est le rapport signal à bruit. Le signal se calcule à l'aide des équations (2.3) ou (2.4). Le bruit lui se calcule comme étant la somme incohérente de plusieurs bruits : le bruit de détection (détecteur + amplificateur), le bruit de speckle qui dépend de la divergence du faisceau laser et de l'ouverture de la réception, et le bruit de photons. La méthodologie de ce calcul est détaillée dans la thèse d'Erwan Cadiou [69]. Le lecteur peut s'y référer pour plus d'informations.

En RR-DIAL, et à distance fixe, la source idéale doit fournir d'une part une forte puissance crête et d'autre part un taux de répétition suffisamment élevé pour considérer l'atmosphère figée entre deux impulsions et réduire les biais de mesure. Typiquement, la cadence du laser doit être supérieure à 100 Hz [65], même si la valeur exacte dépend de la vitesse du vent, de la turbulence, et de la taille du faisceau. Dans le cas le plus courant



	IP-DIAL		RR-DIAL
	Moyenne portée 10–100 m	Longue portée >100 m	Longue portée >100 m
Plage spectrale	7,5 – 13,3 $\mu\text{m}$	8,2 – 12,2 $\mu\text{m}$	8,2 – 12,2 $\mu\text{m}$
largeur de raie / Stabilité	$\leq 0.5 \text{ cm}^{-1}$ pour les CWA & $\leq 0,05 \text{ cm}^{-1}$ pour les TIC		
Énergie par impulsion	$\sim 1 \mu\text{J}$	$> 100 \mu\text{J}$	$> 10 \text{ mJ}$
Durée d'impulsion	$> 5 \text{ ns}$	5 – 150 ns	
Taux de répétition	$> 100 \text{ Hz}$		

TABLEAU 2.1 – Spécifications typiques d'une source lidar en bande III pour la détection d'un nuage chimique pour la détection directe en IP-DIAL ou RR-DIAL en fonction de la portée.

où le bruit dominant est le bruit du détecteur, le rapport signal à bruit augmente proportionnellement à la puissance crête, mais uniquement en racine carrée du nombre de tirs, un laser haute énergie basse cadence sera idéal pour ce type de mesure. Ceci oriente le choix de la technologie vers les lasers à cristaux massifs à déclenchement actif, ainsi que vers les processus paramétriques du second ordre dans les cristaux non linéaires. En revanche en IP-DIAL, le signal rétro-diffusé par la cible dure est beaucoup plus intense qu'en RR-DIAL. Dans ce cas, le bruit dominant est souvent le bruit de speckle, proportionnel à la puissance crête, si bien que le rapport signal à bruit devient indépendant de la puissance crête et proportionnel à la racine carrée de la cadence de répétition. L'utilisation d'une source laser haute cadence devient alors plus intéressante, et elle permet de réduire significativement la taille du système. Ceci oriente le choix de la technologie utilisée plutôt vers les lasers à fibre, les lasers à semi-conducteurs, éventuellement amplifiés, et les microlasers. La mesure IP-DIAL peut être particulièrement intéressante lorsque le but est de mesurer la présence d'un gaz au-delà d'un certain seuil de détection, et non une valeur précise de la concentration, pour la détection de fuites sur des sites industriels par exemple. L'IP-DIAL permet aussi d'effectuer des mesures depuis l'espace comme présenté dans les références 66 et 67.

Pour comprendre plus précisément l'origine des spécifications liées à la mesure IP-DIAL, prenons l'exemple du projet MUSTARD (section 3.1). Nous avons pu mesurer un rapport signal à bruit de 30, pour une énergie de 1  $\mu\text{J}$  en utilisant une cible non coopérative à une distance d'environ 100 m, et une optique de collection de grande ouverture

( $\sim 25$  cm). D'après l'équation 2.4, une énergie de  $100 \mu\text{J}$  serait suffisante pour atteindre une portée de détection de 1 km avec la même énergie collectée. En revanche, dans le cas de la mesure RR-DIAL, c'est le coefficient de rétro-diffusion de l'atmosphère qui entre en jeu (Éq. 2.3), notamment autour de  $10 \mu\text{m}$ , où il est de plusieurs ordres de grandeur inférieur à celui d'une cible dure. En effet, en présence d'agents chimiques dispersés sous forme de gouttelettes, ce coefficient vaut  $3 \cdot 10^{-8} \text{ m}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  [66], ce qui donne un albédo effectif de  $1,8 \cdot 10^{-5}$  calculé sur  $2\pi$  stéradian pour un nuage d'aérosols chimiques étalé sur 100 m. Comparé à la valeur d'albédo typique de 0,1 pour une cible dure, cela fait un facteur  $10^4$  entre l'énergie d'un système IP-DIAL et d'un système RR-DIAL pour des portées de détection similaires.

En termes d'accordabilité, la source doit pouvoir couvrir une gamme spectrale très large dans la bande III. En effet, les bandes d'absorption de la majorité des gaz de combat dans la bande III sont distinctes, mais se superposent partiellement du fait de leur largeur (voir FIGURE 2). Ainsi pour assurer l'identification de ces espèces, il est nécessaire d'avoir une source largement accordable dans la bande III, ou émettant un jeu de longueurs d'onde distinctes, typiquement espacées de  $50 \text{ cm}^{-1}$ . En particulier, pour la détection du gaz sarin (GB) ou de VX, la raie à  $9,8 \mu\text{m}$  ne suffit pas tandis que la détection du gaz moutarde ne peut se faire qu'à  $8,27 \mu\text{m}$ ,  $7,7 \mu\text{m}$  ou  $14 \mu\text{m}$ . Ainsi la source doit pouvoir couvrir une gamme spectrale allant au minimum de  $8,2$  à  $12,2 \mu\text{m}$ , gamme limitée par la transmission de l'atmosphère pour les CWA et les TIC. De plus, la largeur de raie nécessaire pour la détection d'agents chimiques dans la bande III doit être de l'ordre de  $1 \text{ cm}^{-1}$  ou moins pour les CWA. Cette valeur est définie non pas par la largeur de la bande d'absorption de l'espèce, mais par l'écart moyen entre les bandes d'absorption des espèces interférentes. Dans la bande III, cet écart est de 2 à  $5 \text{ cm}^{-1}$  pour la vapeur d'eau et de  $1 \text{ cm}^{-1}$  pour la molécule de  $\text{CO}_2$ . Pour les TIC, la largeur de raie nécessaire est de  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  ou moins, en raison des bandes d'absorption plus étroites, voire des raies rovibrationnelles résolues pour les gaz les plus légers.

Dans l'infrarouge, les sources cohérentes sont rares et peu répondent aux critères énumérés dans le TABLEAU 2.1. Pour les lasers, il est difficile de trouver une matrice solide capable d'accueillir un ion laser, notamment à cause de l'absorption multi phonons. Comme nous pouvons le voir sur la FIGURE 2.3, seuls deux types de lasers sont disponibles pour l'émission directe dans la bande III : le laser à  $\text{CO}_2$  et le laser à cascade quantique. Nous aborderons ces deux sources respectivement dans les sections 2.2 et 2.3. Une autre possibilité est d'utiliser des sources paramétriques en régime impulsif nanoseconde. En combinant les matériaux non linéaires et les sources de pompage adéquates, il est alors possible de couvrir intégralement la gamme  $8\text{--}12 \mu\text{m}$ , comme nous pourrions le voir dans la section 2.4.

## 2.2 Le laser à $\text{CO}_2$

Pendant longtemps le laser à  $\text{CO}_2$  a été la seule source cohérente et énergétique capable d'émettre dans la bande III. Ce laser a largement été utilisé comme source dans des bancs de mesure lidar pour la détection d'espèces chimiques à distance. Plusieurs lasers à  $\text{CO}_2$  émettant des énergies au-delà de 100 mJ ont été développés pour la détection de CWA et de TIC [13, 14, 19], tandis que les systèmes les plus compacts ont permis la réalisation

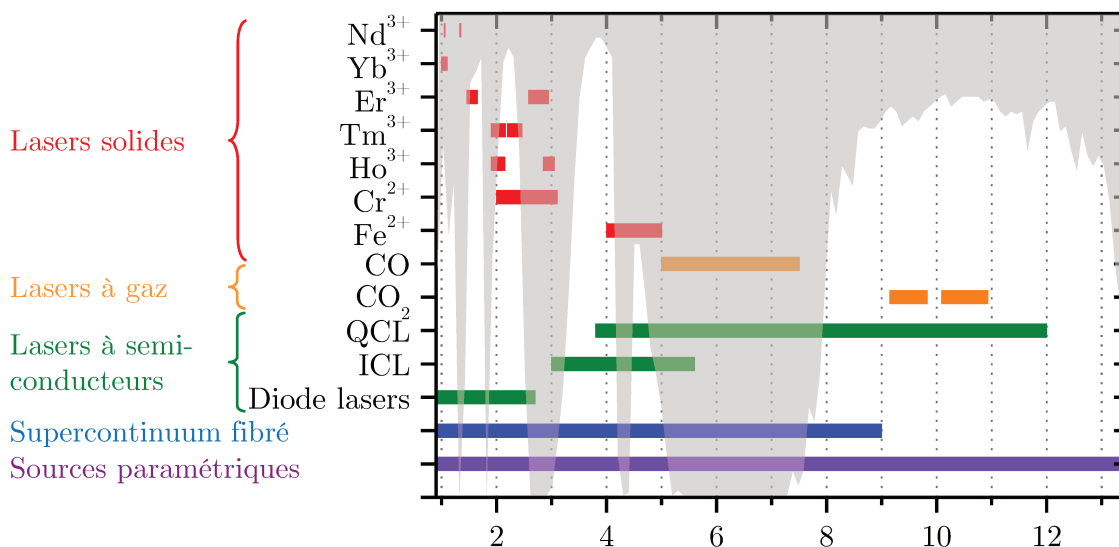


FIGURE 2.3 – Couverture spectrale des sources lasers au-delà de 1  $\mu\text{m}$ . En gris, la transmission de l'atmosphère. Notons que la couverture complète de la bande à puissance constante peut nécessiter l'utilisation de plusieurs émetteurs distincts.

d'instruments de mesure pour des applications militaires [70]. De nombreux systèmes utilisant la détection hétérodyne avec un laser CO<sub>2</sub> continu ont été développés pour la détection de gaz atmosphérique [71] ou d'agents chimiques de guerre [72]. Au début des années 2000, des énergies au-delà du joule ont été démontrées dans des systèmes lidars opérationnels [15, 66] et plus récemment, le laser à CO<sub>2</sub> a été utilisé pour la détection à distance d'explosifs [73, 74].

Cependant, bien que le laser à CO<sub>2</sub> soit remarquablement accordable comparé à d'autres lasers, sa plage d'émission reste limitée à un jeu discret de longueurs d'onde, entre 9 et 11  $\mu\text{m}$ , qui correspondent aux branches de vibration P et R de la molécule de CO<sub>2</sub>. Bien que des techniques comme l'utilisation d'un réseau de diffraction ou de CO<sub>2</sub> à haute pression aient été développées pour étendre son accordabilité, celle-ci reste toutefois restreinte. La détection de certains gaz peut alors être difficile, voire impossible comme pour le gaz moutarde, par exemple.

L'utilisation d'un laser à CO<sub>2</sub> pour la détection à distance d'espèces chimiques requiert souvent l'émission de toutes les longueurs d'onde disponibles et l'utilisation d'algorithmes d'inversion complexes [11, 75]. Il est toutefois intéressant de noter qu'on peut injecter un laser à CO<sub>2</sub> avec un laser à cascade quantique, ce qui permet d'obtenir un contrôle additionnel de la durée d'impulsion et du spectre, en particulier pour des puissances crête élevées [76].

## 2.3 Le laser à cascade quantique

### 2.3.1 Principe de fonctionnement des lasers à cascade quantique

Depuis leur première réalisation expérimentale en 1994 par J. Faist, F. Capasso et al. [77], les lasers à cascade quantique (QCL) ont rapidement évolué. Ils forment aujourd'hui une nouvelle classe de lasers à semi-conducteurs capables de couvrir la gamme du moyen infrarouge de façon bien plus efficace que les lasers à diode conventionnels. Contrairement à ces derniers, les transitions initiales et finales des QCL se trouvent dans la bande de conduction [78, 79]. Ces deux états distincts au sein de la même bande – appelée sous-bande – viennent de la quantification des états électroniques. En conséquence, la longueur d'onde d'émission ne dépend pas de la bande interdite du matériau, mais de la largeur des puits quantiques. Il devient alors possible de réaliser des structures quantiques à partir de matériaux III-V matures comme le GaAs ou l'InP. L'autre caractéristique fondamentale des QCL est l'effet cascade : les électrons sont recyclés afin de générer un photon additionnel à chaque période de la structure.

Historiquement, les premiers QCL étaient confrontés à des problèmes de faible conversion électrique-optique, typiquement de l'ordre de quelques pourcents, pouvant entraîner des effets thermiques, des dégradations spectrales ou spatiales, des problèmes de stabilité de pointé ou encore des chirps en fréquence durant l'impulsion. Dans ces QCL, une grande partie de la puissance électrique était convertie en chaleur dans le système, ce qui impliquait qu'une grande quantité de chaleur devait être dissipée pour obtenir un fonctionnement continu à température ambiante. Grâce aux progrès technologiques et expérimentaux, notamment sur les hétérostructures, l'efficacité électrique-optique n'a cessé d'augmenter. Aujourd'hui, elle atteint presque 30% en fonctionnement quasi continu et dépasse les 20% en fonctionnement purement continu pour des structures Fabry-Perot émettant dans l'infrarouge moyen à température ambiante [80]. En revanche, dans la bande III, la conversion électrique-optique reste typiquement réduite de moitié [81, 82].

### 2.3.2 Affinement spectral

Comme pour les lasers à semi-conducteur, des QCL accordables et de faibles largeurs spectrales ont aussi été réalisés. L'approche la plus commune permettant d'obtenir un fonctionnement accordable et monofréquence consiste à réaliser des QCL à cavité externe (EC-QCL) [83, 84], ou des QCL à rétroaction répartie, appelés *distributed-feedback QCL* (DFB-QCL) en anglais [85, 86].

Les DFB-QCL sont obtenus en intégrant un réseau de Bragg dans le guide laser, soit sur la surface [85, 87, 88], soit enfoui près de la région active [86, 89, 90]. Dans les DFB-QCL, l'émission en longueur d'onde peut être accordée en changeant la température ou le courant d'injection [91, 92], ce qui a pour conséquence de chauffer le laser. Ces deux méthodes permettent de changer l'indice de réfraction du guide d'onde, ce qui entraîne un décalage de la longueur d'onde de résonance des réseaux de Bragg, avec une accordabilité d'environ  $0,1 - 0,2 \text{ cm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Cependant, l'accordabilité maximale d'un seul DFB-QCL est limitée à la fois par la plage de température accessible, ainsi que par le désaccord entre le mode d'émission du laser et le pic de gain. Un accord d'environ  $10-20 \text{ cm}^{-1}$  peut être obtenu en utilisant un seul système lorsqu'une variation lente en température est

appliquée [91]. En revanche, pour une variation rapide de la température par courant d'injection, l'accordabilité est plus faible et limitée à environ  $2\text{--}3\text{ cm}^{-1}$ . Afin d'exploiter au maximum la largeur de la bande de gain d'une puce QCL, il est nécessaire d'utiliser plusieurs DFB-QCL avec différentes périodes de réseau pour couvrir une plus grande gamme de longueur d'onde [93]. De plus, dans le but d'améliorer l'intégration du système, une solution consiste à fabriquer une matrice de DFB-QCL [94] comme le montre la FIGURE 2.4 (haut). Par exemple, en utilisant une matrice de 24 lasers à rétroaction répartie, une accordabilité de  $600\text{ cm}^{-1}$ , correspondant à la gamme  $6,5\text{--}10,5\text{ }\mu\text{m}$  a pu être démontrée [95].

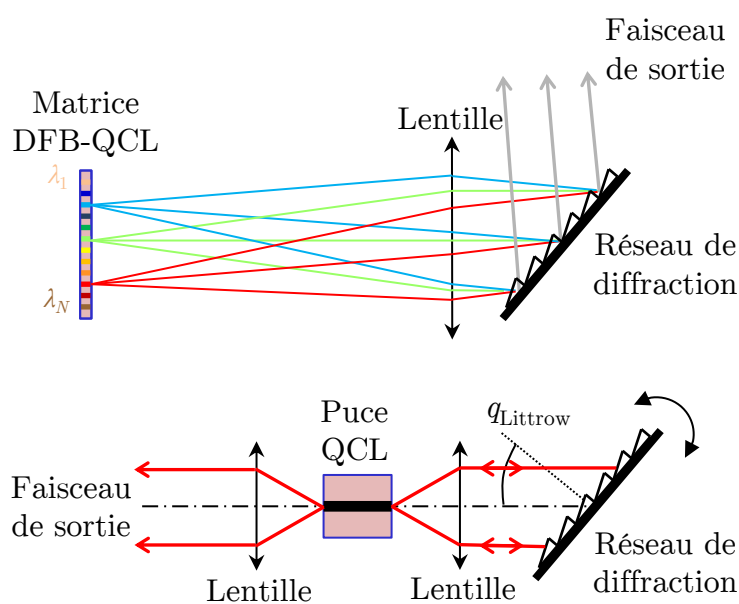


FIGURE 2.4 – Matrice de DFB-QCL combinée à un réseau de diffraction (haut), et QCL en cavité externe utilisant un réseau de diffraction en configuration Littrow (bas).

Bien que les DFB-QCL fournissent des lasers compacts et monofréquences, les QCL à cavité étendue sont les sources les plus utilisées pour un grand nombre d'applications, notamment grâce à leurs rapides progrès en termes d'accordabilité, puissance de sortie et fonctionnement continu à température ambiante [84]. La FIGURE 2.4 (bas) montre un exemple typique d'EC-QCL avec un réseau de diffraction en configuration Littrow. Le faisceau diffracté à l'ordre 1 est couplé avec la cavité laser. L'ordre 0, ou la face de sortie du laser permettent d'extraire le faisceau. En tournant l'angle du réseau de diffraction, il est possible de changer le spectre réfléchi et ainsi accorder la longueur d'onde du laser. En utilisant un design avancé de la région active, un spectre large bande peut être obtenu. Le QCL à cavité externe peut alors être largement accordé dans la bande III, par exemple entre  $7,6$  et  $11,4\text{ }\mu\text{m}$  [96]. Cependant, ces records d'accordabilité sont habituellement obtenus au prix d'une réduction de la puissance émise, typiquement d'un facteur 3 à 10. Aujourd'hui, les systèmes commerciaux basés sur la combinaison de plusieurs QCL à cavité externe dans un seul système peuvent fournir une accordabilité dans toute la bande III. Il est important de noter que les QCL à cavité externe nécessitent des bons

traitements antireflet sur la face de sortie de la puce semi-conducteur, ce afin d'éviter les effets de Fabry-Perot parasite.

### 2.3.3 Détection à distance de gaz avec des lasers à cascade quantique

Les QCL sont aujourd'hui une brique essentielle de beaucoup d'expériences de spectroscopie et de détection de gaz locale tout comme les lasers à diode conventionnels le sont dans le proche infrarouge et le visible [97–99]. Cependant, à cause de leur énergie peu élevée, qui est imposée par la faible durée de vie des porteurs de charge, et des problèmes d'endommagement laser dans les structures QCL, la détection à distance est actuellement limitée à des distances de quelques dizaines de mètres en utilisant des réflecteurs ou des cibles topographiques.

De nombreux systèmes à base de QCL ont été développés pour la détection sans contact de traces d'explosifs sur différentes surfaces. Typiquement, un ou deux QCL sont utilisés pour éclairer une surface contaminée. Selon les systèmes, le signal rétro-diffusé peut être détecté par : un détecteur mono élément [100], un diapason en quartz utilisé comme photodétecteur [101, 102], ou une caméra infrarouge [16, 103–105]. Cette dernière technique est habituellement appelée imagerie hyperspectrale active. Les plus récents développements ont été réalisés au Fraunhofer Institute for Applied Solid State Physics, où des systèmes utilisant des QCL à cavité externe avec une portée de détection de 20 m et des algorithmes avancés d'analyse de données ont été développés. Pour la détection à courte portée ( $< 3$  m), de faibles quantités de résidus d'explosifs (de l'ordre de  $10 \mu\text{g}$ ) ont pu être détectées [17]. Des systèmes d'acquisition rapide ont récemment été développés grâce à des QCL à cavité externe rapidement accordables basés sur les réseaux de diffraction [106]. Dans le but d'améliorer la portée de détection, un système hybride entre un QCL et un amplificateur paramétrique optique a récemment vu le jour pour les mêmes types d'applications [107–109]. La détection à distance par photoacoustique peut aussi être mentionnée : l'onde acoustique générée par l'absorption d'un rayonnement QCL par les molécules du gaz peut être détectée à distance grâce à des microphones [110], ou encore par un vibromètre Doppler [111]. Bien évidemment, une des grandes problématiques de cette approche vise à réduire le bruit sonore ambiant.

Une autre approche, majoritairement développée dans l'US Naval Research Laboratory, est l'imagerie photothermique [112] : la lumière d'un QCL est utilisée pour induire un échauffement local de traces d'explosifs tandis qu'une caméra thermique est utilisée pour mesurer la variation de température induite. La spectroscopie par imagerie photothermique a été démontrée pour une distance de détection de plusieurs mètres en intérieur comme en extérieur, avec les lasers fonctionnant sous le seuil limite de sécurité oculaire ( $100 \text{ mW}/\text{cm}^2$ ). Des sensibilités aux traces d'explosifs dont le diamètre de particule est de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  (soit  $\sim 1 \text{ ng}$ ) ont été démontrées [113].

Une autre approche consiste à utiliser la spectroscopie infrarouge par imagerie active pour la détection à distance d'espèces chimiques en phase vapeur [18, 114]. La lumière rétro-diffusée par une cible est mélangée avec un oscillateur local dont la fréquence est légèrement décalée afin d'améliorer le rapport signal à bruit. Des portées de détection allant jusqu'à 30 m en utilisant une cible diffuse ont été obtenues. La principale limitation



de cette approche est le bruit de speckle qui est bien plus néfaste qu'en détection directe.

Des systèmes basés sur des QCL peuvent ainsi fournir des solutions intéressantes pour la détection à courte ou moyenne portée avec des approches basées sur la rétro-diffusion du signal par une cible dure. Cependant, du fait de limitations intrinsèques en termes de puissance crête et d'énergie, les QCLs seuls ne semblent pas être une technologie aujourd'hui suffisante en termes de puissance crête pour la détection à longue distance, voire pour la détection lidar résolue spatialement où des énergies supérieures au millijoule sont nécessaires.

## 2.4 Les sources paramétriques pour la bande III

Dans cette section nous traiterons des performances des différentes sources paramétriques nanoseconde permettant de générer efficacement un faisceau dans la bande III en utilisant l'optique non linéaire d'ordre 2. En effet, comme expliqué dans la section 2.1, le régime nanoseconde est idéal pour la détection à distance, car il offre un bon rapport signal à bruit, une bonne résolution spectrale, et permet d'effectuer des mesures résolues spatialement (RR-DIAL). De plus, ce régime est particulièrement intéressant pour le fonctionnement en cavité OPO car il permet d'obtenir des puissances crêtes élevées, de l'ordre du kilowatt, et avec des seuils d'oscillations modérés, ainsi que de bonnes efficacités quantiques, typiquement de l'ordre de 30% pour des faisceaux gaussiens. Les effets thermiques sont aussi très faibles, car le rapport de cycle est généralement en dessous de 0,1 %, et les cavités sont très courtes, ce qui facilite l'intégration de ces systèmes dans des produits commerciaux, principalement pour les domaines militaires et aérospatiaux. Cependant, un des problèmes majeur des OPO en régime nanoseconde est la nature transitoire de l'oscillation en régime pulsé, ce qui rend le contrôle du contenu spectral difficile à réaliser.

Notons dès à présent que les effets non linéaires du troisième ordre peuvent aussi être utilisés pour générer des longueurs d'onde élevées, voire même des supercontinuum. Mais dans la bande III, ce domaine de recherche n'en est qu'à son début, et les résultats sont pour l'instant insuffisants pour permettre l'intégration de ces sources dans des systèmes lidars. Actuellement, ces expériences impliquent l'utilisation d'impulsions femtoseconde dans les fibres à chalcogénure [115–118], l'élargissement spectral d'impulsions picoseconde dans le GaAs [56, 119], ou la génération de peignes de fréquence dans les micro résonateurs, mais dont l'accès au-delà du proche infrarouge reste toutefois limité [120].

### 2.4.1 Oscillateurs paramétriques optiques

L'étude de l'état de l'art nous a permis de dégager trois architectures prometteuses pour la génération d'impulsions nanoseconde dans la bande III. La FIGURE 2.5 présente ces trois architectures : i) pompage à  $1,064 \mu\text{m}$  par un laser néodyme, ii) pompage à  $2 \mu\text{m}$  par un laser iia) thulium ou iib) holmium, et iii) pompage à  $1,5$  ou  $2 \mu\text{m}$  par un OPO pompé par un laser à  $1,064 \mu\text{m}$ .

En revanche, nous ne discuterons pas des développements impliquant des lasers de pompe moins efficaces ou moins matures, comme le laser Cr:ZnSe autour de  $2,5 \mu\text{m}$ , le laser Cr,Er:YSSG à  $2,79 \mu\text{m}$ , le laser Cr:YAG, ou encore le laser Er:YAG autour de  $2,94 \mu\text{m}$ , bien que ces derniers soient utiles pour des expériences de laboratoire [121].

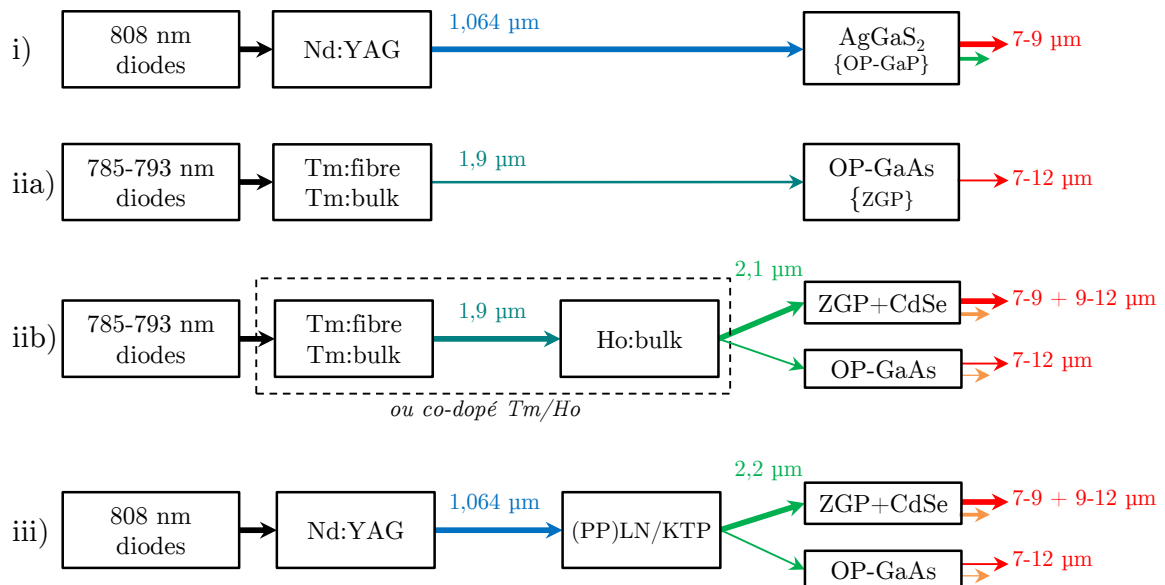


FIGURE 2.5 – Quatre configurations pour la génération d'impulsions nanoseconde fines spectralement par un OPO bande III. Les cristaux entre accolades sont des alternatives moins efficaces ou encore en cours de développement. Les flèches bleues correspondent aux faisceaux à 1  $\mu\text{m}$ , les flèches vertes aux faisceaux à 2  $\mu\text{m}$ , les flèches rouges aux faisceaux dans la bande III, et les flèches orange aux faisceaux moyen infrarouge. Notons que nous avons représenté le pompage de l'OP-GaAs par des flèches plus fines, car il ne peut pas supporter des énergies trop élevées du fait de sa faible ouverture.



### Configuration i)

Aux premiers abords, la solution i) semble la plus intéressante en raison de la grande maturité des lasers à déclenchement actif en Nd:YAG. En effet, des énergies supérieures à 1 J en fonctionnement monofréquence sont accessibles par des produits commerciaux, tandis que des versions moins énergétiques ont été militarisées ou qualifiées pour des applications spatiales. Cependant, le défaut quantique est de l'ordre de 90 % lors de la conversion du 1,064  $\mu\text{m}$  vers le 10  $\mu\text{m}$ . De plus, parmi les cristaux non linéaires disponibles commercialement, seuls les cristaux  $\text{AgGaS}_2$  et  $\text{AgGaSe}_2$  offrent une fenêtre de transparence suffisamment large, tout en réalisant l'accord de phase pour la génération dans la bande III à partir d'un pompage à 1,064  $\mu\text{m}$ . L'une des meilleures expériences menées sur un OPO en  $\text{AgGaS}_2$  date de 1998 : plus de 1,2 mJ ont été obtenus à 8,2  $\mu\text{m}$  en pompant avec un laser Nd:YAG [20, 122]. Une accordabilité en longueur d'onde allant de 7 à 9  $\mu\text{m}$  a été démontrée pour des énergies plus basses, mais avec une largeur de raie bien trop large (5  $\text{cm}^{-1}$ ) pour la détection à distance d'espèces chimiques. En revanche, la largeur spectrale d'un OPO en  $\text{AgGaS}_2$  peut être réduite à 1  $\text{cm}^{-1}$ , ce qui par exemple permet de distinguer les raies rotationnelles de la molécule de CO autour de 4,7  $\mu\text{m}$  [123]. Néanmoins, le cristal de  $\text{AgGaS}_2$  absorbe fortement au-delà de 9  $\mu\text{m}$  et son seuil de dommage est d'environ 0,2  $\text{J}/\text{cm}^{-2}$ , ce qui peut expliquer pourquoi les recherches dans ce domaine n'ont pas été poursuivies. Dans une autre expérience, Chandra et al. ont obtenu une accordabilité continue entre 6 et 14  $\mu\text{m}$  grâce à un OPO en  $\text{AgGaSe}_2$  fonctionnant en accord de phase de type I [124]. Cet OPO était pompé par un OPO simplement résonnant en KTP émettant à 1,57  $\mu\text{m}$ , lui-même pompé par un laser Nd:YAG émettant à 1,064  $\mu\text{m}$ . Dans ce système, l'énergie de sortie était supérieure à 1 mJ à 9  $\mu\text{m}$ . En revanche, comme pour l'expérience précédente sur le cristal de  $\text{AgGaSe}_2$ , la largeur de raie de 5  $\text{cm}^{-1}$  n'est pas adaptée à la détection d'agents chimiques de guerre à distance. Plus récemment, Vaicikauskas et al. ont réalisé un lidar infrarouge utilisant deux oscillateurs paramétriques optiques en cascade munis de cristaux de PPKTP et d' $\text{AgGaSe}_2$  [125]. Ils reportent une énergie de 1,2 mJ, et une accordabilité en longueur d'onde comprise entre 6 et 12  $\mu\text{m}$ . Ils ont ensuite intégré leur source dans un banc lidar, afin de réaliser une mesure de la transmission de l'atmosphère à une distance de 125 m en utilisant des rétro-rélecteurs.

Il y a quelques années, les cristaux de  $\text{BaGa}_4\text{S}_7$  [126] et de  $\text{CdSiP}_2$  [127], ont été proposés pour le pompage à 1  $\mu\text{m}$  d'OPO émettant dans la bande III sans beaucoup de succès, notamment à cause de la fenêtre de transparence limitée de ces cristaux. Plus récemment, des cristaux d'OP-GaP ont été développés pour le pompage à 1  $\mu\text{m}$ . Ce cristal possède une fenêtre de transparence allant jusqu'à 10  $\mu\text{m}$ , mais sa faible ouverture limite l'énergie de sortie [128]. De même, des cristaux de  $\text{BaGa}_2\text{GeS}_6$  et de  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  ont été réalisés en 2016 pour le pompage à 1  $\mu\text{m}$  [129]. Des recherches sur des cristaux efficaces pouvant être pompés à 1  $\mu\text{m}$  pour la génération dans la bande III sont encore en cours [130].

### Configuration iia)

Dans la configuration iia), l'OPO est directement pompé par un laser dopé thulium émettant autour de 1,9  $\mu\text{m}$ , ce qui offre deux avantages : l'extraction de l'énergie de l'onde complémentaire est doublée, et des cristaux non linéaires plus matures et efficaces sont

disponibles comme ZGP, CdSe ou encore OP-GaAs. Cependant, les lasers thulium efficaces proposant des énergies élevées et des largeurs de raies faibles en régime nanoseconde sont encore en cours de développement [131–133]. Un laser à fibre en thulium émettant à  $1,95 \mu\text{m}$  a été utilisé pour pomper un cristal d'OP-GaAs en cavité OPO simplement résonante, avec une énergie de  $16 \mu\text{J}$  par impulsion autour de  $10,6 \mu\text{m}$  [58]. Cependant, le spectre de sortie est trop large pour la spectroscopie. Dans ce cas, l'affinement du spectre peut s'effectuer par injection d'un faisceau fin spectralement à la longueur d'onde signal, par exemple avec l'OPO présenté dans la référence 134. En 2015, le premier OPO monofréquence et largement accordable dans la bande III utilisant un cristal d'OP-GaAs pompé par un microlaser thulium:YAP monofréquence a été réalisé [135]. Au cours de ce travail de thèse, cette architecture a été optimisée et utilisée pour la détection d'ammoniac à distance. Une caractérisation détaillée de cet oscillateur sera présentée dans la section 3.1.

### Configuration iib)

Dans la configuration iib), l'OPO est pompé par un laser à déclenchement actif en holmium émettant autour de  $2,1 \mu\text{m}$ , pompé par un laser thulium continu émettant autour de  $1,9 \mu\text{m}$ , pompé lui-même par des diodes lasers émettant autour de  $0,79 \mu\text{m}$ . Le laser holmium, dont la longueur d'onde d'émission est plus élevée que dans un laser thulium, permet le pompage de cristaux de ZGP à des taux de répétition élevés, ou encore l'émission de longueurs d'onde plus élevées dans l'infrarouge en utilisant un cristal de CdSe. L'efficacité maximum reportée dans la littérature est de : 60 % pour un laser thulium fibré en fonctionnement multimode continu, entre 20 et 70 % pour un laser Q-switch holmium multimode (selon qu'on considère un produit commercial ou un démonstrateur de laboratoire), et 5 % pour un OPO émettant dans la bande III. Ceci donne, au mieux, une efficacité optique totale comprise entre 0,5 et 2 %. Une solution pour simplifier cette architecture est de remplacer le tandem thulium/holmium par un milieu à gain co dopé Tm:Ho. Une autre possibilité consiste à décaler la longueur d'onde du laser thulium à l'extrémité de sa bande de gain vers  $2,05 \mu\text{m}$  [136–138]. Cependant, ces deux méthodes réduisent l'efficacité du système. Récemment, des lasers co dopés Tm:Ho monofréquences ont été développés pour la détection de gaz à effet de serre autour de  $2 \mu\text{m}$ , bien que leur efficacité soit inférieure à celle d'un laser multimode [139–141]. À notre connaissance, ces lasers n'ont, à ce jour, pas encore été utilisés pour pompage d'oscillateurs paramétriques optiques.

Plusieurs OPO de la configuration iib) émettant dans le moyen infrarouge ont été reportés [138, 142–144]. Ces sources ont été développées pour la contre-mesure optique, et il n'y a donc pas eu d'effort à apporter sur l'affinement du spectre. Il est possible d'affiner le spectre en ajoutant des éléments filtrants, comme des réseaux de Bragg en volume ou des étalons de Fabry-Perot. Dans la bande III, 45 mJ à  $8 \mu\text{m}$  ont été obtenus avec un cristal de ZGP pompé par un laser Ho:YLF refroidi à des températures cryogéniques [145]. Dans cette publication, les auteurs ne donnent pas d'informations sur le spectre. Cependant, la nature multimode du laser et l'absence d'éléments filtrants dans la cavité OPO laissent à penser que la largeur du spectre est proche de la largeur de la bande de gain du cristal de ZGP lui-même ; elle est d'environ  $20 \text{ cm}^{-1}$  autour de  $8 \mu\text{m}$  pour un cristal de 1 mm de

long. Dans leurs travaux, Chandra et al. ont réalisé un OPO dans la bande III avec une largeur de raie de  $2,5 \text{ cm}^{-1}$ , ce qui est suffisamment fin pour révéler les raies d'absorption vibrationnelle de  $\text{NH}_3$  autour de  $10 \mu\text{m}$  [146], bien que cette largeur de raie soit insuffisante pour la détection de CWA et de TIC. Cette largeur de raie a pu être obtenue en combinant un cristal de  $\text{AgGaS}_2$ , un double passage de pompe, et une cavité résonnante à l'onde complémentaire. Le laser holmium a aussi été utilisé afin de pomper des cristaux d'OP-GaAs [147–150]. Plus récemment, le laser holmium a été utilisé pour pomper des cristaux d'OP-GaP en cavité OPO doublement résonnante. L'énergie totale de sortie était de 350 mW pour l'onde signal à  $3,54 \mu\text{m}$  et l'onde complémentaire à  $5,1 \mu\text{m}$  [151].

### Configuration iii)

Dans la configuration iii), l'OPO émettant dans la bande III est pompé par un second OPO à  $2 \mu\text{m}$ , pompé lui-même par un laser Nd:YAG à  $1,064 \mu\text{m}$ . Historiquement, cette configuration d'OPO en tandem était la seule possible avant l'apparition de lasers performants à  $2 \mu\text{m}$ . Aujourd'hui, elle est toujours d'actualité, principalement grâce à la maturité des laser à  $1 \mu\text{m}$  et des composants optiques à  $1$  et  $2 \mu\text{m}$ . Le plus souvent, les OPO à  $2 \mu\text{m}$  fonctionnent grâce à des cristaux de  $\text{LiNbO}_3$ , de  $\text{KTiOPO}_4$ , ou grâce à leurs versions pour le quasi-accord de phase : PPLN et PPKTP [7]. Les efficacités typiques sont de : 40 % pour un laser à déclenchement actif en Nd:YAG pompé par diodes ( $60\% \times 70\%$ ), 15 % pour l'OPO à  $2 \mu\text{m}$  utilisant uniquement l'onde complémentaire, et 5 % pour l'OPO bande III. Ce qui donne au mieux une efficacité totale de 0,3 %. Dans cette configuration, la perte d'efficacité se fait au niveau de l'OPO à  $2 \mu\text{m}$  car seule une des ondes, signal ou complémentaire, est utilisée pour pomper l'OPO bande III. Cependant, cette efficacité peut être améliorée en recyclant l'onde inutilisée dans des étages d'amplification comme nous pourrions le voir dans la section 4.1. Dans ce type d'architecture, l'accordabilité en longueur d'onde peut s'effectuer grâce l'OPO à  $2 \mu\text{m}$ .

Une expérience intéressante d'OPO en tandem utilise un cristal de KTP pour générer un faisceau à  $1,57 \mu\text{m}$ . Ce faisceau est ensuite utilisé pour pomper un OPO en  $\text{AgGaSe}_2$  accordable entre 6 et  $12 \mu\text{m}$  avec une énergie allant de 0,2 à 1,2 mJ [152, 153]. Dans cette publication, les auteurs ont pu mesurer un spectre d'absorption du polystyrène. Cependant, la résolution de mesure était limitée à  $5 \text{ cm}^{-1}$  par la largeur de la raie d'émission de l'OPO bande III. Un OPO en ZGP pompé par un OPO en  $\text{LiNbO}_3$ , utilisant un réseau de diffraction ainsi qu'un étalon en silicone pour affiner la largeur de raie jusqu'à  $0,15 \text{ cm}^{-1}$  a été réalisé dans la référence 21, permettant de résoudre la raie rotationnelle de la vapeur d'eau autour de  $6,3 \mu\text{m}$ . Le KTP est un autre cristal souvent utilisé dans le premier OPO de la configuration iii) [154, 155]. Notons toutefois que l'efficacité de ce premier OPO pourrait être augmentée en utilisant un cristal de PPKTP. Dans ce cas, l'utilisation d'un réseau de diffraction ou d'un étalon serait primordiale pour que la largeur de raie reste dans l'acceptance spectrale du ZGP [156, 157] et, a fortiori, pour obtenir un rayonnement étroit. Un OPO en PPLN affiné spectralement par un étalon a aussi été utilisé pour pomper un OPO en OP-GaAs [57]. Dans cette expérience, la longueur d'onde de sortie peut être accordée entre 6 et  $9 \mu\text{m}$  en changeant la température du cristal de PPLN. Ce système a été amélioré par la suite en utilisant un cristal de PPLN chirpé transversalement, ce qui rend l'accord en longueur d'onde plus rapide et permet d'élargir

la gamme spectrale à 5–14  $\mu\text{m}$ . En revanche, le spectre d'émission reste large ( $\sim 5 \text{ cm}^{-1}$ ) malgré l'utilisation d'un réseau de diffraction intra cavité [158].

Comme nous avons pu le voir, les OPO fins spectralement, que ce soit à 2  $\mu\text{m}$  ou en bande III sont peu nombreux et difficiles à obtenir. Ceci est encore plus vrai pour l'obtention d'un rayonnement monofréquence. L'insertion d'un filtre spectral dans la cavité n'est pas toujours efficace et augmente drastiquement le seuil d'oscillation. Une alternative connue est l'injection de la cavité OPO par une source fine spectralement à la longueur d'onde signal [65, 159]. Cependant, pour un OPO bande III, cela implique l'utilisation d'une diode laser monofréquence émettant autour de 2,5  $\mu\text{m}$ , et préférablement avec une accordabilité aussi large que celle de l'OPO. Une telle diode peut être difficile à obtenir. Pour pallier cet inconvénient, une idée est d'utiliser un OPO monofréquence comme source d'injection [134]. Une autre possibilité, qui demande encore à être démontrée expérimentalement, est l'injection d'un QCL dans un OPO résonant au complémentaire. Cependant, la complexité de cette approche doit être comparée à l'amplification directe d'un QCL. La dernière alternative à l'utilisation d'éléments intra cavité pour affiner le spectre d'émission est l'utilisation de l'architecture NesCOPO adaptée à la bande III. Nous verrons, au cours de ce travail de thèse comment une telle architecture sera mise en oeuvre pour la détection de gaz à distance dans la section 3.1.

Enfin, il est important de comprendre qu'il n'est pas possible d'augmenter l'énergie de sortie de l'oscillateur paramétrique optique en augmentant l'ouverture des cristaux non linéaires sans affecter les propriétés spectrales et spatiales de l'émission, ceci du fait de l'apparition de modes transverses et longitudinaux d'ordre plus élevés. Il devient alors intéressant de construire un OPO de basse énergie suivi d'une chaîne d'amplification paramétrique comme présenté dans la partie suivante.

## 2.4.2 Amplification et différence de fréquences à haute énergie

### Émission directe et amplification paramétrique dans la bande III

L'énergie de sortie d'un OPO émettant dans la bande III est généralement trop faible pour la détection à distance. Une idée consiste à utiliser un amplificateur paramétrique optique. La FIGURE 2.6 montre deux exemples de pompage à 2  $\mu\text{m}$  où l'oscillateur peut être : i) un QCL ou ii) un OPO.

L'avantage principal de l'OPO comparé au QCL est la puissance crête. En effet, avec un OPO, la puissance crête peut être jusqu'à deux ordres de grandeur supérieure à celle d'un QCL, ce qui permet de réduire le nombre d'étages d'amplification. De plus, la couverture spectrale d'un OPO seul est souvent supérieure à celle d'un QCL seul, surtout avec des cristaux fonctionnant en quasi-accord de phase comme l'OP-GaAs. Dans les premiers étages d'amplification, où le gain est élevé, mais où les énergies restent basses, l'OP-GaAs est un bon candidat, si ce n'est le meilleur à l'heure actuelle. En revanche, pour les derniers étages d'amplification où des cristaux de grande ouverture sont nécessaires pour la tenue au flux, les cristaux de ZGP et de CdSe restent les meilleures options.

Le schéma i) de la FIGURE 2.6 a été démontré avec un cristal d'OP-GaAs pompé par un laser thulium multimode et injecté par un DFB-QCL à 4,5  $\mu\text{m}$  [160] ou par un QCL à cavité externe accordable entre 8 et 10  $\mu\text{m}$  [107]. De même, cette configuration a pu être démontrée avec un cristal de ZGP injecté par un QCL à cavité externe émettant à 8  $\mu\text{m}$

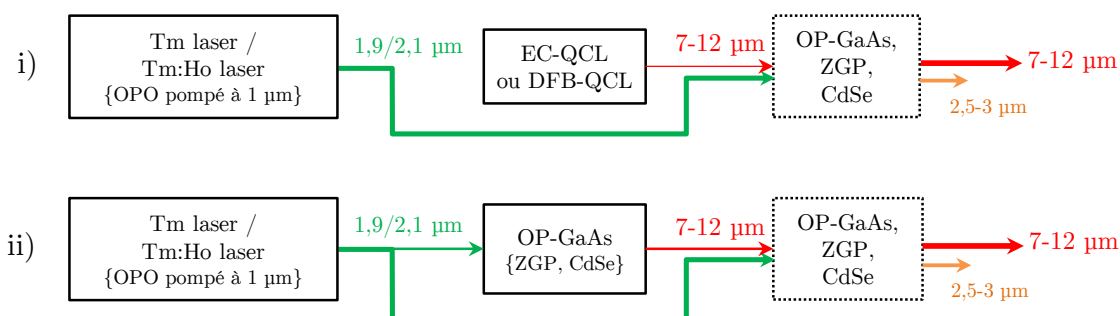


FIGURE 2.6 – Deux architectures possibles d’oscillateurs-amplificateurs utilisant un oscillateur émettant dans la bande III et un pompage à 2 μm. Les lignes pleines correspondent aux oscillateurs et les lignes pointillées aux amplificateurs. Les systèmes entre accolades correspondent à des alternatives moins efficaces. i) Architecture utilisant un QCL comme injecteur pour l’OPA. ii) Architecture utilisant un OPO comme injecteur pour l’OPA. Les flèches vertes correspondent aux faisceaux à 2 μm, les flèches rouges aux faisceaux dans la bande III et les flèches orange aux faisceaux dans le moyen infrarouge.

et pompé par une source paramétrique à 2 μm monofréquence et de haute énergie [161]. La configuration ii) quant à elle a pu être réalisée en utilisant un OPO à 2 μm comme source de pompe, ainsi que des cristaux de ZGP à la fois dans l’OPO bande III et dans l’OPA [162, 163]. Cependant, un tel OPO est très large spectralement et doit être affiné en utilisant un réseau de Bragg en volume ou rendu monofréquence grâce à l’utilisation double cavités [164]. Plus tard, des cristaux de ZGP ont été utilisés en configuration oscillateur-amplificateur pompé par un laser cryogénique Tm:Ho:YLF, offrant des énergies de plus de 40 mJ à 8 μm mais avec un spectre large [145]. L’OPO présenté dans la section 3.1 est un bon candidat d’oscillateur bande III pour cette configuration.

### Émission et amplification paramétrique à 2 μm puis conversion vers la bande III

La FIGURE 2.7 présente deux configurations en cascade pompées à 1 μm. Dans la configuration iii), le même laser à 1 μm est utilisé pour pomper l’amplificateur à 2 μm et l’OPO accordable entre 2,5 et 3 μm. Le faisceau bande III est ainsi généré et amplifié en mélangeant les deux ondes dans le cristal non linéaire. En utilisant cette architecture, 5 mJ ont pu être obtenus autour de 8 μm avec un spectre large en utilisant des cristaux de ZGP [165], tandis qu’une énergie de 0,5 mJ a pu être obtenue avec une largeur de raie de 1,6 cm<sup>-1</sup> [166]. Les faisceaux à 2 μm peuvent être obtenus par un laser Tm:Ho. En revanche, un laser à 1 μm reste nécessaire au pompage de l’OPO à 2,5–3 μm.

Dans la solution iv) de la FIGURE 2.7, l’oscillateur moyen infrarouge émet des ondes signal et complémentaire respectivement autour de 1,9 et 2,3 μm. Puis ces ondes donnent lieu à un faisceau dans la bande III par différence de fréquences. La fréquence de l’onde dans la bande III est alors donnée par :  $\omega_{\text{DFG}} = \omega_s - \omega_1 = 2\omega_s - \omega_p$ . Pour augmenter l’énergie au-delà de la limite de saturation du premier cristal de DFG, l’onde générée peut être amplifiée dans un second étage de DFG en utilisant l’onde complémentaire

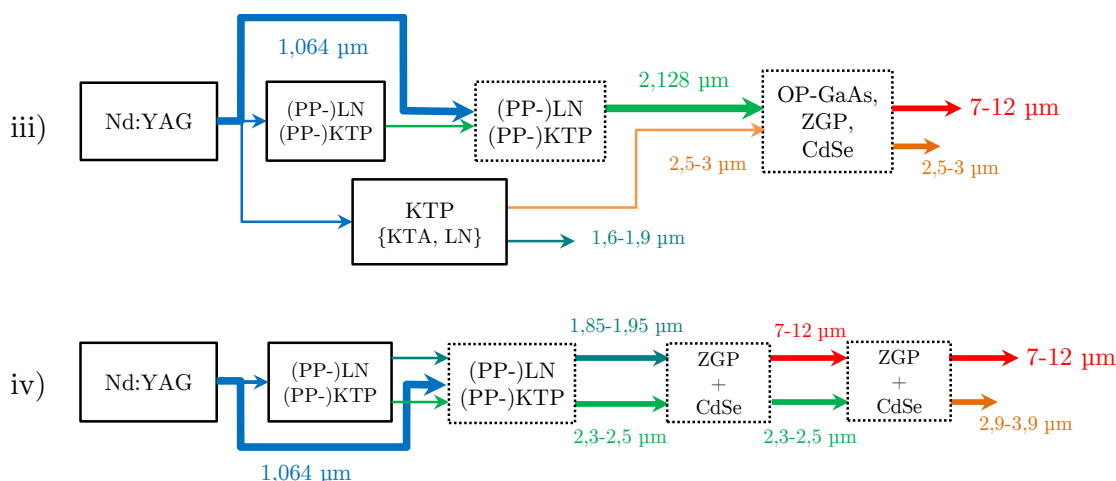


FIGURE 2.7 – Deux architectures en cascade possibles utilisant un oscillateur maître moyen infrarouge pompé à  $1 \mu\text{m}$  et un étage de final de DFG pour générer le faisceau dans la bande III. Les flèches bleues correspondent aux faisceaux à  $1 \mu\text{m}$ , les flèches vertes aux faisceaux à  $2 \mu\text{m}$ , les flèches rouges aux faisceaux dans la bande III et les flèches orange aux faisceaux dans le moyen infrarouge.

comme pompe [167]. L'un des premiers et remarquables travaux sur le sujet est présenté dans la référence 168, où les auteurs ont réalisé un OPO en  $\text{LiNbO}_3$  délivrant 250 mJ autour de 1,93 et 2,36  $\mu\text{m}$  et pompé par un laser Nd:YAG délivrant des énergies de 950 mJ. La largeur de raie de l'OPO a pu être réduite à 1,8 GHz en utilisant un réseau de diffraction intra cavité ainsi qu'un étalon. Puis, les ondes signal et complémentaire ont été mélangées dans un cristal de CdSe pour produire des énergies allant de 10 à 1 mJ entre 10 et 15  $\mu\text{m}$ , respectivement. En revanche dans cette expérience, l'émission n'est pas monofréquence aussi bien transversalement que longitudinalement. De plus, l'accord de phase par rotation du cristal de  $\text{LiNbO}_3$  induit des désalignements de faisceau. Cette architecture peut être rendue monofréquence en utilisant une double cavité OPO pompée par un laser Nd:YAG [169]. Il est intéressant de noter qu'il est possible d'utiliser deux OPO indépendants. L'idée ici est d'accorder les longueurs d'onde d'émission des deux OPO sans avoir à tourner le cristal de DFG [170]. Il est aussi possible d'utiliser deux lasers accordables, comme les lasers à colorant [171, 172], les lasers Ti:saphir, ou les lasers dopés chrome [173]. Cependant, ces derniers ne sont pas très efficaces en régime impulsionnel à cause de la faible durée de vie des niveaux supérieurs des transitions lasers.

## 2.5 Choix des sources optiques pour la détection d'espèces chimiques à distance

Nous avons vu au début de ce chapitre qu'il existait trois types de sources potentielles pour la détection d'espèces chimiques à distance : le laser à  $\text{CO}_2$ , le laser à cascade quantique et les sources paramétriques. Nous avons mis en lumière les limitations respectives des deux premières technologies, à savoir une accordabilité insuffisante, et une puissance



crête trop faible. Dans la section 2.4.1, nous avons vu qu'il était possible d'émettre un faisceau accordable dans toute la bande III grâce aux sources paramétriques. Plusieurs configurations existent ; le pompage d'un OPO bande III peut se faire : i) par un laser à 1  $\mu\text{m}$ , iia) par un laser thulium, iib) par un laser holmium pompé par un laser thulium ou un laser co dopé thulium/holmium, et iiii) par un OPO à 2  $\mu\text{m}$ . Dans le premier cas, l'architecture présentée semble être la plus prometteuse en termes de simplicité et de maturité du laser de pompe. Cependant, à l'heure actuelle, il existe peu de cristaux adaptés au pompage à 1  $\mu\text{m}$ , car ils sont encore au stade de recherche et de développement pour la plupart. Le pompage à 2  $\mu\text{m}$  par un laser thulium ou un laser holmium d'OPO bande III peut être une alternative à l'architecture i). Il offre la possibilité d'utiliser des cristaux plus matures comme ZGP ou CdSe. En revanche, à ce jour, ces lasers sont peu énergétiques, ou bien leur largeur spectrale reste trop grande pour la détection d'agents chimiques de guerre et a fortiori d'autres espèces comme les TIC. Des travaux de recherche doivent encore être réalisés afin d'augmenter l'énergie de sortie, et affiner la largeur spectrale de ces lasers. Aujourd'hui, l'architecture iiii) reste la plus répandue grâce à la maturité des sources lasers à 1  $\mu\text{m}$  et des matériaux non linéaires à 2  $\mu\text{m}$ . Elle offre un bon compromis entre les architectures i) et ii). Pour les trois configurations précédentes, l'énergie reste un facteur limitant à la détection longue portée. Afin d'augmenter l'énergie de sortie de ces sources bande III, il est possible d'intégrer une chaîne d'amplification au système, comme nous avons pu le voir dans la section 2.4.2. Toutefois, l'étude de l'état de l'art nous a montré que pour toutes les configurations précédentes, la largeur spectrale de la source doit être affinée par des éléments intra cavité, une source d'injection, un réseau de Bragg en volume, ou l'effet Vernier optique.

Dans le cadre de cette étude, notre choix s'est porté vers les architectures iia) et iiii). Dans le premier cas, un OPO en OP-GaAs est pompé par un microlaser thulium émettant à 1,938  $\mu\text{m}$  (voir section 3.1). Dans le deuxième cas, un OPO à 2  $\mu\text{m}$  est pompé par un laser Nd:YAG puis le signal et le complémentaire sont amplifiés avant d'être convertis par différence de fréquences vers la bande III (voir section 4.1). De plus, dans cette étude, l'affinement du spectre est effectué grâce à l'utilisation d'OPO à cavités imbriquées dont le principe de fonctionnement est détaillé dans la section 1.2.3.

## Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons abordé le principe de fonctionnement des lidars à absorption différentielle résolus spatialement et intégrés colonne. Notamment, nous avons pu voir que les spécifications énergétiques de la source lidar étaient différentes selon le type de mesure ciblée. En résolu spatialement, l'énergie nécessaire est de l'ordre de la dizaine de millijoules tandis qu'en intégré colonne, elle est de l'ordre de la centaine de microjoules, pour des portées de détection atteignant une centaine de mètres. De plus, nous avons pu voir que la largeur spectrale de ces sources doit être au moins inférieure à  $1 \text{ cm}^{-1}$ , et la source doit pouvoir couvrir au minimum la gamme 8–12  $\mu\text{m}$  afin d'assurer l'identification des différentes espèces chimiques à détecter. Grâce à ces spécifications, nous avons pu déterminer que seuls les lasers à  $\text{CO}_2$ , les lasers à cascade quantique et les sources paramétriques pouvaient répondre à ces besoins. L'étude bibliographique nous a permis d'écarter les lasers à  $\text{CO}_2$  et les lasers à cascade quantique du fait de leurs limitations respectives en termes d'accordabilité et de puissance crête. Concernant les sources paramétriques, nous avons mis en évidence trois types d'architectures intéressantes pour l'émission d'un faisceau dans la bande III : le pompage d'OPO bande III par i) un laser à 1  $\mu\text{m}$ , ii) un laser thulium, iii) un laser holmium pompé par un laser thulium ou par un laser co dopé thulium/holmium, et iv) un OPO à 2  $\mu\text{m}$ . Cependant, nous avons vu que pour toutes ces architectures, l'énergie de sortie était limitée par le choix des cristaux ou par le choix des lasers de pompe, par exemple. Afin d'augmenter l'énergie, il est possible d'intégrer une chaîne d'amplification avant ou après l'émission du faisceau bande III. L'étude de l'état de l'art nous a aussi permis de retenir les architectures ii) et iv) pour la suite de cette étude. Nous verrons un exemple d'architecture ii) dans le chapitre 3, et un exemple d'architecture iv) dans le chapitre 4.



