

Étude et développement d'un oscillateur paramétrique optique picoseconde rapidement accordable utilisant des cristaux à quasi-accord de phase apériodique: application à la détection de gaz par imagerie active

Guillaume Walter

▶ To cite this version:

Guillaume Walter. Étude et développement d'un oscillateur paramétrique optique picoseconde rapidement accordable utilisant des cristaux à quasi-accord de phase apériodique : application à la détection de gaz par imagerie active. Optique [physics.optics]. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASS046. tel-02886152

HAL Id: tel-02886152 https://theses.hal.science/tel-02886152

Submitted on 1 Jul2020

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.



Étude et développement d'un oscillateur paramétrique optique picoseconde rapidement accordable utilisant des cristaux à quasi-accord de phase apériodique - application à la détection de gaz par imagerie active

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°572 : Ondes et Matières (EDOM) Spécialité de doctorat : Lasers, molécules, rayonnement atmosphérique. Unité de recherche : Université Paris-Saclay, ONERA, Physique, Instrumentation, Environnement, Espace, 91120, Palaiseau Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse présentée et soutenue à l'École Polytechnique, le 26 février 2020, par

Guillaume WALTER

Composition du Jury

François BALEMBOIS Professeur, Laboratoire Charles Fabry Éric FREYSZ Directeur de recherche (HDR), Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine Patricia SEGONDS Professeure, Institut Néel Cyril DRAG Directeur de recherche, Laboratoire de Physique des Plasmas Antoine GODARD Directeur de recherche, ONERA

Président

Rapporteur & Examinateur

Rapporteure & Examinatrice

Directeur de thèse

Co-encadrant & Examinateur

NNT : 2020UPASS046

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





Thèse présentée pour obtenir le grade de **DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS SACLAY**

Spécialité : Physique

par

Guillaume WALTER

Étude et développement d'un oscillateur paramétrique optique picoseconde rapidement accordable utilisant des cristaux à quasi-accord de phase apériodique - application à la détection de gaz par imagerie active

Eric FREYSZ	Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine, Talence	Rapporteur
Patricia SEGONDS	Institut Néel, Grenoble	Rapporteur
François BALEMBOIS	Laboratoire Charles Fabry, Palaiseau	Examinateur
Cyril DRAG	Laboratoire Physique des Plasmas, Palaiseau	Directeur de thèse
Antoine GODARD	ONERA, Palaiseau	Encadrant ONERA



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 François Balembois, Eric Freysz et Patricia Segonds. J'ai eu la chance d'avoir été accueilli 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 Antoine Godard, Jean-Baptiste Dherbecourt, Jean-Michel Melkonian, Myriam Raybaut et sans oublier Rosa Santagata. Vous avez été une équipe formidable, et toujours à l'écoute, supportant plus ou moins sans mal mon humour et ma malchance légendaire. Merci également au trio de choc Florence Baumgartner, Jean-Pierre Faleni et Philippe Nicolas qui sont toujours là pour nous aider.

Le reste de l'équipe dirigée par Alexandre Bresson et communément appelée "atome froid" est contrairement à son nom très chaleureux et efficace : Brigitte Attal-Trétout, Johanna Barros, Yannick Bidel, Cédric Blanchard, Alexis Bonnin, Christophe Brossard, Malo Cadoret, Nelly Dorval, Hélène Lelièvre, Michael Scherman, Marie-Line Pacou, Gautier Vilmart, Nassim Zahzam. Une pensée aussi à Didier Henry, qui m'a grandement aidé pour l'utilisation de la caméra MIR, ce qui a été vitale pour cette thèse.

Antoine, je souhaite te remercier tout particulièrement pour ton soutien et de m'avoir débloqué tant de fois quand l'OPO faisait des siennes ou quand les cannelures ne voulaient pas nous expliquer d'où elles venaient. Je pense notamment au projet Taïwanais, où avec ton arrivé à Hsinchu, on a pu mettre rapidement en place un interféromètre simple mais fonctionnel (comme quoi la simplicité est souvent le plus efficace).

Je souhaiterais aussi exprimer ma profonde gratitude à mon directeur de thèse Cyril Drag. 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. Je pense que tu m'as bien enseigné comment mieux comprendre ma thèse en me posant des questions permettant de prendre du recul sur celle-ci. Ce parcours de pensées me servira je n'en doute pas, grandement dans l'avenir afin d'avoir une plus grande rigueur scientifique.

Je me dois également de saluer Delphine Descloux, la doctorante qui m'a précédé sur ce

projet et qui m'a enseigné toute sa thèse alors que j'étais en stage de fin d'étude et qu'elle devait rédiger son manuscrit.

De plus comme j'ai pris part à une belle aventure pendant 6 mois à Taiwan, dans le laboratoire HOPElab de Hsinchu, je me dois de saluer les collègues taiwanais, et notamment le professeur Huang. J'ai appris lors de ce séjour de nombreuses choses que ce soit au niveau théorique ou pratique, mais également une façon différente de faire de la recherche et d'appréhender un problème. De plus, l'accueil et la bienveillance des membres du laboratoire, envers un français parlant un mandarin à peine suffisant pour commander un café, ont fait de ces 6 mois un grand moment de cette thèse.

Une bonne thèse doit se faire avec de bons co-thésards. D'après cet adage, celle-ci fut exceptionnel puisque accompagnée de Thomas Hamoudi, un co-bureau d'une grande bonté et doté d'une grande poésie. À cela, s'est ajoutée la présence de Vincent Corbas, dont l'humour sans faille vous fait aimer les histoires belges et les nombreuses subtilités qui les composent. Jérémy Oudin vient compléter ce quatuor en nous poussant toujours vers l'excellence et la rigueur à toutes épreuves. Être membre d'un tel groupe de pensée nous a sans nul doute permis d'élever le niveau de nos thèses respectives, sous le regard bouche bée de nos encadrants. Je dois également citer Maxime Duquesnoy sorte de SLF (sans laboratoire fixe), qui au gré de ses envies venait nous conter les aventures de ses errances laborantines.

Je salue également les anciens thésards et nouveaux thésards, dont entre autres Julie Armougom, mon ancienne co-bureau, qui a bien voulu supporter pendant deux ans mes envies décoratives et humoristiques.

Je me dois de remercier mes amis de Rennes, qui ne m'ont pas totalement répudié malgré mon déplacement vers la capitale, je salue ainsi Matthieu et Kévin qui se sont égarés dans la biologie au grand dam de la physique.

Enfin je remercie toute ma famille, que ce soit mes grands-parents, mes parents, mais également mes frères et sœurs, qui m'ont bien aidé pendant ces trois ans et ce sont toujours intéressés à mes travaux de thèse (enfin plus ou moins).

Table des matières

Introduction

1	Concepts généraux et outils					
	Obje	Objectifs				
	1.1	Optiqu	ue paramétrique - Processus non linéaire d'ordre deux	18		
		1.1.1	Présentation des équations de conversion paramétrique	19		
		1.1.2	Le quasi-accord de phase	21		
		1.1.3	Oscillateur paramétrique optique	23		
		1.1.4	Condition de pompage synchrone	25		
	1.2	Élargi	ssement de la bande de gain d'un cristal non linéaire	26		
		1.2.1	Cristaux apériodiques large bande par retournement apériodique	27		
		1.2.2	Dimensionnement d'un cristal non linéaire accordable de 3 à 4 micromètres	29		
	1.3	Laser	de pompe Nd : YVO_4	34		
		1.3.1	Propriétés des lasers Nd : YVO4 utilisés	35		
		1.3.2	Mise en place de la caustique