# Chapitre 3

## Oscillateurs paramétriques optiques nanoseconde émettant en bande III

### Objectifs du chapitre

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'émission directe dans la bande III en présentant deux sources optiques largement accordables entre 8 et 12  $\mu\text{m}$ . Dans un premier temps, nous présenterons les résultats obtenus dans le cadre du projet MUSTARD, qui comprend un NesCOPO en OP-GaAs pompé par un microlaser thulium à 1,938  $\mu\text{m}$ . Cette source sera caractérisée en termes d'énergie, d'accordabilité en longueur d'onde, et de finesse spectrale, avant d'être intégrée dans un système lidar pour la détection d'ammoniac. Dans un second temps, nous présenterons un nouveau concept de cristal de CdSe poli en cylindre partiel, qui a été développé à l'Institut Néel. Ce cristal sera utilisé en cavité OPO simplement résonnante afin de démontrer son potentiel en termes d'accordabilité en longueur d'onde.

### 3.1 OPO à cavités imbriquées en OP-GaAs monofréquence

Dans cette expérience, l'émission vers la bande III s'effectue en pompant un OPO en OP-GaAs par un microlaser thulium monofréquence. La configuration optique correspond à l'architecture iia) de la FIGURE 2.5 (page 48). Cette expérience s'inscrit dans le cadre du projet MUSTARD en collaboration entre Thales Research & Technology (TRT), Teem Photonics et l'Onera, et est co-financé par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR-11) et la Direction Générale de l'Armement (ASTR-016). L'objectif est de réaliser un émetteur en bande III qui soit à la fois compact et transportable pour la détection de gaz à distance. Dans les sections suivantes, nous présentons les résultats obtenus en termes d'accordabilité en longueur d'onde, d'énergie, de finesse spectrale et de détection d'espèces chimiques.

#### 3.1.1 Laser de pompe $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$

Le laser de pompe est un microlaser  $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$  monofréquence émettant des impulsions de 36 ns à une fréquence de répétition de 100 Hz [174]. Ce laser a été développé et réalisé par TRT et Teem Photonics. Le schéma de la cavité est donné dans la FIGURE 3.1. La longueur d'onde d'émission est de 1938,5 nm et l'énergie par impulsion est de 170  $\mu\text{J}$ ,

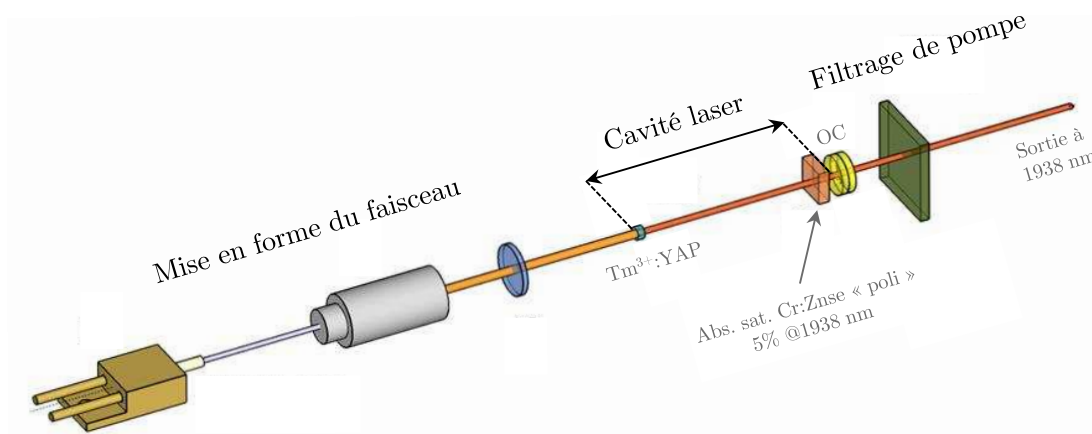


FIGURE 3.1 – Schéma de la cavité du microlaser de pompe. Image fournie par TRT et Teem Photonics.

ce qui correspond à une puissance crête de 4,7 kW. Le cristal de  $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$  cristallise dans le groupe d'espace  $Pnma$ . Il fait 4 mm de long, la fraction molaire de  $\text{Tm}^{3+}$  est de 3 %, et il est taillé selon l'axe cristallographique  $a$ . Afin de réduire le nombre d'éléments optiques à l'intérieur de la cavité, le miroir d'entrée est déposé sur une des faces du cristal avec un traitement hautement transmissif à 795 nm et hautement réfléchissant à 1940 nm. La deuxième face du cristal est traitée antireflets à 793 nm et 1938 nm. Le cristal est pompé par une diode fibrée délivrant une puissance de 3 W à 793 nm. Les impulsions de pompe sont créées par déclenchement passif grâce à un absorbant saturable

en  $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$  absorbant 5 % à la longueur d'onde du laser. L'oscillation monomode longitudinale est obtenue grâce à l'insertion d'un étalon de Fabry-Perot de  $125 \mu\text{m}$  d'épaisseur ainsi qu'à une modulation du courant des diodes de pompe. Le facteur  $M^2$  du laser vaut 1,02, comme présenté dans la FIGURE 3.7 (page 62).

### 3.1.2 Cristaux d'OP-GaAs

Pour cette expérience, nous utilisons trois échantillons d'OP-GaAs réalisés par TRT, appelés M19, M28 et M22. Leurs caractéristiques sont présentées dans le TABLEAU 3.1. M19 et M28 possèdent un pas de retournement de  $72,6 \mu\text{m}$ , et font respectivement 10 et

Cristal	M19	M28	$\Lambda_1$	$\Lambda_2$	$\Lambda_3$
Longueur (mm)	10	6		10	
Période ( $\mu\text{m}$ )		72,6	66	64,8	63,6
Idler ( $\mu\text{m}$ )	10,2–11,2		8,3–9	7,9–8,7	7,6–8,3

TABLEAU 3.1 – Récapitulatif des spécificités de chaque cristal d'OP-GaAs.

6 mm de long, tandis que M22 est un cristal « multipiste » de 10 mm de long avec des pas de retournement de 66, 64,8 et  $63,6 \mu\text{m}$ . Leur croissance est obtenue par épitaxie en phase vapeur [55], comme présenté dans la section 1.3.2. Ici, la croissance du cristal se fait selon la direction cristallographique [001]. La FIGURE 3.2 présente des images de ces cristaux ainsi que leurs directions cristallographiques (insert de gauche).

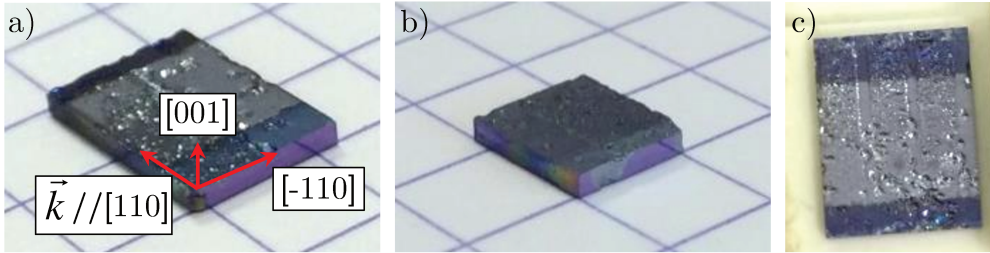


FIGURE 3.2 – Images des cristaux d'OP-GaAs utilisés lors de cette thèse. a) M19 ainsi que ses directions cristallographiques, b) M28 et c) M22 (multipiste).

Nous avons estimé le seuil de dommage des traitements antireflets des cristaux d'OP-GaAs à  $1,938 \mu\text{m}$  en effectuant une mesure de type S-on-1 [175]. Pour cette expérience, cinq sites sont exposés à plusieurs impulsions laser, 3000 ici, pour une fluence donnée. Puis la fluence est augmentée, et cinq nouveaux sites sont exposés à 3000 tirs laser. La probabilité d'endommagement est alors calculée en fonction du nombre de sites endommagés par fluence. La FIGURE 3.3 montre des images d'impacts laser sur l'échantillon test réalisées à l'aide d'une loupe binoculaire pour différentes fluences. Le seuil de dommage est évalué à  $0,6 \text{ J}/\text{cm}^2$ . En dessous du seuil de dommage (FIGURE 3.3 a)), l'échantillon ne présente pas d'impact. Légèrement au-dessus du seuil de dommage (FIGURE 3.3 b)), quelques

sites sont endommagés et l'impact n'est visible qu'à la loupe binoculaire. Finalement, plusieurs fois au-dessus du seuil de dommage (FIGURE 3.3 c)), tous les sites de test sont endommagés et les impacts sont visibles à l'œil nu.

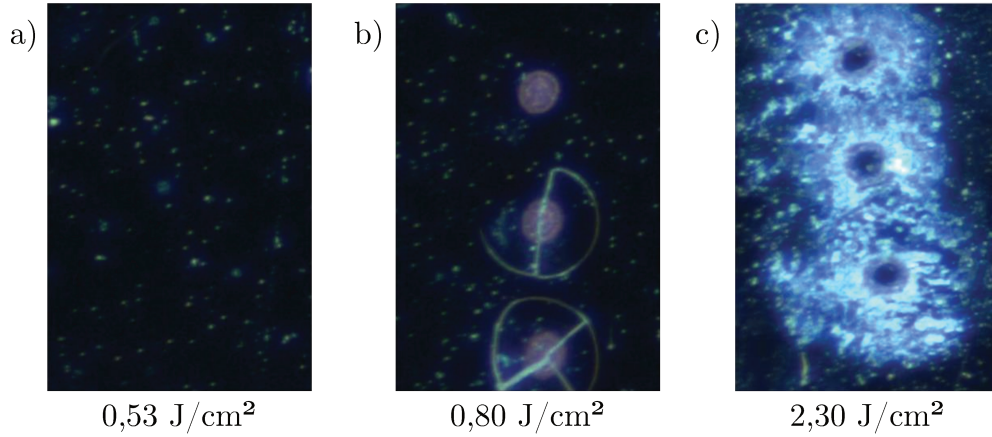


FIGURE 3.3 – Images d'impacts laser sur un échantillon test en GaAs pour différentes fluences : a)  $0,53 \text{ J/cm}^2$ , b)  $0,8 \text{ J/cm}^2$  c)  $2,3 \text{ J/cm}^2$ .

Nous avons d'abord mesuré l'acceptance spectrale et l'acceptance en température de M28 autour de  $10,7 \mu\text{m}$ . Pour cela, nous avons effectué la différence de fréquences entre les ondes signal et complémentaire générées par un OPO simplement résonant utilisant un cristal de PPLN en configuration de quasi-accord de phase de type II. Cet OPO est pompé par un laser multimode en Nd:YAG à  $1,064 \mu\text{m}$ . Le schéma du montage est présenté dans la FIGURE 3.4. Les largeurs de raie du signal et du complémentaire sont toutes les deux

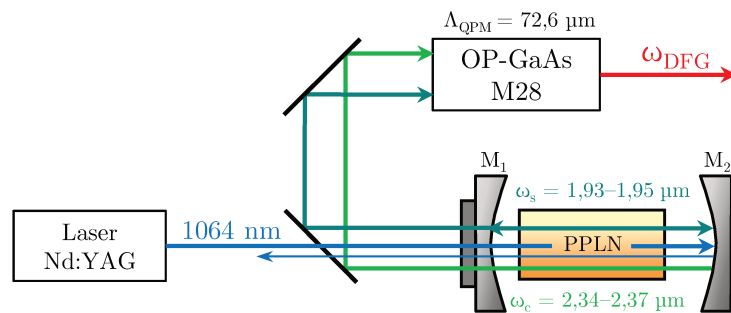


FIGURE 3.4 – Schéma du montage pour la mesure de l'acceptance spectrale et de l'acceptance en température du cristal M28.

proches de  $1 \text{ cm}^{-1}$  grâce à l'accord de phase de type II. Les longueurs d'onde signal et complémentaire de cet OPO sont accordées en modifiant la température du PPLN. Comme nous l'avons vu dans la section 1.1.2 en régime de pompe non dépeuplée, l'intensité de l'onde générée par différence de fréquences est proportionnelle à un sinus cardinal au carré,

soit :

$$I_{\text{DFG}}(T, \lambda) \propto \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k(T, \lambda)L}{2} \right), \quad (3.1)$$

où  $\Delta k(T, \lambda)$  est la relation d'accord de phase dépendant de la température du cristal et de la longueur d'onde,  $L$  étant la longueur du cristal. La FIGURE 3.5 a) montre l'intensité

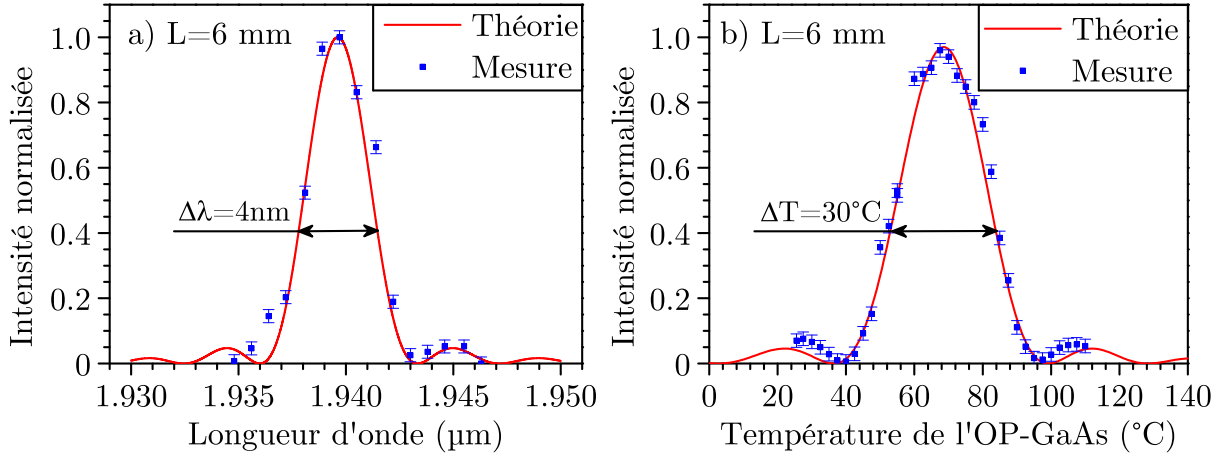


FIGURE 3.5 – a) Intensité de l'onde générée par différence de fréquences dans M28 en fonction de la longueur d'onde signal pour  $T_{\text{M28}} = 95^\circ\text{C}$ . b) Intensité de l'onde générée par différence de fréquences en fonction de la température du cristal d'OP-GaAs pour  $\lambda_s^{\text{PPLN}} = 1,936 \mu\text{m}$  et  $\lambda_c^{\text{PPLN}} = 2,362 \mu\text{m}$ . En bleu, les points de mesure, et en rouge, le modèle théorique.

de l'onde générée par différence de fréquences en fonction de la longueur d'onde signal (en bleu) ainsi que le modèle théorique (en rouge) pour une température de cristal fixée à  $95^\circ\text{C}$ . Le modèle théorique a été calculé en utilisant les relations de Sellmeier établies par Skauli et al. [59] pour GaAs. L'acceptance spectrale à la longueur d'onde signal est de  $6,67 \text{ nm} \cdot \text{cm}$ . Notons que les premiers points à gauche de la courbe ne correspondent pas parfaitement à la théorie, car l'OPO est moins efficace à ces longueurs d'onde. De même, la FIGURE 3.5 b) montre l'intensité de l'onde générée par différence de fréquences en fonction de la température du cristal (en bleu) ainsi que le modèle théorique (en rouge) pour des ondes signal et complémentaire respectivement fixées à  $1,936$  et  $2,362 \mu\text{m}$ . L'acceptance en température du cristal est de  $50^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$ . De plus, comme nous pouvons le voir sur la FIGURE 3.5, la largeur de la courbe expérimentale est en très bon accord avec les prédictions théoriques, ce qui démontre une bonne qualité de l'échantillon. Notamment, nous pouvons conclure que la longueur géométrique du cristal est équivalente à la longueur d'interaction. De plus, l'existence de zéros, à  $40$  et  $100^\circ\text{C}$ , suggère que le réseau présente peu de défauts de périodicité [45].

### 3.1.3 Réalisation expérimentale

La FIGURE 3.6 présente le montage utilisé lors de cette expérience. L'OPO est pompé par le microlaser  $\text{Tm}^{3+}:\text{YAP}$  présenté dans la section 3.1.1. En sortie du laser, deux lames

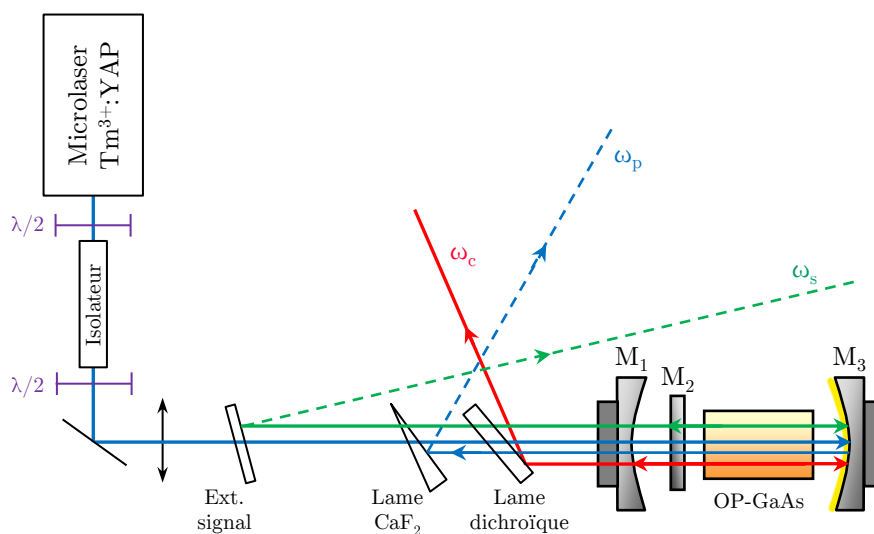


FIGURE 3.6 – Schéma du montage pour le pompage du NesCOPO en OP-GaAs.

demi-onde sont placées avant et après un isolateur de Faraday pour ajuster puissance et direction de polarisation de la pompe. Puis le faisceau est focalisé dans l'OPO grâce à une lentille en  $\text{CaF}_2$  de 150 mm de longueur focale. La FIGURE 3.7, présente la mesure du col du faisceau par la méthode dite du « couteau ». Le rayon au col du faisceau à

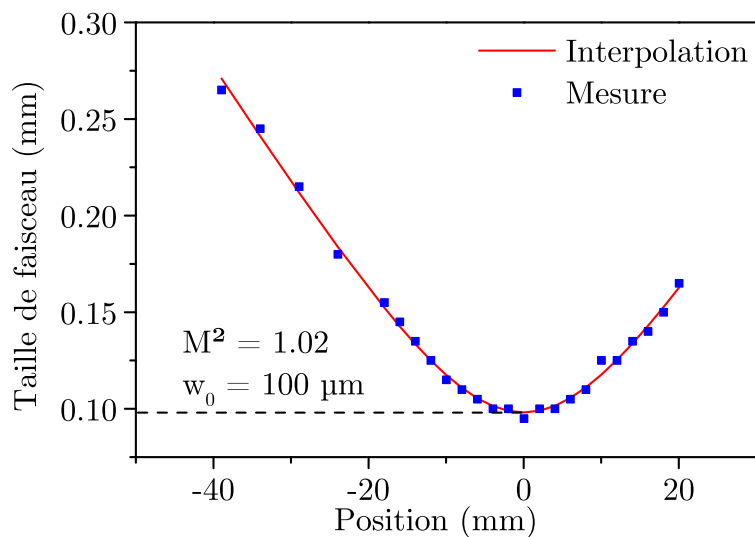


FIGURE 3.7 – Caustique de la pompe mesurée près du col du faisceau.

$1/e^2$  est estimé à  $100 \mu\text{m}$ , et le facteur de qualité  $M^2$  du laser à 1,02. Ces valeurs sont obtenues par interpolation des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés. Un miroir en ZnSe réfléchissant 98 % de l'onde signal, une lame en  $\text{CaF}_2$ , ainsi qu'une lame dichroïque en ZnSe sont placés entre la lentille et l'OPO afin d'extraire indépendamment les ondes signal, pompe et complémentaire. La FIGURE 3.8 présente une vue de côté, ainsi qu'une vue éclatée du NesCOPO réalisées avec le logiciel SolidWorks. La cavité

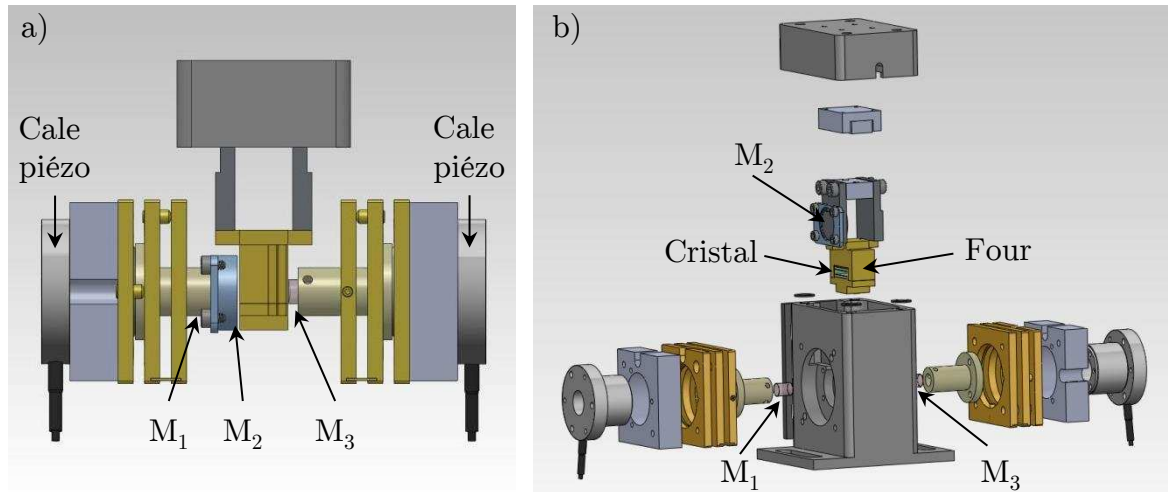


FIGURE 3.8 – Vues en trois dimensions du NesCOPO en OP-GaAs réalisées grâce au logiciel SolidWorks. a) vue de côté, b) vue éclatée.

complémentaire est composée d'un miroir doré sphérique  $M_3$  dont le rayon de courbure vaut 50 mm et d'un miroir sphérique  $M_1$  dont le rayon de courbure vaut 20 mm et réfléchissant 70 à 87 % de l'onde complémentaire entre 8 et 11  $\mu\text{m}$ . La cavité signal est composée du même miroir doré  $M_3$  et d'un miroir plan  $M_2$  en Znse réfléchissant 98 % de l'onde signal. Cependant, avec un cristal d'OP-GaAs de 10 mm de long, la dissociation chromatique est déjà de quelques pourcents, ce qui implique que les cavités signal et complémentaire doivent être physiquement très proches l'une de l'autre pour obtenir le fonctionnement monomode longitudinal. En effet, comme indiqué sur la FIGURE 3.9 qui représente l'intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire, le paramètre de dissociation idéal se situe entre 1,5 et 2,5 %. Afin de pallier ce problème, le miroir signal a été déposé sur la face externe de  $M_2$  [135]. Chaque cristal est ensuite inséré dans cette cavité, entre  $M_2$  et  $M_3$ , dans un four contrôlé en température. Comme présenté dans la section 1.2.3,  $M_1$  et  $M_3$  sont montés sur des cales piézo-électriques afin d'ajuster finement les longueurs de cavité. Ici, l'intervalle spectral libre des cavités vaut approximativement 4 GHz.

Nous estimons les rayons aux cols des faisceaux à  $1/e^2$  par simulation numérique à 107  $\mu\text{m}$  pour le mode signal et à 166  $\mu\text{m}$  pour le mode complémentaire pour les paramètres suivants : cristal de 10mm de long, et onde complémentaire à 10,4  $\mu\text{m}$  (FIGURE 3.10 a)). Pour un cristal de 6 mm de long, les rayons sont de 100  $\mu\text{m}$  et 160  $\mu\text{m}$  pour les modes signal et complémentaire respectivement (FIGURE 3.10 b)).

### 3.1.4 Caractérisations de l'OPO

#### Seuil et efficacité

Nous avons obtenu des seuils d'oscillation typiques de 2  $\mu\text{J}$  pour M22, 5,5  $\mu\text{J}$  pour M19, et 6,3  $\mu\text{J}$  pour M28 après optimisation de l'alignement du NesCOPO et de la position latérale du cristal. La polarisation de la pompe est fixée selon la direction cristallogra-



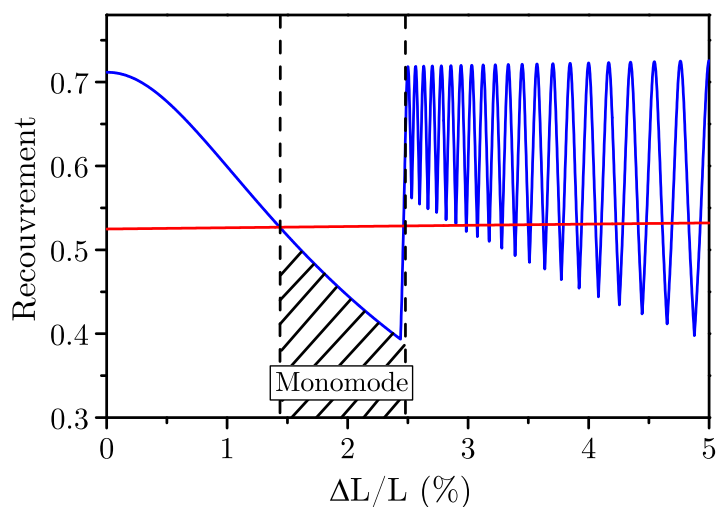


FIGURE 3.9 – Intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en fonction du paramètre de dissociation pour un cristal d’OP-GaAs de 10 mm de long, une bande de gain expérimentale de  $10,5 \text{ cm}^{-1}$ , et des coefficients de finesse de 28 et 11 pour le signal et le complémentaire respectivement. La ligne rouge correspond au recouvrement au-delà duquel il y a oscillation des modes voisins. L’oscillation monomode est obtenue pour une valeur de la dissociation comprise entre 1,5 et 2,5 %.

phique  $[-110]$  afin de minimiser le seuil d’oscillation, ce qui donne, pour M28, une onde complémentaire aussi polarisée selon  $[-110]$ . Les seuils d’oscillation obtenus sont deux à trois fois plus élevés que les prédictions théoriques. Nous attribuons cet écart à des traitements diélectriques imparfaits, ainsi qu’à des pertes dues à un léger « *clipping* » du faisceau infrarouge par les bords du cristal. En effet, comme nous pouvons le voir sur la FIGURE 3.10, le faisceau complémentaire possède un diamètre théorique de  $300 \mu\text{m}$ , ce qui laisse peu de marge au positionnement du cristal.

La FIGURE 3.11 présente l’énergie de l’onde complémentaire en fonction de l’énergie de pompe incidente pour chaque cristal d’OP-GaAs et le TABLEAU 3.2 récapitule leur efficacité. Trois fois au-dessus du seuil d’oscillation de l’OPO, nous avons obtenu une énergie complémentaire typique de 150 nJ, avec un maximum de 350 nJ pour M28. La fluctuation en énergie de l’onde complémentaire est de  $\pm 1 \%$  rms sur une seconde. Comme présenté sur la FIGURE 3.11 a), M19 possède une efficacité plus faible que M28. Cet écart est dû à des effets de « *clipping* » de faisceau qui sont d’autant plus importants que les cristaux sont longs. Il est aussi important de noter que M19 présente des imperfections. En effet, l’oscillation n’est possible qu’à certains endroits précis du cristal, et ces positions ont également été endommagées lors d’expériences préliminaires. En revanche, pour M28, l’oscillation peut s’effectuer n’importe où dans le cristal. Sur la FIGURE 3.11 b), pour des taux de pompage élevés, il est possible d’observer un écart en énergie entre les trois courbes. Nous attribuons cet écart à un fonctionnement multimode de l’OPO, qui apparaît typiquement au-delà d’un taux de pompage de 3, ce qui correspond à environ  $6 \mu\text{J}$  pour M22.

La FIGURE 3.12 montre les profils temporels du complémentaire, de la pompe inci-



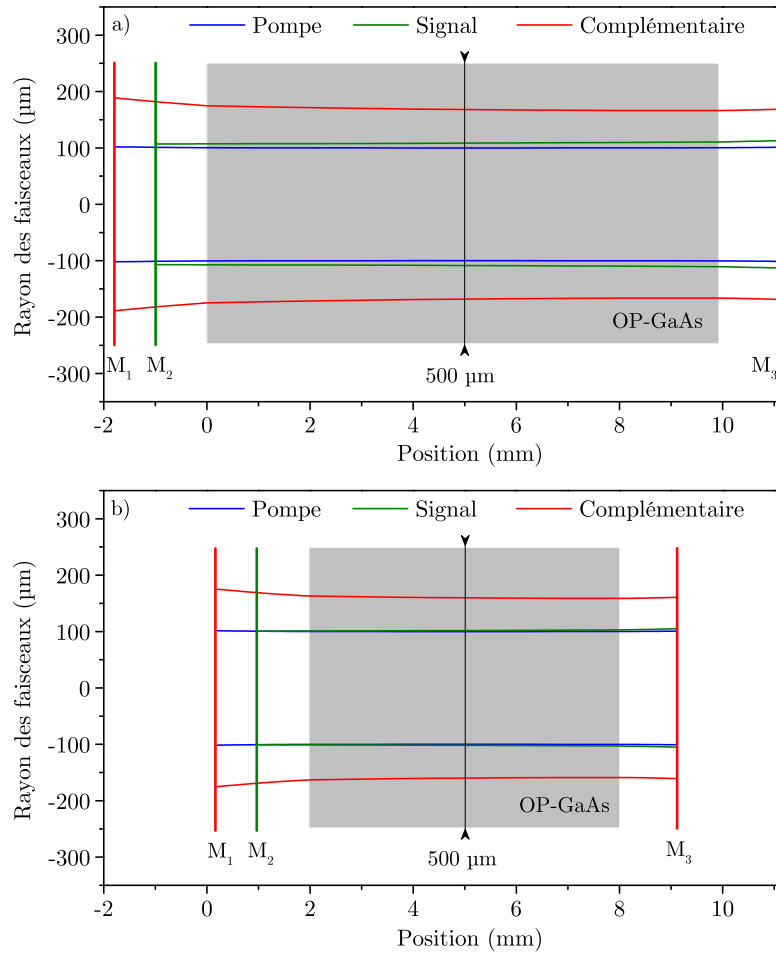


FIGURE 3.10 – Taille des faisceaux pompe, signal et complémentaire obtenus dans la cavité par simulation numérique à l’aide des matrices ABCD, pour une longueur d’onde complémentaire de  $10,4 \mu\text{m}$ , pour : a) un cristal de 10 mm de long, et b) un cristal de 6 mm de long.

Cristal	M19	M28	M22		
Période ( $\mu\text{m}$ )		72,6	66	64,8	63,6
Seuil ( $\mu\text{J}$ )	5,5	6,2	2,3	2,3	2,2
Énergie bande III (nJ)	130	350	110	160	160
Déplétion de la pompe (%)	18	10	16	16	23

TABLEAU 3.2 – Récapitulatif de l’efficacité du NesCOPO et déplétion de la pompe pour chaque cristal d’OP-GaAs. L’énergie de sortie est mesurée pour un taux de pompage de 3 après la lame dichroïque et un filtre passe-haut à 6840 nm afin d’éliminer les ondes de pompe et signal résiduels. La déplétion de la pompe est mesurée pour un taux de pompage de 4.

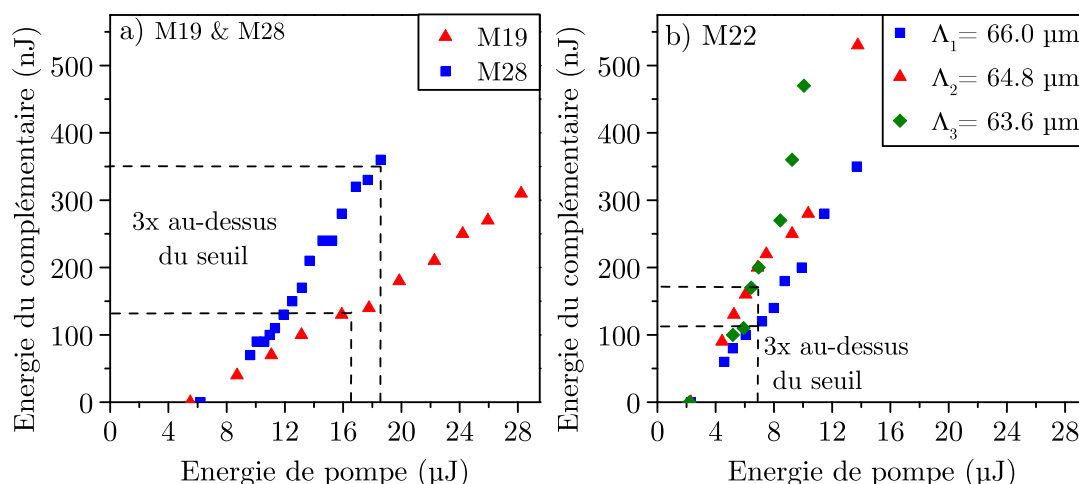


FIGURE 3.11 – Énergie de l’onde complémentaire en fonction de l’énergie de pompe incidente pour chaque cristal. a) M19 avec  $\lambda_c = 10,4 \mu\text{m}$  (bleu) et M28 avec  $\lambda_c = 10,2 \mu\text{m}$  (rouge). b) M22, en bleu :  $\Lambda_1 = 66 \mu\text{m}$  avec  $\lambda_c = 8,3 \mu\text{m}$ , en rouge :  $\Lambda_2 = 64,8 \mu\text{m}$  avec  $\lambda_c = 7,9 \mu\text{m}$ , et en vert :  $\Lambda_3 = 63,6 \mu\text{m}$  avec  $\lambda_c = 7,6 \mu\text{m}$ .

dente et de la pompe dépeuplée pour M19. Nous estimons la déplétion de la pompe à 15 % pour un taux de pompage de 4. Il est intéressant de noter que pomper au-delà de 3 ou 4 fois au-dessus du seuil d’oscillation de l’OPO est toutefois déconseillé. En effet, le filtrage par effet Vernier devient moins efficace pour les modes voisins, ce qui peut rendre l’OPO multimode.

### Analyse du spectre et accordabilité

Comme nous l’avons expliqué dans la section 1.2.3, le fonctionnement monofréquence est obtenu lorsque le paramètre de dissociation  $\Delta L/L$  (1.37) est ajusté de façon à éviter à la fois les clusters de modes et l’existence de plusieurs coïncidences exactes dans la bande de gain. Expérimentalement, la cavité complémentaire est ajustée à l’aide de cales étalonnées en épaisseur. L’analyse du spectre est effectuée à l’aide d’un interféromètre de Fabry-Perot balayable afin de vérifier le fonctionnement monofréquence de l’OPO. Pour cela, l’onde signal est extraite de l’OPO à l’aide d’un miroir hautement réfléchissant à la longueur d’onde signal, et filtrée par un filtre passe-haut à 2000 nm avant d’être couplée dans une fibre jusqu’à l’interféromètre. Le signal de sortie est détecté par une photodiode InGaAs. L’intervalle spectral libre de l’interféromètre de Fabry-Perot est de 10 GHz, ce qui permet de détecter les modes voisins du NesCOPO, sachant que l’intervalle spectral libre de l’onde signal est de 4 GHz. Sur la FIGURE 3.13 (gauche), sous la rampe de contrôle (en bleu), deux pics sont séparés par l’intervalle spectral libre de l’interféromètre (en rouge), ce qui montre que l’OPO est monofréquence. Dans le cas contraire, il y aurait eu plusieurs pics séparés par l’intervalle spectral libre du NesCOPO, comme indiqué sur la FIGURE 3.13 (droite). Afin de vérifier le fonctionnement monomode pour la longueur de cavité complémentaire choisie, nous répétons cette mesure pour chaque longueur d’onde accessible sous la bande de gain et pour chaque cristal d’OP-GaAs. En mesurant manuel-

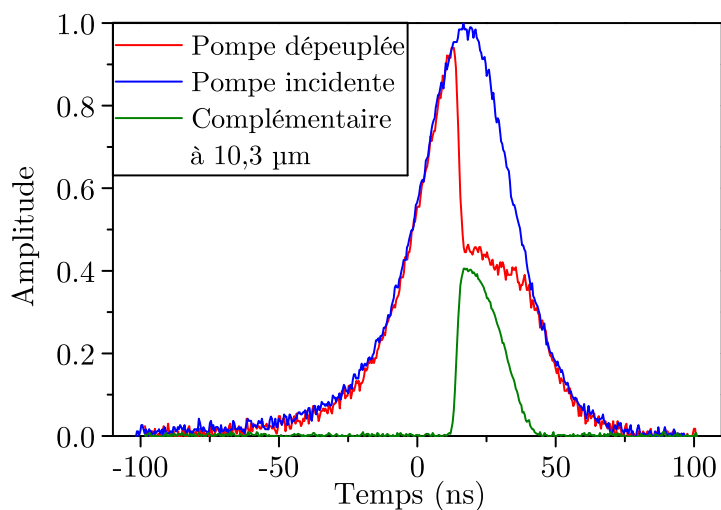


FIGURE 3.12 – Profil temporel de l'impulsion de pompe en entrée (bleu) et en sortie (rouge) du NesCOPO, et de l'impulsion complémentaire (vert) pour M19 mesuré pour un taux de pompage de 4.

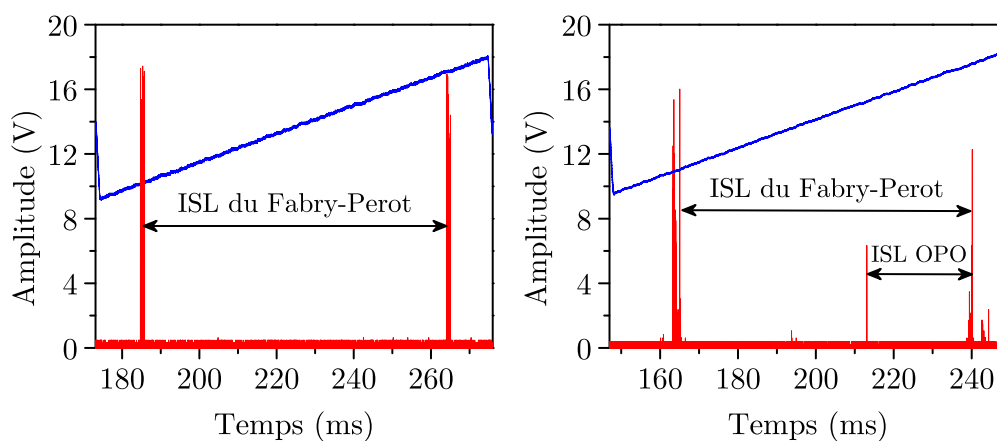


FIGURE 3.13 – Analyse du spectre signal avec un interféromètre de Fabry-Perot balayable pour une émission monofréquence (gauche) et une émission multimode (droite). En bleu, la rampe de contrôle du Fabry-Pérot, et en rouge, le spectre.

lement les espaces d'air entre les différents miroirs de cavité, nous estimons le paramètre de dissociation entre 1 et 2 % pour un cristal de 10 mm, ce qui est cohérent avec les prédictions théoriques (voir FIGURE 3.9).

En plus du fonctionnement monofréquence, il est nécessaire d'estimer l'accordabilité du NesCOPO à température fixe. L'onde signal est injectée dans un analyseur de spectre optique (Yokogawa) afin d'estimer la largeur de la bande gain. La résolution est fixée à 3 GHz, et l'appareil peut mesurer des longueurs d'onde comprises entre 1200 et 2400 nm. Pour cette mesure, les deux miroirs de cavité  $M_1$  et  $M_3$  sont rapidement balayés à l'aide d'un générateur basse fréquence afin que tous les modes longitudinaux puissent être séquentiellement émis dans la bande de gain pendant le temps d'intégration de l'analyseur de spectre. Le premier insert de la FIGURE 3.14 montre le graphe obtenu pour une longueur d'onde signal centrée à 2381,5 nm et un taux de pompage de 3,5. L'enveloppe

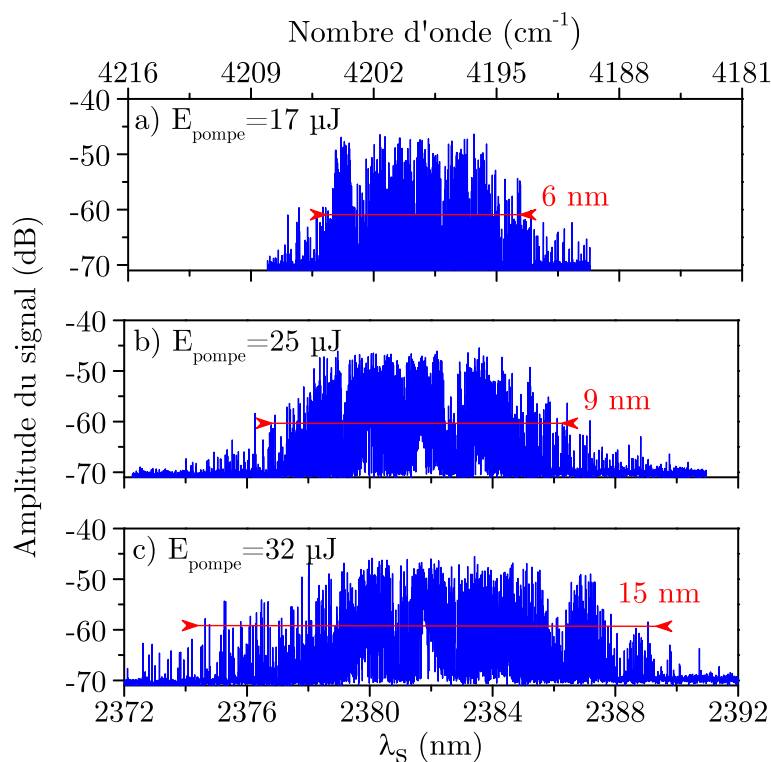


FIGURE 3.14 – Forme de la bande de gain pour une longueur d'onde signal centrée à  $\lambda_s = 2381,5$  nm pour M19. a)  $E_{\text{pompe}} = 17 \mu\text{J}$ , b)  $E_{\text{pompe}} = 25 \mu\text{J}$ , et c)  $E_{\text{pompe}} = 32 \mu\text{J}$ . Ces énergies correspondent respectivement à des taux de pompage de 3,5, 5, et 6,5.

mesurée donne la bande spectrale accessible par l'OPO pour longueur d'onde de pompe et température données. La largeur de la bande de gain est de 6 nm, ce qui correspond à  $10,5 \text{ cm}^{-1}$ . Cette valeur est cohérente avec la largeur théorique de la bande de gain au premier ordre dans le cas du double passage de pompe de  $8,5 \text{ cm}^{-1}$ , calculée à partir de l'équation (1.39). De plus, la bande de gain est monolobe, ce qui laisse penser que la phase relative entre les ondes après réflexion sur  $M_3$  est idéale et vaut  $-\pi/2$  [33]. Comme le miroir doré  $M_3$  induit un déphasage relatif de  $\pm\pi$ , et en considérant que les traitements

antireflets apportent une contribution négligeable, il est possible de conclure que le cristal non linéaire se termine sur une demi-période de QPM. Afin de pouvoir contrôler la phase non linéaire de façon optimale, une solution consiste à polir la face de sortie du cristal sous forme de prisme, comme cela a déjà été fait pour des NesCOPO en PPLN [176]. Comme présenté sur la FIGURE 3.14, pomper 6,5 fois au-dessus du seuil élargit la bande de gain à 15 nm. En revanche, le spectre de sortie devient multimode, car le gain des modes voisins devient trop élevé pour assurer un filtrage efficace par effet Vernier. Ceci revient à baisser la ligne rouge sur le graphe de la FIGURE 3.9. Dans toute la suite de cette section, nous nous restreindrons à des taux de pompage de 3.

La longueur d'onde complémentaire de l'OPO est accordable sur plusieurs dizaines de nanomètres dans la bande III, grâce aux cales piézo-électriques montées sur les miroirs. Cependant, afin d'obtenir une accordabilité plus étendue, il est nécessaire de changer la température du cristal pour décaler la longueur d'onde centrale de la bande de gain. La FIGURE 3.15 montre ce décalage en longueur d'onde pour chaque cristal. Pour M19

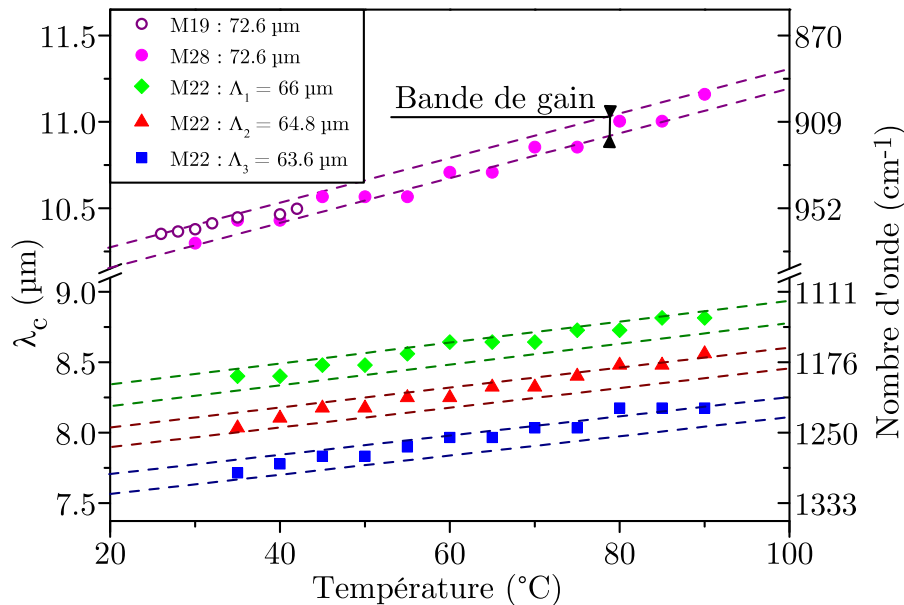


FIGURE 3.15 – Longueur d'onde complémentaire en fonction de la température du cristal pour les trois cristaux d'OP-GaAs utilisés. Les points correspondent aux données expérimentales et les lignes pointillées à la largeur de la bande de gain.

et M28, qui possèdent le même pas de retournement, une accordabilité allant de 10,2 à 11,2  $\mu\text{m}$  a pu être obtenue en chauffant le cristal jusqu'à 90  $^{\circ}\text{C}$ , ce qui correspond à un taux de 9,9 nm/ $^{\circ}\text{C}$ . Cette plage d'accordabilité permet de détecter des espèces comme  $\text{NH}_3$ ,  $\text{SF}_6$ , le gaz sarin ou encore le phosphate de triéthyle qui est un simulant pour la vibration de la liaison P-O-C du sarin [177]. De même, nous avons obtenu un taux de 8 nm/ $^{\circ}\text{C}$  pour chacune des pistes du cristal M22, ce qui donne une accordabilité de 1  $\mu\text{m}$  entre 7,56 et 8,56  $\mu\text{m}$ . Cette région inclut une des principales bandes d'absorption du gaz moutarde [177].

### Effets de polarisation dans le GaAs

Souvent, si on souhaite utiliser les faisceaux émis par l'OPO dans d'autres interactions laser ou non linéaire, comme cela est présenté dans l'Annexe A par exemple, il est important de connaître leur polarisation de la lumière. Dans cette section, nous présenterons des mesures de polarisations qui ont été effectuées sur les échantillons d'OP-GaAs.

Le montage expérimental est présenté dans la FIGURE 3.16. Le faisceau complémen-

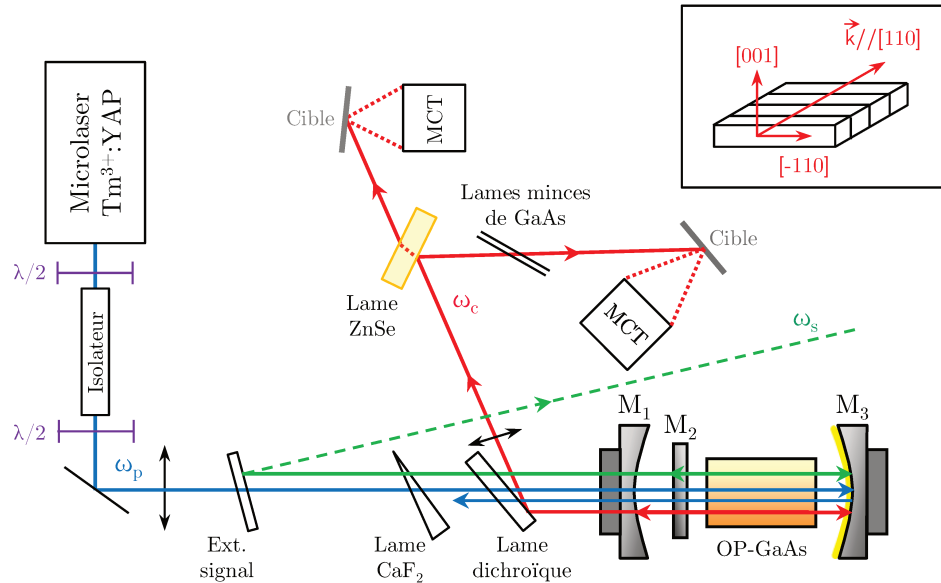


FIGURE 3.16 – Schéma du montage pour la mesure de polarisation. Insert : cristal de GaAs ainsi que ses directions cristallographiques, avec  $[110]$  colinéaire à la direction de propagation.

taire est extrait de l'OPO par une lame dichroïque, puis collimaté à l'aide d'une lentille. Il est ensuite séparé en deux voies à l'aide d'une lame à faces parallèles en ZnSe. Le faisceau transmis est rétro-diffusé par une cible en papier, et le flux est collecté par un détecteur refroidi à l'azote liquide en HgCdTe, appelé MCT sur le schéma. Il s'agit de la voie de référence qui sert à la normalisation des données. Le faisceau réfléchi par la lame à faces parallèles, quant à lui, traverse deux lames minces en GaAs placées à l'angle de Brewster. Ces lames sont utilisées comme polariseur. Puis le faisceau est rétro-diffusé par une cible en papier et collecté par un second détecteur MCT. Le cristal d'OP-GaAs utilisé dans cette expérience est M28. Le GaAs étant un cristal isotrope, la condition de quasi-accord de phase peut être réalisée indépendamment de la direction de polarisation de l'onde de pompe. Afin de pouvoir explorer toutes les directions de polarisation possibles, un polariseur variable est réalisé en combinant le second cube polariseur de l'isolateur de Faraday et la lame demi-onde placée à sa sortie. La FIGURE 3.17 présente la mesure de la direction de polarisation de l'onde complémentaire (rouge) et de l'onde signal (vert) en fonction de la direction de polarisation de l'onde de pompe, mesurée à l'aide du polariseur en GaAs. Un miroir à bascule est inséré sur le trajet du faisceau complémentaire afin de mesurer la direction de polarisation de l'onde signal à l'aide du même montage. Comme indiqué

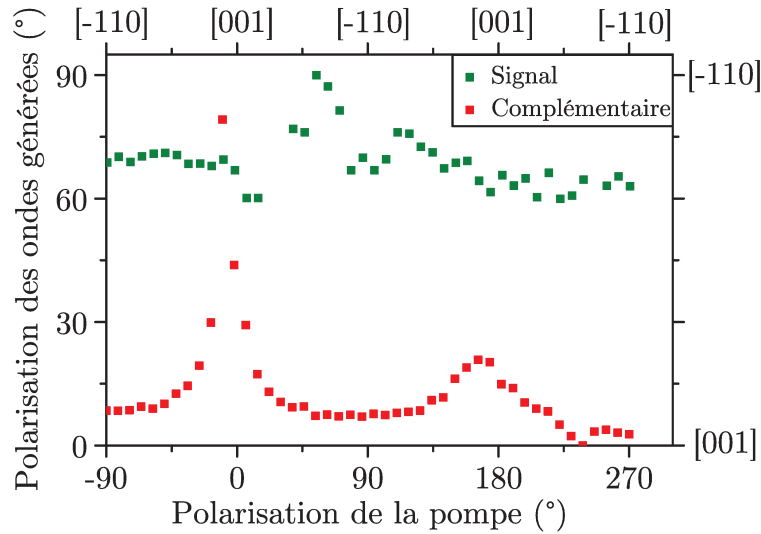


FIGURE 3.17 – Mesure de la direction de polarisation des ondes signal et complémentaire en fonction de la direction de polarisation de la pompe pour M28. En vert : polarisation de l’onde signal. En rouge : polarisation de l’onde complémentaire.

sur la FIGURE 3.17, la direction de polarisation de l’onde signal reste fixe et proche de  $[-110]$ , tandis que la polarisation de l’onde complémentaire suit un comportement opposé : sa polarisation est quasiment constante et proche de  $[001]$  avec des changements abrupts lorsque la pompe est polarisée selon  $[001]$ . Ce comportement est en désaccord avec la théorie établie par Kuo et al., ainsi qu’avec leurs résultats [178]. En revanche, dans une de leurs publications, Kieleck et al. mesurent la polarisation des ondes signal et complémentaire générées par un OPO en OP-GaAs et pompé par un laser Ho:YAG émettant à une longueur d’onde de  $2,09 \mu\text{m}$ , grâce à un polariseur à grille [179]. Dans leur cas, la polarisation de l’onde signal est aussi constante, bien que proche de  $[001]$ . Ils attribuent cet écart à la théorie par des effets de biréfringence induite dans leurs échantillons d’OP-GaAs. Cependant, aucune information quantitative n’est fournie à ce sujet. Le but du paragraphe suivant est de vérifier l’existence d’une éventuelle biréfringence induite dans nos échantillons d’OP-GaAs, et si possible, de la quantifier.

La FIGURE 3.18 présente le montage utilisé. Le faisceau à  $1,938 \mu\text{m}$  est envoyé dans

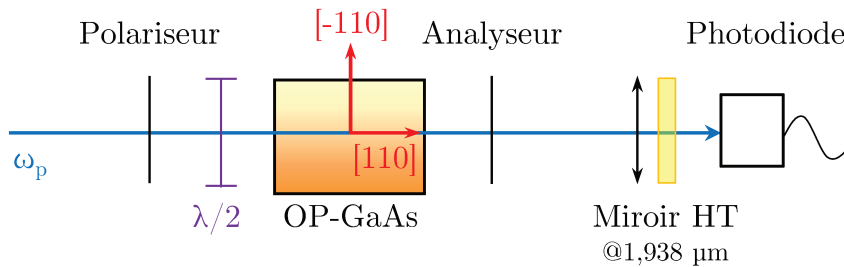


FIGURE 3.18 – Schéma du montage pour la mesure de biréfringence induite.

l'échantillon d'OP-GaAs. Le polariseur variable du montage précédent, utilisant le second cube polariseur de l'isolateur et une lame demi-onde, est placé avant le cristal, tandis qu'un analyseur à  $2 \mu\text{m}$  est placé à sa sortie. Puis le faisceau de pompe est filtré par une lame hautement transmissive à  $1,938 \mu\text{m}$  et focalisé sur un détecteur photo-électromagnétique en HgCdZnTe. L'expérience consiste à tourner le polariseur et l'analyseur simultanément de sorte que leurs directions soient toujours croisées. Cela revient à tourner le cristal autour de l'axe optique. Il s'agit d'une méthode classique utilisée pour mesurer l'orientation du repère diélectrique dans les cristaux anisotropes, et plus particulièrement dans les cristaux monocliniques [180]. Dans cette configuration, l'intensité de la lumière transmise par un cristal biréfringent varie selon une loi de Malus. L'intensité est minimale lorsque les axes du repère diélectriques sont colinéaires aux axes du polariseur ou de l'analyseur. De même, l'intensité est maximale lorsque les axes du repère diélectrique forment un angle de  $45^\circ$  avec les axes du polariseur ou de l'analyseur. En utilisant le formalisme de Jones, il est possible de montrer que l'intensité détectée s'écrit sous la forme suivante :

$$I_{\text{détecté}} = \sin^2(4\alpha) \cdot \sin^2(\Delta/2). \quad (3.2)$$

$\alpha$  correspond à l'angle que fait la ligne neutre de la lame demi-onde avec  $[001]$  ;  $\Delta = \frac{2\pi}{\lambda_p}(n_o - n_e)L$  correspond au déphasage induit par l'OP-GaAs avec  $\lambda_p$  la longueur d'onde de pompe,  $L$  la longueur du cristal, et où la quantité  $n_o - n_e$  est la biréfringence comme expliqué dans la section 1.3.1. La démonstration de cette formule est présentée dans l'annexe B.

La FIGURE 3.19 présente l'intensité de l'onde transmise par le système en fonction de la direction de polarisation de l'onde de pompe pour chaque échantillon d'OP-GaAs. Les résultats obtenus pour M28 montrent que ce cristal ne présente pas de biréfringence

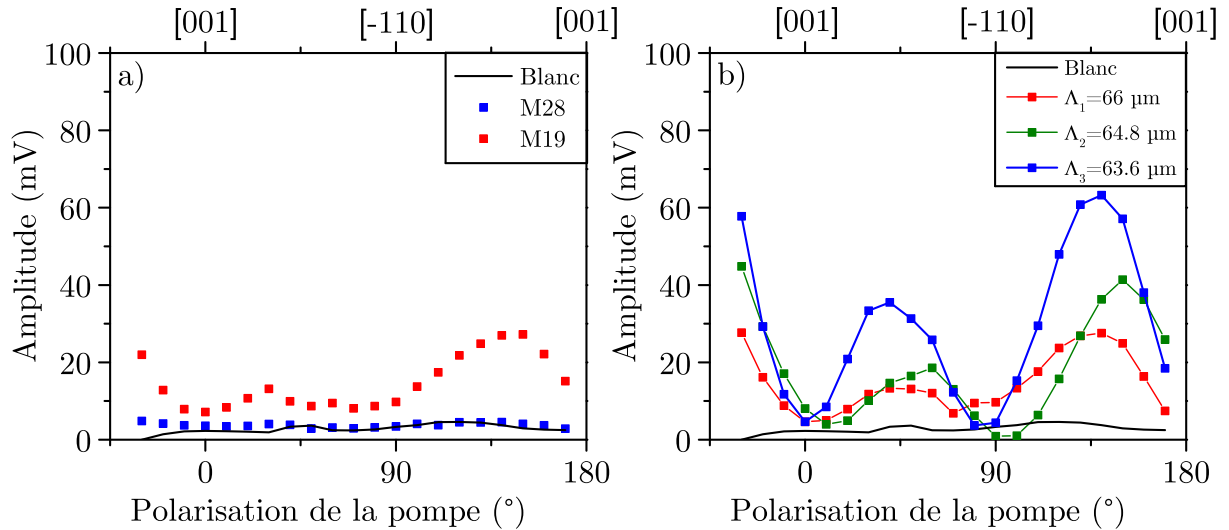


FIGURE 3.19 – Mesure de la biréfringence dans les échantillons d'OP-GaAs. a) M19 et M28, b) M22.

induite. En effet, les points de mesure correspondent à la courbe de référence réalisée sans cristal, qui est représentée en noir sur la FIGURE 3.19. En revanche, pour M19 et M22, les courbes présentent des oscillations caractéristiques d'une biréfringence induite.



La FIGURE 3.20 montre plus en détail la courbe obtenue pour une des pistes de M22. Les

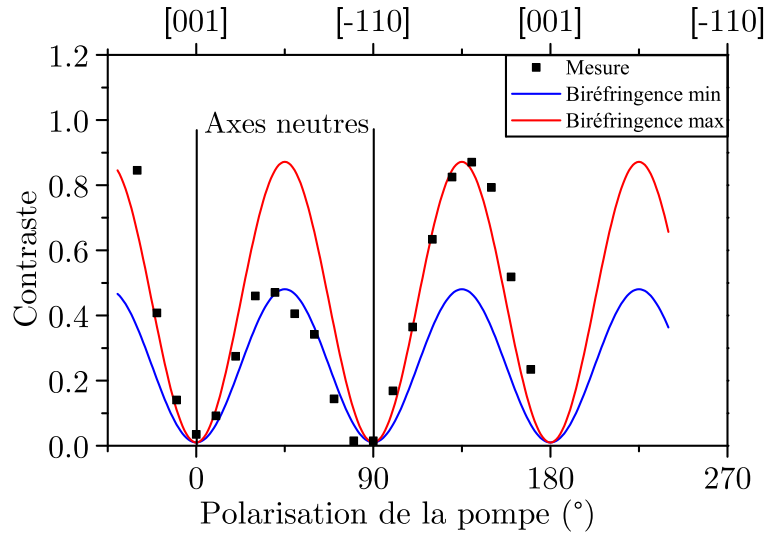


FIGURE 3.20 – Mesure de la biréfringence pour une des pistes de M22 dont le pas de retournement vaut  $66 \mu\text{m}$ .

minima présents sur la courbe indiquent la position des axes neutres du cristal, qui sont obtenus pour les directions cristallographiques  $[001]$  et  $[-110]$ . Les courbes en bleu et en rouge correspondent à l'équation (3.2) pour des valeurs de biréfringence de  $3,6 \cdot 10^{-5}$  et  $4,4 \cdot 10^{-5}$ , respectivement. Le même travail a été réalisé pour chacune des pistes de M22 et pour M19. Le TABLEAU 3.3 récapitule les valeurs de la biréfringence trouvées pour chaque cristal d'OP-GaAs.

Cristal	Biréfringent	$n_o - n_e$
M19	oui	$4 \cdot 10^{-5} - 5,1 \cdot 10^{-5}$
M28	non	—
M22 ( $\Lambda = 66 \mu\text{m}$ )	oui	$3,6 \cdot 10^{-5} - 4,4 \cdot 10^{-5}$
M22 ( $\Lambda = 64,8 \mu\text{m}$ )	oui	$3,8 \cdot 10^{-5} - 4,8 \cdot 10^{-5}$
M22 ( $\Lambda = 63,6 \mu\text{m}$ )	oui	$3,6 \cdot 10^{-5} - 4,6 \cdot 10^{-5}$

TABLEAU 3.3 – Récapitulatif des valeurs de biréfringence mesurées pour chaque échantillon d'OP-GaAs.

Nous avons pu voir que l'intensité de l'onde transmise lorsque M28 est placé entre deux polariseurs en configuration dite croisée est nulle. Ceci implique qu'il n'existe pas de biréfringence dans ce cristal. Les effets de polarisation observés dans M28 sont donc issus d'autres phénomènes qu'il reste encore à déterminer. Notamment, la mesure de polarisation réalisée ne permet pas de discriminer une polarisation elliptique d'une polarisation linéaire. Une idée serait d'utiliser un polariseur à grille comme dans l'expérience de Kieleck et al. [179], afin d'avoir une information plus complète sur les états de polarisation

des ondes générées par le NesCOPO. En revanche, l'expérience complémentaire de biréfringence nous a permis de mesurer des effets de biréfringence induite dans les cristaux M19 et M22. Cette biréfringence est de l'ordre de  $4 \cdot 10^{-5}$ . Cependant, les axes neutres correspondent aux directions cristallographiques du matériau, ce qui laisse penser que cette biréfringence n'a que très peu d'influence sur les résultats obtenus jusqu'à présent. Ceci peut être démontré en comparant les longueurs d'onde émises par les émetteurs M19 et M28 mesurées avec le même instrument. Un éventuel écart entre les valeurs obtenues permettrait de quantifier les effets de la biréfringence lorsque les cristaux sont utilisés dans un oscillateur paramétrique optique.

### Mesure de la longueur d'onde et de la largeur spectrale par battement de fréquence avec une source continue

Afin d'évaluer le spectre et la concentration d'une espèce chimique, il est nécessaire de mesurer précisément la longueur d'onde émise par la source optique. Pour un NesCOPO en régime pulsé, l'utilisation d'un lambdamètre commercial semble être la meilleure solution en termes de compacité, rapidité, et précision de mesure [181]. Cependant, ce type de mesure nécessite une énergie supérieure au microjoule, ce qui est d'un ordre de grandeur supérieur à l'énergie délivrée par notre source. De plus, dans la majorité des cas, cet instrument ne donne pas d'information sur la pureté spectrale de la source. Avec une source asservie en fréquence et avec une bande de gain étroite, ce n'est pas un problème. En revanche, pour un NesCOPO largement accordable, où les sauts de modes sont utilisés pour l'accord en longueur d'onde, ce type de mesure peut devenir imprécis, voire faux, juste avant et juste après un saut de mode. Dans un NesCOPO, un chirp en fréquence durant l'impulsion peut être dû à un chirp en fréquence de l'impulsion de pompe elle-même, ou à un recouvrement partiel entre les modes signal et complémentaire, comme présenté dans la FIGURE 1.9 (page 19). Une solution, pour caractériser le spectre, consiste à utiliser un monochromateur à réseaux comme dans la section 3.1.5. Ce type d'instrument permet une mesure de la longueur d'onde avec une précision pouvant aller jusqu'à  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ . Comme expliqué dans la section 2.1.2, cette résolution est, dans la majorité des cas, largement suffisante pour la détection de CWA. En revanche, la mesure hétérodyne par battement de fréquence entre la source et un oscillateur local à une longueur d'onde fixe est une solution efficace lorsqu'une caractérisation plus fine de la source est nécessaire, par exemple lorsqu'on souhaite utiliser la source pour cibler les raies d'absorption de gaz plus légers, et donc plus fins spectralement, ou des gaz à basse pression. Toutefois, la caractérisation de la pureté nécessite un détecteur rapide. En effet dans un NesCOPO, les impuretés spectrales proviennent généralement des modes voisins qui sont séparés d'un intervalle spectral libre, soit typiquement quelques gigahertz.

La FIGURE 3.21 présente le montage expérimental utilisé pour la détection hétérodyne. L'oscillateur local est un DFB-QCL commercial fonctionnant en régime continu et accordable autour de  $10,33 \text{ }\mu\text{m}$  (AdTech optics). Le faisceau issu du QCL est divisé en deux voies grâce à un séparateur de faisceaux (BS1). Une partie du faisceau est envoyée dans un lambdamètre commercial (High Finesse) afin de mesurer sa longueur d'onde tandis que la seconde partie est mélangée avec le faisceau complémentaire du NesCOPO. L'impulsion complémentaire et le QCL sont combinés sur un détecteur photoélectroma-

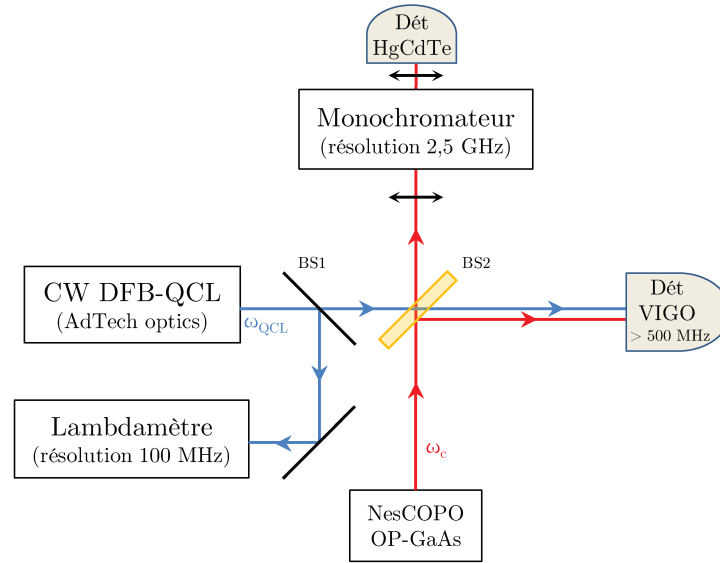


FIGURE 3.21 – Schéma du montage pour la détection hétérodyne.

gnétique en HgCdZnTe (Vigo) dont la bande passante est proche de 500 MHz. Le faisceau complémentaire est aussi séparé en deux voies à l'aide d'un second séparateur de faisceaux (BS2). Une partie est mélangée avec le QCL, et l'autre partie est envoyée dans un monochromateur à réseaux (Jobin Yvon) et est détectée par un détecteur en HgCdTe refroidi à l'azote liquide pour la mesure de longueur d'onde. Ce montage sera ensuite utilisé pour le pompage d'un laser térahertz par le NesCOPO en OP-GaAs (voir Annexe 4.2.6).

Pour l'expérience, la longueur d'onde du QCL est fixée à 10337,56 nm, qui correspond à l'une des raies les plus intenses de la bande d'absorption de l'ammoniac autour de 10,3  $\mu\text{m}$ , dont la détection sera décrite dans la section 3.1.5. Puis, la température du cristal d'OP-GaAs (M28) est fixée à 27 °C afin de centrer la bande de gain autour de 10,3  $\mu\text{m}$ . Ensuite, en utilisant à la fois un accord en température et un accord grossier des cales piézo-électriques, la longueur d'onde de l'OPO est fixée à 10337 nm avec une précision de  $\pm 1$  nm à l'aide du monochromateur. Enfin, la longueur d'onde est accordée à 10337,56 nm en utilisant un accord fin via les cales piézo-électriques. La FIGURE 3.22 montre le signal de battement dans l'impulsion complémentaire lorsque la longueur d'onde émise par le NesCOPO s'approche de 10337,56 nm. La FIGURE 3.22 (haut) montre un battement à une fréquence de 220 MHz mesurée par transformée de Fourier. Il est possible d'approcher la longueur d'onde complémentaire jusqu'à 80 MHz de la longueur d'onde du QCL (FIGURE 3.22 (bas)).

La fréquence instantanée à l'intérieur de l'impulsion, ainsi que la largeur spectrale du NesCOPO peuvent être déterminées à partir de la mesure de battement. Afin d'analyser la fréquence instantanée pendant l'impulsion, nous utilisons la méthode d'analyse exposée dans la référence 182. Cette méthode a déjà été utilisée sur des lasers émettant dans le proche infrarouge [183] et des OPO [32]. Habituellement, une grande fréquence de battement, typiquement quelques centaines de MHz, est utilisée afin de générer un grand nombre d'oscillations durant l'impulsion. Nous choisissons le signal obtenu dans

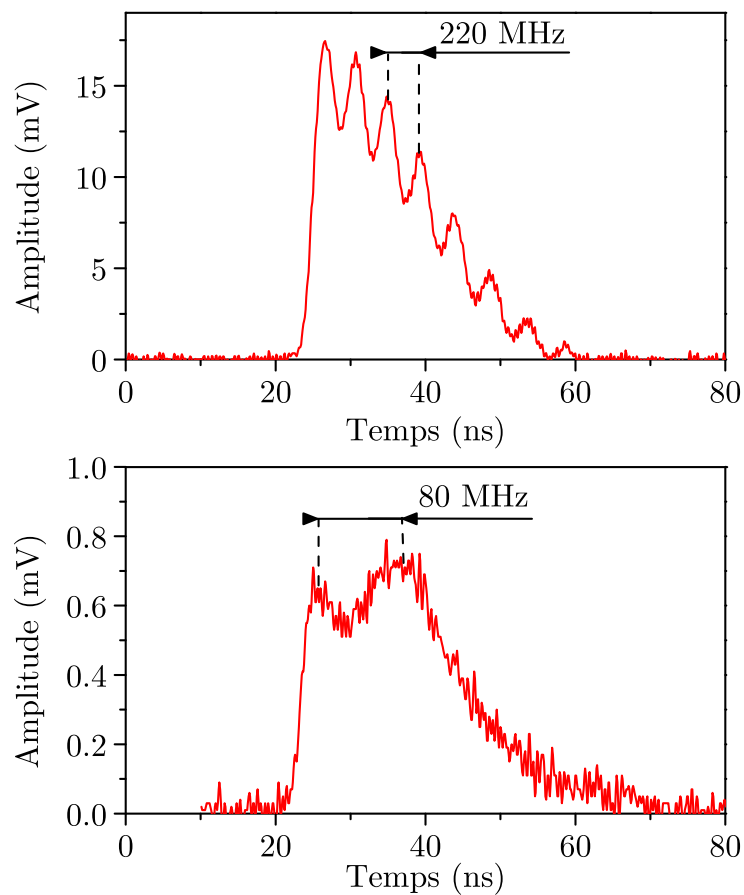


FIGURE 3.22 – Battement de fréquence entre l’onde complémentaire du NesCOPO et le rayonnement d’un DFB-QCL continu à 10337,56 nm. Haut : 220 MHz, et bas : 80 MHz.

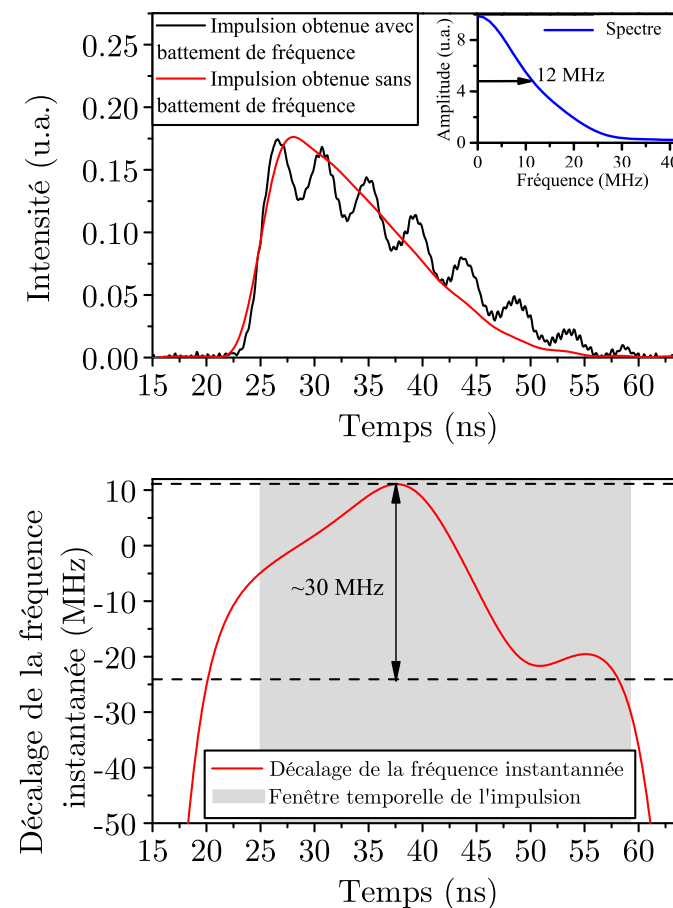


FIGURE 3.23 – Haut : Profil temporel du complémentaire avec (noir) et sans (rouge) battement de fréquence. Insert : spectre optique calculé à partir de l’enveloppe de l’impulsion en supposant une phase nulle pour les fréquences positives. Bas : décalage de la fréquence instantanée.

la FIGURE 3.22 (haut) pour une fréquence de battement de 220 MHz, et adaptions la méthode présentée dans la référence 182 afin d'évaluer la fréquence instantanée. En effet, la nature asymétrique de l'impulsion ne permet pas d'extraire l'enveloppe de l'impulsion par un simple filtre passe-bas. La FIGURE 3.23 (haut) présente l'enveloppe de l'impulsion émise par le NesCOPO obtenue en divisant l'impulsion modulée par une impulsion sans battement de fréquence. La fréquence instantanée peut être obtenue à partir du signal détecté comme présenté dans la référence 183. La partie oscillante du signal détecté peut s'écrire de la façon suivante :

$$V(t) \propto 2E_{\text{QCL}}E_c \cos(\omega_m t + \phi(t)), \quad (3.3)$$

où  $\omega_m = 2\pi f_m$  est la fréquence angulaire de modulation,  $E_{\text{QCL}}$  et  $E_c$  sont les amplitudes des champs émis par le QCL et l'onde complémentaire, et  $\phi(t)$  est la phase instantanée. Multiplier la relation (3.3) par  $\cos(\omega_m t)$  où  $\sin(\omega_m t)$  donne le système suivant :

$$\begin{cases} V(t) \cos(\omega_m t) \propto E_c(t) [\cos(2\omega_m t + \phi(t)) + \cos \phi(t)] \\ V(t) \sin(\omega_m t) \propto E_c(t) [\sin(2\omega_m t + \phi(t)) - \sin \phi(t)] \end{cases} \quad (3.4)$$

Afin d'extraire la phase instantanée, il est possible de filtrer numériquement le système précédent par un filtre passe-bas à une fréquence de coupure de  $f_m/4 = 55$  MHz. Les termes restants sont proportionnels à  $E_c \cos \phi(t)$  et  $-E_c \sin \phi(t)$ . Le décalage de la fréquence instantanée est défini par :

$$\Delta f(t) = \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi(t)}{dt}. \quad (3.5)$$

Le décalage de la fréquence instantanée mesuré pendant l'impulsion est contenu dans 30 MHz, soit  $0,001 \text{ cm}^{-1}$ , comme présenté dans la FIGURE 3.23 (bas). Cette valeur est proche de la largeur obtenue par transformée de Fourier de l'enveloppe de l'impulsion en supposant un chirp nul. Ceci nous permet de conclure qu'il n'y a pas de chirp en fréquence pendant l'impulsion complémentaire.

### 3.1.5 Détection à distance d'ammoniac

#### Montage Lidar

La FIGURE 3.24 présente le montage expérimental utilisé pour la détection d'ammoniac par mesure IP-DIAL. L'onde complémentaire est extraite du NesCOPO grâce à une lame dichroïque en ZnSe placée à un angle d'incidence de  $60^\circ$  afin de minimiser la réflexion de l'onde de pompe et maximiser la réflexion de l'onde complémentaire. Une lentille de 100 mm de focale est placée en sortie du NesCOPO afin de collimater le faisceau. Un filtre passe-haut à une longueur d'onde de coupure de 6840 nm est inséré sur le trajet du faisceau afin de filtrer l'onde de pompe résiduelle. Le faisceau passe ensuite à travers une lame à faces parallèles en ZnSe pour séparer le faisceau complémentaire en trois voies. La première, appelée voie d'analyse, est obtenue par transmission à travers la lame. Les deux autres réflexions sur les faces interne et externe de la lame sont utilisées pour les voies de mesure de la longueur d'onde et de référence. L'onde transmise est réfléchiée par

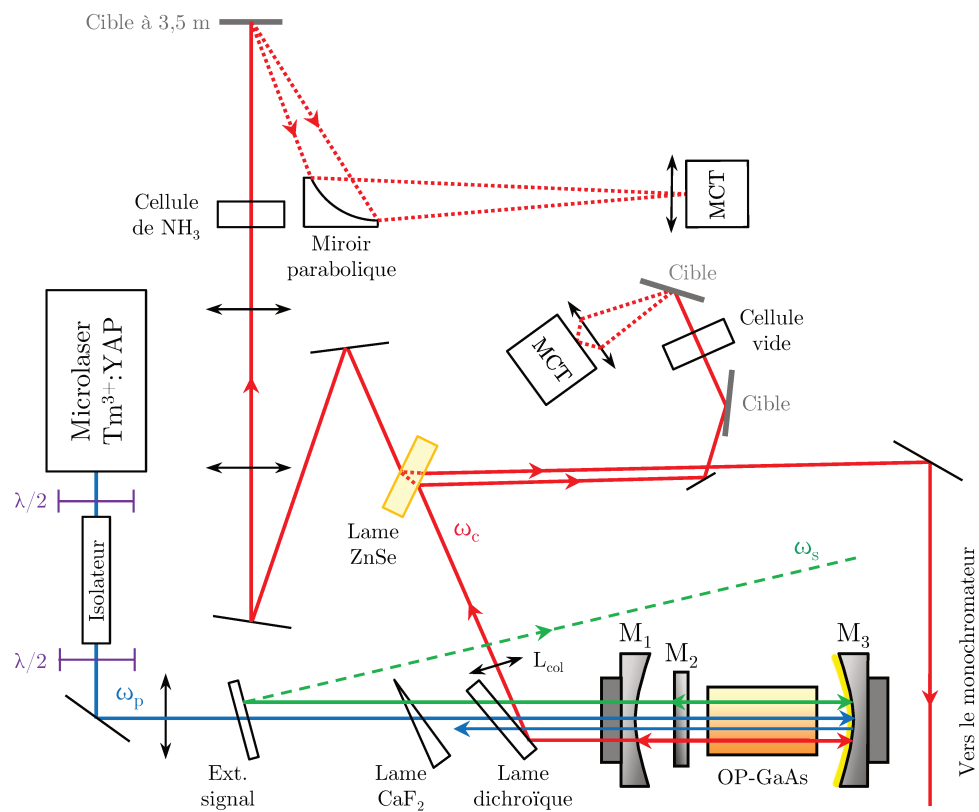


FIGURE 3.24 – Montage utilisé pour la détection à distance par mesure IP-DIAL.

deux miroirs dorés vers un système de lentilles afocal de grandissement  $-2$  afin de réduire la divergence du faisceau. Le faisceau passe ensuite à travers une cellule contenant le gaz d'intérêt et dont les fenêtres sont en polyéthylène, avant de se réfléchir sur une cible en papier placée à 3,5 mètres du système. À cette distance, le diamètre du faisceau est d'environ 10 mm. La lumière rétro-diffusée par la cible est collectée par un miroir parabolique hors axe de 154 mm de longueur focale et de 68 mm de diamètre. Notons que la mesure est réalisée en simple passage, de sorte que la lumière ne passe qu'une seule fois dans la cellule. Afin de réduire l'influence de « dépointé », c'est-à-dire le décalage en position du faisceau en fonction de la longueur d'onde, une lentille de 30 mm de focale est placée sur le trajet du faisceau pour augmenter l'angle du champ de réception. Un détecteur refroidi à l'azote liquide en HgCdTe (MCT), ainsi qu'un filtre passe-haut à 7800 nm sont placés au foyer de cette lentille. Le détecteur est suivi d'un amplificateur transimpédance dont la fréquence de coupure est mesurée à  $\sim 300$  kHz. La voie de référence est réfléchiée par deux cibles en papier afin de créer un réflecteur lambertien. La lumière rétro-diffusée est collectée par un second détecteur MCT muni d'une lentille de 20 mm de focale et d'un filtre passe-haut à 7800 nm. Sa réponse est centrée à  $11,5 \mu\text{m}$ , et sa fréquence de coupure a été mesurée à  $\sim 100$  kHz. Une cellule vide, identique à la première, est insérée sur la voie de référence. Ainsi les deux voies subissent les mêmes pertes dues aux fenêtres de la cellule, bien que le polyéthylène soit transparent dans la bande III. Le troisième faisceau, réfléchi par la face interne de la lame à faces parallèles, est dirigé à l'aide de plusieurs miroirs vers un monochromateur à réseaux de la marque Jobin Yvon pour la mesure de longueur d'onde. La résolution du monochromateur est de 1 nm autour de  $10 \mu\text{m}$ , c'est-à-dire  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ , pour les fentes les plus étroites.

### Réduction des erreurs expérimentales

L'absorption simple passage est calculée comme suit :

$$A = 1 - T = 1 - \frac{S_{\text{analyse}}}{S_{\text{référence}}}, \quad (3.6)$$

où  $S_{\text{analyse}}$  et  $S_{\text{référence}}$  sont les amplitudes des signaux détectées à l'oscilloscope et soustraites de leur « offset » pour une moyenne de 32 tirs, c'est-à-dire 0,32 seconde par point. La quantité  $S_{\text{analyse}}/S_{\text{référence}}$  est normalisée par la valeur moyenne des points obtenus pour des longueurs d'onde situées en dehors des raies d'absorption de l'ammoniac. La valeur calculée de l'absorption est donc indépendante des fluctuations en intensité de l'onde complémentaire. L'absorption des gaz atmosphériques, en particulier la vapeur d'eau, est négligeable autour de  $10,35 \mu\text{m}$  et pour les distances considérées ici.

La plus grande source d'erreur dans notre système IP-DIAL réside dans les fluctuations de la ligne de base, c'est-à-dire sans ammoniac, dans le spectre mesuré. Ces fluctuations sont spécifiques à la détection à distance avec des lasers accordables, et proviennent principalement : i) des pertes dépendant de la longueur d'onde, ii) du dépointé du faisceau sur la cible et/ou sur le détecteur, et iii) des impuretés spectrales du faisceau complémentaire. Durant les premières expériences de détection, un système non optimisé, différent de celui présenté dans la FIGURE 3.24, était utilisé. Un exemple de ligne de base obtenu avec ce système non optimisé est présenté dans la FIGURE 3.25. La fluctuation crête à crête est de  $\pm 25\%$ , ce qui est évidemment trop large pour des mesures précises. Une autre façon



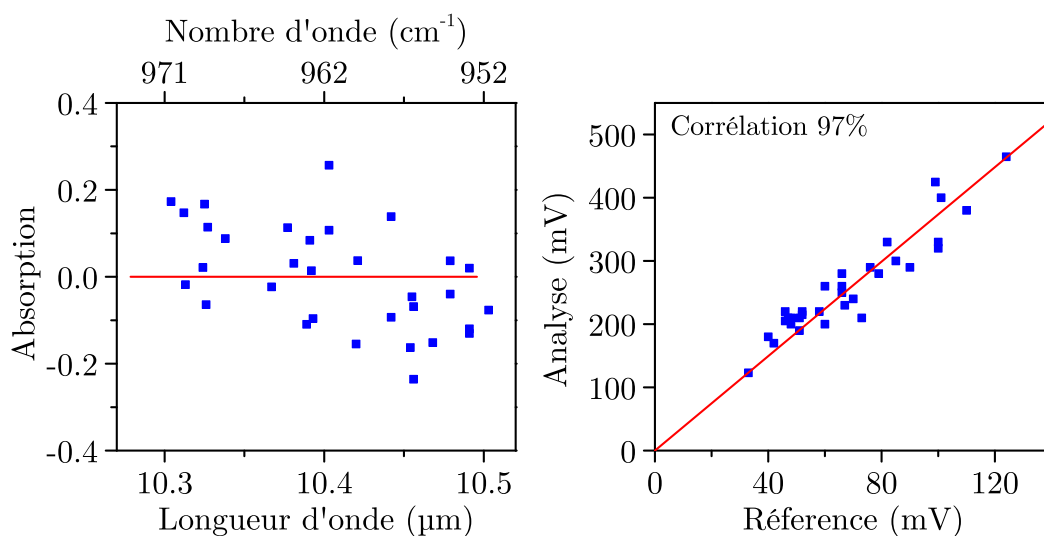


FIGURE 3.25 – Gauche : ligne de base (sans ammoniac) mesurée avec un système non optimisé. Droite : courbe de corrélation entre la voie d'analyse et la voie de référence.

de quantifier ces fluctuations est de calculer le coefficient de corrélation de Pearson entre la voie d'analyse et la voie de référence pour différents niveaux d'intensité des signaux mesurés. Ces niveaux sont naturellement obtenus, car l'énergie du complémentaire fluctue d'un tir à l'autre. Bien que le comportement entre les deux signaux soit linéaire, car il n'y a pas de courbure dans la courbe de la FIGURE 3.25 (droite), le coefficient de corrélation n'est que de 97 %.

Afin de minimiser les effets mentionnés ci-dessus, le système a été amélioré de sorte à :

- i) utiliser des détecteurs et des optiques de filtrage similaires pour les voies d'analyse et de référence ;
- ii) ajouter une cellule vide sur la voie de référence afin que les pertes dépendant de la longueur d'onde soient les mêmes sur les deux voies ;
- iii) collecter uniquement le signal rétro-diffusé par la voie de référence et éliminer la réflexion spéculaire ;
- et iv) réduire au maximum la longueur focale effective des optiques de réception en élargissant le champ de réception. L'effet de la longueur focale effective est présenté dans la FIGURE 3.26. La position du faisceau sur le détecteur est repérée en déplaçant le détecteur à l'aide d'une platine micrométrique. Les cercles bleus font la taille de l'image géométrique du faisceau pour un objet de 10,5 mm de diamètre à une distance de 3,5 mètres. Le carré rouge correspond à la surface du détecteur. Sur la figure de gauche, le système de réception est composé uniquement du miroir parabolique, et sur la figure de droite, le système est composé du miroir parabolique et d'une lentille de 30 mm de focale.

Après chaque optimisation du système LIDAR, nous avons observé une réduction des fluctuations de la ligne de base. Le meilleur résultat obtenu avec les optiques disponibles est présenté dans la FIGURE 3.27. La fluctuation crête à crête est de  $\pm 5\%$  et le coefficient de corrélation est de 99 %. Dans cette configuration, la longueur focale effective de la réception est de 50 mm et le signal de référence est mesuré après réflexion sur deux cibles en papier.

Le speckle est une source de bruit non complètement aléatoire connue pour les lidars



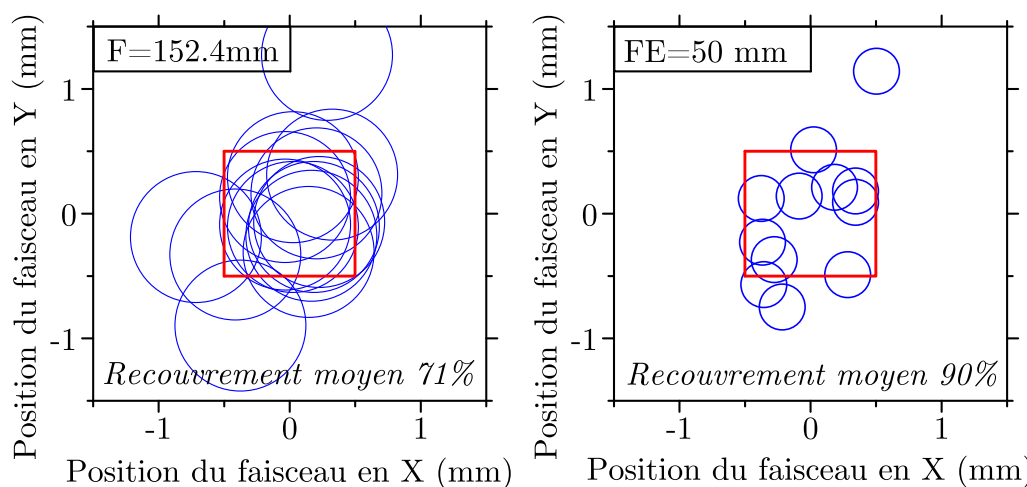


FIGURE 3.26 – Position (X,Y) du faisceau d'analyse sur le détecteur pour différentes longueurs d'onde. Les cercles bleus font la taille de l'image géométrique du faisceau pour un objet de 10,5 mm de diamètre à une distance de 3,5 mètres, et le carré rouge correspond à la surface du détecteur. Gauche : système de réception de 152,4 mm de longueur focale composé uniquement du miroir parabolique. Droite : système de réception de 50 mm de longueur focale effective composé d'un miroir parabolique et d'une lentille de 30 mm de focale.

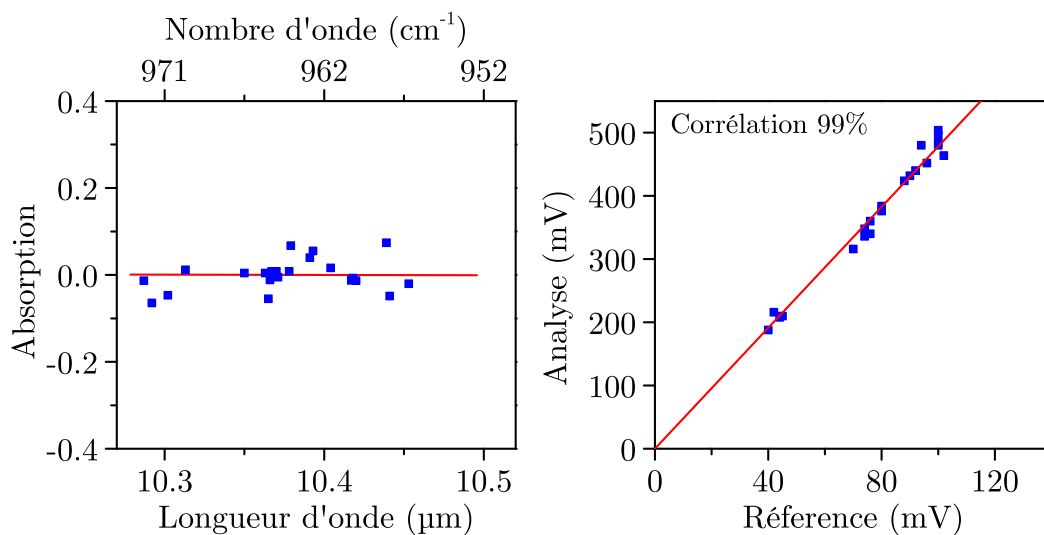


FIGURE 3.27 – Gauche : ligne de base (sans ammoniac) mesurée avec un système optimisé. Droite : courbe de corrélation entre la voie d'analyse et la voie de référence.

en configuration IP-DIAL. Nous avons calculé un écart-type dû à des effets de speckle monochromatique de  $\pm 3,2\%$  à  $10,3 \mu\text{m}$  en utilisant la formule présentée dans la référence 184 avec un faisceau de 15 mm de diamètre, mesuré à  $1/e$ , à une distance de 3,5 m, et avec une optique de réception de 68 mm de diamètre. Cette valeur correspond à la limite basse de détection pour un faisceau monomode longitudinal et monomode transverse. Ainsi, le bruit de speckle est un bruit non négligeable dans notre système.

### Détection d'ammoniac à $10,5 \mu\text{m}$

L'ammoniac est obtenu grâce à une solution d'ammoniaque diluée à 25 %. Quelques gouttes sont placées dans une cellule équipée de fenêtres en polyéthylène. L'ammoniac ayant une haute pression de vapeur saturante, il s'évapore rapidement et remplit la cellule. Le faisceau d'analyse passe à travers la cellule et se réfléchit sur une cible en papier placée à 3,5 m de la cellule. Afin d'acquérir le spectre, le NesCOPO est accordé grâce à des cales piézo-électriques pour une température de cristal donnée. Le NesCOPO émet ensuite de façon séquentielle les modes les plus intenses dans la bande de gain, typiquement cinq ou six. Pour chacun des modes, l'absorption est calculée à partir du ratio entre les signaux moyennés des voies d'analyse et de référence. Une fois que chaque mode est émis, la longueur d'onde centrale de la bande de gain est décalée en changeant la température du cristal, et la procédure d'accordabilité en longueur d'onde est répétée. Chaque mesure de longueur d'onde peut prendre quelques minutes, car elle s'effectue manuellement à l'aide d'un monochromateur à réseaux. Il est aussi important de s'assurer de la stabilité de l'émission, ce qui implique qu'il n'y ait pas de sauts entre les modes pendant la mesure.

La FIGURE 3.28 montre un spectre d'absorption de l'ammoniac mesuré entre  $10,25$  et  $10,48 \mu\text{m}$ . Afin de couvrir cette gamme spectrale, le cristal d'OP-GaAs est chauffé entre  $21^\circ\text{C}$  et  $38^\circ\text{C}$ . La cible diffusante est placée à une distance de 3,5 m de la source. La courbe en rouge correspond au spectre d'absorption de l'ammoniac pour un produit concentration-distance de 220 ppm.m, calculé à partir des bases de données Hitran et en supposant que les raies d'absorption ont un profil de Voigt [185]. Nous supposons que les erreurs sont dominées par les fluctuations de la ligne de base. Les barres verticales sont obtenues en utilisant une fluctuation crête à crête de  $\pm 5\%$  déterminée grâce aux résultats présentés dans la FIGURE 3.27. L'erreur en longueur d'onde est majoritairement dominée par la résolution du monochromateur qui est de 1 nm, soit  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ . Des raies d'absorption plus fines de l'ammoniac ont aussi été résolues, comme présenté dans la FIGURE 3.29. Afin d'obtenir ce spectre, le NesCOPO est accordé entre  $10,492 \mu\text{m}$  et  $10,528 \mu\text{m}$  en chauffant le cristal de  $2,5^\circ\text{C}$ .

Pour ces mesures, la précision de la mesure de la longueur d'onde est actuellement limitée par le monochromateur, qui possède une résolution d'environ  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ , ainsi que par le contrôle manuel de l'émission en longueur d'onde. Une amélioration du système consiste à utiliser un lambdamètre commercial, ce qui permettrait d'atteindre une résolution de  $0,01 \text{ cm}^{-1}$ , et d'effectuer un asservissement en longueur d'onde. Concernant la concentration mesurée, elle est actuellement limitée par les fluctuations de la ligne de base, qui sont majoritairement dues à des effets de dépointés de faisceau sur le détecteur, et ce malgré nos efforts d'optimisation du système. Ce problème pourrait être résolu en utilisant une sphère intégrante sur la voie de référence comme cela est fait dans la section

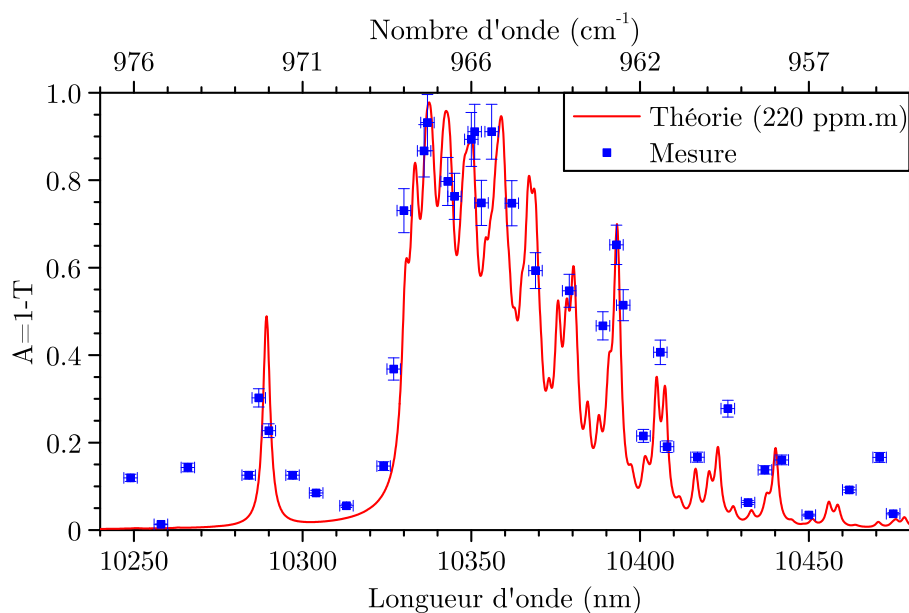


FIGURE 3.28 – Mesure du coefficient d'absorption de l'ammoniac entre 10,25 et 10,48  $\mu\text{m}$  en détection IP-DIAL et à une distance de 3,5 mètres. Les barres d'erreurs horizontales correspondent à la résolution du monochromateur, et les barres d'erreurs verticales sont calculées à partir de l'erreur type obtenue entre la voie de référence et la voie d'analyse. La concentration est estimée à 220 ppm  $\cdot$  m.

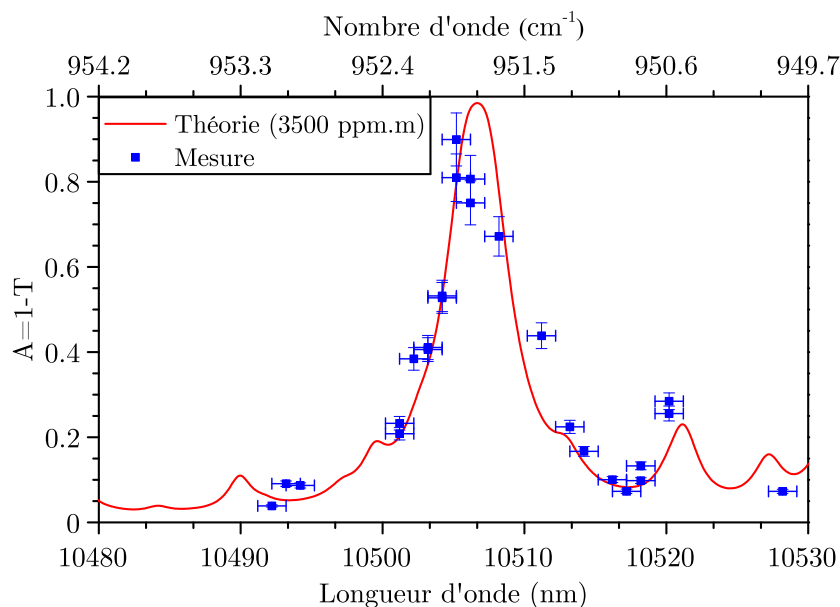


FIGURE 3.29 – Mesure du coefficient d'absorption de l'ammoniac autour de 10,507  $\mu\text{m}$  et à une distance de 3,5 mètres en détection IP-DIAL. Les barres d'erreurs horizontales correspondent à la résolution du monochromateur, et les barres d'erreurs verticales sont calculées à partir de l'erreur type obtenue entre la voie de référence et la voie d'analyse. La concentration est estimée à 3500 ppm  $\cdot$  m.

4.1, et en augmentant le champ de réception du système lidar.

Afin d'estimer la portée maximum de notre système, des expériences additionnelles ont été réalisées. Nous avons mesuré l'amplitude du signal rétro-diffusé et collecté par un miroir de 254 mm de diamètre. À une distance de 40 m, l'amplitude du signal mesuré à l'oscilloscope est d'environ 5 fois plus faible que celui disponible pour les mesures de  $\text{NH}_3$ , et ce sans être limité par le bruit de détection. Un autre levier sur lequel il est possible d'agir pour augmenter la portée de détection est l'énergie de sortie. Avec un cristal d'OP-GaAs de 30 mm de long, et utilisant l'énergie du laser de pompe restante, une amplification d'un facteur 30, correspondant à une énergie de 18  $\mu\text{J}$ , serait possible. Cette valeur est cohérente avec des gains d'amplification paramétrique obtenus par d'autres équipes [160, 161]. Ceci permettrait d'augmenter la portée d'un facteur 5, ce qui donnerait une distance de 200 m. De plus, une augmentation de l'énergie de sortie permettrait d'effectuer la mesure de la longueur d'onde avec un lambdamètre commercial, et permettrait le pilotage automatique de la longueur d'onde ainsi qu'une accordabilité plus rapide, comme cela a déjà été démontré dans d'autres systèmes [7].

## 3.2 OPO simplement résonnant en CdSe taillé en forme de cylindre partiel

Nous avons vu dans la partie précédente qu'il était possible de réaliser un OPO monofréquence et largement accordable dans la bande III. Cette source couvre les gammes 7,6–9  $\mu\text{m}$  et 10–11  $\mu\text{m}$  grâce à plusieurs cristaux d'OP-GaAs. Cependant, pour passer d'une gamme à l'autre, il est nécessaire de changer de cristal et donc de réaligner la cavité. De plus, l'énergie de sortie d'un OPO en OP-GaAs est limitée par sa faible ouverture, ce qui nécessite un étage d'amplification supplémentaire, comme expliqué dans l'exemple ii) de la FIGURE 2.6 (page 53). Le but ici est de pouvoir couvrir toute la gamme spectrale de la bande III avec un seul cristal non linéaire. Pour cela, CdSe est le candidat idéal en termes d'accordabilité en longueur d'onde. Comme nous l'avons vu dans la section 1.3.1, CdSe possède une large fenêtre de transparence allant de 0,8 à 23  $\mu\text{m}$ , tandis qu'un pompage à 2,05  $\mu\text{m}$  permet d'accorder la longueur d'onde entre 9 et 20  $\mu\text{m}$  (voir FIGURE 3.32). Cependant sa faible biréfringence nécessite de tourner le cristal sur une large plage angulaire, qui est en pratique limitée par l'ouverture des cristaux, et désaligne fortement le système optique par réfraction. Une idée, développée à l'Institut Néel, consiste à polir les faces du cristal en cylindre partiel afin de s'affranchir des désalignements de faisceau lorsqu'on tourne le cristal [42]. En effet, comme présenté dans la FIGURE 3.30 le faisceau reste en incidence normale par rapport au cristal, quel que soit son angle de rotation. Le rayon de courbure est alors choisi égal à la demi-longueur du cristal. Le but de cette partie est de démontrer le potentiel d'un tel cristal en termes d'accordabilité en longueur d'onde. Pour cela, nous avons réalisé un OPO simplement résonnant à l'onde signal, appelé SROPO dont le principe de fonctionnement général est présenté dans la section 1.2.1, et utilisant un cristal de CdSe poli en cylindre.

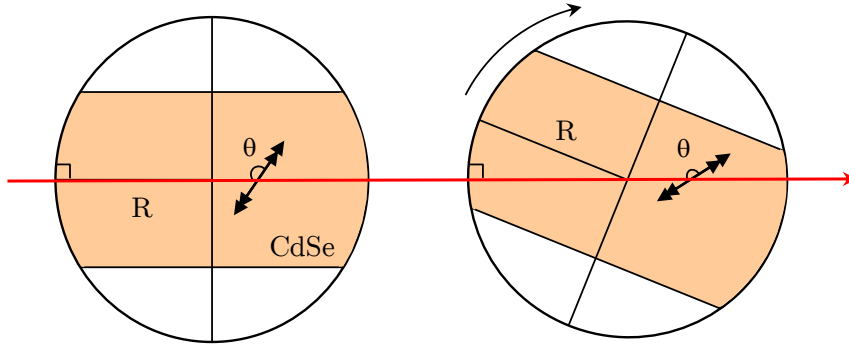


FIGURE 3.30 – Illustration de la conservation de l'alignement du faisceau lors de la rotation d'un cristal usiné en forme de cylindre partiel.

### 3.2.1 Montage expérimental

#### Source de pompe

La source utilisée pour le pompage du SROPO en CdSe est présentée dans la FIGURE 3.31. Il s'agit de l'onde signal émise à  $2,05 \mu\text{m}$  par un NesCOPO utilisant un cristal de PPLN de 16 mm de long en accord de phase de type II. Cette source a été conçue pour la détection multi espèces de  $\text{CO}_2$  atmosphérique, de méthane, et de vapeur d'eau par mesure RR-DIAL [6, 7, 186]. Le miroir  $M_2$  de la cavité OPO est déposé directement sur la face d'entrée du cristal, tandis que les miroirs  $M_1$  et  $M_3$  sont montés sur des cales piézo-électriques, similaires à celles de la section 3.1. Le laser de pompe est un laser commercial monofréquence en Nd:YAG délivrant une énergie totale de 100 mJ et des impulsions de 12 ns à une fréquence de répétition de 30 Hz. Une partie de cette énergie, soit  $500 \mu\text{J}$ , est utilisée pour pomper le NesCOPO en PPLN. L'énergie de sortie de l'onde complémentaire est de  $30 \mu\text{J}$ . Puis, le faisceau complémentaire émis est amplifié dans un premier étage d'amplification composé d'un cristal de PPLN de 12 mm de long fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0. Le deuxième étage d'amplification est composé de quatre cristaux de KTP de 25 mm de long placés en compensation de walk-off spatial, afin d'éviter la séparation spatiale des trois ondes. Une lame dichroïque est placée en sortie du second cristal de KTP afin d'extraire l'onde complémentaire, et ainsi éviter la saturation de la conversion paramétrique dans les cristaux suivants. Une ligne à retard de 10 ns est insérée sur le trajet de l'onde de pompe avant l'amplification pour compenser le temps de construction de l'OPO. Le SROPO en CdSe cylindrique est ensuite pompé par 5 mJ de l'onde signal amplifiée à  $2,05 \mu\text{m}$ .

#### Cavité OPO

Le cristal utilisé pour cette expérience est un cristal de CdSe poli en cylindre partiel de 27 mm de long fonctionnant en accord de phase de type II. Une image de ce cristal est présentée dans la FIGURE 3.32 a). L'onde signal est polarisée selon la direction extraordinaire, tandis que les ondes de pompe et complémentaire ont une polarisation ordinaire. Le rayon de courbure des faces polies est de +15 mm et -15 mm pour les faces d'entrée et

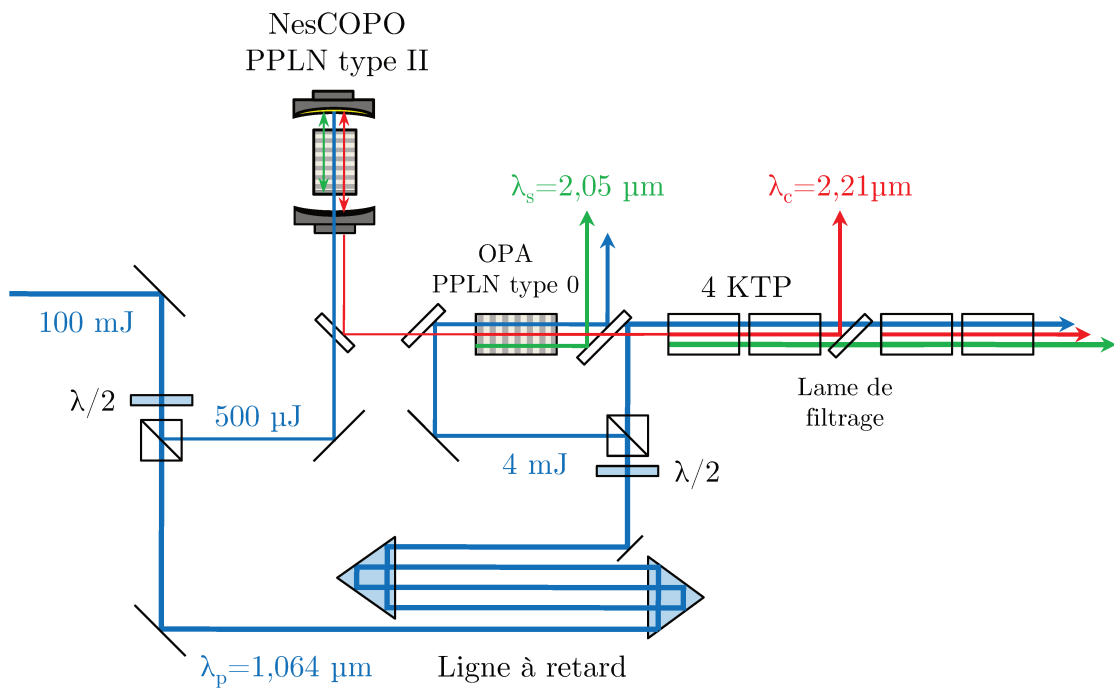


FIGURE 3.31 – Schéma de la source utilisée pour pomper le SROPO en CdSe cylindrique.

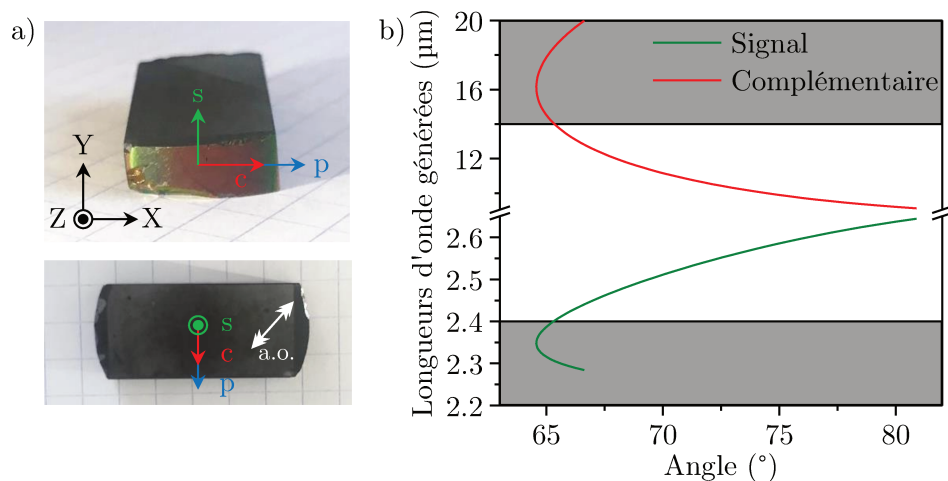


FIGURE 3.32 – a) Image du cristal de CdSe, ainsi que les directions de polarisation de chaque onde. b) Courbe d'accord de phase du cristal de CdSe pompé à 2,05 μm. Les bandes grises correspondent aux zones non couvertes par les miroirs.

de sortie respectivement. Elles agissent comme des lentilles cylindriques épaisses, convergente et divergente de focale  $\pm 10,5$  mm, ce qui implique que le faisceau doit être mis en forme indépendamment dans les deux directions transverses, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant. Le cristal est traité antireflet aux longueurs d'onde suivantes : 1,935–2,055  $\mu\text{m}$ , 2,3–2,7  $\mu\text{m}$  et 8,75–12  $\mu\text{m}$ . La cavité OPO est composée de deux miroirs identiques plan-concaves de 500 mm de rayon de courbure et de 3 mm d'épaisseur. Ils réfléchissent 98 % de l'onde signal entre 2,4 et 2,65  $\mu\text{m}$ . La courbe d'accord de phase théorique obtenue pour un pompage à 2,05  $\mu\text{m}$  est présentée dans la FIGURE 3.32 b). Les zones grisées correspondent aux longueurs d'onde qui ne peuvent pas être émises par l'OPO en raison des traitements des miroirs. Ainsi l'OPO peut osciller entre 9 et 14  $\mu\text{m}$ . Une baisse d'énergie est toutefois attendue au-delà de 12  $\mu\text{m}$  en raison des traitements antireflets du cristal. Le seuil théorique est de 1 mJ, comme présenté dans la FIGURE 3.33. Il est obtenu par simulation numérique à l'aide des matrices ABCD pour des miroirs placés à 1 mm de part et d'autre du cristal, et en supposant un faisceau de pompe circulaire de 500  $\mu\text{m}$  de rayon.

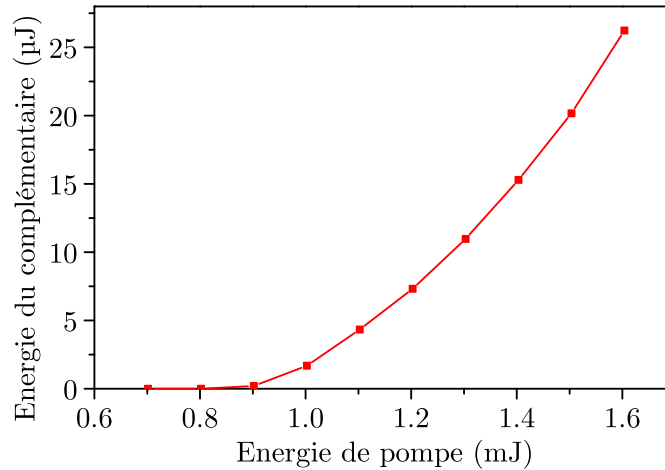


FIGURE 3.33 – Caractéristique entrée-sortie théorique du SROPO en CdSe calculée par simulation numérique pour un faisceau de pompe circulaire de 500  $\mu\text{m}$  de rayon, et des miroirs placés à 1 mm de part et d'autre du cristal.

En considérant que la matrice de transfert de la cavité s'écrit sous la forme suivante :

$$T = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}, \quad (3.7)$$

le critère de stabilité est alors donné par :

$$-1 \leq \frac{A+D}{2} \leq 1. \quad (3.8)$$

Pour des miroirs placés à 1 mm de part et d'autre du cristal, la stabilité théorique en Z, qui est selon l'axe de la cavité, est calculée pour les deux directions transverses en raison de l'astigmatisme du faisceau. Elle est de  $-0,3$  selon X et de  $0,9$  selon Y. La direction

Y est donc très critique en termes de stabilité, et il est nécessaire de pouvoir ajuster la position longitudinale des miroirs afin de faciliter l'oscillation. Pour cela, les miroirs  $M_1$  et  $M_2$  sont montés sur des platines de translation micrométrique selon l'axe Z.

### Mise en forme du faisceau de pompe

Le schéma du montage est présenté dans la FIGURE 3.34. Une lame demi-onde et un

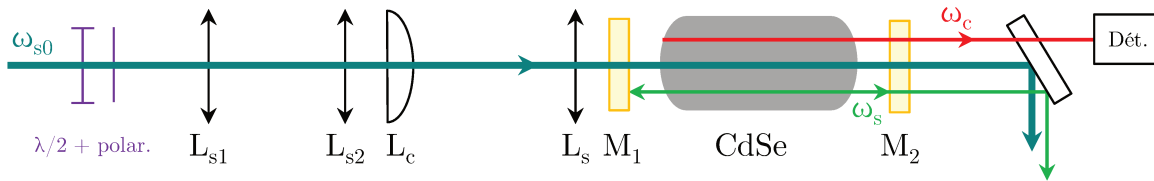


FIGURE 3.34 – Schéma du montage pour le pompage du SROPO en CdSe cylindrique.

polariseur à  $2 \mu\text{m}$  sont placés sur le trajet du faisceau afin d'ajuster la polarisation et l'énergie de la pompe à  $2,05 \mu\text{m}$ , appelée  $\omega_{s0}$  sur le schéma. Le faisceau doit ensuite être mis en forme indépendamment dans les deux directions transverses, comme cela a été expliqué précédemment. Pour cela, nous utilisons une combinaison de lentilles sphériques et cylindriques. Le trajet du faisceau est simulé numériquement en calculant la propagation de faisceaux gaussiens à l'aide des matrices ABCD de chaque élément optique, comme présenté dans la FIGURE 3.35. Dans un premier temps, la taille du faisceau de pompe à

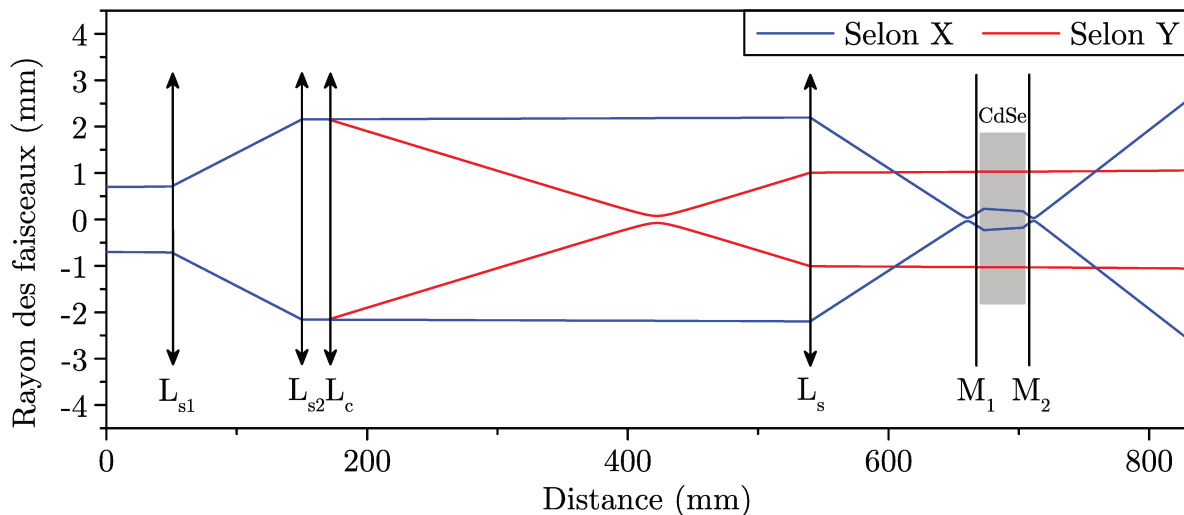


FIGURE 3.35 – Mise en forme du faisceau de pompe. La propagation du faisceau théorique est tracée en trait plein, en bleu pour la direction X et en rouge pour la direction Y.

$2,05 \mu\text{m}$  est collimaté à l'aide d'une lentille, qui n'est pas représentée sur le schéma. Le rayon du faisceau à  $1/e^2$  est de  $0,75 \text{ mm}$  et sa demi-divergence est mesurée à  $0,3 \text{ mrad}$ .



Puis le faisceau est agrandi dans les deux directions transverses, X et Y, à l'aide d'un système afocal de lentilles sphériques de grandissement  $+3$  composé de :  $L_{s1}$  de  $-50$  mm de longueur focale, et  $L_{s2}$  de  $+150$  mm de longueur focale. Un second système afocal composé d'une lentille cylindrique  $L_C$  de  $+250$  mm de longueur focale, et d'une lentille sphérique  $L_s$  de  $+120$  mm de longueur focale, permet ensuite de collimater le faisceau dans la direction Y uniquement, tandis que la lentille  $L_s$  permet de focaliser le faisceau dans la direction X. Le cristal est placé à  $10,5$  mm de ce point focal, de sorte que la lentille cylindrique réalisée par la face d'entrée du cristal puisse collimater le faisceau dans le cristal dans la direction X. La FIGURE 3.36 présente la mesure de la taille du faisceau tout au long de la propagation à travers les différentes optiques du montage selon les directions X et Y, réalisée à l'aide d'une caméra infrarouge. La position et la longueur

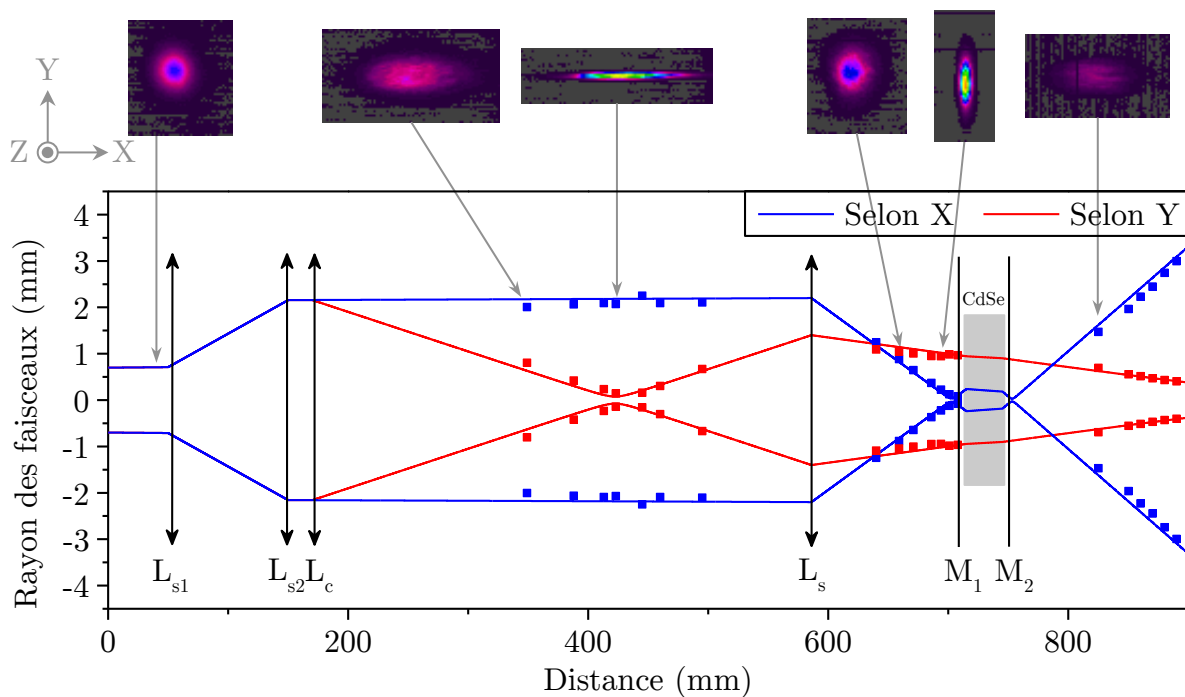


FIGURE 3.36 – Mesure de la taille du faisceau à la traversée des différentes optiques du montage. Les inserts correspondent aux profils spatiaux du faisceau mesurés à différentes positions. La propagation du faisceau théorique est tracée en trait plein, en bleu pour la direction X et en rouge pour la direction Y. Les données sont représentées par des carrés bleus et rouge pour les directions X et Y, respectivement.

focale de  $L_s$  sont légèrement ajustées afin de correspondre aux points de mesure.

Les miroirs de cavité sont ensuite réglés par autocollimation sur le faisceau de pompe. Il est très important à cette étape de s'assurer que l'axe de rotation du cristal se trouve bien au centre de celui-ci. Pour cela, le cristal est aligné par autocollimation sur le faisceau de pompe. Le réglage est correctement réalisé lorsque le faisceau de pompe n'est pas désaligné lors de la rotation du cristal. Finalement, le cristal est pompé pour des énergies variant entre 1 et 5 mJ.

### 3.2.2 Futures améliorations du montage optique

Lors des premiers essais, le cristal a été progressivement endommagé en volume. Le problème est issu d'un mauvais placement en Z du cristal. En effet, un écart de quelques millimètres par rapport à la position idéale peut conduire à une très forte focalisation à l'intérieur du cristal et ainsi l'endommager, comme cela a été le cas ici.

Pour les futurs essais, plusieurs améliorations du montage devront être prises en considération. Notamment, l'ajout d'un système de lentilles en sortie du cristal, identique au système de focalisation, permettrait de collimater le faisceau dans les deux directions X et Y. En effet, pour l'instant, le faisceau en sortie du cristal est très divergent. L'énergie détectée par la caméra est alors presque insuffisante pour pouvoir mesurer la taille du faisceau de façon précise. De plus, il sera nécessaire de placer le cristal sur une platine de translation longitudinale afin d'ajuster finement sa position, et éviter toute imprécision lors du placement du cristal. La focalisation de la pompe dans le cristal sera aussi à revoir, car l'angle de walk-off spatial n'est pas négligeable dans cette expérience. En effet, ce dernier est de 4,12 mrad selon la direction X, ce qui donne une séparation de faisceaux de 111  $\mu\text{m}$  en sortie du cristal. Il est alors nécessaire d'agrandir la taille du faisceau, afin de diminuer l'influence du walk-off spatial sur le recouvrement des faisceaux. Cela permettrait aussi d'avoir une marge supplémentaire au-dessus du seuil d'oscillation de l'OPO sans pour autant atteindre le seuil de dommage du cristal. Cependant, dans notre cas cette amélioration n'est pas possible, car le cristal était déjà endommagé en surface avant l'expérience, ce qui impose la taille du faisceau maximale. Dans l'immédiat, des expériences d'ombroscopie sont prévues afin de quantifier l'endommagement du cristal.

## Synthèse

En conclusion, nous avons présenté, un OPO permettant l'émission directe d'un faisceau monofréquence et largement accordable dans la bande III grâce à plusieurs cristaux d'OP-GaAs, appelés M19, M28 et M22. Nous avons caractérisé les sources réalisées avec chacun de ces cristaux. Le seuil d'oscillation est de l'ordre de quelques microjoules, tandis que l'énergie de sortie au complémentaire est de l'ordre de la centaine de nanojoules. La source couvre les gammes 7,6–9  $\mu\text{m}$  et 10,2–11,2  $\mu\text{m}$  en combinant température du cristal et déplacement fin des miroirs de cavité. Puis nous avons effectué des mesures de polarisation et de biréfringence induite. Nous avons montré que M19 et M22 présentaient tous les deux des effets de biréfringence induite, et que les axes neutres correspondaient aux axes cristallographiques [001] et  $[-110]$  du GaAs. La largeur spectrale de l'impulsion a été mesurée par battement de fréquence entre un DFB-QCL continu et l'onde complémentaire du NesCOPO. La largeur spectrale est d'environ 30 MHz, et ne présente pas de chirp en fréquence significatif. Notons toutefois que, dans notre cas, le facteur limitant pour la spectroscopie est la stabilité en fréquence plutôt que la largeur spectrale de la source. Cependant, à cause du manque d'instruments de mesure dans la bande III, il n'est pas possible d'évaluer la stabilité de la source. En revanche, plusieurs expériences sur des NesCOPO en PPLN montrent que la stabilité d'une source en fonctionnement libre est, dans tous les cas, inférieure à 300 MHz ( $0,01 \text{ cm}^{-1}$ ) pendant plusieurs minutes [176]. La source a ensuite été utilisée dans un banc lidar pour la mesure de l'ammoniac à une distance de 3,5 m. Finalement, un spectre de la bande d'absorption principale de l'ammoniac a été obtenu entre 10,25 et 10,45  $\mu\text{m}$ , et une raie plus fine a pu être résolue entre 10,49 et 10,54  $\mu\text{m}$ . Cependant, dans le cadre de cette expérience, l'acquisition d'un spectre d'absorption est effectuée uniquement à des fins d'illustration. L'idée ici était de démontrer l'accordabilité et la capacité de la source à détecter des espèces chimiques à distance. Dans un système opérationnel, seul un jeu de longueurs d'onde discrètes serait émis en fonction de l'espèce chimique à détecter, sa concentration, la distance et des espèces interférentes. Ceci aurait pour effet de diminuer considérablement le temps de mesure. Un exemple de système Lidar répondant à toutes ces spécifications est présenté dans la section 4.1.

Dans un second temps, nous avons présenté un concept de cristal de CdSe poli en cylindre partiel. Ce cristal permet de couvrir toute la bande III sans désalignement de faisceau. Nous avons mis en place un OPO simplement résonnant à l'onde signal. La réflectivité des miroirs permet de couvrir une large gamme spectrale allant de 9 à 14  $\mu\text{m}$ . Le seuil d'un tel OPO a été estimé à 1 mJ. Puis le faisceau a été mis en forme dans les deux directions transverses afin d'éviter toute focalisation due aux faces du cristal. Cependant, après plusieurs essais, le cristal a été endommagé en volume. En effet, la mise en forme du faisceau est très critique, notamment sur la position du cristal, car sa face d'entrée agit comme une lentille cylindrique de très courte focale. De futurs essais impliqueront l'utilisation de platines de translation supplémentaires sur le cristal et les lentilles de focalisation, ainsi que l'ajout d'un système optique permettant de caractériser plus précisément la taille du faisceau après le cristal.



# Chapitre 4

## Processus paramétriques en cascade pour l'émission en bande III

### Objectifs du chapitre

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'émission de faisceaux énergétiques dans la bande III. C'est une architecture en cascade qui est utilisée, en amplifiant les faisceaux signal et complémentaire émis par un OPO à  $2 \mu\text{m}$  monofréquence avant de les convertir dans la bande III grâce à un étage de différence de fréquences.

Dans un premier temps, nous présenterons un système lidar complet basé sur cette architecture. Nous détaillerons chaque étape permettant d'obtenir un faisceau énergétique dans la bande III. Puis, nous intégrerons cette source dans un banc lidar avant d'effectuer des mesures de détection de gaz de combat à distance. La campagne de mesure se déroulera en conditions quasi réelles dans les locaux de nos collègues de VVU en République Tchèque.

Dans un second temps, nous présenterons un nouveau concept de NesCOPO à  $2 \mu\text{m}$  utilisant un cristal de PPLN en quasi-accord de phase de type 0, ainsi qu'un réseau de Bragg en volume comme miroir complémentaire. L'idée ici est de réaliser un OPO monofréquence proche de la dégénérescence du laser de pompe tout en bénéficiant du coefficient non linéaire  $d_{33}$  du niobate de lithium, qui possède l'amplitude la plus élevée. Nous présenterons le principe général de fonctionnement de cet OPO, ainsi que les étapes de sa conception. Puis, nous effectuerons des mesures préliminaires afin de caractériser le réseau de Bragg en volume. Enfin, nous comparerons les résultats obtenus entre un NesCOPO classique utilisant un coupleur à l'onde complémentaire et le NesCOPO utilisant un réseau de Bragg en volume.

## 4.1 Différence de fréquences à partir de rayonnements monofréquences et accordables autour de $2 \mu\text{m}$

Dans cette partie nous présentons les résultats obtenus dans le cadre du projet MICLID. Il s'agit d'une collaboration entre KTH en Suède, VVU en République Tchèque, et l'Onera en France pour le compte de l'*European Defense Agency*. Le projet vise à réaliser un système lidar pour la détection de gaz de combat à longue portée dans la bande III. Le principe de la détection est basé sur la spectrométrie d'absorption différentielle intégrée colonne (IP-DIAL) présentée dans la section 2.1.1. L'objectif de cette partie est d'expliquer comment différentes technologies optiques peuvent être combinées afin de réaliser un système lidar opérationnel pour la détection d'espèces chimiques à distance. Ma contribution sur ce projet s'est portée principalement sur l'alignement, et la caractérisation des étages d'émission et de réception du système lidar. J'ai également participé aux campagnes de mesure en République Tchèque visant à détecter des gaz de combat à longue portée. En revanche, la conception du système, la caractérisation du laser de pompe, et le traitement des signaux lidar ont été réalisés par les ingénieurs de l'équipe.

### 4.1.1 Principe général de l'émetteur lidar

La FIGURE 4.1 présente le schéma de principe simplifié de l'émetteur lidar utilisé dans le cadre du projet MICLID. Le schéma correspond à la configuration iv) de la

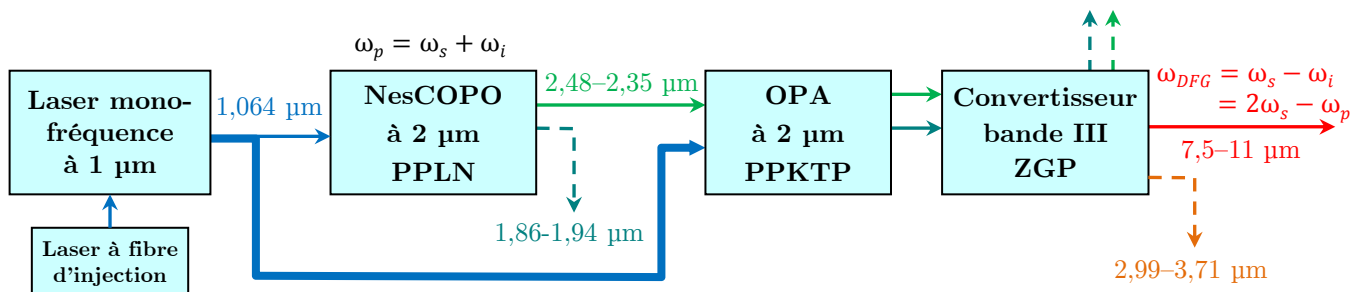


FIGURE 4.1 – Schéma de principe simplifié de l'émetteur.

FIGURE 2.7 (page 54). La source est composée d'un NesCOPO à  $2 \mu\text{m}$  pompé par un laser injecté émettant à  $1,064 \mu\text{m}$ . L'énergie nécessaire à la détection de gaz à longue portée est obtenue par amplification du faisceau complémentaire du NesCOPO dans deux étages d'amplification. Un étage de conversion permet ensuite d'obtenir un faisceau accordable en longueur d'onde dans la bande III par différence de fréquences. Le TABLEAU 4.1 présente toutes les polarisations et les longueurs d'onde mises en jeu dans chacun des processus non linéaires.

### 4.1.2 Laser de pompe

La source de pompe est un laser de haute énergie à déclenchement actif en Nd:YAG de la marque Innolas, injecté par un laser à fibre de NP Photonics. Il délivre une énergie

Processus	Type d'accord de phase	Pompe	Signal	Complémentaire
NesCOPO à $2 \mu\text{m}$ (PPLN)	II	1,064 (o)	1,863–1,941 (o)	2,481–2,355 (e)
OPA à $2 \mu\text{m}$ (PPKTP)	0	1,064 (e)	1,863–1,941 (e)	2,481–2,355 (e)
DFG en bande III (ZGP)	II	1,863–1,941 (o)	2,481–2,355 (e)	7,480–11,05 (o)

TABLEAU 4.1 – Récapitulatif des polarisations et des longueurs d’onde mises en jeu lors de chaque processus non linéaire. (o) correspond à une direction de polarisation ordinaire, tandis que (e) correspond à une direction de polarisation extraordinaire. Toutes les longueurs d’onde sont exprimées en micromètres.

totale de 400 mJ répartie dans les différents étages du système. La durée d’impulsion est de 7,1 ns pour une cadence de répétition de 50 Hz, et une largeur spectrale de 150 MHz. Le facteur  $M^2$  du laser a été mesuré à 1,8. Les profils spatiaux du faisceau en champ lointain et en champ proche sont présentés dans la FIGURE 4.2. Le faisceau en champ

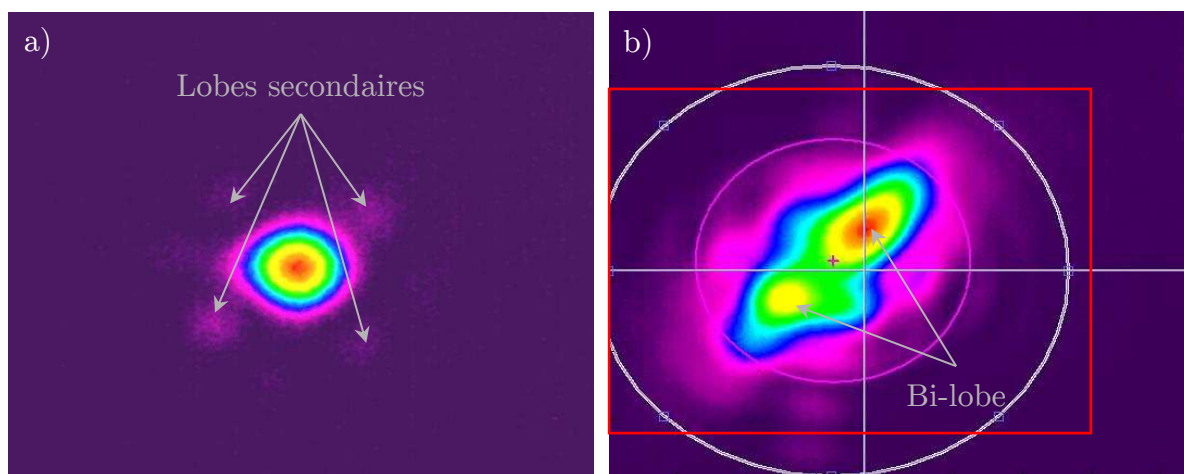


FIGURE 4.2 – a) profil spatial de la pompe utilisée pour le pompage du NesCOPO en champ lointain. b) profil spatial de la pompe en champ proche pris avant les étages d’amplification. Le carré rouge correspond à l’ouverture de  $5 \times 7 \text{ mm}^2$  des cristaux de PPKTP des étages d’amplification.

lointain est quasiment  $\text{TEM}_{00}$ , mais présente des lobes secondaires. Cependant, ces lobes secondaires ne donnant pas lieu à une oscillation du NesCOPO, les propriétés spatiales des faisceaux signal et complémentaire n’en sont donc pas affectées. Le profil spatial de la pompe en champ proche, pris en entrée de l’étage d’amplification, est quant à lui

inhomogène. Le faisceau présente une forme elliptique avec deux lobes presque confondus d'énergie similaire. De plus, ces points « chauds » du faisceau se déplacent d'un tir à l'autre, ce qui rend l'alignement et le pompage des étages d'amplification difficile.

### 4.1.3 Oscillateur à 2 $\mu\text{m}$

#### Cavité OPO

L'oscillateur à 2  $\mu\text{m}$  du système lidar est un NesCOPO utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type II. Le schéma de la cavité est présenté dans la FIGURE 4.3. Comme dans le NesCOPO de la section 3.1, la cavité signal est composée

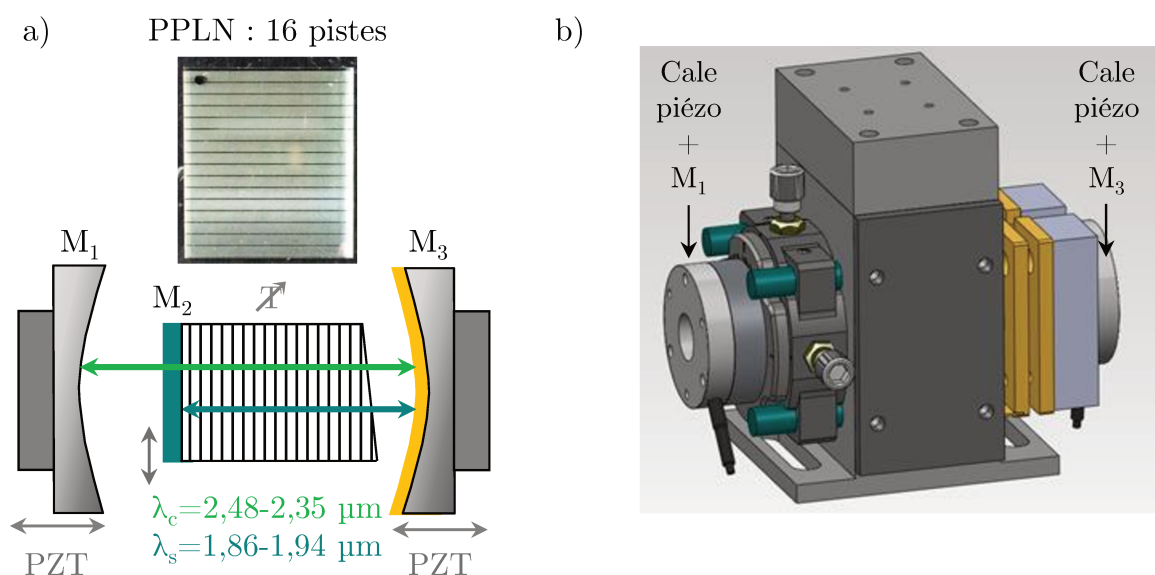


FIGURE 4.3 – a) Haut : cristal de PPLN comprenant 16 pistes utilisé dans le NesCOPO à 2  $\mu\text{m}$ , bas : schéma de la cavité OPO. Le miroir  $M_2$  est déposé sur la face d'entrée du cristal de PPLN, tandis que les miroirs  $M_1$  et  $M_3$  sont montés sur des cales piézo-électriques. b) Vue en 3D du NesCOPO réalisée avec le logiciel SolidWorks.

des miroirs  $M_2$ – $M_3$ , et la cavité complémentaire est composée des miroirs  $M_1$ – $M_3$ , qui sont tous les deux montés sur les cales piézo-électriques. Le miroir  $M_2$  est un miroir plan directement déposé sur la face d'entrée du cristal. Il réfléchit 99 % de l'onde signal entre 1,85 et 1,95  $\mu\text{m}$ . Le miroir  $M_1$  possède un rayon de courbure de 500  $\mu\text{m}$ , et réfléchit 80 % de l'onde complémentaire entre 2,21 et 2,5  $\mu\text{m}$ . Le miroir  $M_3$  réfléchit 99,9 % à toutes les ondes et son rayon de courbure vaut 400  $\mu\text{m}$ . Le cristal utilisé dans cet OPO est un cristal de PPLN composé de 16 pistes dont la période de retournement varie entre 14,811 et 15,146  $\mu\text{m}$ . Il est monté sur une platine de translation piézo-électrique afin de pouvoir changer la piste de quasi-accord de phase à distance. Une image de ce cristal est présentée dans la FIGURE 4.3 a) (haut). Sa face de sortie est polie avec un angle de 0,27° afin de contrôler le déphasage relatif des ondes après réflexion sur  $M_3$ , comme expliqué dans la section 1.2.2. L'intervalle spectral libre des deux cavités est d'environ 4 GHz, et la bande de gain est mesurée à 70 GHz, soit 2,3  $\text{cm}^{-1}$ .



Le seuil d'oscillation a été mesuré à environ  $210 \mu\text{J}$  pour une énergie de sortie comprise entre  $15$  et  $20 \mu\text{J}$ , mesurée trois fois au-dessus du seuil. La FIGURE 4.4 présente le profil spatial des ondes signal et complémentaire. Lorsque l'OPO est correctement aligné, les

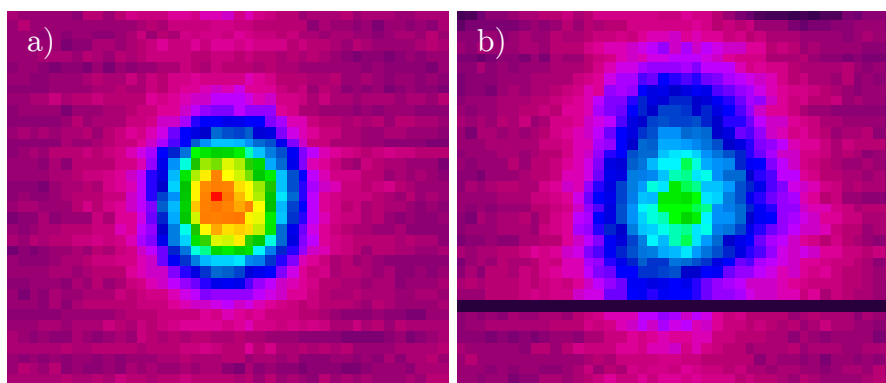


FIGURE 4.4 – a) Profil spatial de l'onde signal. b) Profil spatial de l'onde complémentaire. Échelle :  $1 \text{ pixel} = 80 \mu\text{m}$ .

ondes signal et complémentaire sont toutes les deux monomodes transverses. En revanche, le faisceau complémentaire semble moins bien confiné que le faisceau signal. Ceci est principalement dû à la finesse de la cavité qui est plus faible que celle du signal.

Pour certaines positions du cristal, passer d'une piste du PPLN à une autre entraîne de forts désalignements de la cavité dans le plan horizontal. Les modes spatiaux deviennent alors  $\text{TEM}_{04}$  voire  $\text{TEM}_{06}$ . Cet effet est moins prononcé sur le faisceau complémentaire, mais son énergie est, dans tous les cas, plus faible. Nous pensons que ce désalignement est dû à un polissage imparfait de la face d'entrée du cristal où est déposé  $\text{M}_2$ .

### Fonctionnement monofréquence

Dans le cas du NesCOPO du lidar MICLID, il n'est pas possible d'atteindre la configuration idéale, où seul un mode est émis à chaque tir. En effet, la largeur spectrale de la pompe, qui est de  $150 \text{ MHz}$ , est suffisante pour permettre l'oscillation de plusieurs coïncidences. Cette situation peut être comprise en considérant qu'un laser large spectralement pompant une cavité de finesse élevée peut s'approcher par une pompe monofréquence et une cavité de finesse plus faible. Dans notre cas, une largeur spectrale de  $150 \text{ MHz}$  peut être simulée en considérant des finesses de cavité de  $24$ . L'étude de la zone de fonctionnement monofréquence d'un tel NesCOPO est donnée dans la FIGURE 4.5. Comme expliqué dans la section 1.2.3, l'oscillation monomode est obtenue lorsque la courbe bleue se trouve en dessous de la ligne rouge. Ici, ce n'est jamais le cas : le NesCOPO ne peut donc pas être systématiquement monofréquence. Ainsi, le paramètre de dissociation choisi n'est pas issu d'une optimisation, comme dans la section 3.1, mais plutôt d'un compromis permettant d'obtenir une oscillation monofréquence avec le moins de sauts de modes possibles. La FIGURE 4.6 présente le comportement fréquentiel de l'onde signal en fonction du temps. Pour une faible valeur du paramètre de dissociation (FIGURE 4.6 a)), plusieurs modes voisins oscillent de manière équivalente au sein d'un même cluster en fonctionnement libre,

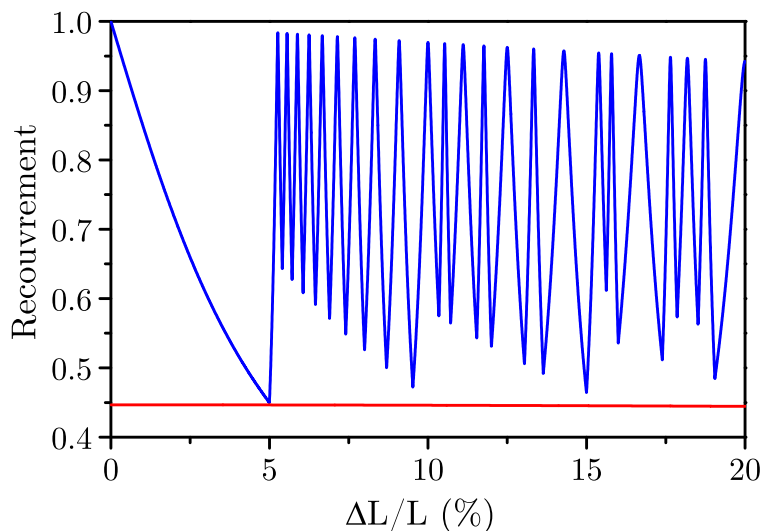


FIGURE 4.5 – Intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en fonction du paramètre de dissociation pour une pompe monofréquence et des finesses de cavité de 24. La ligne rouge correspond au recouvrement au-delà duquel il y a oscillation des modes voisins pour un taux de pompage de 2,4.

ce qui peut causer des erreurs lors de la mesure de la longueur d'onde au lambdamètre. En revanche pour une valeur trop élevée du paramètre de dissociation (FIGURE 4.6 c)), seul un mode par cluster oscille en fonctionnement libre; mais trois clusters sont émis lorsque le miroir  $M_1$  est balayé, ce qui réduit le nombre de points utiles à la mesure lidar. Pour une valeur intermédiaire du paramètre de dissociation, comme présenté dans la FIGURE 4.6 b), deux clusters sont émis lorsque  $M_1$  est balayé et seuls quelques modes voisins sont émis en fonctionnement libre. Cette situation, qui correspond à un paramètre de dissociation de 8,8 %, est celle que nous avons choisie, car elle permet l'émission d'un mode longitudinal tout en minimisant le nombre de sauts de modes. De plus, la longueur d'onde signal est enregistrée tir à tir, ce qui permet d'éliminer les points de mesures dus aux sauts de modes lors du traitement des données lidar.

#### 4.1.4 Étages d'amplification à 2 $\mu\text{m}$

L'amplification des faisceaux signal et complémentaire du NesCOPO à 2  $\mu\text{m}$  se fait dans deux étages d'amplification paramétrique optique constitués de plusieurs cristaux de PPKTP de 7 mm de long dopés rubidium, et retournés périodiquement. Une image de ces cristaux est présentée dans l'insert de la FIGURE 4.7. Les cristaux ont été réalisés par KTH dans le cadre du projet MICLID. Ils possèdent une période de retournement de 38,52  $\mu\text{m}$  et une ouverture de  $5 \times 7 \text{ mm}^2$ . L'acceptance en température est d'environ 10°C, et l'acceptance spectrale est supérieure à  $50 \text{ cm}^{-1}$ , ce qui permet d'amplifier les faisceaux pour chaque longueur d'onde d'émission du NesCOPO à 2  $\mu\text{m}$ , sans changer la température des cristaux de PPKTP. Le profil spatial de la pompe étant inhomogène, nous avons jugé prudent de restreindre la densité d'énergie maximale à 4  $\text{J}/\text{cm}^2$ . En

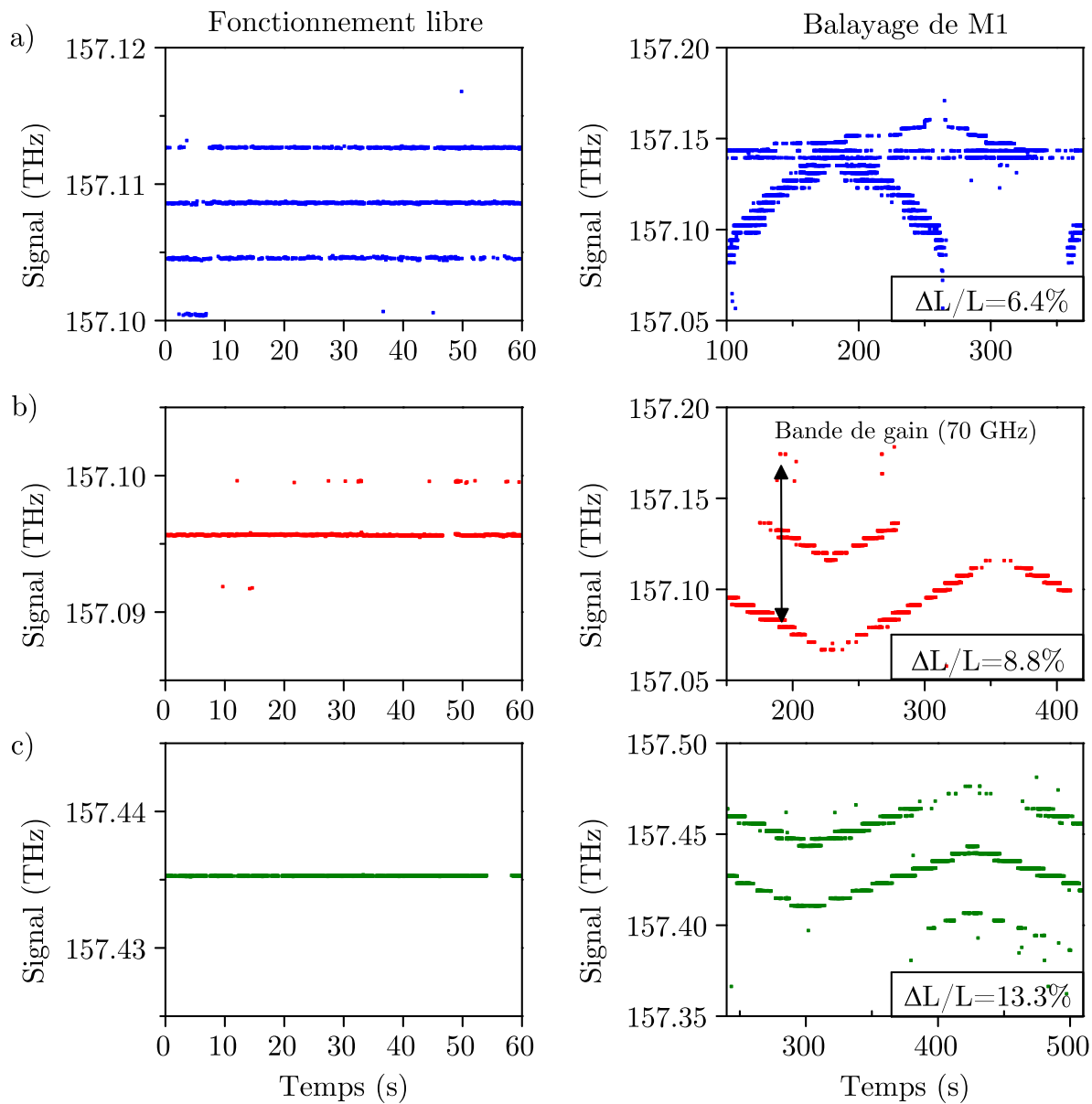


FIGURE 4.6 – Comportement fréquentiel de l’onde signal en sortie du NesCOPO pour trois valeurs du paramètre de dissociation. La colonne de gauche correspond à une mesure effectuée en fonctionnement libre où les éléments optiques sont statiques, et la colonne de droite correspond à une mesure effectuée lorsque le miroir  $M_1$  bouge très lentement. a)  $\Delta L/L = 6,4\%$ , b)  $\Delta L/L = 8,8\%$ , et c)  $\Delta L/L = 13,3\%$ .

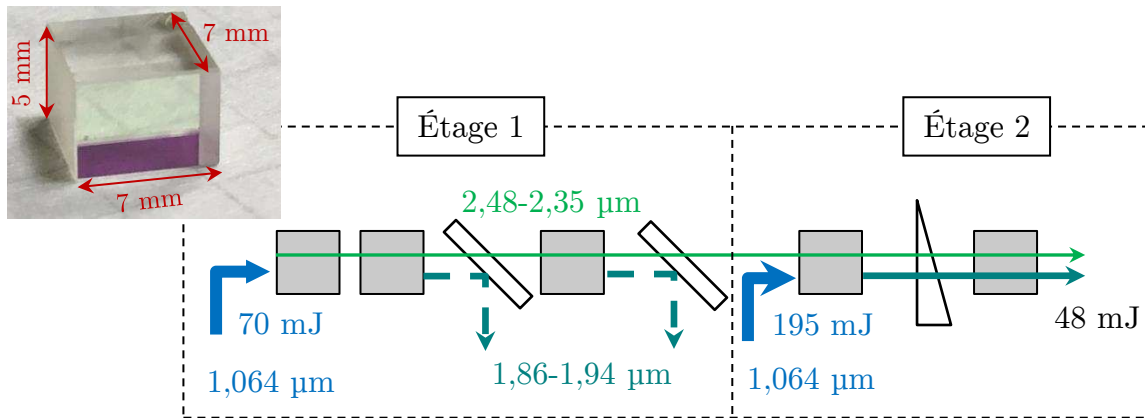


FIGURE 4.7 – Configuration optique utilisée pour les étages d'amplification paramétrique. Chaque carré gris correspond à un cristal de PPKTP.

effet, l'absorption du faisceau signal par la vapeur d'eau autour de  $1,9 \mu\text{m}$ , ainsi que les poussières présentes dans l'air combinées au profil spatial inhomogène de la pompe peuvent causer des dommages inattendus sur les faces du cristal.

La configuration optique utilisée pour les étages d'amplification est présentée dans la FIGURE 4.7. Le premier étage est composé de trois cristaux de PPKTP pompés à 70 mJ. Le signal est rejeté à l'aide d'une lame dichroïque après les deux premiers cristaux de PPKTP, ainsi qu'en sortie du premier étage. Le second étage est composé de deux cristaux de PPKTP pompés à 195 mJ. Une lame de phase est insérée entre les deux cristaux afin d'ajuster la phase relative entre les ondes de pompe, signal et complémentaire. Les cristaux de PPKTP sont légèrement inclinés afin d'éviter que des oscillations parasites interviennent entre les faces du cristal. L'énergie maximum obtenue en sortie d'amplificateur est de 48 mJ pour les ondes signal et complémentaire, lorsque l'énergie de pompe totale est de 265 mJ. En moyenne, l'énergie de sortie varie entre 30 et 44 mJ, selon la piste du PPLN choisie. Notons toutefois que la configuration choisie n'est pas optimale, mais elle reste la meilleure solution compte tenu du nombre et de la longueur des cristaux disponibles. Par exemple, une énergie maximale de 70 mJ, pour les ondes signal et complémentaire a pu être obtenue en utilisant uniquement un cristal de 12 mm dans le premier étage d'amplification, et un cristal de 7 mm dans le second étage. Ces deux cristaux de PPKTP ont été réalisés dans le cadre d'un autre projet de l'équipe, et fonctionnent à une température d'accord de phase de  $25^\circ\text{C}$ , soit à température ambiante, pour une longueur d'onde complémentaire de  $2,3 \mu\text{m}$ .

La mesure de la longueur d'onde signal est effectuée à l'aide d'un lambdamètre, de la marque High Finesse WS6/200 possédant une résolution de 50 MHz, en prélevant le faisceau signal amplifié après les deux premiers cristaux de PPKTP. La FIGURE 4.8 présente la mesure de la longueur d'onde signal en fonction de la position lue sur le contrôleur de la platine de translation du PPLN. La courbe de la FIGURE 4.8 (gauche) est obtenue en faisant varier très lentement la position du cristal et en enregistrant la longueur d'onde émise. Les traits pointillés en rouge correspondent au jeu de longueurs d'onde choisi, une fois converti vers la bande III, pour la détection de différentes espèces

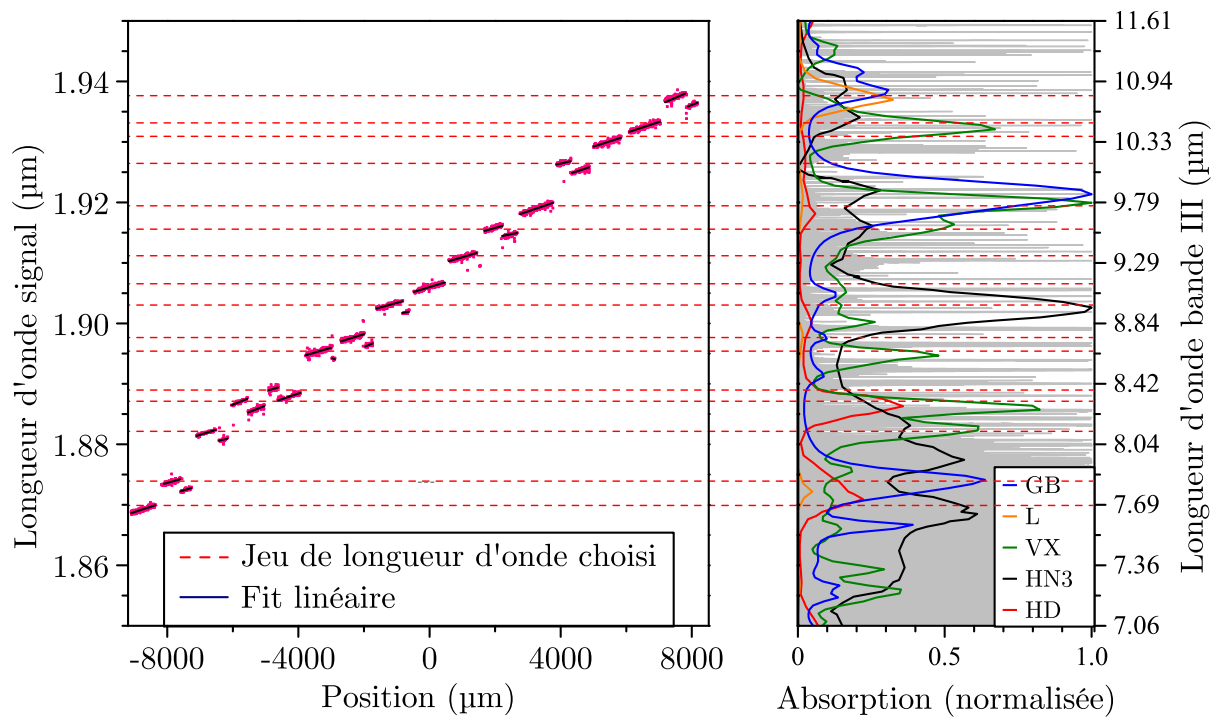


FIGURE 4.8 – Gauche : courbe d'accordabilité de la longueur d'onde signal du NesCOPO à  $2 \mu\text{m}$  pour une température de PPLN de  $69^\circ\text{C}$ . Les pointillés rouges correspondent au jeu de longueurs d'onde choisi pour la détection de gaz de combat dans la bande III en effectuant la conversion :  $\omega_{\text{DFG}} = 2\omega_s - \omega_p$ . Droite : spectre d'absorption des espèces chimiques ciblées par le lidar MICLID. En gris est représentée le spectre d'absorption de l'atmosphère.

chimiques, comme le gaz moutarde, ou le gaz sarin. Les spectres d'absorption des espèces correspondantes dans la bande III sont représentés sur la FIGURE 4.8 (droite).

La FIGURE 4.9 présente la mesure de stabilité en longueur d'onde pendant une durée de 3 minutes. Une fois qu'un mode longitudinal est sélectionné, la stabilité fréquentielle

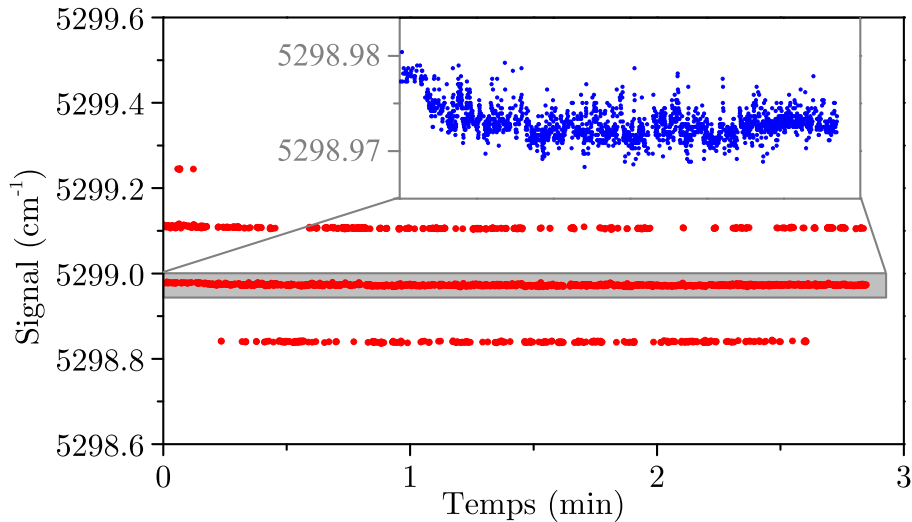


FIGURE 4.9 – Mesure de la stabilité en longueur d'onde du faisceau signal en sortie des deux premiers cristaux de PPKTP sur une durée de 3 minutes.

rms de ce mode est inférieure à  $0,004 \text{ cm}^{-1}$ . À partir des relations de conservation de l'énergie, il est possible de conclure que le faisceau bande III aura, dans le pire des cas, une stabilité inférieure à  $0,008 \text{ cm}^{-1}$ , soit deux fois la stabilité du signal. Ainsi, en fonctionnement libre, pour des positions de miroirs données, et sans boucle d'asservissement, la longueur d'onde de sortie est suffisamment stable pour la détection de CWA et de TIC, ce qui nécessite des stabilités inférieures à  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ . Sur la FIGURE 4.9, les sauts de modes autour de la fréquence centrale sont mesurés. Ils sont issus du paramètre de dissociation choisi, qui ne permet pas un fonctionnement monomode longitudinal strict, comme expliqué dans la section 4.1.3. Ces points pourront être enlevés lors du traitement des signaux lidar.

#### 4.1.5 Étage de conversion vers la bande III

La conversion vers la bande III s'effectue via un étage de différence de fréquences entre les faisceaux signal et complémentaire dans deux cristaux de ZGP de 4 et 7 mm de long, respectivement. La FIGURE 4.10 présente la configuration optique utilisée. Les cristaux de ZGP utilisés fonctionnent en accord de phase de type II, le signal étant polarisé selon la direction ordinaire et le complémentaire selon la direction extraordinaire. Pour cela, le faisceau signal est extrait par des lames dichroïques. Puis sa polarisation est changée grâce à une lame demi-onde. Le faisceau signal est ensuite recombinaison avec le faisceau complémentaire par des lames dichroïques. Enfin, le faisceau bande III est obtenu par différence de fréquences dans deux cristaux de ZGP. Les cristaux sont montés sur des pla-

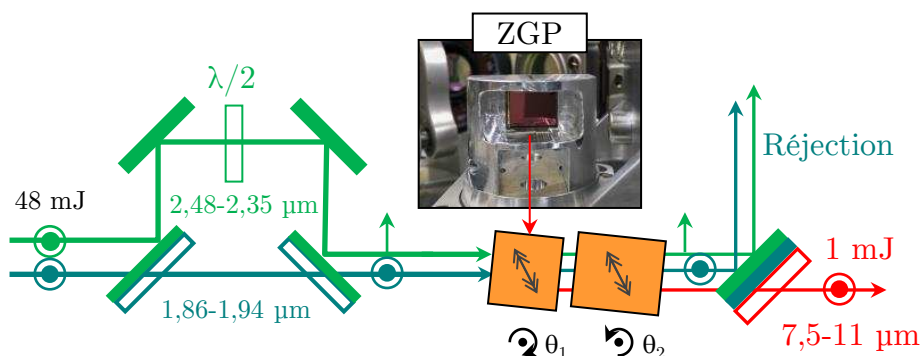


FIGURE 4.10 – Configuration optique utilisée pour l’étage de différence de fréquences. Chaque carré orange correspond à un cristal de ZGP. Insert : image d’un cristal de ZGP monté dans sa platine de rotation.

tines de rotation piézo-électriques. Le faisceau bande III est ensuite filtré des ondes signal et complémentaire à l’aide d’une lame dichroïque placée à  $45^\circ$  et d’un filtre passe-haut à  $6840 \text{ nm}$ . Des courbes d’étalonnage sont ensuite réalisées afin de piloter automatiquement l’angle de rotation des cristaux en fonction de la longueur d’onde d’émission du NesCOPO à  $2 \mu\text{m}$ . La FIGURE 4.11 présente les courbes d’étalonnage obtenues dans les deux cristaux de ZGP en fonction de l’angle interne. La courbe théorique, en rouge, est obtenue à partir des équations de Sellmeier établies par Barnes et al. [41] en appliquant un décalage angulaire de  $-0,2^\circ$ . La longueur d’onde du faisceau en bande III varie entre  $7,7$  et  $10,5 \mu\text{m}$ ,

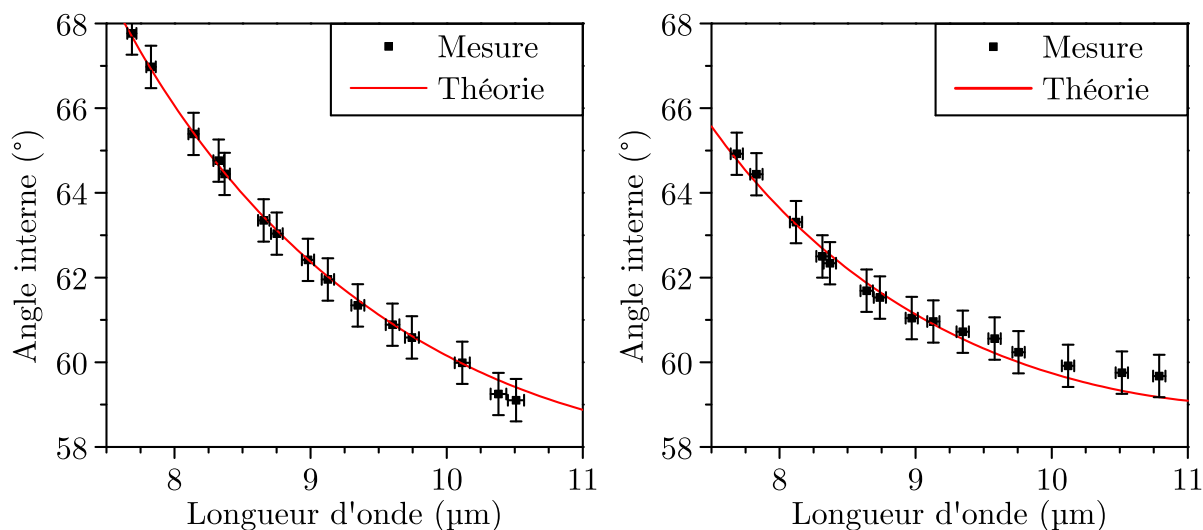


FIGURE 4.11 – Courbe d’accord de phase obtenue pour le cristal de ZGP de  $4 \text{ mm}$  (gauche) et pour le cristal de ZGP de  $11 \text{ mm}$  (droite) en fonction de l’angle interne. En noir les points de mesures, et en rouge la courbe théorique obtenue à partir des équations de Sellmeier établies par Barnes et al. [41] en appliquant un décalage angulaire de  $-0,2^\circ$ .

ce qui permet d’identifier l’une des principales raies du sarin et du gaz moutarde, situées

respectivement autour de 9,76 et 8,31  $\mu\text{m}$ , comme indiqué sur la FIGURE 4.8 (droite). L'acceptance angulaire des cristaux de ZGP est de l'ordre de  $1^\circ$ .

Initialement, le convertisseur en bande III comprenait un étage de différence de fréquences entre les faisceaux signal et complémentaire, et un étage d'amplification entre le faisceau bande III et le faisceau complémentaire. Cependant, l'énergie obtenue dans cette configuration était plus basse que celle attendue. Ceci est principalement dû au profil spatial des faisceaux amplifiés. De plus, comme l'amplification à 2  $\mu\text{m}$  ne s'effectue pas en régime saturé, le ratio entre les photons signal et complémentaire est différent de 50%, ce qui a pour effet de diminuer l'efficacité de l'étage de conversion. Afin de pallier cet inconvénient, nous avons choisi de simplifier le montage en plaçant les deux cristaux de ZGP l'un à la suite de l'autre, comme expliqué dans le paragraphe précédent. En considérant que la dispersion dans l'air et dans les couches de traitement antireflet est négligeable, la phase relative entre les ondes entre les deux cristaux de ZGP est constante. Ainsi, la configuration est équivalente à un seul cristal de ZGP de 11 mm de long, bien qu'une partie de l'énergie soit perdue entre les deux cristaux à cause des traitements antireflets imparfaits.

L'énergie maximum obtenue en sortie de l'étage de conversion est de 1,1 mJ pour une énergie de pompe de 48 mJ. Cependant, pour des énergies de pompe plus faibles, utilisées lors des campagnes de mesure, l'énergie de sortie est typiquement de 300  $\mu\text{J}$ , ce qui est suffisant pour la mesure IP-DIAL à longue portée sur une cible topographique, comme expliqué dans la section 2.1.2. En revanche, cette énergie est trop faible pour la mesure RR-DIAL sur les aérosols de l'atmosphère.

La valeur exacte de l'énergie de sortie dépend de la piste du PPLN choisie comme présenté en vert dans la FIGURE 4.12. La baisse d'énergie observée au-delà de 10  $\mu\text{m}$

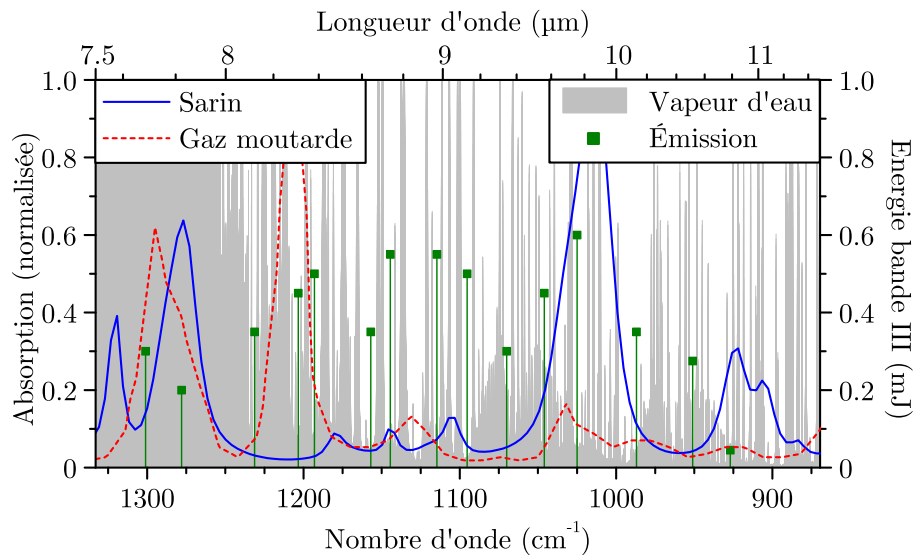


FIGURE 4.12 – Énergie en sortie de l'étage de conversion bande III en fonction de la longueur d'onde d'émission représentée en vert. En gris, bleu et pointillés rouges sont représentés respectivement les spectres d'absorption de la vapeur d'eau, du gaz sarin, et du gaz moutarde.



est due à l'absorption multi phonon dans ZGP. Les autres fluctuations sont dues au changement de profil transverse des faisceaux, comme expliqué précédemment.

#### 4.1.6 Voie de référence

Une infime partie de l'énergie est prélevée en sortie de l'étage de conversion afin de réaliser la voie de référence du système lidar. Le faisceau est dirigé vers une sphère intégrante en infra-gold de 10 cm de diamètre en utilisant les réflexions résiduelles obtenues par deux miroirs traités antireflets en bande III. Une image de la sphère est présentée dans la FIGURE 4.13. Un filtre passe-haut à 7800 nm est inséré sur le trajet du faisceau.

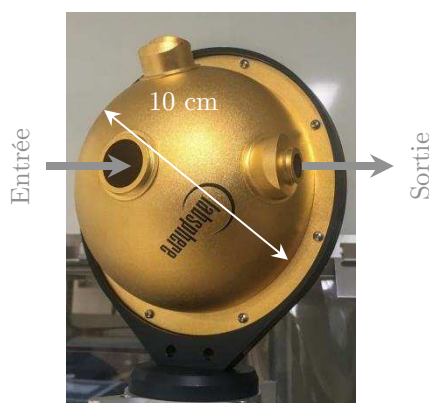


FIGURE 4.13 – Image de la sphère intégrante utilisée pour la voie de référence lors de la détection de gaz.

L'entrée de la sphère intégrante est protégée à l'aide d'un tissu noir, afin de bloquer la lumière à  $2 \mu\text{m}$  diffusée par d'autres optiques du montage. La lumière diffusée par la sphère est collectée par un détecteur photoconductif en HgCdTe refroidi à l'azote liquide suivi d'un amplificateur transimpédance. Un câble blindé est utilisé pour connecter le détecteur à l'amplificateur, en utilisant le marbre optique comme masse.

#### 4.1.7 Réception du lidar

Une vue en 3D du banc de réception, réalisée avec le logiciel SolidWorks, est présentée dans la FIGURE 4.14, et une image du montage est présentée dans la FIGURE 4.15. Le faisceau est extrait de l'étage de conversion et dirigé vers le banc de réception, situé au-dessus de l'émission, à l'aide de miroirs dorés non protégés afin d'éviter toute absorption plasmonique. Une diode laser émettant à 633 nm est placée sur le trajet du faisceau afin de faciliter l'alignement des optiques de l'étage de réception. Le faisceau bande III est ensuite collimaté et agrandi à l'aide d'un télescope formé de deux lentilles en ZnSe traitées antireflets de +75 et +200 mm de distance focale. Le réglage de ce système optique est effectué en mesurant la divergence du faisceau avec une caméra pyroélectrique sur plusieurs mètres. La FIGURE 4.16 présente le profil spatial du faisceau bande III obtenu à l'aide de la caméra placée à 3,2 mètres du lidar. Le banc de réception est composé

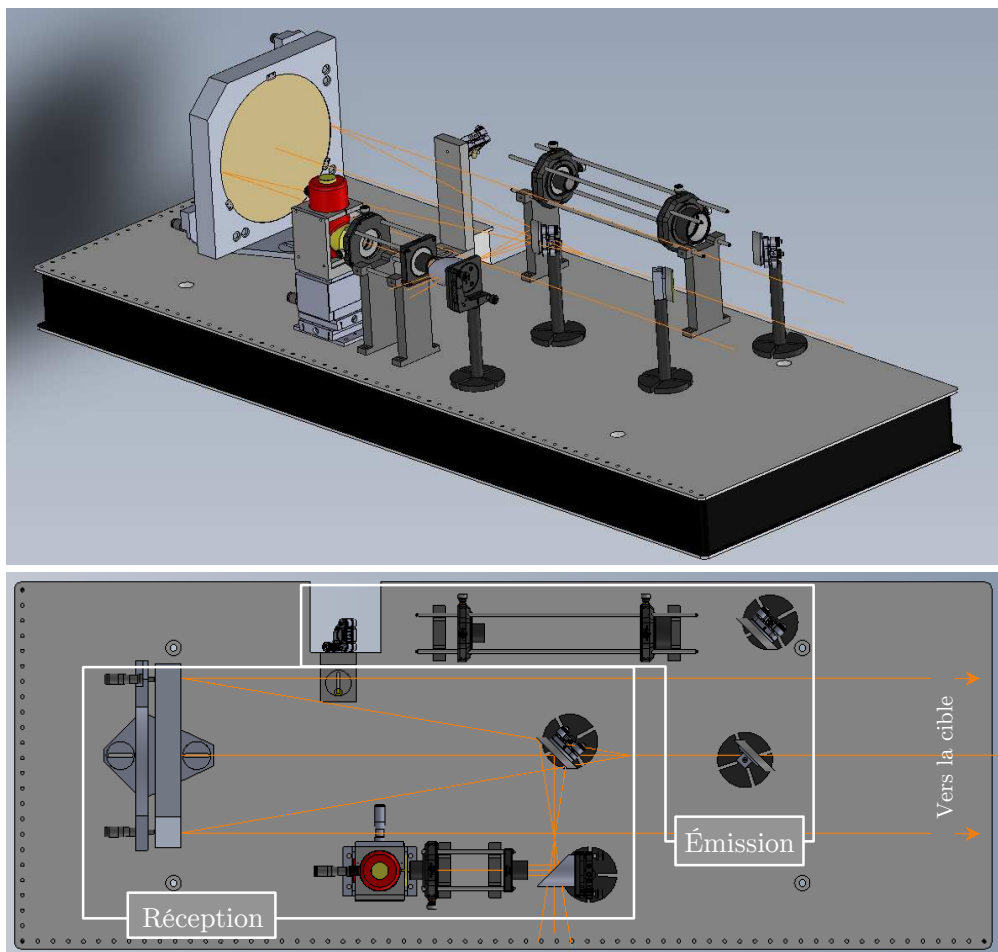


FIGURE 4.14 – Vue en 3D du banc de réception, réalisée à l'aide du logiciel SolidWorks.

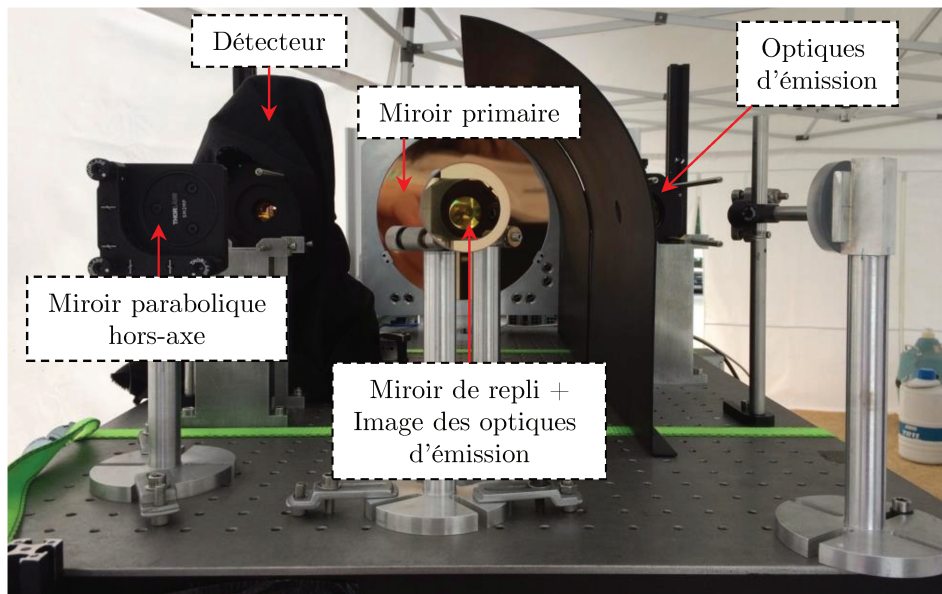


FIGURE 4.15 – Image du banc de réception.

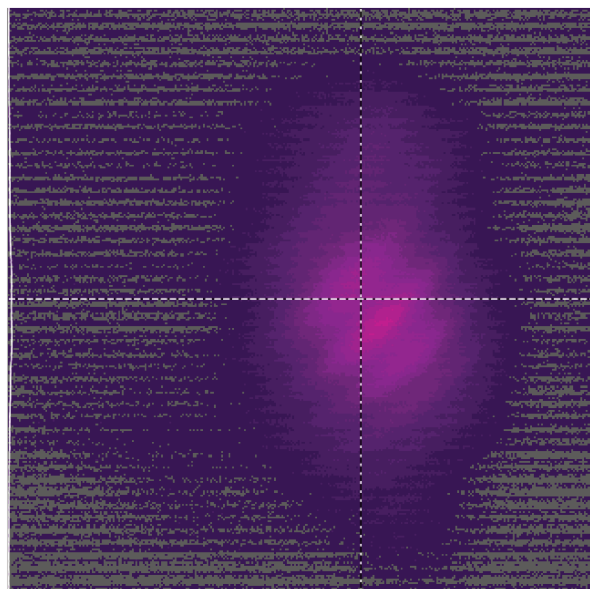


FIGURE 4.16 – Profil spatial du faisceau bande III mesuré à l'aide d'une caméra pyroélectrique placée à 3,2 mètres du lidar. 1 pixel =  $80 \mu\text{m}$ .

d'un télescope de Newton, un détecteur refroidi à l'azote liquide en HgCdTe en mode photovoltaïque muni d'une lentille d'immersion en germanium (Infrared Associates), et d'une carte d'acquisition (Agilent). Le télescope a un champ de réception de 1,6 mrad, et le miroir primaire possède un diamètre de 254 mm. Le faisceau rétro-diffusé est ensuite focalisé par un miroir parabolique hors axe et une lentille en ZnSe vers le détecteur, et muni d'un filtre passe-haut à 7800 nm. Le diamètre effectif du détecteur est de 1 mm, et sa bande passante à  $-3\text{dB}$  est de 5 MHz pour une longueur d'onde de coupure de  $11,5\ \mu\text{m}$ . Le détecteur est relié à un amplificateur transimpédance, puis à la carte d'acquisition à l'aide de câbles blindés reliés à la masse par le banc optique. La carte d'acquisition est une carte codée sur 8 bits de PCI Express possédant deux voies d'acquisition. Sa bande passante est limitée à 20 MHz par le logiciel d'acquisition.

#### 4.1.8 Campagne de mesures lidar

En août 2017, nous avons conduit une campagne de mesures dans le centre d'essai de Vyskov, en République Tchèque. L'objectif de cette campagne est de détecter des gaz de combat et des simulants comme  $\text{SF}_6$  en configuration IP-DIAL. Pour cela, le système lidar est placé sous une tente à l'extérieur, comme présenté dans la FIGURE 4.17. Le

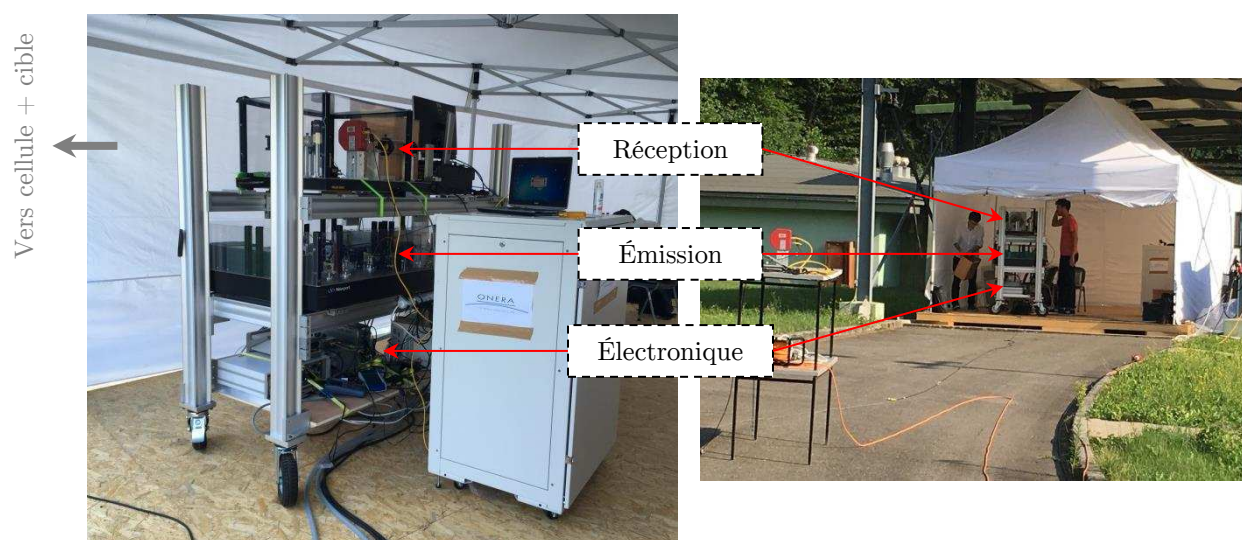


FIGURE 4.17 – Images du système lidar lors de la campagne d'essai en République Tchèque.

schéma de la configuration de détection est présenté dans la FIGURE 4.18. Le faisceau bande III est dirigé à travers une cellule placée à 40 mètres du lidar, présentée dans la FIGURE 4.19. Elle possède des fenêtres en polyéthylène inclinées à Brewster et fait 3,9m de long. La cellule est chauffée à  $60^\circ\text{C}$  et ventilée afin d'homogénéiser la concentration de gaz à l'intérieur. Puis le faisceau atteint une cible en métal recouverte d'un tissu noir, dont l'albédo est d'environ 5 %, placée à environ 200 m du lidar. Le système est ensuite réglé selon la procédure suivante. L'axe d'émission est aligné grossièrement le long de l'axe de réception avec deux miroirs dorés elliptiques. En regardant vers le miroir de repli à

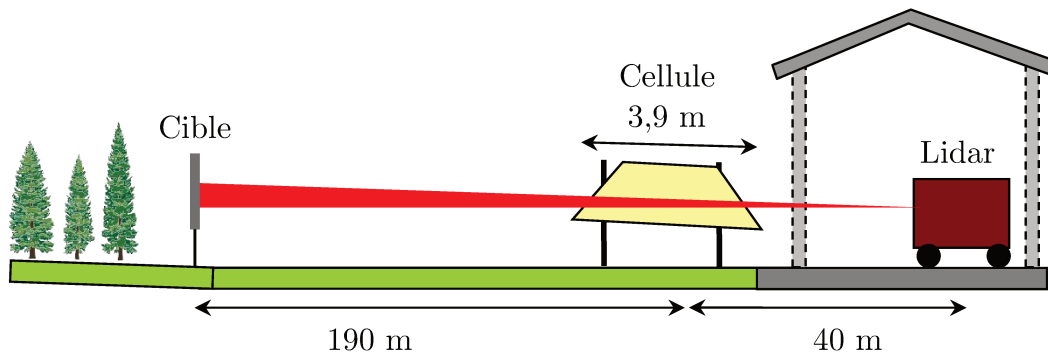


FIGURE 4.18 – Schéma de la configuration de détection.



FIGURE 4.19 – Image de la cellule de gaz lors de la dissémination de gaz de combat. La cellule est chauffée à  $60^{\circ}\text{C}$  et ventilée afin d'homogénéiser la concentration de gaz.



quelques mètres de distance, il est possible de voir l'image des optiques d'émission réfléchi par le miroir de repli. Cette image est alors alignée au centre du miroir de repli, comme présenté sur la FIGURE 4.15. Enfin, un laser d'alignement vert est superposé au faisceau bande III afin de servir de guide visuel lors de l'alignement du faisceau d'émission sur la cible placée à 200 mètres.

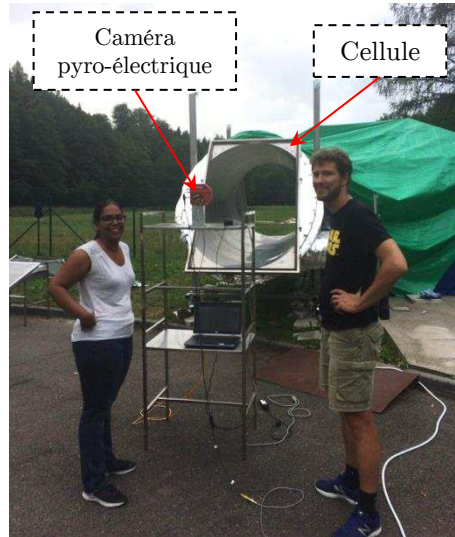


FIGURE 4.20 – Alignement de l'émission sur le faisceau bande III avant la cellule. Le faisceau bande III est repéré précisément à l'aide d'une caméra pyroélectrique.

Le télescope de réception est aligné au préalable en laboratoire en utilisant un laser collimaté à 633 nm. Le miroir est fixé perpendiculairement à la table optique le long d'une ligne de trous. Le centre du miroir primaire est repéré par un trou percé en son centre. Cette étape d'alignement est critique, car elle permet d'éviter tout effet dû à l'astigmatisme. Puis, la position du détecteur est ajustée grâce à des translations micrométriques dans les trois directions, en maximisant un écho lidar proche du système optique.

Finalement, le système lidar, comprenant l'émission et la réception est orienté de sorte à voir la cible à travers le trou du miroir primaire. Un alignement plus précis est effectué à l'aide du laser vert jusqu'à détecter un écho lidar. Puis, un vêtement noir est placé devant la cible pour évaluer la position et la taille du faisceau en utilisant la méthode dite du « couteau ». Le faisceau d'émission est ensuite placé au centre de la cible, et le miroir primaire est orienté afin de maximiser le signal détecté.

Une fois le système optimisé, du gaz sarin, ou du gaz moutarde, est injecté dans la cellule lors de plusieurs sessions de mesure. L'énergie de sortie est limitée à  $300 \mu\text{J}$  afin d'éviter tout risque de saturation des détecteurs. Le signal rétro-diffusé par la cible est collecté par le télescope et enregistré via la carte d'acquisition. Le signal est ensuite normalisé à l'aide de la voie de référence. La FIGURE 4.21 a) présente un exemple de signal lidar (haut) obtenu pour le gaz sarin ainsi que le signal de référence (bas). De même, la FIGURE 4.21 b) présente un signal lidar et le signal de référence pour le gaz moutarde. La trace lidar présente deux pics. Le premier pic correspond à l'écho de la cellule située à 40 m du lidar. Le second pic correspond au signal rétro-diffusé par la cible à 190 m du

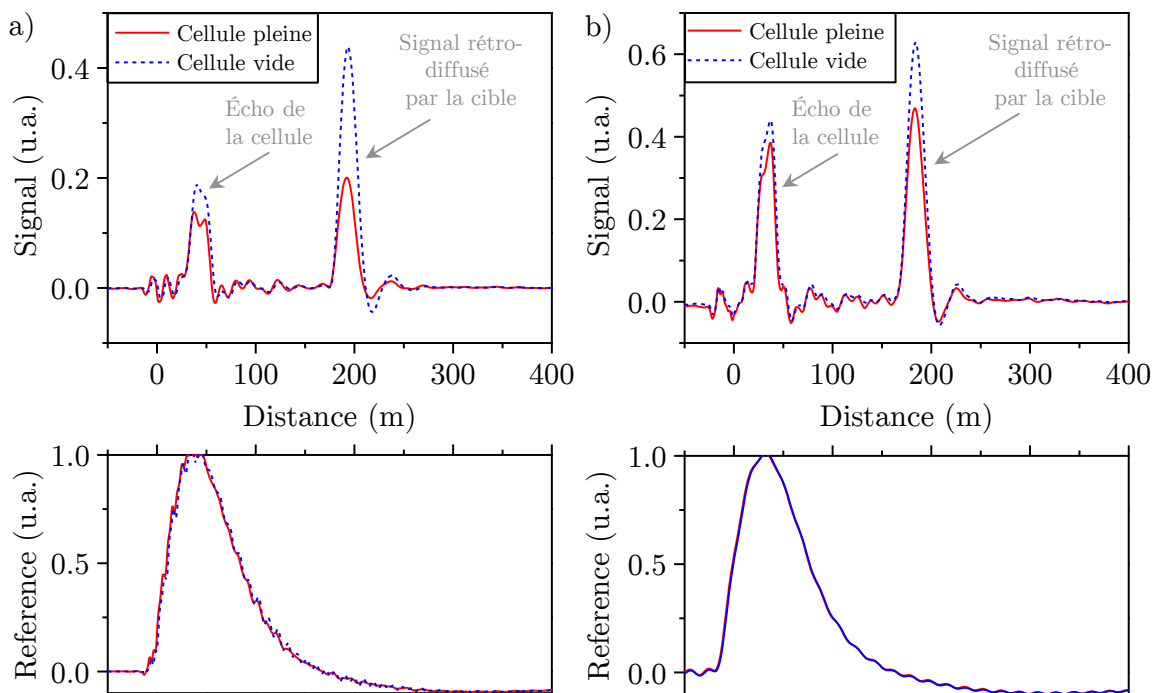


FIGURE 4.21 – Exemple de signaux normalisés et moyennés pour la voie lidar (haut) et la voie de référence (bas) aux longueurs d’onde ON et OFF pour : a) le gaz sarin, et b) le gaz moutarde. Le signal obtenu avec une cellule vide est représenté en pointillés bleus, tandis que le signal obtenu avec du gaz dans la cellule est représenté en rouge.

lidar. Le signal obtenu avec une cellule vide est représentée en pointillés bleus, tandis que le signal obtenu avec du gaz dans la cellule est représenté en rouge. L'écart entre les deux maximum d'intensité permet de remonter à la concentration de gaz présent sur la ligne de visée, comme expliqué dans la section 2.1.1. Cette mesure est ensuite réalisée pour plusieurs concentrations de gaz. La FIGURE 4.22, présente les concentrations moyennes obtenues le long de la ligne de visée pour chacun des deux gaz. Les valeurs obtenues avec

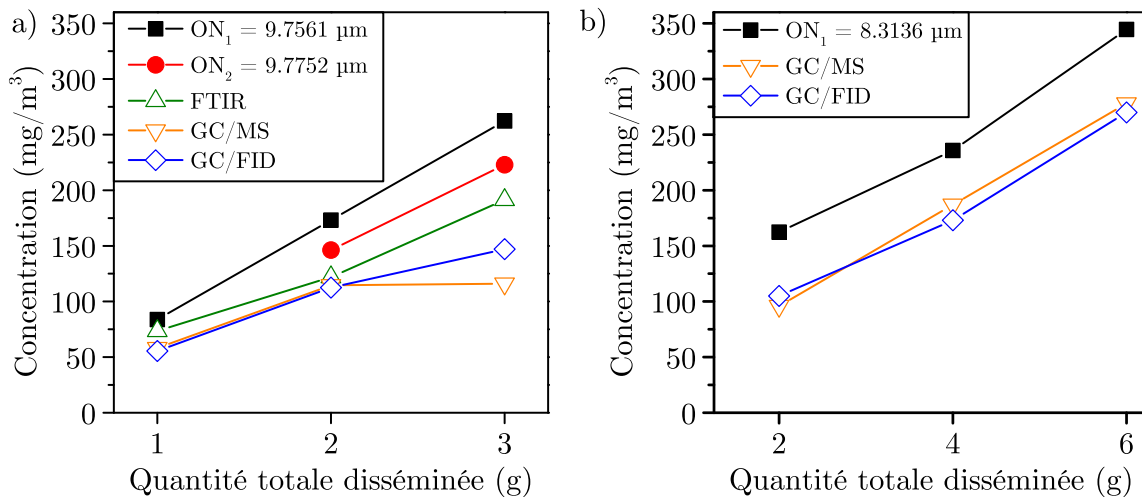


FIGURE 4.22 – Concentration moyenne mesurée le long de la ligne de visée en fonction de la quantité totale de gaz disséminé dans la cellule. Les mesures lidar sont comparées à des mesures prises à l'aide d'un FTIR et d'un chromatographe en phase gazeuse couplé à un spectromètre de masse. a) Concentration du gaz sarin pour deux longueurs d'onde ON. b) Concentration de gaz moutarde pour une longueur d'onde ON.

le lidar sont comparées avec des mesures réalisées à proximité de la cellule à l'aide d'un FTIR et d'un chromatographe en phase gazeuse couplé à un spectromètre de masse. Les mesures lidar donnent des concentrations légèrement au-dessus de celles obtenues avec les instruments in situ.

En conclusion, le lidar MICLID est le premier lidar, à notre connaissance, réalisé pour la mesure à distance de CWA, et testé en conditions quasi réelles sur du gaz sarin et du gaz moutarde. L'instrument est capable de mesurer des concentrations de l'ordre de la centaine de mg/m<sup>3</sup>. Cependant, la mesure lidar souffre de biais et d'instabilité de biais, causés principalement par des dépointés de faisceau en fonction du temps, de la longueur d'onde, et du profil spatial du faisceau d'émission. Ces erreurs sont en cours d'analyse par les membres de l'équipe. L'énergie du faisceau bande III est de 300 µJ, ce qui permet d'effectuer des mesures IP-DIAL à une distance de 200 mètres avec un rapport signal à bruit excellent. Plusieurs améliorations du système sont toutefois nécessaires afin d'effectuer des mesures RR-DIAL. Notamment, l'énergie peut être augmentée en utilisant des cristaux de PPKTP et de ZGP plus long dans les étages d'amplification et de conversion. Ceci permettrait d'obtenir une énergie au-delà du millijoule, et ainsi permettre la détection de gaz en configuration RR-DIAL, et réduire les fluctuations tir à tir de l'énergie grâce à une meilleure saturation de l'étage de conversion. De plus, le



profil spatial en champ proche de la pompe peut être amélioré par filtrage spatial dans une cellule sous vide. Enfin, la plage d'accordabilité de l'instrument peut être étendue en intégrant des cristaux de CdSe dans l'étage de conversion, car la fenêtre de transparence de CdSe s'étend jusqu'à 23  $\mu\text{m}$ , comme présenté dans les sections 1.3.1 et 3.2. Ainsi, l'ajout de miroirs mobiles afin de compenser le désalignement du faisceau induit par la rotation du cristal est alors nécessaire.

## 4.2 NesCOPO en PPLN de type 0, monomode proche de la dégénérescence et affiné spectralement par réseau de Bragg en volume

Dans ce chapitre, nous présentons un nouveau concept de NesCOPO monofréquence utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0, et un réseau de Bragg en volume comme miroir de la cavité complémentaire. La longueur d'onde d'émission de cet OPO est comprise entre 2,043 et 2,061  $\mu\text{m}$  pour l'onde signal, soit entre 2,20 et 2,22  $\mu\text{m}$  à l'onde complémentaire. Cette plage d'accordabilité en longueur d'onde permet de cibler une raie du  $\text{CO}_2$  située à 2,051  $\mu\text{m}$ , ainsi qu'une raie de l'eau située à 2,055  $\mu\text{m}$ . Dans un premier temps, nous verrons les différentes étapes de la conception de ce NesCOPO. Puis, nous effectuerons des mesures préliminaires afin de caractériser le réseau de Bragg en volume. Enfin, nous comparerons les résultats obtenus entre un NesCOPO classique utilisant un coupleur à l'onde complémentaire, appelé NesCOPO de référence, et le NesCOPO utilisant un réseau de Bragg en volume, appelé NesCOPO-VBG.

### 4.2.1 Motivations

Les réseaux de Bragg en volume (VBG) sont des filtres spectraux et angulaires parfaits dont les propriétés peuvent être ajustées selon l'application souhaitée. L'angle d'incidence, la longueur d'onde centrale, et la sélectivité spectrale et angulaire peuvent être choisis en faisant varier l'épaisseur du réseau, la période de modulation de l'indice de réfraction, et l'orientation du vecteur de réseau. Les réseaux de Bragg en volume peuvent être inscrits dans différents matériaux comme les cristaux photoréfractifs [187], les photopolymères [188], ou les verres photosensibles inorganiques. Le plus prometteur à l'heure actuelle est le verre photo-thermo-réfractif, aussi appelé PTR, qui est un verre en silice dopé argent, cérium, ou fluorine [189]. Le lecteur peut se reporter aux références 190–192 pour une modélisation détaillée de l'interaction de faisceaux gaussiens sur un réseau de Bragg en volume dans le PTR.

Les VBG sont utilisés comme éléments intra cavité dans les lasers [193], comme stabilisateurs de longueur d'onde [194, 195], pour la combinaison spectrale de faisceaux laser [196, 197], ou encore pour l'étirement et la compression d'impulsions dans des chaînes d'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence [198]. De même que pour les lasers, les VBG peuvent aussi être utilisés afin d'affiner le spectre d'émission d'un OPO [199–203]. Dans une de leurs publications, Henriksson et al. [201] utilisent différents réseaux de Bragg en volume comme coupleurs de sortie d'une cavité OPO simplement résonnante. Cet OPO fonctionne proche de la dégénérescence de l'onde de pompe à l'aide

d'un cristal de KTP fonctionnant en quasi-accord de phase de type I. Dans une de leurs configurations, l'écart entre la longueur d'onde signal et complémentaire est de 13 nm. Le spectre d'émission est multimode, et présente plusieurs modes longitudinaux espacés d'environ 6 GHz dans la sélectivité du VBG, qui est de 33 GHz. Cette source est ensuite utilisée pour le pompage d'un OPO moyen infrarouge simplement résonnant utilisant un cristal de ZGP [204]. Très récemment Coetzee et al. [203] ont réalisé un OPO simplement résonnant pompé à  $1,064 \mu\text{m}$ , en utilisant un cristal de PPRTKP, ainsi qu'un VBG chirpé transversalement comme coupleur de sortie. La longueur d'émission est accordable entre  $2,216$  et  $2,141 \mu\text{m}$  autour de la dégénérescence, et la largeur spectrale des ondes signal et complémentaire est de 0,56 nm. Bien que les auteurs ne donnent pas d'information à ce sujet, leur source est très certainement multimode.

Nous avons déjà rappelé l'importance de disposer d'un rayonnement fin spectralement, voire monofréquence, autour de  $2 \mu\text{m}$ , soit pour des mesures lidar sur des espèces comme le  $\text{CO}_2$ , soit en tant qu'étage intermédiaire d'une source émettant en bande III. Dans la section 4.1, l'oscillateur à  $2 \mu\text{m}$  est composé de miroirs concaves classiques et d'un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type II, mais dont le seuil d'oscillation est élevé, car le coefficient non linéaire  $d_{14}$  du niobate de lithium mis en jeu dans ce processus est faible. L'idée ici consiste à utiliser un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0, afin de bénéficier du fort coefficient non linéaire  $d_{33}$ . Cependant, dans ce type d'OPO, pompé à  $1 \mu\text{m}$  et fonctionnant proche de la dégénérescence autour de  $2 \mu\text{m}$ , la bande de gain est très large, typiquement de l'ordre du térahertz, ce qui rend l'émission en cavité simplement résonnante multimode, et la sélection de mode par effet Vernier impossible en cavité doublement résonnante. La solution qui est proposée afin de rendre le spectre d'émission d'un tel OPO monofréquence, consiste à remplacer un des miroirs d'une cavité NesCOPO classique, par un réseau de Bragg en volume qui agira comme filtre spectral sur les modes de la cavité, comme présenté dans la FIGURE 4.23. De plus, pour

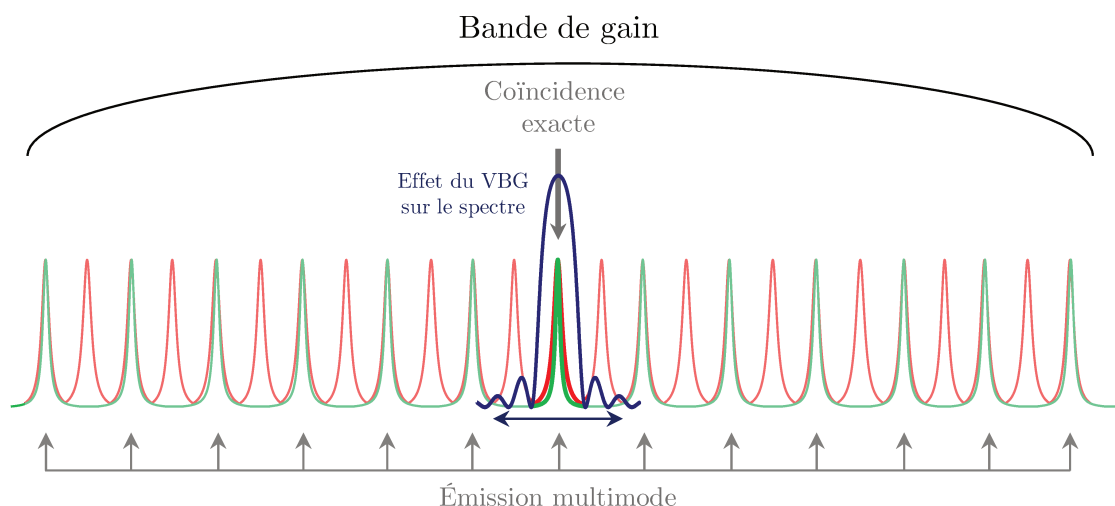


FIGURE 4.23 – Principe de la sélection spectrale du VBG sur l'émission d'un NesCOPO multimode longitudinal utilisant un cristal de PPLN en quasi-accord de phase de type 0.

rendre l'OPO accordable en longueur d'onde, le VBG devra posséder un chirp transverse

permettant de sélectionner la longueur d'onde d'émission selon sa position, comme réalisé dans les références 202 et 203.

## 4.2.2 Dimensionnement du NesCOPO de référence

La cavité optique de référence est un NesCOPO utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0. Le cristal fait 4,2 mm de long pour une période de retournement de 32,03  $\mu\text{m}$ . La courbe d'accord de phase théorique de ce cristal est présentée dans la FIGURE 4.24. Le miroir  $M_2$  est déposé directement sur la face d'entrée

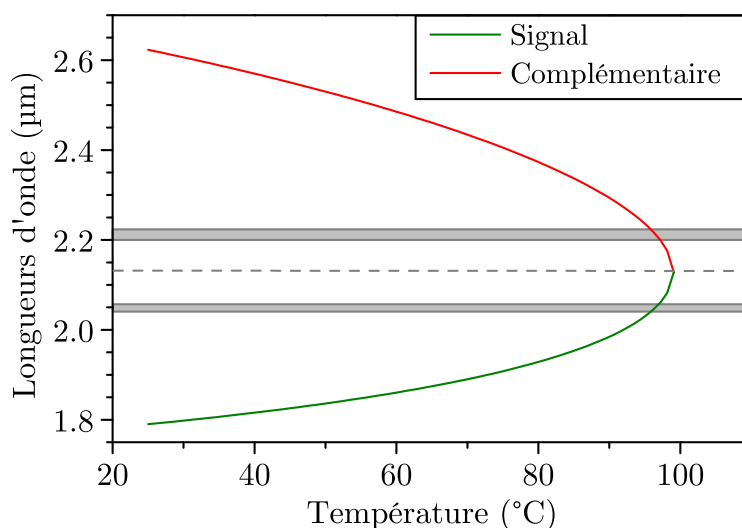


FIGURE 4.24 – Courbe de quasi-accord de phase de type 0 du cristal de PPLN pompé à 1,064  $\mu\text{m}$ , et calculée à partir des relations de Sellmeier établies par Gayer et al. [50] pour une période de retournement de 32,03  $\mu\text{m}$ . Les bandes grises correspondent aux longueurs d'onde ciblées pour le fonctionnement du NesCOPO-VBG, et la ligne pointillée à la longueur d'onde de dégénérescence de la pompe.

du cristal et réfléchit 99,5 % à l'onde signal. La face de sortie est traitée antireflets et polie avec un angle de 0,7° afin de contrôler la phase relative des ondes au retour, après réflexion sur  $M_3$ . Le schéma de la cavité est présenté dans la FIGURE 4.25. Le miroir  $M_1$  est un miroir concave dont le rayon de courbure vaut 500 mm, afin de simuler la planéité du VBG, et réfléchit 90 % de l'onde complémentaire. Le miroir  $M_3$  est un miroir doré concave qui réfléchit 99 % de toutes les ondes, et dont le rayon de courbure vaut 50 mm.

La bande de gain théorique en double passage est donnée dans la FIGURE 4.26. La largeur à mi-hauteur est de 160 nm autour de 2,21  $\mu\text{m}$  pour l'onde complémentaire, soit 9,8 THz. Les miroirs  $M_1$  et  $M_3$  sont placés à 1 et 2 mm des faces du cristal respectivement. Dans cette configuration, l'intervalle spectral libre de la cavité signal est de 12,36 GHz, et celui de la cavité complémentaire est de 11,3 GHz. Le paramètre de dissociation vaut alors 9 %. À partir de l'équation (1.43), l'écart entre les coïncidences exactes est de 120 GHz, soit 82 coïncidences exactes dans la bande de gain. La sélectivité spectrale du VBG doit donc être au maximum de 100 GHz, afin de pouvoir sélectionner un seul mode d'émission

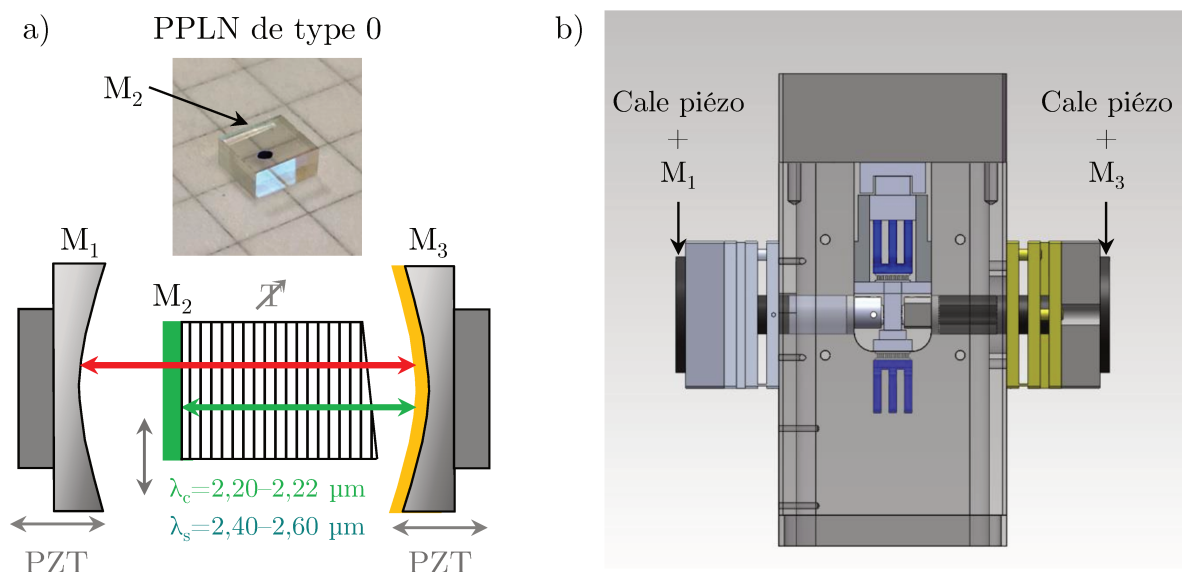


FIGURE 4.25 – a) Haut : cristal de PPLN de type 0 de 4,2 mm de long. Bas : schéma de la cavité OPO ; le miroir  $M_2$  est déposé sur la face d'entrée du cristal de PPLN, tandis que les miroirs  $M_1$  et  $M_3$  sont montés sur des cales piézo-électriques. b) Vue en 3D du NesCOPO de référence réalisée avec le logiciel SolidWorks.

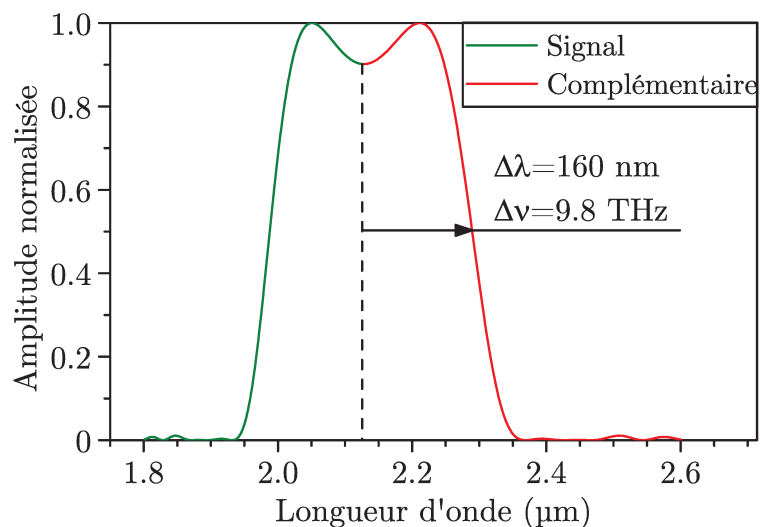


FIGURE 4.26 – Bande de gain théorique en fonction de la longueur d'onde calculée pour une phase relative entre les trois ondes nulle dans le cas du NesCOPO de référence, et pour un cristal de PPLN 4,2 mm de long.

du NesCOPO. L'intégrale de recouvrement entre les modes, en supposant une bande de gain large de 100 GHz, est donnée dans la FIGURE 4.27. Ainsi, en remplaçant le coupleur

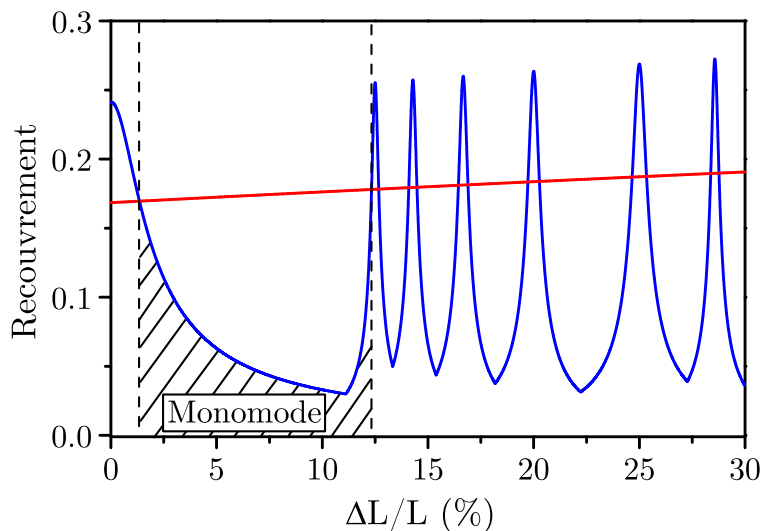


FIGURE 4.27 – Intégrale de recouvrement maximale entre les modes signal et complémentaire en fonction du paramètre de dissociation pour une bande de gain de 100 GHz de large. La ligne rouge correspond au recouvrement au-delà duquel il y a oscillation des modes voisins pour un taux de pompage de 2. Le lecteur peut se référer à la section 1.2.3 pour une explication détaillée de ce type de diagramme.

de sortie par un VBG réfléchissant aussi 90 % de l'onde complémentaire, il est possible d'obtenir un fonctionnement monofréquence pour une valeur du paramètre de dissociation comprise entre 1 % et 12 %. Dans la section suivante, nous verrons comment concevoir un VBG répondant à ce critère.

### 4.2.3 Choix du réseau de Bragg en volume

#### Éléments de théorie

Comme expliqué dans le paragraphe précédent, le miroir  $M_1$  de la cavité NesCOPO de référence est remplacé par un réseau de Bragg en volume utilisé en réflexion, et chirpé transversalement, ceci afin de faire varier la longueur d'onde centrale réfléchi par le VBG. Un réseau de Bragg en volume est un matériau dont l'indice de réfraction est modulé de façon sinusoïdale à une fréquence spatiale  $f$ . L'orientation du réseau par rapport à la surface d'incidence permet de déterminer si le VBG fonctionne en transmission ou en réflexion. Dans le cas d'un VBG fonctionnant en réflexion, et en incidence normale, le réseau est inscrit parallèlement à la surface d'incidence, comme présenté dans la FIGURE 4.28. La condition de diffraction de Bragg s'écrit alors :

$$\frac{\lambda_0 f}{2n_{av}} = \cos(\theta_m = 0) = 1 \Rightarrow f = \frac{2n_{av}}{\lambda_0}, \quad (4.1)$$

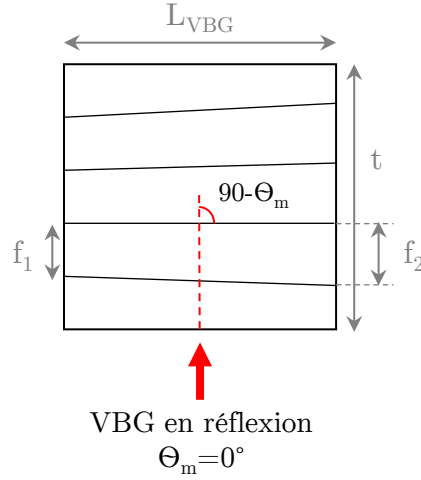


FIGURE 4.28 – Schéma d'un VBG chirpé transversalement, fonctionnant en réflexion, et dont le réseau est inscrit parallèlement à la surface d'incidence.  $f_1$  et  $f_2$ , correspondent aux périodes de modulation de l'indice de réfraction aux extrémités du chirp,  $t$  à l'épaisseur du VBG, et  $L_{\text{VBG}}$  à sa largeur.

où  $n_{\text{av}}$  est l'indice moyen du matériau, et  $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau considéré. L'efficacité de diffraction du réseau de Bragg en volume, qui est l'équivalent de la réflectivité d'un miroir classique, est définie par l'équation suivante [190] :

$$\eta = \left( 1 + \frac{1 - \xi^2/\Phi^2}{\sinh^2 \sqrt{\Phi^2 - \xi^2}} \right)^{-1}. \quad (4.2)$$

L'incursion de phase  $\Phi$  est le paramètre qui détermine le maximum d'efficacité de diffraction du VBG lorsque la condition de Bragg est remplie. L'incursion de phase, pour un réseau parallèle à la surface d'incidence, est définie par :

$$\Phi = \frac{\pi t \delta n}{\lambda}, \quad (4.3)$$

où  $t$  est l'épaisseur du VBG, et  $\delta n$  est la profondeur de modulation de l'indice.  $\xi$  est le paramètre de déphasage qui décrit l'écart à la condition de Bragg. Il est défini de la façon suivante :

$$\xi = \frac{\pi f t \Delta \lambda}{\lambda}, \quad (4.4)$$

où  $\Delta \lambda$  est l'écart en longueur d'onde.

### Faisabilité du VBG

Nous avons vu dans la section précédente qu'il était nécessaire de concevoir un VBG dont la sélectivité spectrale est au maximum de 100 GHz, afin de pouvoir sélectionner une seule coïncidence exacte émise par le NesCOPO. À cela, d'autres spécifications viennent s'ajouter. Dans un premier temps, l'efficacité maximale de diffraction doit être comprise

entre 80 % et 90 %, afin de réaliser un coupleur de sortie à l'onde complémentaire. Puis, compte tenu du seuil d'oscillation du NesCOPO et de l'énergie disponible en sortie du laser, le rayon au col du faisceau à  $1/e^2$  doit être compris entre 80 et 150  $\mu\text{m}$ , pour : i) ne pas dépasser le seuil de dommage du cristal de PPLN ; et ii) avoir une marge suffisante entre le seuil d'oscillation et l'énergie maximale délivrée par le laser. Ceci implique deux contraintes majeures sur la conception du VBG : i) la sélectivité angulaire du VBG doit être suffisamment grande devant la divergence du faisceau ; et ii) pour une longueur d'onde donnée, l'efficacité de diffraction maximale doit être la même, à quelques pourcents près, entre les bords et le centre du faisceau. En effet, comme le VBG est chirpé transversalement, la sélectivité du VBG doit être suffisamment grande devant la taille du faisceau, afin d'éviter toute chute d'efficacité de diffraction entre les extrémités du faisceau. De plus, la taille du VBG est aussi restreinte par le fournisseur (Optigrate). Son épaisseur doit être comprise entre 2 et 3 mm, et sa largeur ne doit pas excéder 20 mm. Afin de vérifier que toutes ces conditions sont remplies simultanément, il est nécessaire de calculer l'efficacité de diffraction du VBG en fonction de plusieurs paramètres : la profondeur de modulation, la sélectivité spectrale, la sélectivité angulaire, et l'épaisseur.

### Efficacité maximale de diffraction du VBG

Le premier paramètre à prendre en compte est l'efficacité maximale de diffraction, qui doit être comprise entre 80 % et 90 % pour un coupleur de NesCOPO. Pour cela nous traçons l'efficacité maximale de diffraction en fonction de l'épaisseur  $t$  du VBG et de la profondeur de modulation d'indice de réfraction du milieu  $\delta n$ , comme présenté dans la FIGURE 4.29. Le dégradé de couleur correspond à une efficacité de diffraction maximale

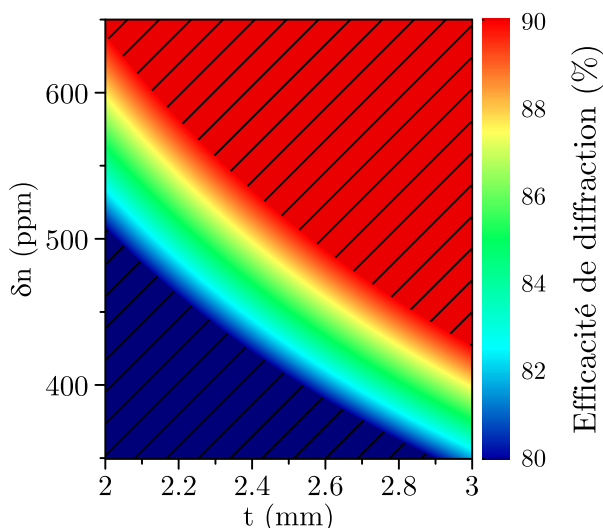


FIGURE 4.29 – Efficacité maximale de diffraction en fausse couleur, en fonction de l'épaisseur du VBG et de la profondeur de modulation de l'indice de réfraction du matériau. Les zones hachurées correspondent à une efficacité maximale située en dehors de plage acceptable.

comprise entre 80 % et 90 %. Ainsi, pour un VBG dont l'épaisseur est comprise entre 2 et



3 mm, la profondeur de modulation doit se trouver obligatoirement entre 350 et 650 ppm, pour une longueur d'onde centrale de 2,21  $\mu\text{m}$ .

### Sélectivité spectrale du VBG

L'étape suivante consiste à vérifier que la sélectivité spectrale du VBG est inférieure à 100 GHz. Pour cela, il faut s'intéresser à la largeur à mi-hauteur de l'efficacité de diffraction. La FIGURE 4.30 a) présente la largeur à mi-hauteur de l'efficacité de diffraction en GHz en fonction de l'épaisseur du VBG et de la profondeur de modulation, calculée numériquement à partir de la relation (4.2). Quelle que soit la profondeur de modulation

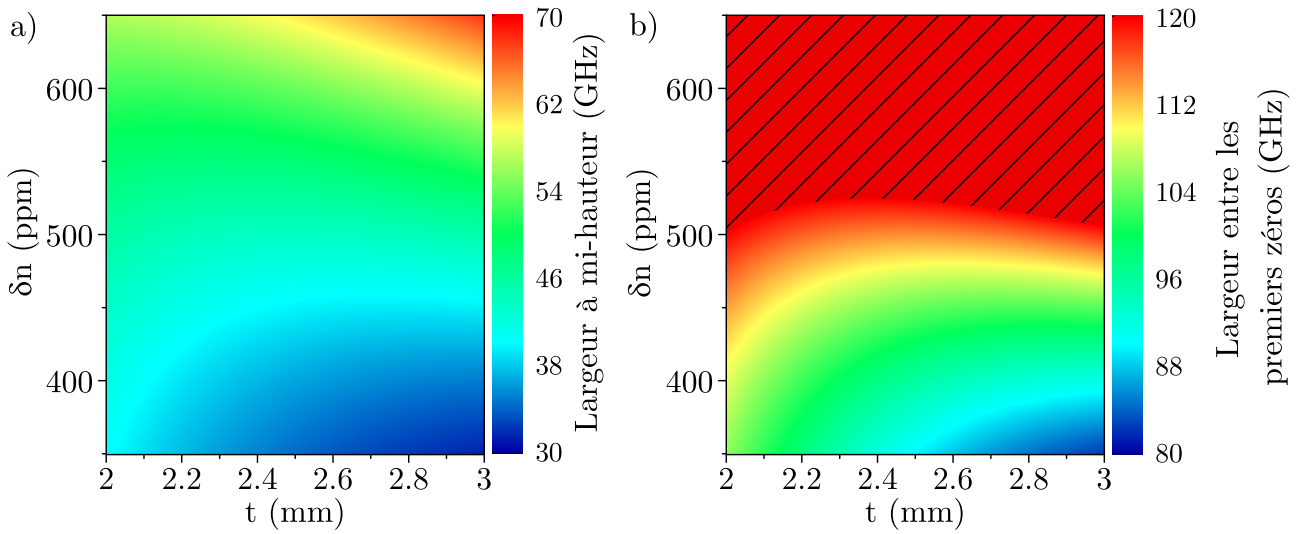


FIGURE 4.30 – Largeur spectrale à mi-hauteur (a)), et largeur spectrale entre les premiers zéros (b)) de l'efficacité de diffraction en fonction de l'épaisseur du VBG et de la profondeur de modulation. La zone hachurée correspond à une largeur spectrale supérieure à 120 GHz.

choisie, la largeur à mi-hauteur de l'efficacité de diffraction reste toujours inférieure à 70 GHz pour des épaisseurs comprises entre 2 et 3 mm. Cependant, afin de s'assurer qu'un seul mode puisse osciller, il est important que la largeur entre les premiers zéros de l'efficacité de diffraction soit inférieure à l'écart entre deux coïncidences exactes, soit 120 GHz. La largeur entre les premiers zéros de la fonction est donnée par la relation suivante [190] :

$$\Delta\nu^{\text{FWFZ}} = \frac{2c}{\pi ft\lambda} \sqrt{A \tanh^2(\sqrt{\eta_{\text{max}}}) + \pi^2}, \quad (4.5)$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière, et  $\eta_{\text{max}}$  correspond au maximum d'efficacité de diffraction. Ainsi, comme indiqué sur la FIGURE 4.30 b), seules les profondeurs de modulation situées en dessous de 500 ppm sont acceptables. En comparant cette valeur avec celles obtenues grâce à la FIGURE 4.29, il vient que l'épaisseur du VBG doit être supérieure à 2,2 mm pour obtenir une efficacité de diffraction moyenne de 85 %.



### Sélectivité angulaire du VBG

La dernière étape consiste à vérifier que la sélectivité angulaire du VBG est supérieure à la divergence du faisceau complémentaire. La sélectivité angulaire est donnée par la relation suivante [190] :

$$\Delta\theta^{\text{FWFZ}} = 2\sqrt{\frac{2\sqrt{A}\tanh^2(\sqrt{\eta_{\text{max}}}) + \pi^2}{\pi ft}}. \quad (4.6)$$

Pour un faisceau dont le rayon au col à  $1/e^2$  est au minimum de  $80 \mu\text{m}$ , l'angle total de divergence est au maximum de 18 mrad. La FIGURE 4.31 présente la largeur angulaire entre les premiers zéros de l'efficacité de diffraction en fonction de l'épaisseur du VBG et de la profondeur de modulation. Ainsi, quelles que soient l'épaisseur et la profondeur de

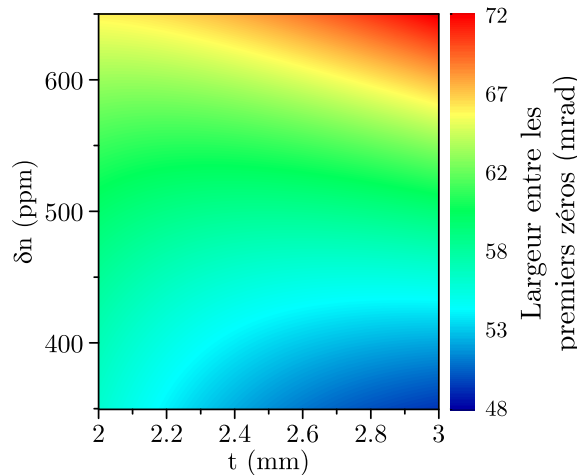


FIGURE 4.31 – Largeur angulaire entre les premiers zéros de l'efficacité de diffraction en fonction de l'épaisseur du VBG et de la profondeur de modulation.

modulation, la sélectivité angulaire du VBG sera toujours supérieure à la divergence du faisceau.

### Choix des paramètres du VBG

En conclusion, la profondeur de modulation d'indice doit être comprise entre 350 et 500 ppm, et l'épaisseur entre 2,2 et 3 mm pour que : i) l'efficacité de diffraction soit comprise entre 80 et 90 %, et ii) la pleine largeur spectrale entre les premiers zéros de l'efficacité de diffraction soit inférieure à 120 GHz. Dans le cadre de cette expérience, notre choix s'est porté sur un VBG de 2,5 mm d'épaisseur, avec une profondeur de modulation de 450 ppm. L'efficacité de diffraction d'un tel VBG, pour une longueur d'onde centrale de  $2,21 \mu\text{m}$ , est présentée dans la FIGURE 4.32 en fonction de : a) la longueur d'onde, et b) l'écart à l'angle d'incidence. La largeur spectrale entre les premiers zéros de l'efficacité de diffraction est de 75 GHz, tandis que la largeur spectrale à mi-hauteur est de 58 GHz. La largeur angulaire entre les premiers zéros de la fonction est de 50 mrad.

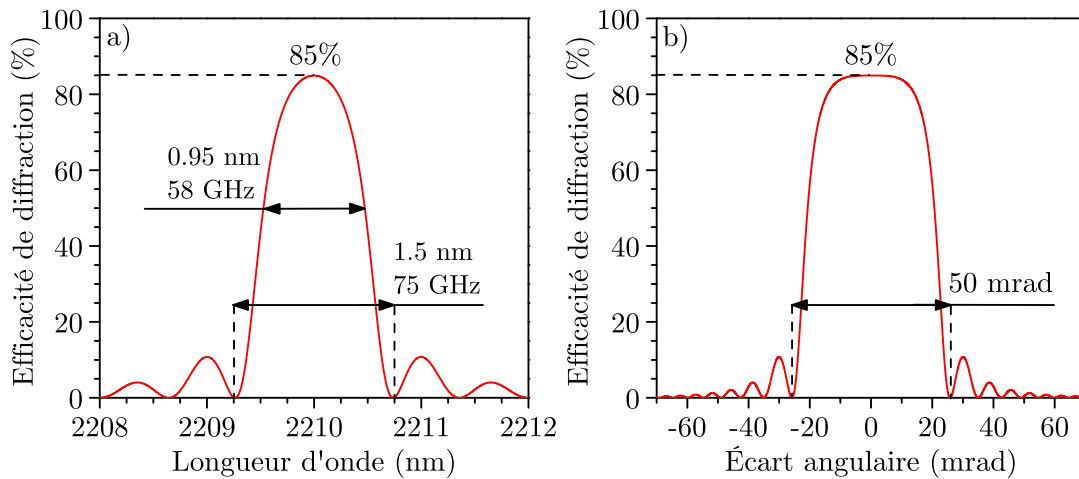


FIGURE 4.32 – Efficacité de diffraction pour un VBG de 2,5 mm d'épaisseur, avec une profondeur de modulation de 450 ppm, et une longueur d'onde centrale de 2,21  $\mu\text{m}$ , en fonction de : a) la longueur d'onde, et b) l'écart par rapport à l'angle d'incidence.

### Contraintes imposées par le chirp transverse

Une fois les paramètres du VBG fixés, il est nécessaire de choisir la largeur du VBG le long du chirp. En effet, comme expliqué précédemment, la largeur du VBG va impacter directement l'efficacité de diffraction « ressentie » par l'onde au centre et aux bords du faisceau. L'efficacité de diffraction obtenue au centre du faisceau et à une extrémité, pour un faisceau dont le rayon maximal au col à  $1/e^2$  de 150  $\mu\text{m}$ , est présentée dans la FIGURE 4.33 pour deux largeurs de VBG. En connaissant la largeur et la plage d'accordabilité du VBG, il est possible de calculer la longueur d'onde « vue » par l'extrémité du faisceau, et ainsi tracer son efficacité de diffraction. L'écart en efficacité de diffraction est obtenu en calculant la différence d'efficacité de diffraction à la longueur d'onde centrale entre le centre du faisceau et une extrémité. Pour une longueur d'onde centrale de 2,21  $\mu\text{m}$  et une plage d'accordabilité totale de 20 nm, l'écart en efficacité de diffraction obtenue entre le centre du faisceau et une extrémité est de 18 %, dans le cas d'un VBG de 10 mm de large (FIGURE 4.33 a)). Cet écart semble trop grand pour des applications pratiques. Dans l'exemple de la FIGURE 4.33 b), où la largeur du VBG est de 20 mm, l'écart en efficacité de diffraction est de 3,3 %. En pratique, le VBG commandé chez le fournisseur possède une largeur de 19 mm, et le rayon au col du faisceau à  $1/e^2$  est limité à 115  $\mu\text{m}$  par les optiques disponibles en laboratoire. Ainsi, l'écart en efficacité de diffraction calculé est de 2,1 %.

### Caractéristiques finales du VBG

Après avoir vérifié la faisabilité d'un tel VBG, nous avons ensuite spécifié au fournisseur plusieurs paramètres qui sont répertoriés dans la deuxième colonne du TABLEAU 4.2. Les caractéristiques finales du VBG mesurées par le fabricant sont présentées dans la troisième colonne. Il s'agit du premier VBG chirpé transversalement réalisé par OptigGrate à 2  $\mu\text{m}$ .

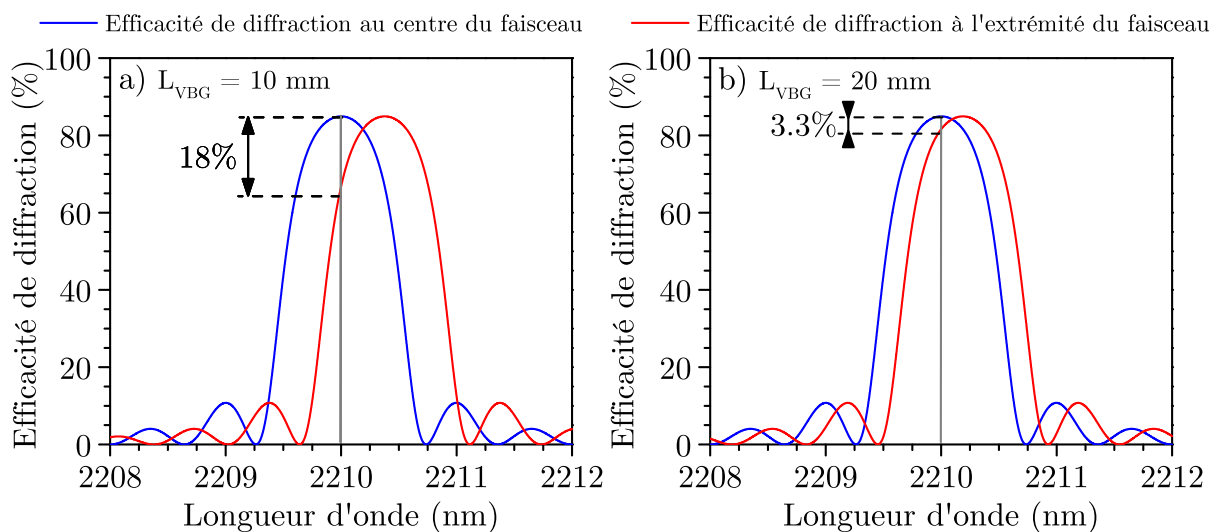


FIGURE 4.33 – Écart en efficacité de diffraction pour un faisceau dont le rayon au col à  $1/e^2$  est de  $150 \mu\text{m}$ , pour un VBG de  $2,5 \text{ mm}$  d'épaisseur, une longueur d'onde centrale de  $2,21 \mu\text{m}$ , une profondeur de modulation de  $450 \text{ ppm}$ , et a) une largeur de  $10 \text{ mm}$ , pour un taux de chirp de  $2 \text{ nm/mm}$ , ou b) une largeur de  $20 \text{ mm}$ , pour un taux de chirp de  $1 \text{ nm/mm}$ .

Critère	Paramètres demandés au fournisseur	Valeurs certifiées par le fournisseur
Épaisseur ( $t$ )	–	$2,5 \text{ mm}$
Largeur	$20 \text{ mm}$	$19 \text{ mm}$
Efficacité de diffraction ( $\eta$ )	$60\text{-}95 \%$	$84 \%$
Largeur spectrale à mi-hauteur	$0,5\text{-}2 \text{ nm}$ ( $40\text{-}120 \text{ GHz}$ )	$1 \text{ nm}$ ( $60 \text{ GHz}$ )
Longueur d'onde centrale ( $\lambda_0$ )	$2210 \text{ nm}$	$2210,5 \text{ nm}$
Plage d'accordabilité	$2200\text{-}2220 \text{ nm}$	$2201\text{-}2222 \text{ nm}$
Taux de chirp	$1 \text{ nm/mm}$	$1,1 \text{ nm/mm}$
Traitement	AR $1,064 \text{ \& } 2\text{-}2,2 \mu\text{m}$	$R(1,064 \mu\text{m}) < 1 \%$ $R(2\text{-}2,2 \mu\text{m}) < 0,5 \%$

TABLEAU 4.2 – Récapitulatif des spécifications demandées concernant le VBG avec chirp transverse (colonne 2) et mesurées par Optigrate (colonne 3). La plage d'accordabilité et les dimensions finales du VBG sont cohérentes avec les valeurs certifiées par le fournisseur.

#### 4.2.4 Mise en forme du faisceau de pompe

Le laser de pompe est un laser monofréquence en Nd:YAG (Mephisto, Innolight) pompé diode émettant à  $1,064 \mu\text{m}$  qui délivre des impulsions de  $13,5 \text{ ns}$  à une fréquence de répétition de  $10,55 \text{ kHz}$  pour une énergie maximale de  $30 \mu\text{J}$ . Les profils, temporel et spatial, de l'onde de pompe sont présentés dans la FIGURE 4.34 a). Un isolateur est placé

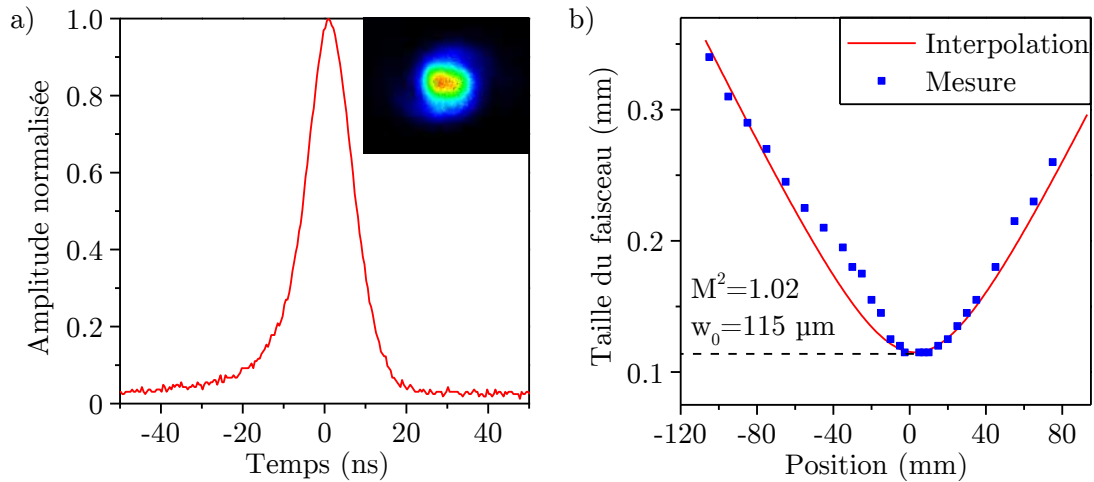


FIGURE 4.34 – a) Profil temporel de la pompe. Insert : profil spatial de la pompe. b) Caustique du faisceau de pompe mesurée près du col du faisceau.

sur le trajet du faisceau afin d'éviter tout risque de retour dans la cavité laser. Deux lames demi-onde sont placées avant et après l'isolateur afin d'ajuster la puissance de pompe et la direction de polarisation. Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille de  $300 \text{ mm}$  de distance focale. La caustique du faisceau de pompe est mesurée par la méthode dite du « couteau », et est présentée dans la FIGURE 4.34 b). Le rayon au col du faisceau à  $1/e^2$  est mesuré à  $115 \mu\text{m}$  et le facteur de qualité  $M^2$  est estimé à  $1,02$ .

La stabilité en fréquence de l'onde de pompe est mesurée à l'aide d'un lambdamètre (WSU, High Finesse). La résolution de l'instrument est de  $1 \text{ MHz}$ , pour une précision de  $10 \text{ MHz}$  avec une fibre monomode. La FIGURE 4.35 présente les résultats obtenus. La stabilité en fréquence de la source de pompe est de  $6 \text{ MHz}$  crête à crête sur  $15 \text{ minutes}$ , et de  $2,5 \text{ MHz}$  crête à crête sur  $1 \text{ minute}$ , comme présenté dans l'insert.

#### 4.2.5 Caractérisation du VBG à l'aide d'un OPO simplement résonant

L'objectif de cette expérience préliminaire est de caractériser le fonctionnement du VBG en termes d'affinement spectral et d'accordabilité en longueur d'onde en utilisant un OPO simplement résonnant à l'onde complémentaire. Le cristal utilisé est un cristal de PPLN de  $20 \text{ mm}$  de long fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0. Le schéma du montage est présenté dans la FIGURE 4.36. La période de retournement du cristal est de  $32,2 \mu\text{m}$ . La cavité résonnante est composée du réseau de Bragg en volume présenté

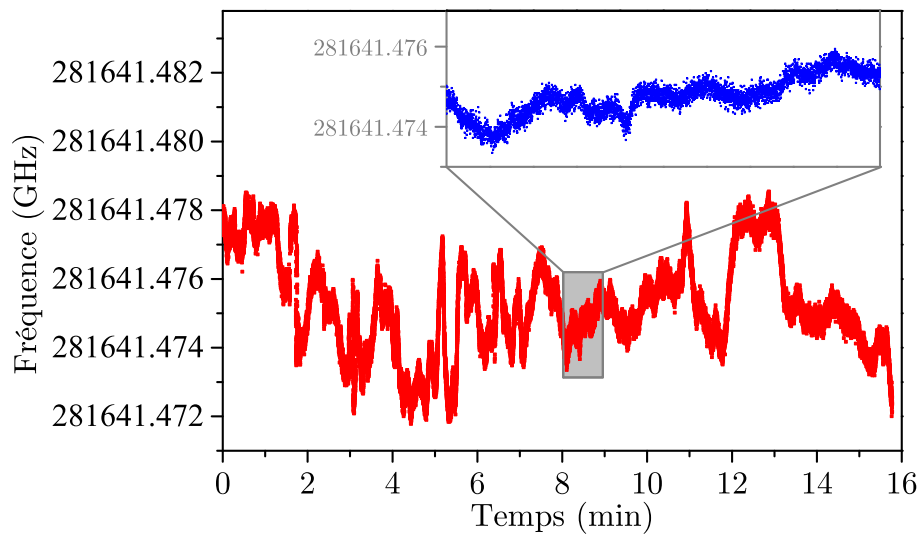


FIGURE 4.35 – Mesure de la stabilité en fréquence de l’onde de pompe sur une durée de 15 minutes. Insert : mesure de la stabilité de l’onde de pompe sur une durée de 1 minute.

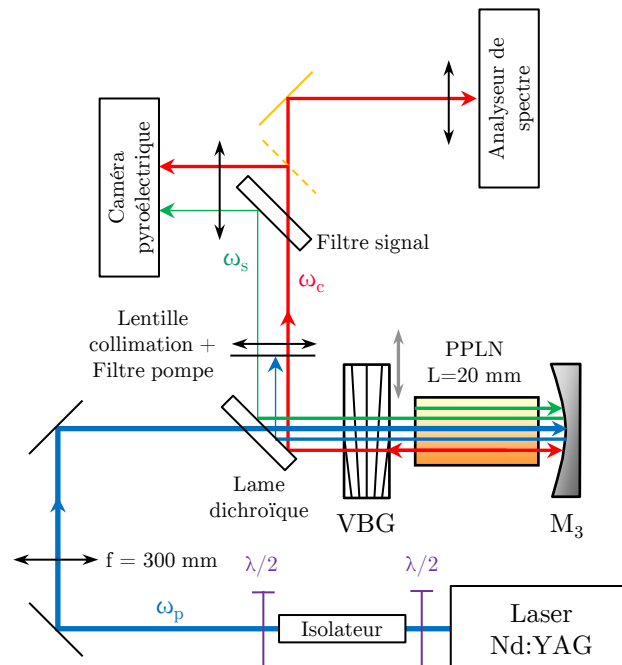


FIGURE 4.36 – Schéma du montage utilisé pour la caractérisation du VBG.

dans la section 4.2.3, et d'un second miroir, de 100 mm de rayon de courbure, et hautement réfléchissant aux ondes de pompe, signal et complémentaire, afin de diminuer le seuil d'oscillation. Le second miroir est appelé  $M_3$  pour des raisons de simplicité, et de cohérence avec le NesCOPO ; et la configuration optique est appelée SROPO-VBG. Les résultats obtenus avec le SROPO-VBG sont comparés à une cavité similaire, où le VBG est remplacé par un miroir de 500 mm de rayon de courbure, et réfléchissant 90% de l'onde complémentaire. L'idéal aurait été de choisir un miroir plan ayant la même réflectivité que le VBG, mais un tel miroir n'était pas disponible au moment de l'expérience. Cette cavité est appelée SROPO de référence dans la suite de cette partie. Le faisceau complémentaire est extrait de la cavité à l'aide d'une lame dichroïque hautement réfléchissante autour de  $2,2 \mu\text{m}$ . Les ondes résiduelles sont filtrées à l'aide d'un filtre passe-haut à  $1,35 \mu\text{m}$  et d'une lame dichroïque hautement réfléchissante à l'onde signal.

Le seuil d'oscillation est de  $13,5 \mu\text{J}$  pour le SROPO-VBG, et de  $17,5 \mu\text{J}$  pour le SROPO de référence. Les caractéristiques entrée-sortie des deux OPO sont présentées dans la FIGURE 4.37 a). Pour une énergie de pompe similaire de  $28 \mu\text{J}$ , l'énergie de sortie

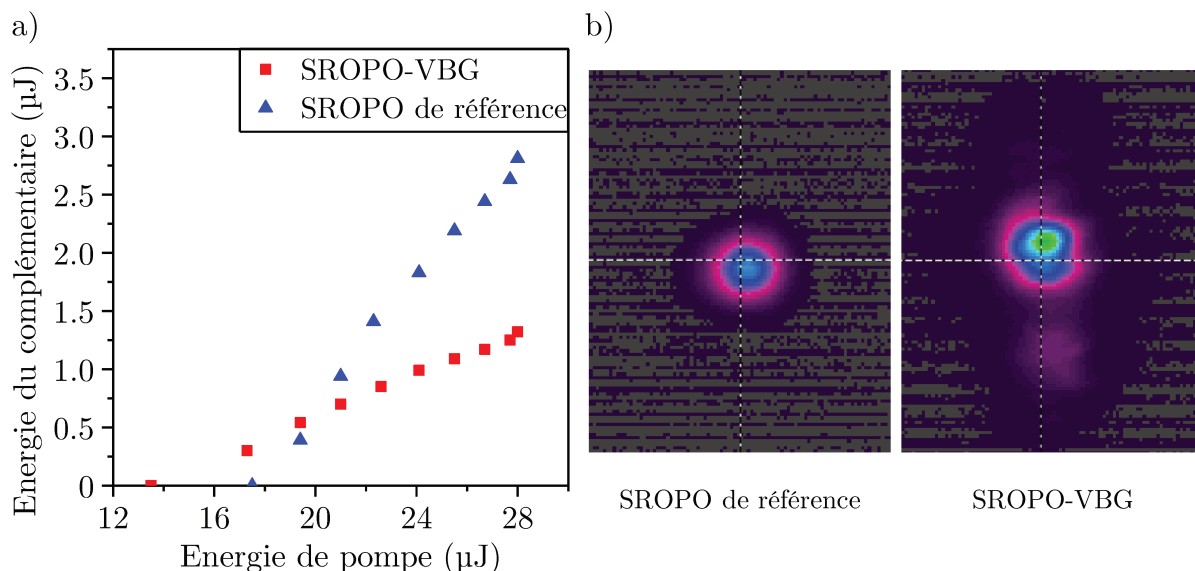


FIGURE 4.37 – a) Caractéristique entrée-sortie pour le SROPO de référence (bleu), et le SROPO-VBG (rouge). b) Profil spatial de l'onde complémentaire pour le SROPO de référence (gauche), et le SROPO-VBG (droite). 1 pixel =  $80 \mu\text{m}$ .

du complémentaire est de  $1,3 \mu\text{J}$  pour le SROPO-VBG et de  $2,8 \mu\text{J}$  pour le SROPO de référence. De plus, le mode spatial du SROPO-VBG est légèrement TEM<sub>01</sub>, contrairement au SROPO de référence qui est TEM<sub>00</sub>, comme le montre la FIGURE 4.37 b).

Le spectre émis par les deux OPO sont obtenus grâce à un analyseur de spectre (Yokogawa) à l'onde complémentaire, l'onde signal étant trop faible pour être détectée. La FIGURE 4.38 présente les spectres obtenus en fonctionnement libre, c'est-à-dire pour des positions de miroirs fixes, pour le SROPO-VBG et le SROPO de référence. Le spectre émis par le SROPO de référence possède une largeur à mi-hauteur d'environ  $80 \text{ nm}$ , soit  $5 \text{ THz}$ . De plus, il présente deux lobes, car les ondes au retour, après réflexion sur  $M_3$ ,

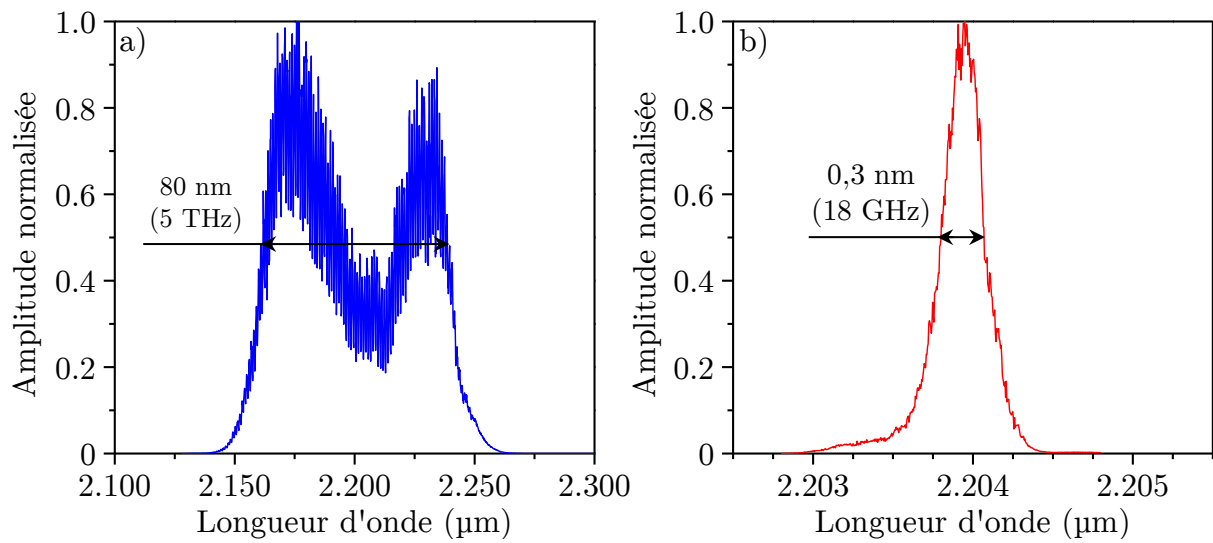


FIGURE 4.38 – Spectre émis en fonctionnement libre par : a) le SROPO de référence, et b) le SROPO-VBG.

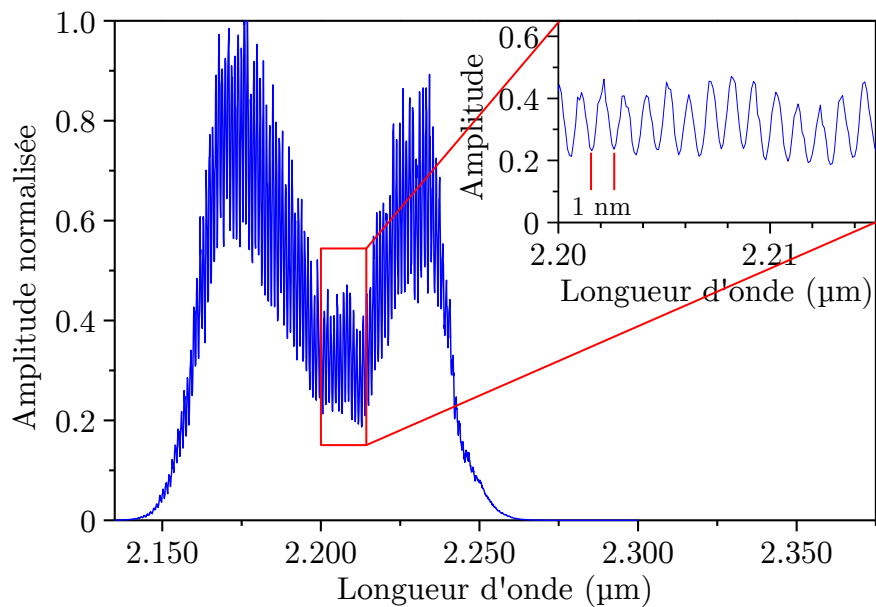


FIGURE 4.39 – Modulations du spectre obtenues en fonctionnement libre pour le SROPO de référence.

sont déphasées de  $\pi$ . Cet effet est visible, car les ondes de pompe et signal sont aussi réfléchies par le miroir  $M_3$ . De plus, la face de sortie du cristal n'est pas polie de façon prismatique, de sorte qu'il n'est pas possible d'ajuster la phase relative des ondes au retour. Les modulations plus fines espacées de 1 nm, indiquées sur la FIGURE 4.39, sont dues à des effets de Fabry-Pérot à l'onde signal entre la face de sortie du cristal et le miroir  $M_3$ . Il est possible de les annuler en désalignant le miroir  $M_3$ , mais cela réduit fortement l'énergie de sortie. En revanche, le spectre émis par le SROPO-VBG possède une largeur à mi-hauteur de 0,3 nm, soit 18 GHz, ce qui donne un affinement du spectre d'un facteur 300.

Afin de pouvoir accorder la longueur d'onde d'émission du faisceau complémentaire, le VBG est chirpé transversalement, comme expliqué dans la section 4.2.3. Le chirp transverse est caractérisé en mesurant le spectre émis pour plusieurs positions du VBG, comme présenté dans la FIGURE 4.40. La longueur d'onde centrale de l'onde complémentaire est

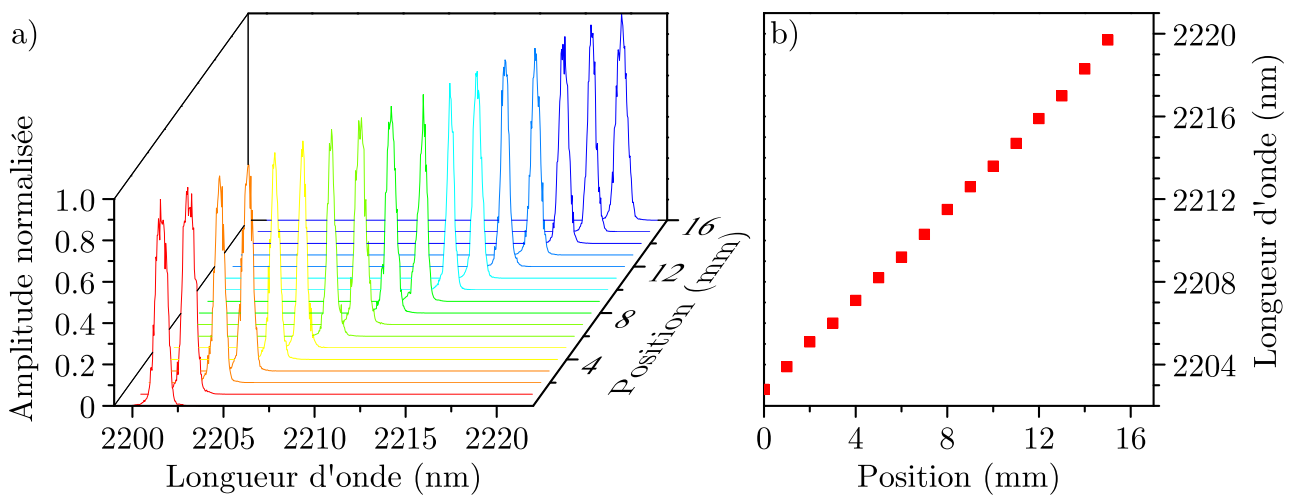


FIGURE 4.40 – a) Spectre émis en fonction de la position transverse du VBG. b) Longueur d'onde centrale d'émission du SROPO-VBG en fonction de la position transverse du VBG.

comprise entre  $2,203 \mu\text{m}$  et  $2,22 \mu\text{m}$ , et le chirp transverse est de  $1,1 \text{ nm/mm}$ , ce qui est très proche des spécifications confirmées par le fournisseur.

#### 4.2.6 Mise en œuvre du NesCOPO-VBG

L'OPO simplement résonnant est ensuite remplacé par la cavité NesCOPO présentée dans la section 4.2.3. Le schéma du montage de la FIGURE 4.41 est similaire à celui de la section précédente. Les mêmes optiques de filtrage, ainsi que les mêmes instruments d'analyse sont utilisés. Comme dans la section précédente, le NesCOPO utilisant le VBG comme miroir  $M_1$  est comparé à un NesCOPO de référence, utilisant un miroir  $M_1$  concave dont le rayon de courbure vaut 500 mm, et réfléchissant 90% de l'onde complémentaire.

Le seuil d'oscillation du NesCOPO de référence est de  $7 \mu\text{J}$ , tandis que le seuil d'oscillation du NesCOPO-VBG est de  $7,7 \mu\text{J}$ . Le profil spatial du faisceau complémentaire est similaire pour chacune des deux cavités, comme présenté dans la FIGURE 4.42 b). Les ca-



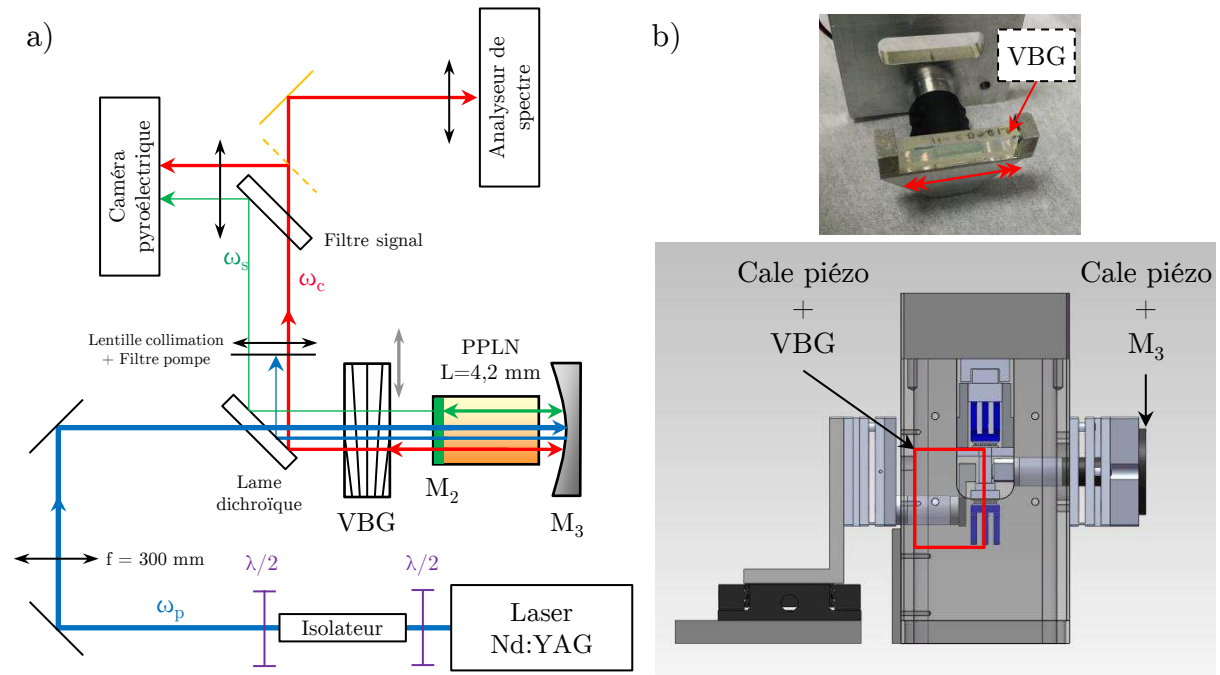


FIGURE 4.41 – a) Schéma du montage utilisé pour la caractérisation du NesCOPO-VBG. b) Image du VBG dans sa monture (haut), et vue en 3D du NesCOPO-VBG réalisée grâce au logiciel SolidWorks (bas).

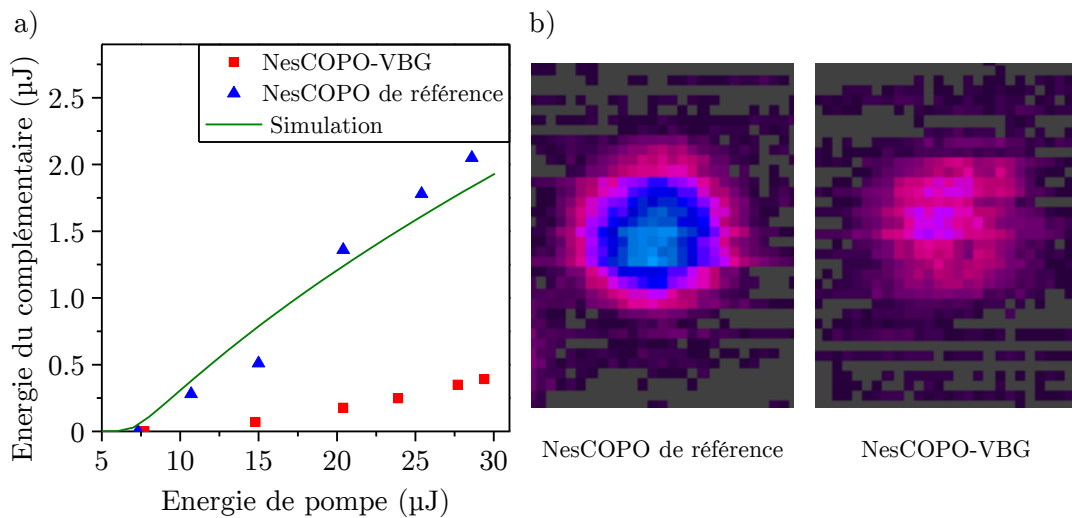


FIGURE 4.42 – a) Caractéristique entrée-sortie obtenue pour le NesCOPO de référence (bleu), le NesCOPO-VBG (rouge), ainsi que la simulation numérique (vert). b) Profil spatial du faisceau complémentaire pour le NesCOPO de référence (gauche), et le NesCOPO-VBG (droite). 1 pixel = 80  $\mu\text{m}$ .

ractéristiques entrée-sortie de ces deux oscillateurs sont présentées dans la FIGURE 4.42 a). Comme indiqué, la caractéristique entrée-sortie obtenue pour le NesCOPO de référence est très proche de la courbe obtenue par simulation numérique (vert). En revanche, bien que le seuil d'oscillation du NesCOPO-VBG soit très proche de celui du NesCOPO de référence, son efficacité de conversion est bien plus faible. Ceci peut s'expliquer par des oscillateurs parasites qui interviennent entre certaines optiques de la cavité. En effet, nous avons observé l'oscillation d'un DROPO parasite couplée à un SROPO parasite à l'onde signal entre les miroirs  $M_2$  et  $M_3$ , ce qui vient perturber à la fois le fonctionnement du NesCOPO de référence et celui du NesCOPO-VBG. Le seuil d'oscillation de ces OPO parasites a été mesuré à  $14 \mu\text{J}$ , sans miroir  $M_1$ .

Le DROPO parasite est particulièrement efficace à la dégénérescence de l'onde de pompe. En effet, le miroir  $M_2$  réfléchit jusqu'à 50 % de l'onde complémentaire à  $2,15 \mu\text{m}$ , ce qui est suffisant pour réaliser un DROPO autour de la dégénérescence (voir FIGURE 4.43). En revanche, le SROPO parasite oscille jusqu'à une longueur d'onde de  $2,4 \mu\text{m}$ . La Fi-

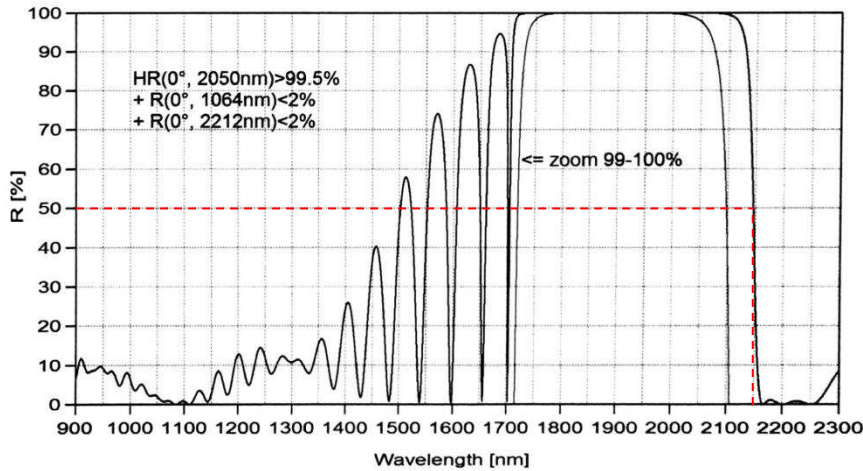


FIGURE 4.43 – Spectre de réflectivité du miroir  $M_2$  déposé sur le cristal de PPLN.

FIGURE 4.44 présente la longueur d'onde centrale d'émission en fonction de la température mesurée pour le DROPO et le SROPO parasite à l'aide d'un spectromètre fibré (Ocean Optics) dont la résolution spectrale est de 7 nm. Le spectre obtenu à l'analyseur de spectre en balayant la cale piézo-électrique du miroir  $M_3$  est présenté dans la FIGURE 4.45.

Afin d'éviter tout effet de ces oscillateurs parasites, nous nous plaçons en dessous de leur seuil d'oscillation. Le spectre obtenu pour le NesCOPO de référence est présenté dans la FIGURE 4.46. La largeur du spectre obtenu est de 45 nm, soit 2,6 THz. En effectuant un zoom à l'analyseur de spectre, des clusters de modes apparaissent, espacés de 1,3 nm, soit 77 GHz. En mesurant les espaces d'air entre les miroirs, il est possible de remonter à l'intervalle spectral libre de la cavité complémentaire, qui vaut  $ISL_c = c/2L_c \simeq 11 \text{ GHz}$ . En utilisant la relation (1.43), il vient que le paramètre de dissociation vaut environ 14 % :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{ISL_c}{ISL_{(s,c)}} \simeq \frac{11 \text{ GHz}}{77 \text{ GHz}} \simeq 14 \%. \quad (4.7)$$

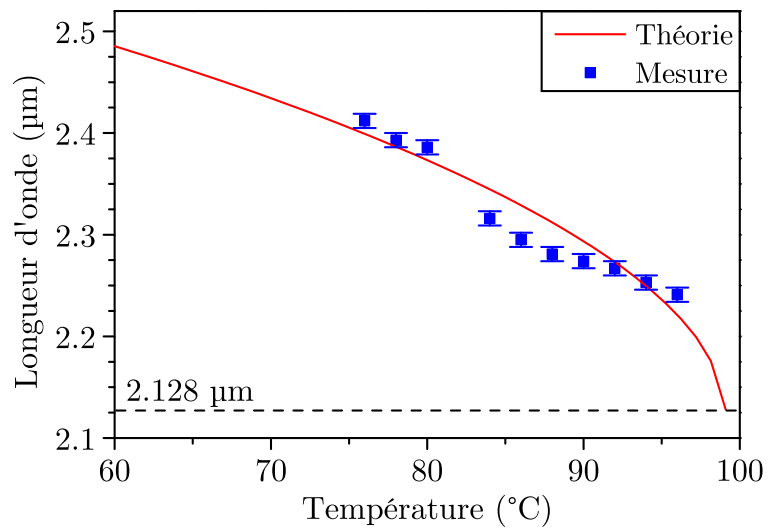


FIGURE 4.44 – Longueur d’onde centrale d’émission des OPO parasites obtenus entre les miroirs  $M_2$  et  $M_3$  en fonction de la température. La courbe en trait plein correspond à la courbe d’accord de phase théorique obtenue à partir des relations de Sellmeier calculées par Gayer et al. [50]. Les points correspondent à la mesure réalisée avec un spectromètre fibré.

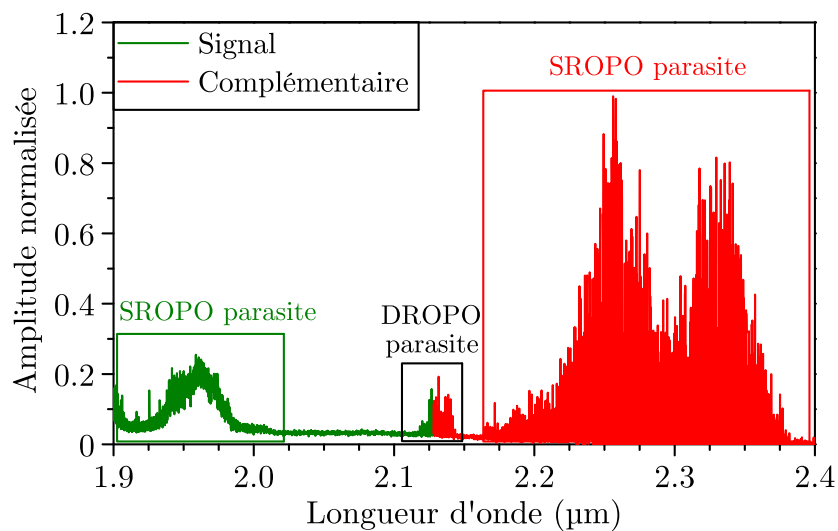


FIGURE 4.45 – Spectre obtenu à l’analyseur de spectre pour les OPO parasites, sans miroir  $M_1$ .

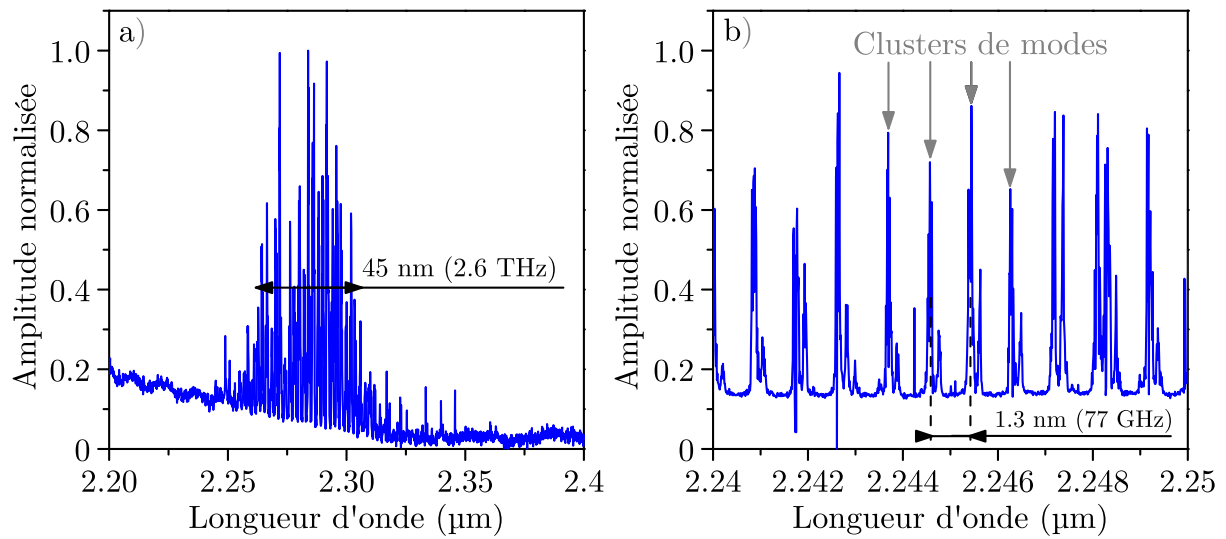


FIGURE 4.46 – a) Spectre obtenu à l'analyseur de spectre pour le NesCOPO de référence. b) Zoom sur les clusters de modes. La pente obtenue dans la ligne de base est propre à l'analyseur de spectre.

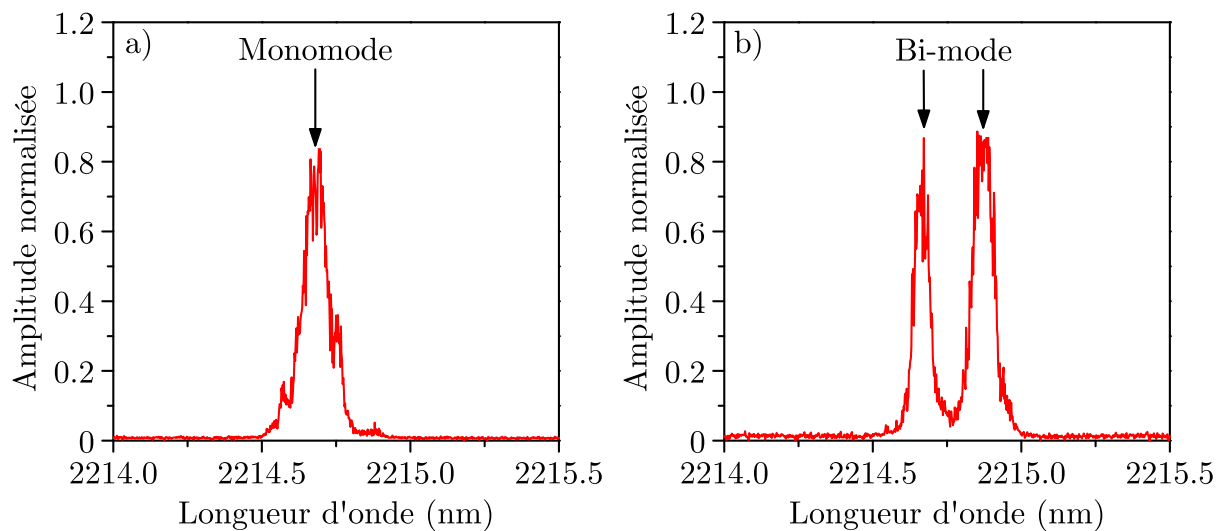


FIGURE 4.47 – Spectres obtenus à l'analyseur de spectre lorsque : a) le NesCOPO-VBG est monomode, et b) le NesCOPO-VBG est multimode.

Le spectre obtenu pour le NesCOPO-VBG est présenté dans la FIGURE 4.47. La largeur de la courbe est limitée par la résolution de l'analyseur de spectre qui est de 3 GHz. En revanche, il est possible de distinguer un fonctionnement monomode longitudinal du NesCOPO-VBG d'un fonctionnement multimode. Sur la FIGURE 4.47 a), un seul « pic » est présent, le NesCOPO est donc monofréquence. En revanche, lorsque le NesCOPO est bimode, deux « pics » apparaissent à l'analyseur de spectre, comme présenté dans la FIGURE 4.47 b). Une analyse plus fine du spectre d'émission, notamment à l'aide d'un Fabry-Perot balayable, est en cours de réalisation.

## Synthèse

En conclusion, nous avons présenté, le premier lidar, à notre connaissance, jamais réalisé pour la mesure à distance d'agents chimiques de guerre, et testé en conditions quasi réelles sur du gaz sarin et du gaz moutarde. Le système optique permet l'émission d'un faisceau énergétique de 1 mJ dans la bande III, entre 7,7 et 10,5  $\mu\text{m}$ . Pour cela, un NesCOPO utilisant un PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type II, et accordable autour de 2  $\mu\text{m}$ , est pompé par un laser monofréquence en Nd:YAG émettant à 1,064  $\mu\text{m}$ . Puis les faisceaux signal et complémentaire émis par le NesCOPO sont amplifiés à une énergie totale de 48 mJ grâce à une chaîne d'amplification paramétrique optique composée de plusieurs cristaux de PPKTP fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0. Puis les faisceaux sont convertis vers la bande III par différence de fréquences dans deux cristaux de ZGP fonctionnant en accord de phase par biréfringence de type II, pour atteindre une énergie maximale de 1 mJ. Le système optique a ensuite été intégré dans un banc lidar dont le système de réception est composé d'un télescope de Newton, d'un détecteur refroidi à l'azote liquide, et d'une carte d'acquisition codée sur 8 bits. Puis, le banc lidar a transporté été au centre d'essais de Vyškov, en République Tchèque, afin d'y réaliser une campagne de mesure en situation quasi réelle. Le faisceau bande III est dirigé à travers une cellule de gaz placée à 40 mètres, vers une cible dure placée à 200 mètres du système. L'énergie du faisceau bande III est limitée à 300  $\mu\text{J}$ , afin de pouvoir effectuer des mesures IP-DIAL sans risque de saturation des détecteurs. Puis, plusieurs concentrations de gaz sarin, ou de gaz moutarde sont disséminées dans la cellule lors de deux sessions de mesures. L'instrument est capable de mesurer des concentrations de l'ordre du  $\text{mg}/\text{m}^3$  en configuration IP-DIAL avec un très bon rapport signal à bruit. Toutefois, plusieurs améliorations du système sont nécessaires afin d'effectuer des mesures RR-DIAL. Notamment, l'énergie de sortie peut être augmentée en utilisant des cristaux de PPKTP et de ZGP plus longs. De plus, la plage d'accordabilité en longueur d'onde de l'instrument peut être agrandie en utilisant des cristaux de CdSe dans l'étage de conversion.

Puis nous avons présenté, dans un second temps, un nouveau concept de NesCOPO utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0, accordable, et rendu monofréquence grâce à un réseau de Bragg de volume chirpé transversalement. Le VBG est utilisé comme miroir  $M_1$  de la cavité complémentaire, et permet d'affiner le spectre d'émission du NesCOPO. La source émet un faisceau complémentaire accordable entre 2,20 et 2,22  $\mu\text{m}$ , grâce au chirp transverse du VBG. Pour cela, nous avons réalisé une étude de faisabilité d'un tel VBG à 2  $\mu\text{m}$ . Puis nous avons mesuré un taux de chirp du VBG de 1,1 nm/mm grâce à un OPO simplement résonnant à l'onde complémentaire, et observé un affinement du spectre d'un facteur 300 par rapport à un SROPO classique. Enfin, nous avons intégré le VBG dans un NesCOPO, et comparé les résultats avec un NesCOPO classique, utilisant un coupleur de réflectivité similaire. Le spectre d'émission en sortie du NesCOPO-VBG est monofréquence. Une analyse plus fine du caractère monomode de la source est en cours de réalisation, notamment grâce à un Fabry-Perot balayable. Ces travaux originaux devraient donner lieu à une publication qui sera prochainement soumise.

# Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse a mis en évidence l'intérêt des sources paramétriques optiques pour la détection d'espèces chimiques à distance, dans la gamme spectrale 6–14  $\mu\text{m}$ , et plus précisément dans la bande III de transparence de l'atmosphère. À travers ces études présentées dans ce manuscrit de thèse, nous avons démontré qu'il était possible de réaliser des sources paramétriques dont le rayonnement est : i) fin spectralement, ii) largement accordable, et iii) dont la puissance crête est suffisamment élevée pour effectuer des mesures lidar.

Le chapitre 1 a été principalement consacré aux éléments de théorie essentiels décrivant les processus non linéaires du second ordre. Après quelques rappels sur l'optique non linéaire, nous avons abordé en détail une architecture d'oscillateur paramétrique optique doublement résonnant à cavités imbriquées, appelé NesCOPO, permettant d'obtenir un rayonnement monofréquence grâce au filtrage par effet Vernier. Puis, nous avons abordé les différents types d'accord de phase qui peuvent être mis en œuvre dans les cristaux non linéaires utilisés lors de cette étude. Pour l'émission de faisceaux à 2  $\mu\text{m}$ , les cristaux périodiquement retournés à base d'oxydes ont été choisis pour leur maturité technologique, et leurs performances dans les oscillateurs et les amplificateurs. Notamment, PPKTP est un cristal particulièrement intéressant de part son seuil de dommage optique élevé, et sa large acceptation spectrale, ce qui en fait un bon candidat comme cristal amplificateur. En revanche, ces cristaux ne peuvent pas être utilisés pour la génération de faisceaux dans la bande III, car leur transparence s'arrête dans l'infrarouge aux environs de 4–5  $\mu\text{m}$ . C'est pour cette raison que nous avons choisi des cristaux de ZGP, CdSe, et OP-GaAs pour l'émission ou la conversion vers la bande III. Notamment, ZGP possède un coefficient non linéaire élevé et une grande ouverture, ce qui en fait un bon candidat pour la conversion de fréquence de faisceaux énergétiques vers la bande III. CdSe, quant à lui, possède une très large fenêtre de transparence, allant jusqu'à 23  $\mu\text{m}$ , ce qui permet d'obtenir des plages d'accordabilité très élevées, pouvant couvrir toute la bande III. Enfin l'OP-GaAs, qui est un cristal orienté périodiquement, possède un coefficient non linéaire très élevé, et permet d'obtenir un faisceau directement accordable dans la bande III, grâce à un pompage à 2  $\mu\text{m}$ . Cependant, sa faible ouverture limite l'énergie de sortie accessible, et restreint son utilisation dans des oscillateurs ou des étage de pré-amplification.

Dans le chapitre 2, nous avons établi les caractéristiques essentielles des sources optiques pour les lidars en bande III. Notamment, la source idéale doit pouvoir : i) être accordable entre 8 et 12  $\mu\text{m}$  ; ii) posséder une largeur de raie au moins inférieure à 1  $\text{cm}^{-1}$  pour la détection d'agents chimiques de guerre, et à 0,1  $\text{cm}^{-1}$  pour la détection de substances chimiques industrielles toxiques ; et iii) posséder une énergie au moins supérieure à la centaine de microjoules pour détecter des espèces à une longue portée en configuration

IP-DIAL. De plus, la source doit pouvoir opérer en régime pulsé nanoseconde, avec une largeur d'impulsion de quelques nanosecondes, afin d'obtenir une résolution spatiale de quelques mètres en configuration RR-DIAL. Puis, grâce à une analyse bibliographique de publications récentes, nous avons pu démontrer le caractère incontournable des sources paramétriques pour répondre à ces critères. Nous avons pu voir qu'il existait trois solutions pour : i) émettre directement vers la bande III à l'aide d'une source de pompe à  $1\ \mu\text{m}$  ; ii) émettre directement vers la bande III à l'aide d'une source de pompe à  $2\ \mu\text{m}$  ; ou iii) amplifier des faisceaux émis à  $2\ \mu\text{m}$  grâce à un pompage à  $1\ \mu\text{m}$ , avant de les convertir vers la bande III. La première configuration, bien qu'intéressante, est actuellement limitée par la maturité technologique des cristaux non linéaires disponibles, et est encore au stade de la recherche. La deuxième configuration est intéressante, mais nécessite un effort important sur le laser à  $2\ \mu\text{m}$  vis-à-vis de la finesse spectrale, tandis que la troisième configuration est la plus mature. Ces deux dernières solutions ont été mise en œuvre lors de ce travail de thèse.

Dans le chapitre 3, nous nous sommes intéressés au pompage d'un NesCOPO utilisant un cristal d'OP-GaAs fonctionnant en quasi-accord de phase par un laser  $\text{Tm}^{3+}$  : YAP émettant un rayonnement monofréquence à  $1,938\ \mu\text{m}$ . Cette source est issue d'une collaboration entre Thales Research & Technology, Teems Photonics, et l'Onera. Nous avons montré que l'émission de cette source est monofréquence et pouvait être accordée entre  $7,6\text{--}9\ \mu\text{m}$  et  $10,2\text{--}11,2\ \mu\text{m}$ , grâce à plusieurs cristaux d'OP-GaAs. Le seuil d'oscillation des différentes sources réalisées était de l'ordre de quelques microjoules, pour une énergie complémentaire de l'ordre de la centaine de nanojoules. Nous avons effectué des mesures de polarisation et de biréfringence induite dans les différents échantillons disponibles, et montré que deux des cristaux utilisés présentaient des effets de biréfringence induite, mais sans conséquence sur les performances de la source. De plus, nous avons mesuré la largeur spectrale de l'impulsion par battement de fréquence entre l'onde complémentaire et le rayonnement d'un DFB-QCL continu. La largeur spectrale de la source est d'environ 30 MHz, et l'impulsion ne présente pas de chirp en fréquence significatif. Finalement, la source a ensuite été utilisée dans un banc lidar pour la mesure de l'ammoniac à une distance de 3,5 m. Un spectre de la bande d'absorption principale de l'ammoniac a été obtenu entre  $10,25$  et  $10,45\ \mu\text{m}$ , et une raie plus fine a pu être résolue entre  $10,49$  et  $10,54\ \mu\text{m}$ . Cette expérience a permis de déterminer le potentiel de cette source en termes d'accordabilité en longueur d'onde, ainsi que sa capacité à mesurer des espèces chimiques à distance. Dans un second temps, nous avons présenté un concept de cristal de CdSe taillé en forme en cylindre partiel, qui permet d'obtenir une accordabilité en longueur d'onde pouvant couvrir toute la bande III, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2. Ce cristal a été utilisé dans un OPO simplement résonant à l'onde signal, et pompé à  $2,05\ \mu\text{m}$ . La longueur d'onde d'émission théorique de cet oscillateur à l'onde complémentaire est comprise entre  $9$  et  $12\ \mu\text{m}$ , et le seuil de cet OPO a été estimé à 1 mJ. Le faisceau a ensuite été mis en forme dans les deux directions transverses afin d'éviter toute focalisation due aux faces du cristal polies en forme de cylindre partiel. Cependant, la position des différentes optiques de focalisation et du cristal non linéaire étant très critique, nous avons observé des dommages en volume dans le cristal de CdSe. La focalisation du faisceau de pompe doit être mieux contrôlée en ajoutant des platines de translation supplémentaires sur le cristal et les optiques de focalisation. Un système optique de contrôle peut aussi être



ajouté à la sortie de l'oscillateur afin de caractériser plus précisément la taille du faisceau après passage dans le cristal non linéaire.

Dans le chapitre 4, nous nous sommes intéressés aux processus paramétriques en cascade pour l'émission en bande III. Dans un premier temps, nous avons présenté le premier lidar à base d'oscillateurs paramétriques optiques développé pour la détection d'agents chimiques de guerre et testé en situation quasi réelle. Pour cela, nous avons réalisé un NesCOPO utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type II, et pompé par un laser énergétique et monofréquence en Nd:YAG émettant à  $1,064 \mu\text{m}$ . Puis les faisceaux signal et complémentaire de cet OPO sont amplifiés dans deux étages d'amplification paramétrique optique composés de plusieurs cristaux de PPKTP fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0. Une énergie de 48 mJ a pu être obtenue aux longueurs d'onde signal et complémentaire. Puis, ces faisceaux sont convertis vers la bande III par différence de fréquences dans deux cristaux de ZGP fonctionnant en accord de phase de type II. Une énergie maximale de 1 mJ a pu être obtenue dans la bande III, ainsi qu'une accordabilité couvrant la gamme  $7,6\text{--}10,5 \mu\text{m}$ . Ce banc lidar a ensuite été utilisé pour détecter du gaz sarin et du gaz moutarde en configuration IP-DIAL. Dans une seconde partie, nous avons présenté un nouveau concept de NesCOPO utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0 accordable, et rendu monofréquence grâce à un réseau de Bragg en volume chirpé transversalement. Dans cette configuration, le coupleur à l'onde complémentaire d'une cavité NesCOPO classique est remplacé par le réseau de Bragg en volume, afin d'émettre un faisceau complémentaire accordable entre  $2,20$  et  $2,22 \mu\text{m}$ . Pour cela nous avons, dans un premier temps, réalisé une étude de faisabilité d'un VBG répondant aux critères d'affinement spectral, et d'accordabilité. Puis nous avons mesuré un taux de chirp du VBG de  $1,1 \text{ nm/mm}$  grâce à un OPO simplement résonnant à l'onde complémentaire, et observé un affinement du spectre d'un facteur 300 par rapport à un SROPO classique. Enfin, nous avons intégré le VBG dans un NesCOPO, et comparé les résultats avec un NesCOPO classique, utilisant un coupleur de réflectivité similaire. Le spectre d'émission en sortie du NesCOPO-VBG est monomofréquence. Une analyse plus fine du caractère monomode de la source est en cours de réalisation.

Durant cette thèse, nous avons abordé plusieurs architectures pour l'émission d'un faisceau dans la bande III qui ont permis d'atteindre une accordabilité comprise entre  $7$  et  $11 \mu\text{m}$ , une énergie allant du microjoule au millijoule, ainsi qu'une largeur spectrale au moins inférieure à  $0,1 \text{ cm}^{-1}$ . Cependant, plusieurs points sont encore à améliorer. Notamment, dans le cas de l'émission directe vers la bande III, l'énergie en sortie de l'oscillateur est en partie limitée par l'ouverture des cristaux. Une solution consiste à ajouter un étage d'amplification à la sortie de l'oscillateur pour augmenter l'énergie. Dans le cas du NesCOPO en OP-GaAs par exemple, réaliser un étage d'amplification avec un cristal d'OP-GaAs de  $30 \text{ mm}$  de long permettrait, en théorie, d'obtenir une amplification d'un facteur 30. Ceci correspondrait à une énergie de  $18 \mu\text{J}$ , et une augmentation de la portée d'un facteur 5, ce qui donne une distance de  $200 \text{ m}$ . De plus, avec une énergie de l'ordre du microjoule, un appareil commercial pourrait être utilisé pour mesurer la longueur d'onde et la stabilité en longueur d'onde. Cela permettrait le pilotage automatique de la longueur d'onde ainsi qu'une accordabilité plus rapide, comme cela a déjà été démontré dans d'autres systèmes. Une autre solution consiste à faire la somme de fréquences entre les

ondes de pompe et signal, et de détecter la longueur d'onde générée avec un spectromètre en silicium plus sensible. Une portée encore supérieure pourrait être atteinte en utilisant un laser plus énergétique pour pomper la chaîne d'amplification, comme par un exemple un laser Ho:YAG. Mais, dans ce cas, un effort particulier devra être porté sur la limitation de la largeur spectrale de ce laser. Concernant l'accordabilité en longueur d'onde, l'utilisation de cristaux de CdSe est intéressante afin d'élargir la gamme spectrale, notamment dans des étages de différence de fréquence. Dans ce cas, il sera alors nécessaire d'utiliser des miroirs mobiles pour compenser le désalignement du faisceau lors de la rotation de CdSe. Une autre possibilité, plus contraignante technologiquement, consiste aussi à utiliser un cristal de CdSe poli en cylindre partiel pour éviter tout désalignement. Un effort d'ingénierie sera alors à réaliser afin d'assurer un polissage parfait des faces cylindriques. De plus, la mise en forme du faisceau de pompe devra être contrôlée de façon très précise. L'utilisation de nouveaux cristaux comme,  $\text{BaGa}_4\text{Se}_7$  ou  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , qui peuvent être pompés à 1 ou 2  $\mu\text{m}$ , est aussi intéressante. Concernant l'émetteur lidar, une conversion en cascade utilisant des cristaux plus longs et de plus grande ouverture dans les étages d'amplification et de conversion permettrait de compacter le système. Ceci permettrait de fonctionner en régime saturé, et donc d'obtenir une meilleure stabilité des faisceaux, et une énergie supérieure. Par exemple, dans les étages d'amplification du projet MICLID, nous avons vu qu'il était possible d'obtenir une énergie de 70 mJ en utilisant uniquement deux cristaux de PPKTP de 12 et 7 mm de long, ce qui aurait notamment permis d'effectuer des mesures en configuration RR-DIAL. Le profil spatial du faisceau de pompe en champ proche pourrait aussi être amélioré en effectuant un filtrage spatial dans une enceinte sous vide. Ceci permettrait d'éviter toute ambiguïté sur l'alignement de l'étage d'amplification et d'éviter ainsi tout point « chaud » dans le faisceau. Finalement, l'énergie de sortie de l'oscillateur à 2  $\mu\text{m}$  peut aussi être augmentée en utilisant un cristal de PPLN fonctionnant en quasi-accord de phase de type 0, et en affinant le spectre d'émission par un réseau de Bragg en volume. Cependant, l'accordabilité en longueur d'onde de ce système est actuellement limitée par la largeur du réseau de Bragg en volume réalisable technologiquement, ainsi que le taux de chirp maximal. De plus, l'accord en longueur d'onde se fait mécaniquement, ce qui réduit la rapidité du système.

# Annexe A

## Pompage d'un laser térahertz avec un OPO en OP-GaAs

La bande de fréquences des térahertz désigne les ondes électromagnétiques s'étendant de 100 GHz à 30 THz, et se situant entre l'infrarouge et les micro-ondes. Les ondes térahertz ont des applications dans des domaines aussi variés que les télécommunications à haut débit [205], les réseaux sans fil [206], la spectroscopie [207, 208], ou encore l'astrophysique [209]. Cependant, ces domaines sont encore peu développés, avec l'exception toutefois de l'astrophysique, à cause du manque de sources compactes. Parmi les sources lasers disponibles dans le domaine térahertz, nous pouvons noter l'existence des lasers à cascade quantique [210], et des lasers moléculaires [211]. Dans le cas des lasers moléculaires, l'oscillation laser est obtenue par pompage électrique ou par pompage optique d'un gaz moléculaire à température ambiante et à basse pression. Le gain est obtenu par inversion de population entre les niveaux rotationnels et un niveau vibrationnel excité de la molécule a priori vide à température ambiante. Des longueurs d'onde discrètes peuvent alors être générées entre 0,1 et 10 THz. Dans le cas du pompage électrique, l'excitation vibrationnelle est obtenue grâce à l'utilisation d'une décharge électrique dans le gaz, tandis que dans le cas du pompage optique, un laser moyen infrarouge est utilisé [212].

Dans le cadre de cette annexe, nous proposons d'utiliser le NesCOPO en OP-GaAs, présenté dans la section 3.1, comme source de pompage optique d'un laser THz moléculaire utilisant de l'ammoniac à basse pression comme milieu à gain. Cette expérience est issue d'une collaboration entre l'IEMN à Lille, et l'Onera.

### A.1 Cavité du laser térahertz

La cavité du laser térahertz utilisée lors de cette expérience est celle qui est présentée dans la référence 213. Cette cavité est composée d'un guide en cuivre cylindrique de 50 cm de long, et de 10 mm de diamètre contenant l'ammoniac. Deux miroirs plans en laiton munis de deux trous de 1,2 mm de diamètre. De tels miroirs permettent de réaliser une cavité oscillante pour les ondes térahertz tout en laissant passer le faisceau infrarouge, car le diamètre du trou est très faible devant la longueur d'onde térahertz. À l'entrée du laser, un des miroirs en laiton est soudé au tube. La cavité est ensuite refermée par une fenêtre en KBr inclinée à 45°. À l'autre extrémité du laser, le second miroir est soudé à

une membrane métallique mobile placée à l'intérieur du tube, et refermée par une fenêtre en COC, pour *cyclic-olefin copolymer*, transparente dans la gamme térahertz. Une image, et un schéma de principe de cette cavité sont présentés dans la FIGURE A.1.

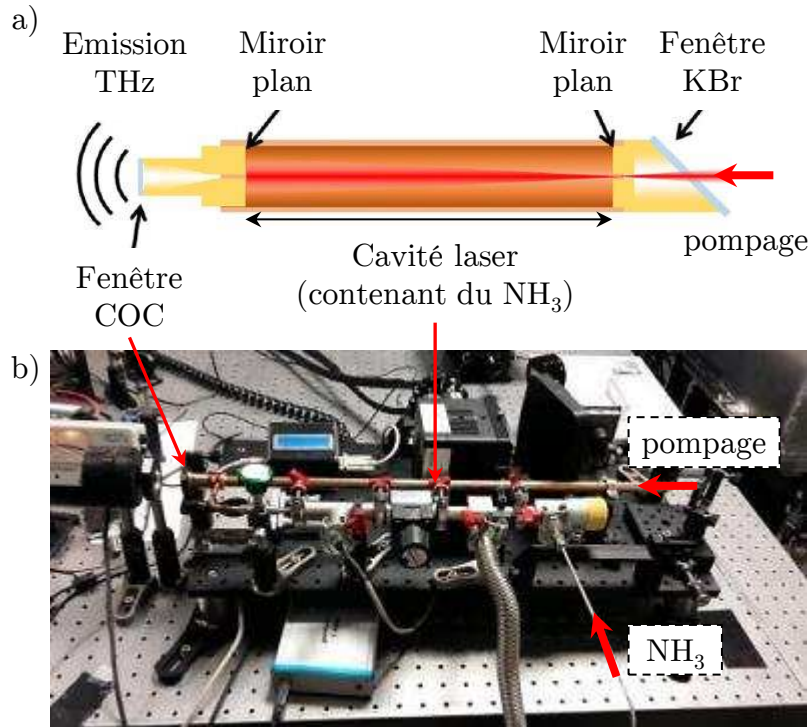


FIGURE A.1 – a) Schéma, et b) image de la cavité du laser térahertz.

## A.2 Utilisation de la molécule de NH<sub>3</sub> comme milieu à gain

La molécule de NH<sub>3</sub>, dans sa configuration d'équilibre, possède une forme pyramidale symétrique, mais dans son état excité, la molécule de NH<sub>3</sub> peut adopter plusieurs modes de vibration. L'un d'entre eux est appelé *umbrella-mode* en anglais. Ce mode de vibration est issu du phénomène d'inversion quantique où l'atome d'azote peut traverser, par effet tunnel, la barrière de potentiel créée par les trois atomes d'hydrogène. Les niveaux d'énergies sont alors séparés en un niveau de basse énergie symétrique (s) et un niveau d'énergie plus élevée antisymétrique (a) de la fonction d'onde. La fréquence d'oscillation de la vibration est alors située autour de 24 GHz pour une molécule placée dans son état fondamental. En revanche, lorsque la molécule se trouve dans un état excité, la fréquence des oscillations augmente, car la barrière de potentiel à franchir est plus faible. Ainsi, si la molécule est placée dans un état excité  $\nu_2 = 1$ , qui se situe environ à  $950 \text{ cm}^{-1}$  de l'état fondamental, la fréquence de vibration, et donc celle du laser, est d'environ 1 THz. Ces états excités sont pratiquement vides à température ambiante, et l'inversion de population

est très simple à obtenir par pompage optique. Dans le cadre de cette expérience, nous allons tenter de pomper certaines transitions optiques de la molécule d'ammoniac, situées entre les états de vibration  $\nu_2 = 0$  et  $\nu_2 = 1$  afin d'émettre un rayonnement térahertz, comme représenté sur le schéma de la FIGURE A.2.

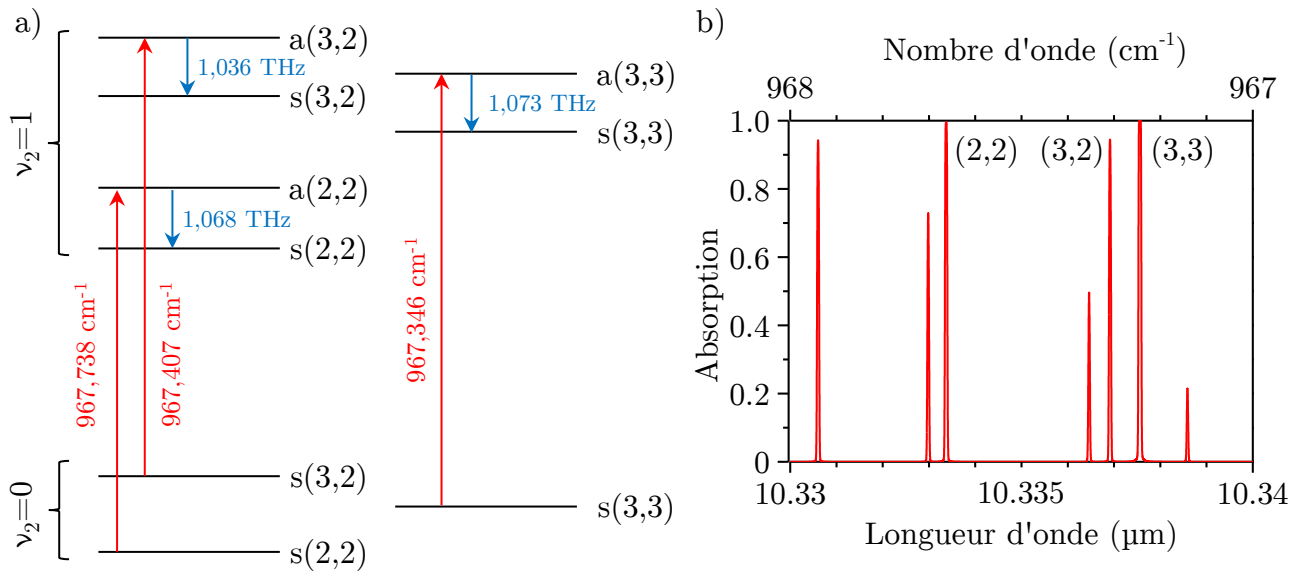


FIGURE A.2 – a) Diagramme partiel des niveaux d'énergie de la molécule de  $^{14}\text{NH}_3$ . Les flèches représentent les transitions mises en jeu lors de l'émission laser, et les nombres entre parenthèses correspondent au couple de nombres quantiques (J, K). b) Spectre d'absorption de la molécule de  $\text{NH}_3$  pour une pression de 5 Pa.

Dans cette expérience, l'ammoniac est utilisé à une pression d'environ 0,05 torr, ce qui signifie que les raies d'absorption de la molécule sont bien plus fines qu'à pression atmosphérique dont la largeur à mi-hauteur est d'environ 200 MHz. Il sera donc nécessaire de pouvoir accorder la longueur d'onde avec une précision d'au moins 50 à 100 MHz. Ceci est possible grâce à la détection hétérodyne. Un tel montage a déjà été présenté dans la section 3.1.4. Dans la section suivante, nous expliquons comment ce dernier pourra être utilisé afin d'effectuer une mesure précise de la longueur d'onde.

### A.3 Mesure de la longueur d'onde

L'onde utilisée pour le pompage du laser térahertz est l'onde complémentaire du NesCOPO en OP-GaAs utilisant le cristal M28, présenté dans la section 3.1. Ce cristal permet l'émission d'un faisceau accordable entre 10,2 et 11,2  $\mu\text{m}$  dans la bande III. Dans la section 3.1.5, nous avons vu qu'il était possible de détecter de l'ammoniac à distance entre 10,25 et 10,48  $\mu\text{m}$  avec un cristal similaire. Cette source est donc idéale pour le pompage optique du laser térahertz autour de 10,33  $\mu\text{m}$ . Dans un premier temps, le faisceau complémentaire en sortie du NesCOPO est séparé en deux voies grâce à une lame à faces parallèles en ZnSe. Le faisceau transmis par la lame est utilisé pour le pompage du laser térahertz.

Il est dirigé vers l'entrée du laser grâce à un jeu de miroirs et mis en forme à l'aide d'une lentille en germanium de 150 mm de distance focale. La caustique du faisceau est mesurée par la méthode dite du couteau, et est présentée dans la FIGURE A.3. Le rayon au col

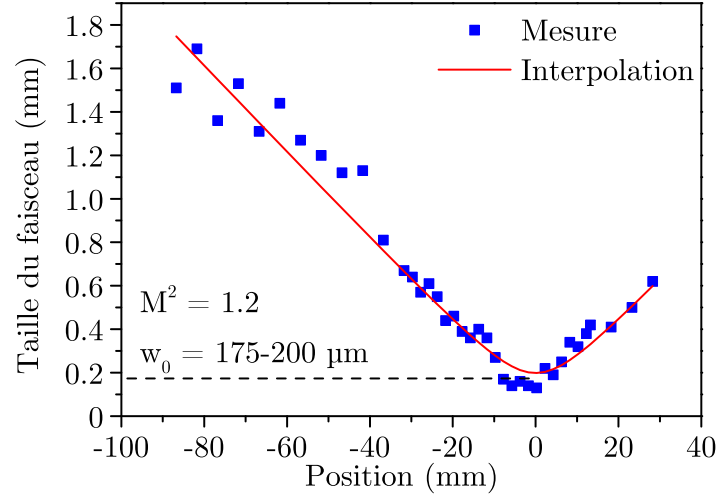


FIGURE A.3 – Caustique du complémentaire mesurée près du col du faisceau.

du faisceau à  $1/e^2$  est estimé à environ  $200 \mu\text{m}$ , tandis que le facteur de qualité  $M^2$  est évalué à 1,2 par interpolation des points de mesure par la méthode des moindres carrés. Le faisceau qui est réfléchi par la lame à faces parallèles est ensuite séparé en deux voies grâce à une lame réfléchissant 50 % de l'onde complémentaire (BS2).

Afin de pouvoir accorder la longueur d'onde complémentaire sur les raies d'absorption de la molécule de  $\text{NH}_3$  avec une précision d'environ 100 MHz, il est nécessaire de mettre en place différentes voies de contrôle. Le schéma simplifié du montage est présenté dans la FIGURE A.4. Il est très similaire à celui utilisé dans la section 3.1.4 pour la mesure de largeur spectrale par détection hétérodyne. D'une part, une partie du faisceau complémentaire est utilisée pour la mesure approximative de la longueur d'onde à l'aide d'un monochromateur à réseaux (Jobin-Yvon). Cette étape permet d'accorder la longueur d'onde avec une précision de 1 nm, soit 3 GHz. Puis, une fois cette étape réalisée, une seconde voie est utilisée pour la mesure fine de la longueur d'onde par détection hétérodyne. L'oscillateur local est un DFB-QCL commercial fonctionnant en régime continu et accordable autour de  $10,33 \mu\text{m}$  (AdTech optics) appartenant à l'équipe de l'IEMN. Le faisceau issu du QCL est divisé en deux voies grâce à un séparateur de faisceaux (BS1). Une partie du faisceau est envoyée dans un lambdamètre commercial d'une résolution de 4 MHz (High Finesse WS6-200 IR-III) afin de mesurer sa longueur d'onde tandis que la seconde partie est mélangée avec le faisceau complémentaire du NesCOPO. L'impulsion complémentaire et le QCL sont combinés sur un détecteur photoélectromagnétique en HgCdZnTe (Vigo) dont la bande passante est proche de 500 MHz. Comme nous avons pu le voir dans la section 3.1.4, il est possible d'approcher la longueur d'onde du complémentaire à 80 MHz de la longueur d'onde du QCL.

Une mesure préliminaire est ensuite réalisée afin de vérifier qu'il est possible d'accorder la source sur une raie de l'ammoniac à basse pression, déterminée à l'avance, uniquement

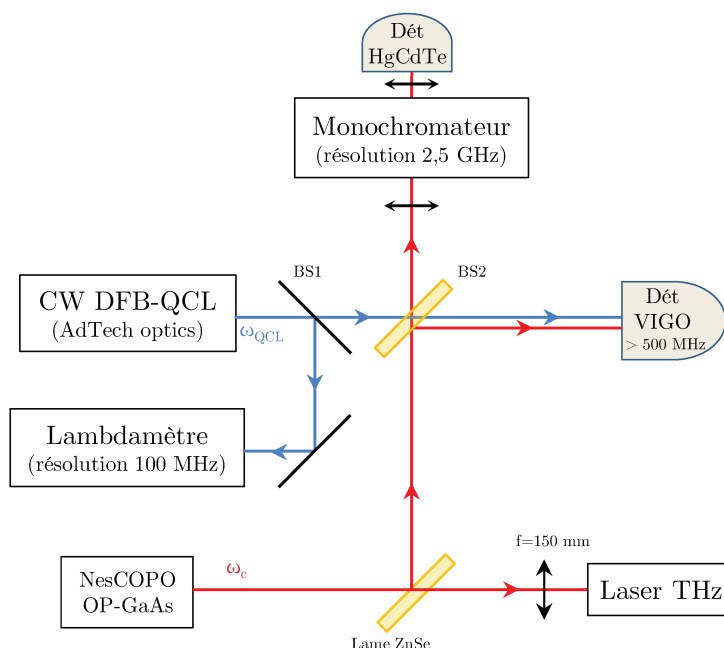


FIGURE A.4 – Schéma du montage utilisé pour le pompage du laser térahertz.

grâce à un réglage manuel des cales piézo-électriques de la cavité NesCOPO. Pour cela, le faisceau complémentaire est dirigé vers une cellule hermétique de 10 cm de long, fabriquée à l'Onera. Cette cellule est remplie avec quelques gouttes d'ammoniac, et la pression à l'intérieur de la cellule est amenée à 200 torr par pompage. La solution d'ammoniac s'évapore alors totalement, car sa pression de vapeur saturante est de 6700 torr. Le spectre de l'ammoniac à 200 torr, obtenu grâce à la base de données HITRAN, est présenté dans la FIGURE A.5 pour une concentration de 5000 ppm · m. Comme indiqué, à cette pression, la zone autour de  $967 \text{ cm}^{-1}$  (soit  $10,34 \mu\text{m}$ ) possède de nombreuses raies d'absorption encore trop larges de l'ammoniac, et il est donc impossible de cibler avec précision les raies d'intérêt du laser térahertz. Nous choisissons alors d'accorder l'onde complémentaire autour de  $10,44 \mu\text{m}$ , où le spectre d'absorption de l'ammoniac présente une raie intense, et quelques raies de plus faible intensité. L'accord grossier de la longueur d'onde est réalisé en fixant la température du cristal d'OP-GaAs à  $37 \text{ }^\circ\text{C}$ , puis un accord fin est réalisé grâce aux cales piézo-électriques. L'intensité de l'onde complémentaire après la cellule d'ammoniac est ensuite détectée grâce à un détecteur photoélectromagnétique en HgCdZnTe, et comparée à une voie de référence. Comme indiqué sur la FIGURE A.6 a), lorsque la longueur d'onde complémentaire est fixée à  $10,44 \mu\text{m}$  avec une précision de  $\pm 1 \text{ nm}$ , un signal est détecté en sortie du monochromateur, et l'onde complémentaire est absorbée par l'ammoniac à la traversée de la cellule. Ainsi, il est donc possible de se placer sur une raie de l'ammoniac à 200 torr à l'aide des cales piézo-électriques avec une précision de  $\pm 1 \text{ nm}$ .



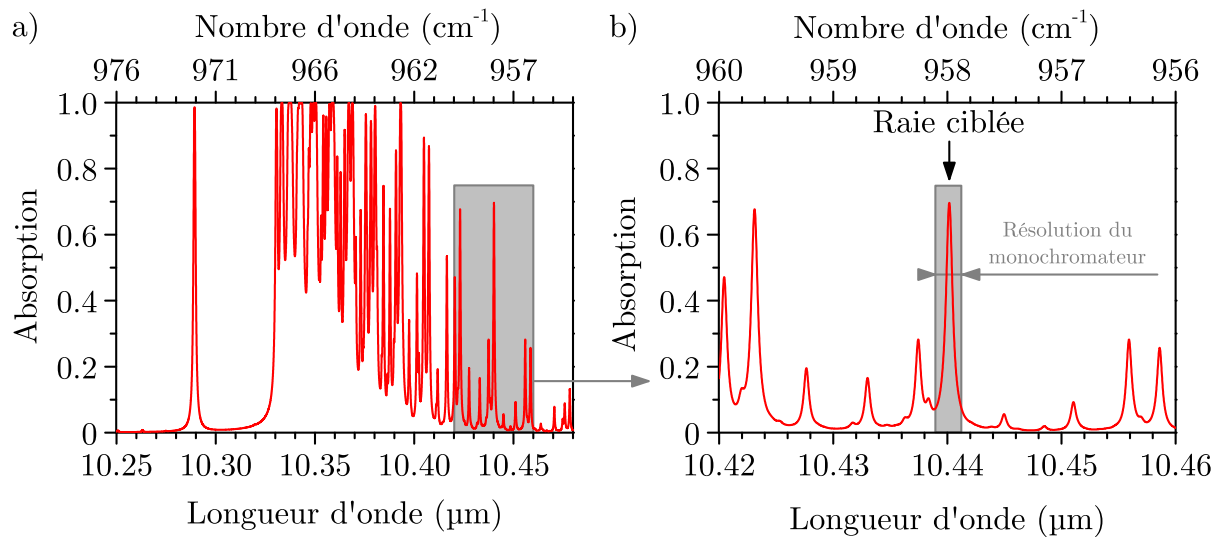


FIGURE A.5 – Spectre d'absorption de l'ammoniac théorique obtenu pour une pression de 200 torr, et une concentration de 5000 ppm · m.

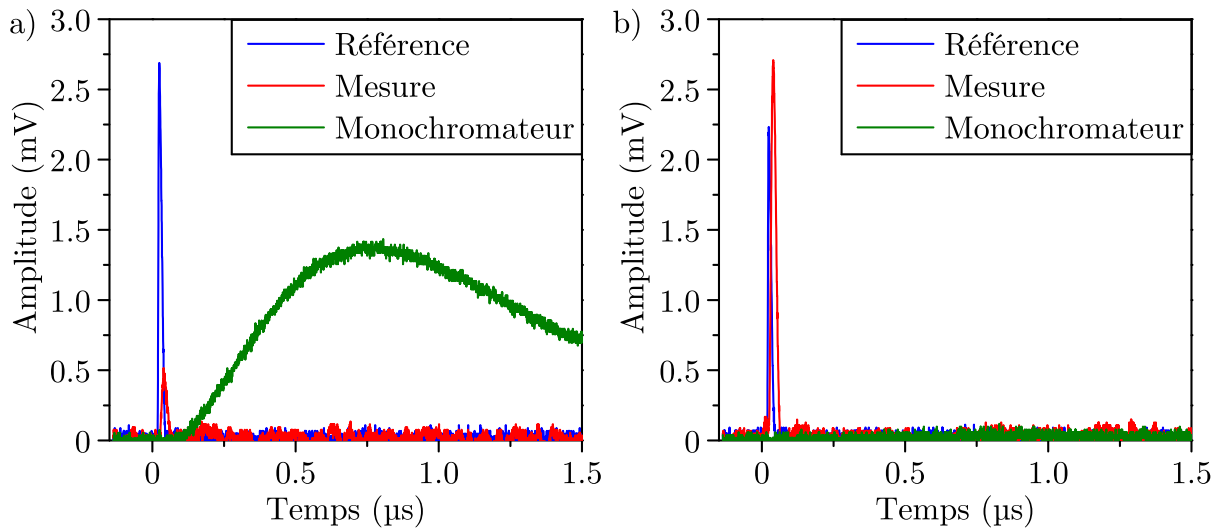


FIGURE A.6 – Profils temporels de l'onde complémentaire pour la voie de référence (bleu) et la voie de mesure (rouge), et à la traversée du monochromateur (vert) pour une longueur d'onde complémentaire située a) sur la raie à 10,44 μm, b) en dehors. La trace temporelle obtenue en sortie du monochromateur est plus longue, car le détecteur utilisé est un détecteur refroidi à l'azote liquide dont le temps de réponse est plus lent.



## A.4 Pompage du laser térahertz

Le pompage du laser térahertz s'effectue de la façon suivante. L'onde complémentaire est accordée grossièrement autour de 10330 nm, en réglant la température du cristal à 27 °C, tandis que la direction de polarisation de l'onde complémentaire est fixée selon la direction [001] du cristal d'OP-GaAs. Puis la longueur d'onde d'émission du QCL est fixée à 10337,56 nm, soit  $967,35 \text{ cm}^{-1}$ . La longueur d'onde complémentaire est ensuite approchée à 80 MHz de cette valeur grâce aux cales piézo-électriques, comme présenté sur la FIGURE A.7. Puis l'onde térahertz, si celle-ci est générée, est détectée à l'aide d'un

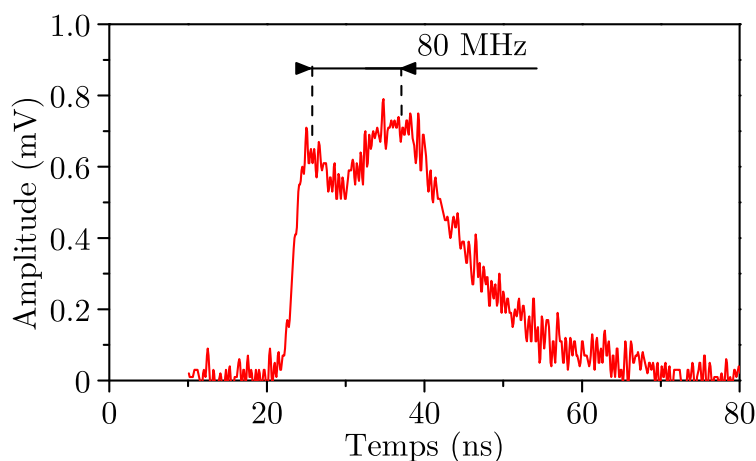


FIGURE A.7 – Battement de fréquence entre le rayonnement d'un QCL fixé à 10337,56 nm et l'onde complémentaire obtenu à une fréquence de 80 MHz.

détecteur pyroélectrique. Cette procédure est répétée pour chacune des trois transitions mentionnées dans la section A.2. Malheureusement, nous n'avons pas été en mesure de générer d'onde térahertz à la suite de la campagne d'essais. Plusieurs facteurs peuvent empêcher l'oscillation laser. Dans un premier temps, le seuil d'oscillation en régime pulsé du laser térahertz n'est pas encore bien défini, notamment à cause de certains phénomènes comme la dynamique des processus de relaxation du milieu à gain. Pour la suite, une étude plus poussée de l'état de l'art, et des équations régissant ces phénomènes doit être réalisée afin de déterminer la puissance crête et la durée des impulsions nécessaires à l'oscillation du laser térahertz. Après cette étude, nous pourrions envisager de pomper le laser térahertz avec une source disposant d'une énergie plus élevée, comme la source présentée dans le cadre du projet MICLID (voir section 4.1). De plus, la détection de l'onde térahertz devrait préférentiellement s'effectuer à l'aide d'un bolomètre à électrons chauds, qui possède une bien meilleure sensibilité qu'un détecteur pyroélectrique. Cependant, l'encombrement de cet instrument implique que les expériences doivent s'effectuer à l'IEMN, ce qui n'a pas été le cas ici. Enfin, les tentatives de pompage du laser térahertz n'ont été réalisées que sur une courte période, à savoir une semaine, ce qui laisse très peu de temps pour traiter efficacement les différents problèmes liés à l'expérience.



# Annexe B

## Calculs de biréfringence

Dans cette annexe, nous détaillons les étapes de calcul permettant d'obtenir l'équation (3.2) qui donne l'intensité de l'onde détectée en fonction de l'orientation des lames à retard placées sur le trajet du faisceau. Dans le cas d'une mesure de biréfringence induite classique [180], le cristal est inséré entre un polariseur et un analyseur en configuration dite « croisée », c'est-à-dire lorsque les directions passantes de ces deux éléments forment un angle de  $90^\circ$ . Puis le cristal est tourné autour la direction de propagation, et l'intensité en sortie de l'analyseur est mesurée. Comme nous avons pu le voir dans la section 3.1.4, il y a de la biréfringence induite lorsque le signal détecté en sortie de l'analyseur suit une loi de Malus. Cependant, dans notre cas, il est impossible de tourner le cristal, car celui-ci est monté dans un corps mécanique fixé au marbre optique. Une autre façon de réaliser cette mesure est alors de tourner simultanément le polariseur et l'analyseur. La FIGURE B.1 présente le montage utilisé pour la mesure de biréfringence induite dans les échantillons d'OP-GaAs. Un polariseur variable est placé avant le cristal. Il est réalisé grâce à un cube

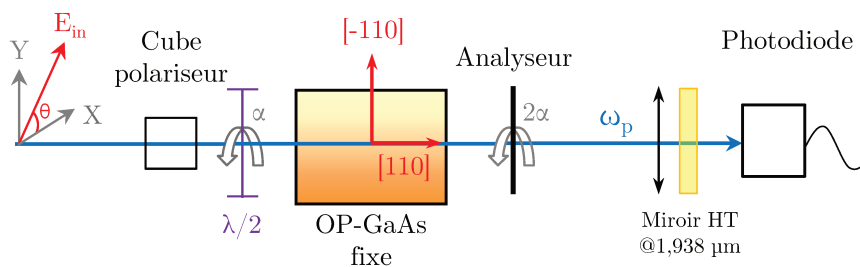


FIGURE B.1 – Montage utilisé pour la mesure de biréfringence induite dans les échantillons d'OP-GaAs.

polariseur et une lame demi-onde. Puis un analyseur placé en configuration croisée est inséré à la sortie du cristal. Ceci implique que la lame demi-onde doit être tournée d'un angle  $\alpha$  lorsque l'analyseur est tourné d'un angle  $2\alpha$ .

Afin de déterminer l'intensité de l'onde en sortie de l'analyseur, il est possible d'employer le formalisme de Jones. Considérons un champ électromagnétique  $\vec{E}_{in}$  formant un angle  $\theta$  avec l'axe X d'un repère (X,Y) quelconque, comme présenté sur la FIGURE B.1. Le champ électromagnétique, noté  $\vec{E}_{out}$ , en sortie du système optique s'écrit de la façon

suivante :

$$\vec{E}_{\text{out}} = M_{\text{Analyseur}} \cdot M_{\text{OP-GaAs}} \cdot M_{\text{Polariseur}} \cdot \vec{E}_{\text{in}} \quad (\text{B.1})$$

où  $M_x$  est la matrice de Jones de l'optique considérée dans le repère (X,Y), et  $\vec{E}_{\text{in}}$  est donné par la relation suivante :

$$\vec{E}_{\text{in}} = E_0 e^{-i(\omega t - \varphi)} \begin{pmatrix} \cos(\theta) \\ \sin(\theta) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.2})$$

Afin d'obtenir le vecteur  $\vec{E}_{\text{out}}$ , il est alors nécessaire de déterminer les matrices de chaque élément optique dans le repère (X,Y). La matrice d'une lame de phase dans le repère (X,Y) est donnée par :

$$M_{\text{Lame de phase}}^{\text{XY}} = M_{-\rho} \cdot M_{\text{Lame de phase}} \cdot M_{\rho}, \quad (\text{B.3})$$

où  $\rho$  est l'angle que fait l'axe neutre de la lame biréfringente avec l'axe X, et  $M_{\rho}$  est la matrice de rotation définie par :

$$M_{\rho} = \begin{pmatrix} \cos(\rho) & \sin(\rho) \\ -\sin(\rho) & \cos(\rho) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.4})$$

De plus, pour une lame de phase dont le déphasage est quelconque, la matrice  $M_{\text{Lame de phase}}$  dans le repère des axes neutres de la lame est donnée par :

$$M_{\text{Lame de phase}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\Delta} \end{pmatrix}, \quad (\text{B.5})$$

avec  $\Delta$  le déphasage induit.

Ainsi, il est possible de déterminer la matrice de Jones de chaque élément optique du montage afin d'en déduire le champ électromagnétique en sortie de l'analyseur.

## B.1 Matrice de Jones des éléments optiques

### Matrice du polariseur tourné d'un angle $\alpha$ par rapport à X

La matrice du polariseur, notée  $M_{\text{Polariseur}}$ , dans le repère (X,Y) est donnée par la matrice d'une lame de phase dont le déphasage vaut  $\pi$ , et tournée d'un angle  $\alpha$  par rapport à X. Ainsi :

$$\begin{aligned} M_{\text{Polariseur}} &= \begin{pmatrix} \cos(-\alpha) & \sin(-\alpha) \\ -\sin(-\alpha) & \cos(-\alpha) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\pi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ -\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \cos(2\alpha) & \sin(2\alpha) \\ \sin(2\alpha) & \cos(2\alpha) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

### Matrice de l'analyseur tourné d'un angle $2\alpha + \pi/2$ par rapport à X

De même, la matrice de l'analyseur, notée  $M_{\text{Analyseur}}$ , dans le repère (X,Y) est donnée par la matrice d'une lame de phase dont le déphasage vaut 0, et tournée d'un angle  $2\alpha + \pi/2$  par rapport à X, de sorte que l'analyseur et le polariseur soient en configuration croisée. La matrice de rotation  $M_{\rho=2\alpha+\pi/2}$  s'écrit alors :

$$M_{\rho=2\alpha+\pi/2} = \begin{pmatrix} \cos(2\alpha + \pi/2) & \sin(2\alpha + \pi/2) \\ -\sin(2\alpha + \pi/2) & \cos(2\alpha + \pi/2) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.7})$$

De même,

$$M_{-\rho=-(2\alpha+\pi/2)} = \begin{pmatrix} \cos(-(2\alpha + \pi/2)) & \sin(-(2\alpha + \pi/2)) \\ -\sin(-(2\alpha + \pi/2)) & \cos(-(2\alpha + \pi/2)) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.8})$$

Ce qui donne :

$$\begin{aligned} M_{\text{Analyseur}} &= M_{-(2\alpha+\pi/2)} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} M_{2\alpha+\pi/2} \\ &= \begin{pmatrix} \sin^2(2\alpha) & -\cos(2\alpha)\sin(2\alpha) \\ -\cos(2\alpha)\sin(2\alpha) & \cos^2(2\alpha) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

### Matrice d'une lame biréfringente tournée d'un angle $\beta$ par rapport à X

En considérant que le cristal d'OP-GaAs agit comme une lame de phase tournée d'un angle  $\beta$  par rapport à l'axe X, la matrice du cristal dans le repère (X,Y) s'écrit :

$$\begin{aligned} M_{\text{Polariseur}} &= \begin{pmatrix} \cos(-\beta) & \sin(-\beta) \\ -\sin(-\beta) & \cos(-\beta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\Delta} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\beta) & \sin(\beta) \\ -\sin(\beta) & \cos(\beta) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \cos^2(\beta) + \sin^2(\beta)e^{-i\Delta} & \cos(\beta)\sin(\beta)(1 - e^{-i\Delta}) \\ \cos(\beta)\sin(\beta)(1 - e^{-i\Delta}) & \cos^2(\beta) + \sin^2(\beta)e^{-i\Delta} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

avec  $\Delta = \frac{2\pi}{\lambda}(n_o - n_e)L$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde considérée, et  $L$  la longueur du cristal. La valeur  $(n_o - n_e)$  permet de déterminer la biréfringence induite dans le cristal d'OP-GaAs.

## B.2 Intensité de l'onde détectée à la sortie de l'analyseur

L'onde électromagnétique en sortie de l'analyseur est ensuite simplifiée grâce au logiciel Mathematica. Ce qui donne :

$$\vec{E}_{\text{out}} = \frac{1}{2}e^{-i\Delta} \{(-1 + e^{i\Delta})\sin(4\alpha - 2\beta - \theta) + (1 + e^{i\Delta})\sin(\theta)\} \begin{pmatrix} \sin(2\alpha) \\ \cos(-2\alpha) \end{pmatrix} \quad (\text{B.11})$$

L'intensité de l'onde est alors donnée par :

$$\begin{aligned}
 I_{\text{out}} &= E_{\text{out}}^* \cdot E_{\text{out}} \\
 &= \frac{1}{8} \{4 - 2\cos(8\alpha - 4\beta - 2\theta) + \cos(8\alpha - 4\beta - 2\theta - \Delta) - \cos(\Delta - 2\theta) \\
 &\quad + \cos(8\alpha - 4\beta - 2\theta + \Delta) - 2\cos(2\theta) - \cos(\Delta + 2\theta)\} \quad (\text{B.12})
 \end{aligned}$$

Dans le cadre de l'expérience de la section 3.1.4, l'onde incidente est polarisée selon la direction X, ce qui donne  $\theta = 0$ . De plus, nous avons vu que les axes neutres des échantillons d'OP-GaAs étaient dirigés selon les axes (X,Y) du repère, ce qui donne  $\beta = 0$ . L'intensité se simplifie alors pour retrouver l'équation (3.2) :

$$\begin{aligned}
 I_{\text{détecté}} &= \frac{1}{8} [2 - 2\cos(8\alpha) + \cos(8\alpha - \Delta) + \cos(8\alpha + \Delta) - 2\cos(\Delta)] \\
 &= \sin^2(4\alpha) \cdot \sin^2(\Delta/2) \quad (\text{B.13})
 \end{aligned}$$

# Publications et communications

## Publications

- Publié :** J. Armougom, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité, B. Boulanger, and A. Godard. A Narrowband Infrared Source Based on Orientation-Patterned GaAs for Standoff Detection of Chemicals. *Applied Physics B*, 124(7): 133, 2018.
- Publié (invité) :** J. Armougom, Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité, and A. Godard. Single-Frequency Tunable Long-Wave Infrared OP-GaAs OPO for Gas Sensing. *Proc.SPIE*, 10088: 10088 – 10088 – 14, 2017.
- Publié (invité) :** A. Godard, G. Aoust, J. Armougom, E. Cadiou, D. Descloux, G. Walter, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, and M. Lefebvre. Optical Parametric Sources for Gas Sensing Applications. *Proc.SPIE*, 10111: 10111 – 10111 – 19, 2017.

## Communications

- Soumis :** V. Smirnov, R. Vasilyeu, A. L. Glebov, A. Kabacinski, J. Armougom, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, A. Grisard, Q. Berthomé. Transversally Chirped Volume Bragg Grating for Tunable Lasers at 2  $\mu\text{m}$ . *SPIE Photonics West*, 2019.
- Soumis (invité) :** J. Armougom, T. Hamoudi, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, A. Godard, M. Raybaut. Multispecies DIAL Remote Gas Detection Using Nested Cavity Optical Parametric Oscillators. *Light Energy and the Environment Congress 2018*, 2018.
- Oral :** J. Armougom, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, N. Cezard, R. Coetzee, V. Pašiškevičius, and J. Kadlčák. Standoff Detection of Hazardous Chemicals using a Longwave Infrared Parametric Source. *Imaging and Applied Optics 2018 (3D, AO, AIO, COSI, DH, IS, LACSEA, LS&C, MATH, pcAOP)*, page LTu5C.6, 2018.

- Oral :** J. Armougom, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, A. Godard, R. Cotzee, V. Pašiškevičius, and J. Kadlčák. Long-wave Infrared Lidar Based on Parametric Sources for Standoff Detection of Gaseous Chemicals. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page ATh3O.1, 2018.
- Oral :** J. Armougom, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, A. Godard, R. Cotzee, V. Pašiškevičius, and J. Kadlčák. 7.3-10.5  $\mu\text{m}$  Tunable Single-frequency Parametric Source for Standoff Detection of Gaseous Chemicals. *High-Brightness Sources and Light-driven Interactions*, page MM4C.7, 2018.
- Oral :** J.-M. Melkonian, J. Armougom, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, G. Gorju, N. Cézard, A. Godard, V. Pašiškevičius, R. Cotzee, and J. Kadlčák. Lidar Based in Nonlinear Optics for Standoff Detection of Chemical Warfare Agents in the LWIR. *OPTRO 2018 Symposium : Optronics in Defense and Security*, 2018.
- Poster :** J. Armougom, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbercourt, M. Raybaut, A. Godard, R. S. Coetzee, A. Zukauskas, and V. Pasiskevicius. 70 mJ Single-Frequency Parametric Source Tunable Between 1.87-1.93  $\mu\text{m}$  and 2.37-2.47  $\mu\text{m}$  for Difference Frequency Generation in the LWIR. *2017 European Conference on Lasers and Electro-Optics and European Quantum Electronics Conference*, page CD P32, 2017.
- Oral (invité) :** A. Godard, J. Armougom, E. Cadiou, G. Walter, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, and M. Lefebvre. Optical Parametric Sources for Atmospheric Sensing. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page SM4M.5, 2017.
- Oral :** J. Armougom, Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité, and A. Godard. Single-Frequency OP-GaAs OPO for the Standoff Detection of Hazardous Chemicals in the Longwave Infrared. *High-Brightness Sources and Light-Driven Interactions*, page MS3C.6, 2016.
- Oral :** A. Godard, J.-M. Melkonian, Q. Clément, J. Armougom, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, and G. Souhaité. Microlaser-Pumped Tunable Optical Source Based on Parametric Conversion in OP-GaAs for Standoff Detection of Hazardous Chemicals in the Long-Wave Infrared. *OPTRO 2016 Symposium : Optronics in Defense and Security*, 2016.
- Oral :** G. Aoust, J. Armougom, E. Cadiou, Q. Clément, D. Mammez, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre. Nested Cavity Optical Parametric Oscillator : A Versatile Tunable Emitter for Active Gas Sensing in the Short- to Long-Wave Infrared. *OPTIC 2015 – Optics & Photonics Taiwan, International Conference*, 2015.



# Bibliographie

- [1] R. A. Robinson, P. T. Woods, and M. J. T. Milton. DIAL Measurements for Air Pollution and Fugitive-Loss Monitoring. *Proceedings of SPIE*, 2506 :140–149, 1995.
- [2] P. A. Martin. Near-infrared Diode Laser Spectroscopy in Chemical Process and Environmental Air Monitoring. *Chemical Society Reviews*, 31 :201–210, 2002.
- [3] M. W. Sigrist, R. Bartlome, D. Marinov, J. M. Rey, D. E. Vogler, and H. Wächter. Trace Gas Monitoring with Infrared Laser-Based Detection Schemes. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 90 :289–300, 2008.
- [4] J. Hodgkinson and R. P. Tatam. Optical Gas Sensing : A Review. *Measurement Science and Technology*, 24(1) :012004, 2013.
- [5] G. A. Wagner and D. F. Plusquellic. Ground-Based, Integrated Path Differential Absorption LIDAR Measurement of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and H<sub>2</sub>O Near 1.6  $\mu\text{m}$ . *Appl. Opt.*, 55(23) :6292–6310, 2016.
- [6] E. Cadiou, D. Mammez, J.-B. Dherbecourt, G. Gorju, J. Pelon, J.-M. Melkonian, A. Godard, and M. Raybaut. Atmospheric Boundary Layer CO<sub>2</sub> Remote Sensing with a Direct Detection LIDAR Instrument Based on a Widely Tunable Optical Parametric Source. *Opt. Lett.*, 42(20) :4044–4047, 2017.
- [7] J. Barrientos Barria, A. Dobroc, H. Coudert-Alteirac, M. Raybaut, N. Cézard, J.-B. Dherbecourt, T. Schmid, B. Faure, G. Souhaité, J. Pelon, J.-M. Melkonian, A. Godard, and M. Lefebvre. Simultaneous Remote Monitoring of Atmospheric Methane and Water Vapor Using an Integrated Path DIAL Instrument Based on a Widely Tunable Optical Parametric Source. *Appl. Phys. B*, pages 509–518, 2014.
- [8] Q. Clément. *Sources paramétriques optiques pour la détection de gaz à distance dans l'infrarouge lointain*. Thèse, Ecole Polytechnique X, 2015.
- [9] H. Kariminezhad, P. Parvin, F. Borna, and A. Bavali. SF<sub>6</sub> Leak Detection of High-Voltage Installations Using TEA-CO<sub>2</sub> Laser-Based DIAL. *Optics and Lasers in Engineering*, 2010.
- [10] A. S. Grishkanich, A. P. Zhevlakov, V. G. Bepalov, V. V. Elizarov, S. V. Karscheev, and A. A. Ilinskiy. Laser Remote Spectroscopy for Geological Exploration of Hydrocarbons Deposits. *Proc. SPIE*, 9274 :92741L, 2014.
- [11] M. E. Webber, M. Pushkarsky, and C. K. N. Patel. Optical Detection of Chemical Warfare Agents and Toxic Industrial Chemicals : Simulation. *J. Appl. Phys.*, 97(11), 2005.
- [12] C. W. Van Neste, L. R. Senesac, and T. Thundat. Standoff Spectroscopy of Surface Adsorbed Chemicals. *Anal. Chem.*, 81(5) :1952–1956, 2009.

- [13] J. Kadlčák. Contactless Monitoring of CWA in Free Atmosphere by TEA CO<sub>2</sub> Lidar. *Proceedings of the 5<sup>th</sup> International Symposium Protection Against Chemical and Biological Warfare Agents*, page 237, 1995.
- [14] P. Adam, J.-L. Duvent, and S. W. Gotoff. Detection and Reconnaissance of Pollutant Clouds by CO<sub>2</sub> Lidar (MIRELA). *Proceedings of SPIE*, 3127 :212–223, 1997.
- [15] D. B. Cohn, E. J. Griffin, L. F. Klaras, M. E. Ehritz, C. R. Swim, and J. A. Fox. WILDCAT Chemical Sensor Development. *Proc. SPIE*, 4378 :34–42, 2001.
- [16] A. Goyal, T. Myers, C. A. Wang, M. Kelly, B. Tyrrell, B. Gokden, A. Sanchez, G. Turner, and F. Capasso. Active Hyperspectral Imaging Using a Quantum Cascade Laser (QCL) Array and Digital-Pixel Focal Plane Array (DFPA) Camera. *Opt. Express*, 22(12) :14392–14401, 2014.
- [17] F. Fuchs, S. Hugger, J.-P. Jarvis, Q. K. Yang, F. Zaum, R. Ostendorf, C. Schilling, W. Bronner, R. Driad, R. Aidam, and J. Wagner. Standoff Trace Detection of Explosives with Infrared Hyperspectral Imagery. *Proc. SPIE*, 9467 :94672O, 2015.
- [18] N. A. Macleod, F. Molero, and D. Weidmann. Broadband Standoff Detection of Large Molecules by Mid-Infrared Active Coherent Laser Spectrometry. *Opt. Express*, 23(2) :912–928, 2015.
- [19] J. V. Cernius, D. A. Elser, and J. Fox. Remote Active Spectrometer. *Proc. SPIE*, 1062 :164–171, 1989.
- [20] S. Chandra, T. H. Allik, G. Catella, and J. A. Hutchison. Tunable Output Around 8  $\mu\text{m}$  from a Single Step AgGaS<sub>2</sub> OPO Pumped at 1.064  $\mu\text{m}$ . In *Advanced Solid State Lasers*, page FC15. Optical Society of America, 1998.
- [21] F. Ganikhanov, T. Caughey, and K. L. Vodopyanov. Narrow-Linewidth Middle-Infrared ZnGeP<sub>2</sub> Optical Parametric Oscillator. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(6) :818–822, 2001.
- [22] B. Boulanger and J. Zyss. *Nonlinear Optical Properties*, pages 178–219. Springer Netherlands, Dordrecht, 2006.
- [23] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan. Interactions Between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Phys. Rev.*, 127 :1918–1939, 1962.
- [24] R. W. Boyd. Chapter 2 - Wave-Equation Description of Nonlinear Optical Interactions. In Robert W. Boyd, editor, *Nonlinear Optics (Third Edition)*, pages 69 – 133. Academic Press, Burlington, third edition edition, 2008.
- [25] R. L. Byer and S. E. Harris. Power and Bandwidth of Spontaneous Parametric Emission. *Phys. Rev.*, 168 :1064–1068, 1968.
- [26] L. B. Kreuzer. Single Mode Oscillation of a Pulsed Singly Resonant Optical Parametric Oscillator. *Applied Physics Letters*, 15(8) :263–265, 1969.
- [27] D. Descloux, C. Laporte, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, C. Drag, and A. Godard. Spectrotemporal Dynamics of a Picosecond OPO Based on Chirped Quasi-Phase-Matching. *Opt. Lett.*, 40(2) :280–283, 2015.
- [28] E. Rosencher and C. Fabre. Oscillation Characteristics of Continuous-Wave Optical Parametric Oscillators : Beyond the Mean-Field Approximation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19(5) :1107–1116, 2002.

- [29] J. E. Bjorkholm and H. G. Danielmeyer. Frequency Control of a Pulsed Optical Parametric Oscillator by Radiation Injection. *Applied Physics Letters*, 15(6) :171–173, 1969.
- [30] B. Jacobsson, V. Pasiskevicius, F. Laurell, E. Rotari, V. Smirnov, and L. Glebov. Tunable Narrowband Optical Parametric Oscillator Using a Transversely Chirped Bragg Grating. *Opt. Lett.*, 34(4) :449–451, 2009.
- [31] P. Schlup, G. W. Baxter, and I. T. McKinnie. Single-Mode Near- and Mid-Infrared Periodically Poled Lithium Niobate Optical Parametric Oscillator. *Optics Communications*, 176(1) :267 – 271, 2000.
- [32] M. Wirth, A. Fix, P. Mahnke, H. Schwarzer, F. Schrandt, and G. Ehret. The Airborne Multi-Wavelength Water Vapor Differential Absorption Lidar WALES : System Design and Performance. *Applied Physics B*, 96(1) :201, 2009.
- [33] J. Bjorkholm, A. Ashkin, and R. Smith. Improvement of Optical Parametric Oscillators by Nonresonant Pump Reflection. *IEEE J. Quantum Electron.*, 6(12) :797–799, 1970.
- [34] A. Godard, M. Raybaut, and M. Lefebvre. *Nested Cavity Optical Parametric Oscillators – A Tunable Frequency Synthesizer for Gas Sensing*, chapter Environment : Trace Gas Monitoring. John Wiley & Sons, Ltd, 2006.
- [35] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre. High-Resolution Photoacoustic and Direct Absorption Spectroscopy of Main Greenhouse Gases by Use of a Pulsed Entangled Cavity Doubly Resonant OPO. *Appl. Phys. B*, 98(1) :217, 2010.
- [36] J. A. Giordmaine and Robert C. Miller. Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO<sub>3</sub> at Optical Frequencies. *Phys. Rev. Lett.*, 14(24) :973–976, 1965.
- [37] B. Scherrer, I. Ribet, A. Godard, E. Rosencher, and M. Lefebvre. Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators : demonstration of pulsed single-mode operation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(10) :1716, 2000.
- [38] B. Hardy-Baranski. *Façonnage du contenu spectral d’un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie*. Thèse, Ecole Polytechnique X, 2011.
- [39] J.P. Fève, B. Boulanger, and G. Marnier. Calculation and Classification of the Direction Loci for Collinear Types I, II and III Phase-Matching of Three-Wave Nonlinear Optical Parametric Interactions in Uniaxial and Biaxial Acentric Crystals. *Optics Communications*, 99(3) :284 – 302, 1993.
- [40] G. D. Boyd, E. Buehler, and F. G. Storz. Linear and Nonlinear Optical Properties of ZnGeP<sub>2</sub> and CdSe. *Applied Physics Letters*, 18(7) :301–304, 1971.
- [41] N. P. Barnes, K. E. Murray, M. G. Jani, P. G. Schunemann, and T. M. Pollak. ZnGeP<sub>2</sub> Parametric Amplifier. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15(1) :232–238, 1998.
- [42] V. Kemlin, D. Jegouso, J. Debray, E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, H. Ishizuki, T. Taira, G. Mennerat, J.-M. Melkonian, and A. Godard. Dual-Wavelength Source from 5%MgO :PPLN Cylinders for the Characterization of Nonlinear Infrared Crystals. *Opt. Express*, 21(23) :28886–28891, 2013.

- [43] G. C. Bhar. Refractive Index Interpolation in Phase-Matching. *Appl. Opt.*, 15(2) :305–307, 1976.
- [44] Yariv, A. and Yeh, P. *Optical Waves in Crystals : Propagation and Control of Laser Radiation*. Hoboken, 1984.
- [45] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer. Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation : Tuning and Tolerances. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(11) :2631–2654, 1992.
- [46] V. Pasiskevicius, G. Strömquist, F. Laurell, and C. Canalias. Quasi-Phase Matched Nonlinear Media : Progress Towards Nonlinear Optical Engineering. *Opt. Mater.*, 34(3) :513–523, 2012.
- [47] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe. First-Order Quasi-Phase Matched LiNbO<sub>3</sub> Waveguide Periodically Poled by Applying an External Field for Efficient Blue Second-Harmonic Generation. *Applied Physics Letters*, 62(5) :435–436, 1993.
- [48] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. W. Pierce. Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Oscillators in Bulk Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub>. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(11) :2102–2116, 1995.
- [49] D. A. Kleinman and R. C. Miller. Dependence of Second-Harmonic Generation on the Position of the Focus. *Phys. Rev.*, 148 :302–312, 1966.
- [50] O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie. Temperature and Wavelength Dependent Refractive Index Equations for MgO-doped Congruent and Stoichiometric LiNbO<sub>3</sub>. *Applied Physics B*, 91(2) :343–348, 2008.
- [51] D. E. Zelmon, D. L. Small, and D. Jundt. Infrared Corrected Sellmeier Coefficients for Congruently Grown Lithium Niobate and 5 mol. % MgO-doped Lithium Niobate. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(12) :3319–3322, 1997.
- [52] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, B. Ménaert, X. Cabirol, P. Villeval, and C. Bonnin. Relative Sign and Absolute Magnitude of  $d^{(2)}$  Nonlinear Coefficients of KTP from Second-Harmonic-Generation Measurements. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(5) :750–757, 1994.
- [53] K. Fradkin, A. Arie, A. Skliar, and G. Rosenman. Tunable Mid-Infrared Source by Difference Frequency Generation in Bulk Periodically Poled KTiOPO<sub>4</sub>. *Applied Physics Letters*, 74(7) :914–916, 1999.
- [54] E. Lallier, M. Brevignon, and J. Lehoux. Efficient Second-Harmonic Generation of a CO<sub>2</sub> Maser with a Quasi-Phase-Matched GaAs Crystal. *Opt. Lett.*, 23(19) :1511–1513, 1998.
- [55] A. Grisard, E. Lallier, and B. Gérard. Quasi-Phase-Matched Gallium Arsenide for Versatile Mid-Infrared Frequency Conversion. *Opt. Mater. Express*, 2(8) :1020–1025, 2012.
- [56] P. S. Kuo, K. L. Vodopyanov, M. M. Fejer, D. M. Simanovskii, X. Yu, J. S. Harris, D. Bliss, and D. Weyburne. Optical Parametric Generation of a Mid-Infrared Continuum in Orientation-Patterned GaAs. *Opt. Lett.*, 31(1) :71–73, 2006.

- [57] K. L. Vodopyanov, O. Levi, P. S. Kuo, T. J. Pinguet, J. S. Harris, M. M. Fejer, B. Gerard, L. Becouarn, and E. Lallier. Optical Parametric Oscillation in Quasi-Phase-Matched GaAs. *Opt. Lett.*, 29(16) :1912–1914, 2004.
- [58] J. Wueppen, S. Nyga, B. Jungbluth, and D. Hoffmann. 1.95  $\mu\text{m}$ -Pumped OP-GaAs Optical Parametric Oscillator with 10.6  $\mu\text{m}$  Idler Wavelength. *Opt. Lett.*, 41(18) :4225–4228, 2016.
- [59] T. Skauli, K. L. Vodopyanov, T. J. Pinguet, A. Schober, O. Levi, L. A. Eyres, M. M. Fejer, J. S. Harris, B. Gerard, L. Becouarn, E. Lallier, and G. Arisholm. Measurement of the Nonlinear Coefficient of Orientation-Patterned GaAs and Demonstration of Highly Efficient Second-Harmonic Generation. *Opt. Lett.*, 27(8) :628–630, 2002.
- [60] B. M. Gentry, H. Chen, and S. X. Li. Wind Measurements with 355-nm Molecular Doppler Lidar. *Opt. Lett.*, 25(17) :1231–1233, 2000.
- [61] P. Benoit. *Design and Fabrication of a Single-Frequency Raman Fiber Amplifier Operating at 1645 nm for Remote Methane Sensing by Lidar*. Thèse, Université des Sciences et Technologies de Lille 1, 2018.
- [62] D. K. Killinger, N. Menyuk, and W. E. DeFeo. Experimental Comparison of Heterodyne and Direct Detection for Pulsed Differential Absorption CO<sub>2</sub> Lidar. *Appl. Opt.*, 22(5) :682–689, 1983.
- [63] P. Drobinski, P. H. Flamant, and P. Salamitou. Spectral Diversity Technique for Heterodyne Doppler Lidar that Uses Hard Target Returns. *Appl. Opt.*, 39(3) :376–385, 2000.
- [64] G. J. Koch, J. Y. Beyon, B. W. Barnes, M. Petros, J. Yu, F. Amzajerdian, M. J. Kavaya, and U. N. Singh. High-Energy 2  $\mu\text{m}$  Doppler Lidar for Wind Measurements. *Opt. Eng.*, 46(11) :116201–116201–14, 2007.
- [65] A. Fix, C. Büdenbender, M. Wirth, M. Quatrevalet, A. Amediek, C. Kiemle, and G. Ehret. Optical Parametric Oscillators and Amplifiers for Airborne and Spaceborne Active Remote Sensing of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>. In *Proc. SPIE*, page 818206. OSA, 2011.
- [66] C. B. Carlisle, J. E. van derLaan, L. W. Carr, P. Adam, and J.-P. Chiaroni. CO<sub>2</sub> Laser-Based Differential Absorption Lidar System for Range-Resolved and Long-Range Detection of Chemical Vapor Plumes. *Appl. Opt.*, 34(27) :6187–6200, 1995.
- [67] C. Y. She, R. J. Alvarez, L. M. Caldwell, and D. A. Krueger. High-Spectral-Resolution Rayleigh–Mie Lidar Measurement of Aerosol and Atmospheric Profiles. *Opt. Lett.*, 17(7) :541–543, 1992.
- [68] US Army Contracting Command. <https://www.fbo.gov/index.php?s=opportunity&mode=form&id=2462064b214a543770c812725c34ccb4&tab=core&tabmode=list&=>, 2018.
- [69] E. Cadiou. *LIDAR DIAL multi espèces à base de sources paramétriques optiques pour la détection des gaz à effet de serre depuis l'espace*. Thèse, Ecole Polytechnique X, 2015.
- [70] Stand-Off Detector DD-CWA-SM, <http://www.gammatech.hu>.

- [71] W. B. Grant. He-Ne and CW  $CO_2$  Laser Long-Path Systems for Gas Detection. *Appl. Opt.*, 25(5) :709–719, 1986.
- [72] L. Halász, I. Pintér, and A. Solymár-szöcs. Remote Sensing in the Biological and Chemical Reconnaissance. *AARMS*, 1(1) :39–56, 2002.
- [73] A. Pal, C. D. Clark, M. Sigman, and D. K. Killinger. Differential Absorption Lidar  $CO_2$  Laser System for Remote Sensing of TATP Related Gases. *Appl. Opt.*, 48(4) :B145–B150, 2009.
- [74] A. Mukherjee, S. V. der Porten, and C. K. N. Patel. Standoff Detection of Explosive Substances at Distances of up to 150 m. *Appl. Opt.*, 49(11) :2072–2078, 2010.
- [75] J. R. Quagliano, P. O. Stoutland, R. R. Petrin, R. K. Sander, R. J. Romero, M. C. Whitehead, C. R. Quick, J. J. Tiee, and L. J. Jolin. Quantitative Chemical Identification of Four Gases in Remote Infrared (9–11 mm) Differential Absorption Lidar Experiments. *Appl. Opt.*, 36(9) :1915–1927, 1997.
- [76] K. M. Nowak, T. Suganuma, Y. Kurosawa, T. Ohta, Y. Kawasuji, H. Nakarai, T. Saitou, J. Fujimoto, H. Mizoguchi, A. Sumitani, and A. Endo. QCL Seeded, ns-Pulse, Multi-Line,  $CO_2$  Laser Oscillator for Laser-Produced-Plasma Extreme-UV Source. *Proc. SPIE*, 10254 :102540W–102540W–6, 2017.
- [77] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho. Quantum Cascade Laser. *Science*, 264(5158) :553–556, 1994.
- [78] C. Sirtori and R. Teissier. *Intersubband Transitions in Quantum Structures*, chapter Quantum Cascade Lasers : Overview of Basic Principles of Operation and State of the Art, pages 1–64. McGraw-Hill, New York, 2006.
- [79] Y. Yao, A. J. Hoffman, and C. F. Gmachl. Mid-Infrared Quantum Cascade Lasers. *Nat. Photonics*, 6(7) :432–439, 2012.
- [80] M. Razeghi, N. Bandyopadhyay, Y. Bai, Q. Lu, and S. Slivken. Recent Advances in Mid-infrared (3–5 $\mu$ m) Quantum Cascade Lasers. *Opt. Mater. Express*, 3(11) :1872–1884, 2013.
- [81] A. Lyakh, R. Maulini, A. Tsekoun, R. Go, and C. K. N. Patel. Multiwatt Long Wavelength Quantum Cascade Lasers Based on High Strain Composition with 70% Injection Efficiency. *Opt. Express*, 20(22) :24272–24279, 2012.
- [82] M. Troccoli, A. Lyakh, J. Fan, X. Wang, R. Maulini, A. G Tsekoun, R. Go, and C. K. N. Patel. Long-Wave IR Quantum Cascade Lasers for Emission in the  $\lambda=$  8-12  $\mu$ m Spectral Region. *Opt. Mater. Express*, 3(9) :1546–1560, 2013.
- [83] G. P. Luo, C. Peng, H. Q. Le, S. S. Pei, W.-Y. Hwang, B. Ishaug, J. Um, J. N. Baillargeon, and C.-H. Lin. Grating-Tuned External-Cavity Quantum-Cascade Semiconductor Lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 78(19) :2834–2836, 2001.
- [84] A. Hugi, R. Maulini, and J. Faist. External Cavity Quantum Cascade Laser. *Semicond. Sci. Technol.*, 25(8) :083001, 2010.
- [85] J. Faist, C. Gmachl, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, and A. Y. Cho. Distributed Feedback Quantum Cascade Lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 70(20) :2670–2672, 1997.

- [86] C. Gmachl, J. Faist, J. N. Bailargeon, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho. Complex-Coupled Quantum Cascade Distributed-Feedback Laser. *IEEE Photon. Technol. Lett.*, 9(8) :1090–1092, 1997.
- [87] M. Carras, M. Garcia, X. Marcadet, O. Parillaud, A. De Rossi, and S. Bansropun. Top Grating Index-Coupled Distributed Feedback Quantum Cascade Lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 93(1) :011109, 2008.
- [88] M. Carras, G. Maisons, B. Simozrag, M. Garcia, O. Parillaud, J. Massies, and X. Marcadet. Room-Temperature Continuous-Wave Metal Grating Distributed Feedback Quantum Cascade Lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 96(16) :161105, 2010.
- [89] S. Blaser, D. A. Yarekha, L. Hvozdar, Y. Bonetti, A. Muller, M. Giovannini, and J. Faist. Room-Temperature, Continuous-Wave, Single-Mode Quantum-Cascade Lasers at  $\lambda \simeq 5.4 \mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 86(4) :041109, 2005.
- [90] J. S. Yu, S. Slivken, S. R. Darvish, A. Evans, B. Gokden, and M. Razeghi. High-Power, Room-Temperature, and Continuous-Wave Operation of Distributed-Feedback Quantum-Cascade Lasers at  $\lambda \sim 4.8 \mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 87(4) :041104, 2005.
- [91] A. Wittmann, Y. Bonetti, M. Fischer, J. Faist, S. Blaser, and E. Gini. Distributed-Feedback Quantum-Cascade Lasers at  $9 \mu\text{m}$  Operating in Continuous Wave Up to 423 K. *IEEE Photon. Technol. Lett.*, 21(12) :814–816, 2009.
- [92] Q. Y. Lu, Y. Bai, N. Bandyopadhyay, S. Slivken, and M. Razeghi. 2.4 W Room Temperature Continuous-Wave Operation of Distributed Feedback Quantum Cascade Lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 98(18) :181106, 2011.
- [93] A. Wittmann, M. Giovannini, J. Faist, L. Hvozdar, S. Blaser, D. Hofstetter, and E. Gini. Room Temperature, Continuous-Wave Operation of Distributed Feedback Quantum Cascade Lasers With Widely Spaced Operation Frequencies. *Appl. Phys. Lett.*, 89(14) :141116, 2006.
- [94] P. Rauter and F. Capasso. Multi-Wavelength Quantum Cascade Laser Arrays. *Laser Photon. Rev.*, 9(5) :452–477, 2015.
- [95] M.F. Witinski, R. Blanchard, C. Pfüegl, L. Diehl, B. Li, K. Krishnamurthy, B. C. Pein, M. Azimi, P. Chen, G. Ulu, G. Vander Rhodes, C. R. Howle, L. Lee, R. J. Clewes, B. Williams, and D. Vakhshoori. Portable Standoff Spectrometer for Hazard Identification Using Integrated Quantum Cascade Laser Arrays From  $6.5$  to  $11 \mu\text{m}$ . *Opt. Express*, 26(9) :12159, 2018.
- [96] A. Hugi, R. Terazzi, Y. Bonetti, A. Wittmann, M. Fischer, M. Beck, J. Faist, and E. Gini. External Cavity Quantum Cascade Laser Tunable from  $7.6$  to  $11.4 \mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 95(6) :061103, 2009.
- [97] R. F. Curl, F. Capasso, C. Gmachl, A. A. Kosterev, B. McManus, R. Lewicki, M. Pusharsky, G. Wysocki, and F. K. Tittel. Quantum Cascade Lasers in Chemical Physics. *Chem. Phys. Lett.*, 487(1–3) :1–18, 2010.
- [98] L. Bizet, R. Vallon, B. Parvitte, M. Brun, G. Maisons, M. Carras, and V. Zeninari. Multi-Gas Sensing with Quantum Cascade Laser Array in the Mid-Infrared Region. *Applied Physics B*, 123(5) :145, 2017.

- [99] X. Cui, F. Dong, Z. Zhang, P. Sun, H. Xia, E. Fertein, and W. Chen. Simultaneous Detection of Ambient Methane, Nitrous Oxide, and Water Vapor Using an External-Cavity Quantum Cascade Laser. *Atmospheric Environment*, 189 :125 – 132, 2018.
- [100] X. Liu, C. W. Van Neste, M. Gupta, Y. Y. Tsui, S. Kim, and T. Thundat. Standoff Reflection–Absorption Spectra of Surface Adsorbed Explosives Measured with Pulsed Quantum Cascade Lasers. *Sens. Actuators B*, 191 :450–456, 2014.
- [101] C. W. Van Neste, L. R. Senesac, and T. Thundat. Standoff Spectroscopy of Surface Adsorbed Chemicals. *Anal. Chem.*, 81(5) :1952–1956, 2009.
- [102] C. W. Van Neste, L. R. Senesac, and T. Thundat. Standoff Photoacoustic Spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 92(23) :234102, 2008.
- [103] F. Fuchs, S. Hugger, M. Kinzer, R. Aidam, W. Bronner, R. Lösch, Q. Yang, K. Degreif, and F. Schnürer. Imaging Standoff Detection of Explosives Using Widely Tunable Mid-Infrared Quantum Cascade Lasers. *Opt. Eng.*, 49(11) :111127–111127, 2010.
- [104] M. E. Morales-Rodríguez, L. R. Senesac, T. Thundat, M. K. Rafailov, and P. G. Datskos. Standoff Imaging of Chemicals Using IR Spectroscopy. *Proc. SPIE*, 8031 :80312D, 2011.
- [105] A. K. Goyal, M. Spencer, M. Kelly, J. Costa, M. DiLiberto, E. Meyer, and T. Jeys. Active Infrared Multispectral Imaging of Chemicals on Surfaces. *Proc. SPIE*, 8018 :80180N, 2011.
- [106] R. Ostendorf, L. Butschek, A. Merten, J. Grahmann, J. Jarvis, S. Hugger, F. Fuchs, and J. Wagner. Real-Time Spectroscopic Sensing Using a Widely Tunable External Cavity-QCL with MOEMS Diffraction Grating. *Proc. SPIE*, 9755 :975507, 2016.
- [107] F. Guty, A. Grisard, C. Larat, D. Papillon, M. Schwarz, B. Gérard, R. Ostendorf, J. Wagner, and E. Lallier. High Peak-Power Laser System Tuneable from 8 to 10  $\mu\text{m}$ . *Advanced Optical Technologies*, 6(2) :95–101, 2017.
- [108] F. Guty, A. Grisard, C. Larat, D. Papillon, M. Schwarz, E. Lallier, H. D. Tholl, F. Münzhuber, J. Kunz, M. Raab, M. Rattunde, S. Hugger, M. Kastek, T. Piatkowski, F. Brygo, C. Awanzino, and F. Wilsenack. 100 W-Level Peak Power Laser System Tuneable in the LWIR Applied to Detection of Persistent Chemical Agents. *Proc. SPIE*, 10639 :106392E, 2018.
- [109] F. Wilsenack, A. Lorenzen, F. Brygo, C. Awanzino, F. Guty, A. Grisard, C. Larat, D. Papillon, M. Schwarz, E. Lallier, H. D. Tholl, F. Münzhuber, J. Kunz, M. Raab, M. Rattunde, S. Hugger, M. Kastek, and T. Piatkowski. First Results of a QCL-OPA Based Standoff System, for Detecting Hazardous Substances in the IR-Fingerprint Domain. *Proc. SPIE*, 10629 :10629 – 10629 – 12, 2018.
- [110] D. Mammez, C. Stoeffler, J. Cousin, R. Vallon, M.H. Mammez, L. Joly, B. Parvitte, and V. Zéninari. Photoacoustic Gas Sensing with a Commercial External Cavity Quantum Cascade Laser at 10.5  $\mu\text{m}$ . *Infrared Physics & Technology*, 61 :14 – 19, 2013.
- [111] Q. Hu, J. S. K. Lim, H. Liu, and Y. Fu. Photo-Vibrational Spectroscopy of Solid and Liquid Chemicals Using Laser Doppler Vibrometer. *Opt. Express*, 24(17) :19148–19156, 2016.



- [112] R. Furstenberg, C. A. Kendziora, J. Stepnowski, S. V. Stepnowski, M. Rake, M. R. Papantonakis, V. Nguyen, G. K. Hubler, and R. A. McGill. Standoff Detection of Trace Explosives via Resonant Infrared Photothermal Imaging. *Appl. Phys. Lett.*, 93(22) :224103, 2008.
- [113] C. A. Kendziora, R. Furstenberg, M. Papantonakis, V. Nguyen, J. Byers, and R. A. McGill. Detection of Trace Explosives on Relevant Substrates Using a Mobile Platform for Photothermal Infrared Imaging Spectroscopy (PT-IRIS). *Proc. SPIE*, 9467 :94672R, 2015.
- [114] N. A. Macleod, R. Rose, and D. Weidmann. Middle Infrared Active Coherent Laser Spectrometer for Standoff Detection of Chemicals. *Opt. Lett.*, 38(19) :3708–3711, 2013.
- [115] H. Ou, S. Dai, P. Zhang, Z. Liu, X. Wang, F. Chen, H. X., B. Luo, Y. Huang, and R. Wang. Ultrabroad Supercontinuum Generated from a Highly Nonlinear Ge–Sb–Se Fiber. *Opt. Lett.*, 41(14) :3201–3204, 2016.
- [116] B. Zhang, Y. Yu, C. Zhai, S. Qi, Y. Wang, A. Yang, X. Gai, R. Wang, Z. Yang, and B. Luther-Davies. High Brightness 2.2–12  $\mu\text{m}$  Mid-Infrared Supercontinuum Generation in a Nontoxic Chalcogenide Step-Index Fiber. *J. Am. Ceram. Soc.*, 99(8) :2565–2568, 2016.
- [117] Z. Zhao, X. Wang, S. Dai, Z. Pan, S. Liu, L. Sun, P. Zhang, Z. Liu, Q. Nie, X. Shen, and R. Wang. 1.5–14  $\mu\text{m}$  Mid-Infrared Supercontinuum Generation in a Low-Loss Te-based Chalcogenide Step-Index Fiber. *Opt. Lett.*, 41(22) :5222–5225, 2016.
- [118] T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi. Mid-Infrared Supercontinuum Generation Spanning 2.0 to 15.1  $\mu\text{m}$  in a Chalcogenide Step-Index Fiber. *Opt. Lett.*, 41(9) :2117–2120, 2016.
- [119] J. J. Pigeon, S. Ya. Tochitsky, C. Gong, and C. Joshi. Supercontinuum Generation from 2 to 20  $\mu\text{m}$  in GaAs Pumped by Picosecond  $\text{CO}_2$  Laser Pulses. *Opt. Lett.*, 39(11) :3246–3249, 2014.
- [120] A. G. Griffith, R. K. W. Lau, J. Cardenas, Y. Okawachi, A. Mohanty, R. Fain, Y. H. D. Lee, M. Yu, C. T. Phare, and C. B. Poitras. Silicon-Chip Mid-Infrared Frequency Comb Generation. *Nat. Commun.*, 6, 2015.
- [121] M. W. Todd, R. A. Provencal, T. G. Owano, B. A. Paldus, A. Kachanov, K. L. Vodopyanov, M. Hunter, S. L. Coy, J. I. Steinfeld, and J. T. Arnold. Application of Mid-Infrared Cavity-Ringdown Spectroscopy to Trace Explosives Vapor Detection Using a Broadly Tunable (6–8  $\mu\text{m}$ ) Optical Parametric Oscillator. *Appl. Phys. B : Lasers Opt.*, 75(2-3) :367–376, 2002.
- [122] T. H. Allik, S. Chandra, W. W. Hovis, C. G. Simi, and J. A. Hutchinson. Advances in Optical Parametric Oscillators with Application to Remote Chemical Sensing. *Proc. SPIE*, 3383 :58–64, 1998.
- [123] K. L. Vodopyanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback, and W. Ruderman. AgGaS<sub>2</sub> Optical Parametric Oscillator Continuously Tunable from 3.9 to 11.3  $\mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 75(1999) :1204–1206, 1999.

- [124] S. Chandra, T. H. Allik, G. Catella, R. Utano, and J. A. Hutchinson. Continuously Tunable, 6-14  $\mu\text{m}$  Silver-Gallium Selenide Optical Parametric Oscillator Pumped at 1.57  $\mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 71(5) :584–586, 1997.
- [125] V. Vaicikauskas, V. Kabelka, Z. Kuprionis, and M. Kaucikas. An OPO-Based Lidar System for Differential Absorption Measurements of Hazardous Gases in Mid-Infrared Spectral Region. *Proc. SPIE*, 5988 :5988 – 5988 – 6, 2005.
- [126] A. Tyazhev, D. Kolker, G. Marchev, V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin, and V. Petrov. Midinfrared Optical Parametric Oscillator Based on the Wide-Bandgap  $\text{BaGa}_4\text{S}_7$  Nonlinear Crystal. *Opt. Lett.*, 37(19) :4146–4148, 2012.
- [127] G. Marchev, A. Tyazhev, V. Petrov, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, G. Stöppler, and M. Eichhorn. Optical Parametric Generation in  $\text{CdSiP}_2$  at 6.125  $\mu\text{m}$  Pumped by 8 ns Long Pulses at 1064 nm. *Opt. Lett.*, 37(4) :740, 2012.
- [128] L. A. Pomeranz, P. G. Schunemann, D. J. Magarrell, J. C. McCarthy, K. Zawilski, and D. E. Zelmon. 1064-nm-pumped Mid-Infrared Optical Parametric Oscillator Based on Orientation-Patterned Gallium Phosphide (OP-GaP). In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page SW3O.4. OSA, 2015.
- [129] V. V. Badikov, D. V. Badikov, V. B. Laptev, K. V. Mitin, G. S. Shevyrdyaeva, N. I. Shchebetova, and V. Petrov. Crystal Growth and Characterization of New Quaternary Chalcogenide Nonlinear Crystals for the Mid-IR :  $\text{BaGa}_2\text{GeS}_6$  and  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ . *Opt. Mater. Express*, 6(9) :2933, 2016.
- [130] L. I. Isaenko and A. P. Yelissejev. Recent Studies of Nonlinear Chalcogenide Crystals for the Mid-IR. *Semicond. Sci. Technol.*, 31(12) :123001, 2016.
- [131] E. Lucas, L. Lombard, Y. Jaouën, S. Bordais, and G. Canat. 1 kW Peak Power, 110 ns Single-Frequency Thulium Doped Fiber Amplifier at 2050 nm. *Appl. Opt.*, 23(5) :4413–4419, 2014.
- [132] F. Gutty, A. Grisard, A. Joly, C. Larat, D. Papillon-Ruggeri, and E. Lallier. Multi-kW Peak Power Acousto-Optically Tunable Thulium-Doped Fiber Laser System. *Opt. Express*, 23(5) :6754–6762, 2015.
- [133] M. Yumoto, N. Saito, Y. Urata, and S. Wada. 128 mJ/Pulse, Laser-Diode-Pumped, Q-Switched Tm :YAG Laser. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 21(1) :364–368, 2015.
- [134] H. R. Lee, J. Yu, N. P. Barnes, and Y. Bai. An Injection-Seeded Narrow Linewidth Singly Resonant ZGP OPO. In *Advanced Solid-State Photonics*, page MC1. OSA, 2006.
- [135] Q. Clément, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, A. Grisard, E. Lallier, B. Gérard, B. Faure, G. Souhaité, and A. Godard. Longwave Infrared, Single-Frequency, Tunable, Pulsed Optical Parametric Oscillator Based on Orientation-Patterned GaAs for Gas Sensing. *Opt. Lett.*, 40(12) :2676–2679, 2015.
- [136] N. Simakov, A. Davidson, A. Hemming, S. Bennetts, M. Hughes, N. Carmody, P. Davies, and J. Haub. Mid-Infrared Generation in  $\text{ZnGeP}_2$  Pumped by a Monolithic, Power Scalable 2- $\mu\text{m}$  Source. *Proc. SPIE*, 8237 :82373K–82373K–6, 2012.

- [137] D. Creeden, M. Jiang, P. A. Budni, P. A. Ketteridge, S. D. Setzler, Y. E. Young, J. C. McCarthy, P. G. Schunemann, T. M. Pollak, P. Tayebati, and E. P. Chicklis. Thulium Fiber Laser-Pumped Mid-IR OPO. *Proc. SPIE*, 6952 :69520S–69520S–7, 2008.
- [138] C. Kieleck, A. Berrou, B. Donelan, B. Cadier, T. Robin, and M. Eichhorn. 6.5 W ZnGeP<sub>2</sub> OPO Directly Pumped by a Q-switched Tm<sup>3+</sup> Doped Single-Oscillator Fiber Laser. *Opt. Lett.*, 40(6) :1101–1004, 2015.
- [139] U. N. Singh, J. Yu, M. Petros, T. F. Refaat, R. G. Remus, J. J. Fay, and K. Reithmaier. Airborne 2-micron Double-Pulsed Integrated Path Differential Absorption Lidar for Column CO<sub>2</sub> Measurement. *Proc. SPIE*, 9246 :924602–924602–11, 2014.
- [140] S. Ishii, K. Mizutani, H. Fukuoka, T. Ishikawa, B. Philippe, H. Iwai, T. Aoki, T. Itabe, A. Sato, and K. Asai. Coherent 2  $\mu\text{m}$  Differential Absorption and Wind Lidar with Conductively Cooled Laser and Two-Axis Scanning Device. *Appl. Opt.*, 49(10) :1809–1817, 2010.
- [141] F. Gibert, D. Edouart, C. Cénac, and F. Le Mounier. 2- $\mu\text{m}$  High-Power Multiple-Frequency Single-Mode Q-switched Ho :YLF Laser for DIAL Application. *Appl. Phys. B*, 116(4) :967–976, 2014.
- [142] H. Fonnum, E. Lippert, and M. W. Haakestad. 550 mJ Q-switched Cryogenic Ho:YLF Oscillator Pumped with a 100W Tm :fiber Laser. *Opt. Lett.*, 38(11) :1884–1886, 2013.
- [143] G. Robertson, G. T. Maker, and G. P. A. Malcolm. Broadly Tunable Intracavity Zinc Germanium Phosphate Optical Parametric Oscillator for Hyperspectral Imaging. *Opt. Eng.*, 53 :063106, 2014.
- [144] Q. Chuan-Peng, Y.-J. Shen, B.-Q. Yao, X.-M. Duan, Y.-L. Ju, and Y.-Z. Wang. High Power Far-Infrared ZGP OPO Laser. In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page ATh3J.6. OSA, 2016.
- [145] A. Bakkland, H. Fonnum, E. Lippert, and M. W. Haakestad. Long-Wave Infrared Source with 45 mJ Pulse Energy Based on Nonlinear Conversion in ZnGeP<sub>2</sub>. In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, pages 25–26. OSA, 2016.
- [146] S. Chandra, M. Wager, B. Clayton, A. Geiser, T. H. Allik, J. L. Ahi, C. Miller, P. Budfj, P. Keueridge, K. Lanier, E. Chicklis, J. A. Hutchinson, and W. W. Hovis. 2- $\mu\text{m}$  Pumped 8-12  $\mu\text{m}$  OPO Source for Remote Chemical Sensing. *Proc. SPIE*, 4036(c) :200–208, 2000.
- [147] C. Kieleck, M. Eichhorn, A. Hirth, D. Faye, and E. Lallier. Orientation-Patterned GaAs Optical Parametric Oscillator Pumped by a 2  $\mu\text{m}$  Holmium Laser. *Opt. Lett.*, 34(3) :262–264, 2009.
- [148] A. Grisard, F. Guppy, E. Lallier, and B. Gérard. Compact Fiber Laser-Pumped Mid-Infrared Source Based on Orientation-Patterned Gallium Arsenide. *Proc. SPIE*, 7836 :783606–783607, 2010.
- [149] P. G. Schunemann, S. D. Setzler, L. Mohnkern, T. M. Pollak, D. F. Bliss, D. Weyburne, and K. O’Hearn. 2.05- $\mu\text{m}$ -Laser-Pumped Orientation-Patterned Gallium Arsenide (OP-GaAs) OPO. In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page CThQ4. OSA, 2005.

- [150] R. K. Feaver, R. D. Peterson, and P. E. Powers. Longwave-IR Optical Parametric Oscillator in Orientation-Patterned GaAs Pumped by a 2  $\mu\text{m}$  Tm:Ho:YLF Laser. *Opt. Express*, 21(13) :16104–16110, 2013.
- [151] P. G. Schunemann, L. A. Pomeranz, and D. J. Magarrell. First OPO Based on Orientation-Patterned Gallium Phosphide (OP-GaP). In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page SW3O.1. OSA, 2015.
- [152] T. H. Allik, J. L. Ahl, S. Chandra, J. A. Hutchinson, W. W. Hovis, J. Fox, and L. Newman. Refinements and Additional Characterization of an 8-12  $\mu\text{m}$  Tandem OPO Design. In *Advanced Solid State Lasers*, pages 2–5. OSA, 1999.
- [153] Y. Ehrlich, S. Pearl, and S. Fastig. High Brightness Tunable Tandem Optical Parametric Oscillator at 8-12  $\mu\text{m}$ . In *Advanced Solid State Photonics*, pages 8–10. OSA, 2004.
- [154] G. Rustad, S. Nicolas, E. Lippert, K. Stenersen, and G. Arisholm. Tuning and Dual Wavelength Operation of a ZGP OPO in the 8-11  $\mu\text{m}$  Range. *Advanced Solid-State Photonics*, page 333, 2003.
- [155] S. Haidar, K. Miyamoto, and H. Ito. Generation of Tunable Mid-IR (5.5-9.3  $\mu\text{m}$ ) from a 2- $\mu\text{m}$  Pumped ZnGeP<sub>2</sub> Optical Parametric Oscillator. *Opt. Commun.*, 241(1-3) :173–178, 2004.
- [156] M. Henriksson, M. Tiihonen, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. ZnGeP<sub>2</sub> Parametric Oscillator Pumped by a Linewidth-Narrowed Parametric 2  $\mu\text{m}$  Source. *Opt. Lett.*, 31(12) :1878–1880, 2006.
- [157] G. Stoeppler, N. Thilmann, V. Pasiskevicius, A. Zukauskas, C. Canalias, and M. Eichhorn. Tunable Mid-Infrared ZnGeP<sub>2</sub> RISTRA OPO Pumped by Periodically-Poled Rb:KTP Optical Parametric Master-Oscillator Power Amplifier. *Opt. Express*, 20(4) :4509, 2012.
- [158] K. L. Vodopyanov, I. Makasyuk, and P. G. Schunemann. Grating Tunable 4 - 14  $\mu\text{m}$  GaAs Optical Parametric Oscillator Pumped at 3  $\mu\text{m}$ . *Opt. Express*, 22(4) :4131–4136, 2014.
- [159] B. J. Orr and Y. He. Tunable Nonlinear-Optical Devices for Laser-Spectroscopic Sensing. *Proc. SPIE*, 7582(1) :75820J, 2010.
- [160] G. Bloom, A. Grisard, E. Lallier, C. Larat, M. Carras, and X. Marcadet. Optical Parametric Amplification of a Distributed-Feedback Quantum-Cascade Laser in Orientation-Patterned GaAs. *Opt. Lett.*, 35(4) :505–507, 2010.
- [161] Q. Clément, J.-M. Melkonian, J. Barrientos-Barria, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, and A. Godard. Tunable Optical Parametric Amplification of a Single-Frequency Quantum Cascade Laser Around 8  $\mu\text{m}$  in ZnGeP<sub>2</sub>. *Opt. Lett.*, 38(20) :4046–4049, 2013.
- [162] S. Nicolas, Ø. Nordseth, G. Rustad, and G. Arisholm. High-Energy Mid-IR Source Based on Two-Stage Conversion from 1.06  $\mu\text{m}$ . *Advanced Solid-State Photonics*, page 417, 2005.
- [163] T. Traub, G. Anstett, G. Goeritz, and J. L’huillier. 2.6  $\mu\text{m}$  to 12  $\mu\text{m}$  Tunable ZGP Parametric Master Oscillator Power Amplifier. *Proc. SPIE*, 9136 :913616, 2014.

- [164] M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A. K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, and P. Kaspersen. High-Energy Single-Longitudinal Mode Nearly Diffraction-Limited Optical Parametric Source with 3 MHz Frequency Stability for CO<sub>2</sub> DIAL. *Opt. Lett.*, 34(13) :2069–2071, 2009.
- [165] M. W. Haakestad, G. Arisholm, E. Lippert, S. Nicolas, G. Rustad, and K. Stenersen. High-Pulse-Energy 8  $\mu\text{m}$  Laser Source Based on Optical Parametric Amplification in ZnGeP<sub>2</sub>. *Opt. Express*, 6998(2027) :6–12, 2008.
- [166] J. Saikawa, M. Miyazaki, M. Fujii, H. Ishizuki, and T. Taira. High-Energy, Broadly Tunable, Narrow-Bandwidth Mid-Infrared Optical Parametric System Pumped by Quasi-Phase-Matched Devices. *Opt. Lett.*, 33(15) :1699–1701, 2008.
- [167] J. W. Haus, A. Pandey, and P. E. Powers. Boosting Quantum Efficiency Using Multi-Stage Parametric Amplification. *Opt. Commun.*, 269(2) :378–384, 2007.
- [168] G. Mennerat and P. Kupecek. High-Energy Narrow-Linewidth Tunable Source in the Mid Infrared. In *Advanced Solid State Lasers*, pages 15–18. OSA, 1998.
- [169] J. Armougom, J.-M. Melkonian, J.-B. Dherbercourt, M. Raybaut, A. Godard, R. S. Coetzee, A. Zukauskas, and V. Pasiskevicius. 70 mJ Single-Frequency Parametric Source Tunable Between 1.87-1.93  $\mu\text{m}$  and 2.37-2.47  $\mu\text{m}$  for Difference Frequency Generation in the LWIR. *2017 European Conference on Lasers and Electro-Optics and European Quantum Electronics Conference*, page CD P.32, 2017.
- [170] S.-C. Pei, S.-Y. Tu, and A. H. Kung. Mid-IR Generation by Difference Frequency Generation Mixing of Two Pulsed PPLN OPOs in ZnGeP<sub>2</sub>. In *Quantum Electronics and Laser Science Conference, 2005. QELS'05*, pages 791–793. OSA, 2005.
- [171] K. Kato. High-Power Difference-Frequency Generation at 5–11  $\mu\text{m}$  in AgGaS<sub>2</sub>. *IEEE J. Quantum Electron.*, 20(7) :698–699, 1984.
- [172] M. Gerhards. High Energy and Narrow Bandwidth Mid IR Nanosecond Laser System. *Opt. Commun.*, 241(4-6) :493–497, 2004.
- [173] H. Hazama, Y. Takatani, and K. Awazu. High Energy Pulsed Tunable Mid-Infrared Laser Aids Biomedical Applications. *Proc. SPIE*, 6455 :1–6, 2007.
- [174] A. Grisard, B. Faure, G. Souhaité, and E. Lallier. High Energy Single Frequency Passively Q-Switched 2  $\mu\text{m}$  Microlaser in Thulium-Doped Yttrium Aluminium Perovskite. *Advanced Solid State Lasers*, page ATu2A.39, 2014.
- [175] ISO 21254:2011 "Test Methods for Laser-Induced Damage Threshold". Technical report, International Organization for Standardization, Switzerland, Geneva, 2011.
- [176] B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre. Compact, Single-Frequency, Doubly Resonant Optical Parametric Oscillator Pumped in an Achromatic Phase-Adapted Double-Pass Geometry. *Opt. Lett.*, 36(5) :678–680, 2011.
- [177] S. L. Bartelt-Hunt, D. R. U. Knappe, and M. A. Barlaz. A Review of Chemical Warfare Agent Simulants for the Study of Environmental Behavior. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 38(2) :112–136, 2008.
- [178] P. S. Kuo, K. L. Vodopyanov, M. M. Fejer, X. Yu, J. S. Harris, D. Bliss, and D. Weyburne. GaAs Optical Parametric Oscillator with Circularly Polarized and Depolarized Pump. *Opt. Lett.*, 31(1) :71–73, 2007.

- [179] C. Kieleck, M. Eichhorn, D. Faye, E. Lallier, and S. D. Jackson. Polarization Effects and Fiber-Laser-Pumping of a 2  $\mu\text{m}$  Pumped OP-GaAs OPO. *Proc. SPIE*, 7582 :1–13, 2010.
- [180] C. Traum, P. L. Inácio, C. Félix, P. Segonds, A. Pe na, J. Debray, B. Boulanger, Y. Petit, D. Rytz, G. Montemezzani, P. Goldner, and A. Ferrier. Direct Measurement of the Dielectric Frame Rotation of Monoclinic Crystals as a Function of the Wavelength. *Opt. Mater. Express*, 4(1) :57–62, 2014.
- [181] B. Hardy, M. Raybaut, J. B. Dherbecourt, J. M. Melkonian, A. Godard, A. K. Mohamed, and M. Lefebvre. Vernier Frequency Sampling : A New Tuning Approach in Spectroscopy – Application to Multi-Wavelength Integrated Path DIAL. *Appl. Phys. B*, 107(3) :643–647, 2012.
- [182] R. T. White, Y. He, B. J. Orr, M. Kono, and K. G. H. Baldwin. Control of Frequency Chirp in Nanosecond-Pulsed Laser Spectroscopy. 1. Optical-Heterodyne Chirp Analysis Techniques. *J. Opt. Soc. Am. B*, 21(9) :1577–1585, 2004.
- [183] Cabaret, L. and Drag, C. Highly Scannable Injection Seeded Nanosecond Ti:Sapphire Ring Laser. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, 51(2) :20702, 2010.
- [184] J. A. Fox, C. R. Gautier, and J. L. Ahl. Practical Considerations for the Design of CO<sub>2</sub> Lidar Systems. *Appl. Opt.*, 27(5) :847–855, 1988.
- [185] Y. Liu, J. Lin, G. Huang, Y. Guo, and C. Duan. Simple Empirical Analytical Approximation to the Voigt Profile. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(5) :666–672, 2001.
- [186] J. Barrientos-Barria, D. Mammez, E. Cadiou, J. B. Dherbecourt, M. Raybaut, T. Schmid, A. Bresson, J. M. Melkonian, A. Godard, J. Pelon, and M. Lefebvre. Multispecies High-Energy Emitter for CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and H<sub>2</sub>O Monitoring in the 2  $\mu\text{m}$  Range. *Opt. Lett.*, 39(23) :6719–6722, 2014.
- [187] J.-W An, N Kim, and K.-W Lee. Volume Holographic Wavelength Demultiplexer Based on Rotation Multiplexing in the 90 Degree Geometry. *Optics Communications*, 197(4) :247 – 254, 2001.
- [188] V. A. Borgman, L. B. Glebov, N. V. Nikonorov, G. T. Petrovskii, V. V. Savvin, and A. D. Tsvetkov. Photothermal Refractive Effect in Silicate glasses. *Soviet Physics Doklady*, 34 :1011, 1989.
- [189] L. B. Glebov, V. I. Smirnov, C. M. Stickley, and I. V. Ciapurin. New Approach to Robust Optics for HEL Systems. *Proc. SPIE*, 4724 :4724 – 4724 – 9, 2002.
- [190] I. V. Ciapurin, L. B. Glebov, and V. I. Smirnov. Modeling of Gaussian Beam Diffraction on Volume Bragg Gratings in PTR Glass. *Proc. SPIE*, 5742 :5742 – 5742 – 12, 2005.
- [191] I. V. Ciapurin, L. B. Glebov, and V. I. Smirnov. Modeling of Phase Volume Diffractive Gratings, Part 1 : Transmitting Sinusoidal Uniform Gratings. *Optical Engineering*, 45 :45 – 45 – 9, 2006.
- [192] I. V. Ciapurin, V. Smirnov, D. R. Drachenberg, G. B. Venus, and L. B. Glebov. Modeling of Phase Volume Diffractive Gratings, Part 2 : Reflecting Sinusoidal Uniform Gratings, Bragg Mirrors. *Optical Engineering*, 51 :51 – 51 – 11, 2012.

- [193] S. Yiou, F. Balembois, P. Georges, and J.-P. Huignard. Improvement of the Spatial Beam Quality of Laser Sources With an Intracavity Bragg Grating. *Opt. Lett.*, 28(4) :242–244, 2003.
- [194] N. Vorobiev, L. Glebov, and V. Smirnov. Single-frequency-mode Q-switched Nd :YAG and Er:glass Lasers Controlled by Volume Bragg Gratings. *Opt. Express*, 16(12) :9199–9204, 2008.
- [195] L. Qian, W. Zhao, D. Ren, Y. Qu, Y. Liu, and Y. Bai. Passive Frequency Stabilization in Nd :YAG Pulse Laser Using Reflective Volume Bragg Grating. *Appl. Opt.*, 50(32) :6094–6097, 2011.
- [196] V. I. Smirnov I. V. Ciapurin, L. B. Glebov. Spectral Combining of High-Power Fiber Laser Beams Using Bragg Grating in PTR Glass. *Proc. SPIE*, 5335 :5335 – 5335 – 9, 2004.
- [197] A. Sevian, O. Andrusyak, I. Ciapurin, V. Smirnov, G. Venus, and L. Glebov. Efficient Power Scaling of Laser Radiation by Spectral Beam Combining. *Opt. Lett.*, 33(4) :384–386, 2008.
- [198] M. Hemmer, A. Vaupel, M. Wohlmuth, and M. Richardson. OPCPA Pump Laser Based on a Regenerative Amplifier with Volume Bragg Grating Spectral Filtering. *Applied Physics B*, 106(3) :599–603, 2012.
- [199] P. Blau, S. Pearl, S. Fastig, and R. Lavi. Single-Mode Operation of a Mid-Infrared Optical Parametric Oscillator Using Volume-Bragg-Grating Cavity Mirrors. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 44(9) :867–871, 2008.
- [200] M. Henriksson, L. Sjöqvist, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. Narrow Linewidth 2  $\mu\text{m}$  Optical Parametric Oscillation in Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub> with Volume Bragg Grating Outcoupler. *Applied Physics B*, 86(3) :497–501, 2007.
- [201] M. Henriksson, L. Sjöqvist, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. Mode Spectrum of Multi-Longitudinal Mode Pumped Near-degenerate OPOs with Volume Bragg Grating Output Couplers. *Opt. Express*, 17(20) :17582–17589, 2009.
- [202] N. Thilmann, B. Jacobsson, C. Canalias, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. A Narrowband Optical Parametric Oscillator Tunable Over 6.8 THz Through Degeneracy with a Transversely-chirped Volume Bragg Grating. *Applied Physics B*, 105(2) :239, 2011.
- [203] R. S. Coetzee, X. Zheng, L. Fregnani, F. Laurell, and V. Pasiskevicius. Narrowband, Tunable, 2  $\mu\text{m}$  Optical Parametric Master-Oscillator Power Amplifier with Large-Aperture Periodically Poled Rb :KTP. *Applied Physics B*, 124(6) :124, 2018.
- [204] M. Henriksson, M. Tiihonen, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. Mid-Infrared ZGP OPO Pumped by Near-Degenerate Narrowband Type-I PPKTP Parametric Oscillator. *Applied Physics B*, 88(1) :37–41, 2007.
- [205] T. Kleine-Ostmann and T. Nagatsuma. A Review on Terahertz Communications Research. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 32(2) :143–171, 2011.
- [206] J. Federici and L. Moeller. Review of Terahertz and Subterahertz Wireless Communications. *Journal of Applied Physics*, 107(11) :111101, 2010.

- [207] S. Nellen, B. Globisch, R. B. Kohlhaas, L. Liebermeister, and M. Schell. Recent Progress of Continuous-Wave Terahertz Systems for Spectroscopy, Non-Destructive Testing, and Telecommunication. *Proc.SPIE*, 10531 :10531 – 10531 – 8, 2018.
- [208] P.U. Jepsen, D.G. Cooke, and M. Koch. Terahertz Spectroscopy and Imaging – Modern Techniques and Applications. *Laser & Photonics Reviews*, 5(1) :124–166, 2011.
- [209] K. E. K. Coppin, J. E. Geach, Ian Smail, L. Dunne, A. C. Edge, R. J. Ivison, S. Maddox, R. Auld, M. Baes, S. Buttiglione, A. Cava, D. L. Clements, A. Cooray, A. Dariush, G. De Zotti, S. Dye, S. Eales, J. Fritz, R. Hopwood, E. Ibar, M. Jarvis, M. J. Michałowski, D. N. A. Murphy, M. Negrello, E. Pascale, M. Pohlen, E. Rigby, G. Rodighiero, D. Scott, S. Serjeant, D. J. B. Smith, P. Temi, and P. van der Werf. Herschel-Astrophysical Terahertz Large Area Survey : Detection of a Far-Infrared Population Around Galaxy Clusters. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 416(1) :680–688, 2011.
- [210] B. S. Williams. Terahertz Quantum-Cascade Lasers. *Nature Photonics*, 1 :517, 2007.
- [211] A. Crocker, H. A. Gebbie, M. F. Kimmitt, and L. E. S. Mathias. Stimulated Emission in the Far Infra-Red. *Nature*, 201 :250, 1964.
- [212] T.Y. Chang and T.J. Bridges. Laser Action at 452, 496, and 541  $\mu\text{m}$  in Optically Pumped  $\text{CH}_3\text{F}$ . *Optics Communications*, 1(9) :423 – 426, 1970.
- [213] A. Pagies, G. Ducournau, and J.-F. Lampin. Low-Threshold Terahertz Molecular Laser Optically Pumped by a Quantum Cascade Laser. *APL Photonics*, 1(3) :031302, 2016.





Julie Armougom

## Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques en bande III

**Résumé :** La spectrométrie laser d'absorption différentielle est une technique bien connue pour la détection à distance d'espèces chimiques dans l'atmosphère. À ce titre, la bande III qui s'étend entre 8 et 12  $\mu\text{m}$  est une région particulièrement intéressante, car les bandes d'absorption de nombreuses espèces chimiques y sont intenses et se recouvrent peu entre elles. Afin de détecter ces espèces à distance dans la bande III, il est nécessaire de disposer de sources dont le rayonnement est fin spectralement, largement accordable, et énergétique. Les sources basées sur l'optique non linéaire du second ordre constituent la seule technologie capable de répondre à ces besoins. Dans ce travail de thèse, nous présenterons des résultats expérimentaux portant sur deux architectures de sources paramétriques permettant d'émettre un rayonnement dans la bande III adapté à la spectrométrie différentielle en configuration lidar. La première architecture consiste à émettre un faisceau directement dans la bande III grâce au pompage de cristaux non linéaire par des sources laser à 2  $\mu\text{m}$ . La seconde architecture, consiste à amplifier les ondes signal et complémentaire issues d'un OPO à 2  $\mu\text{m}$ , avant de les convertir dans la bande III par différence de fréquences. Ces sources sont basées sur l'association de technologies émergentes et sont susceptibles d'offrir des solutions viables au manque de sources émettant dans la bande III.

**Mots-clés :** laser, optique non linéaire, oscillateur paramétrique optique, lidar, spectrométrie différentielle, détection à distance.

## New Optical Sources for Detection of Chemical Species in the LWIR

**Abstract :** Laser spectrometry by differential absorption is a well-known technique for standoff detection of chemical species in the atmosphere. The longwave infrared region (LWIR), ranging from 8 to 12  $\mu\text{m}$  is particularly interesting because the absorption bands of many chemical species are intense and non-overlapping. In order to detect those species in the LWIR, there is a need for sources that are spectrally narrow, widely tunable, and delivers high energies. The sources based on second order nonlinear optics are the only technology able to meet those requirements. In this work, we will present the experimental results on two parametric architectures that allows emission in the LWIR for lidar measurements. The first one consists in emitting a beam directly in the LWIR by pumping nonlinear crystals with 2  $\mu\text{m}$  pump lasers. The second architecture consists in amplifying the signal and idler beams coming from a 2  $\mu\text{m}$  OPO, before converting them into the LWIR by difference frequency generation. Those sources are based on the association of new technologies and have the potential to offer a viable solution to a lack of sources emitting in the LWIR.

**Keywords :** laser, nonlinear optics, optical parametric oscillator, lidar, differential spectrometry, standoff detection.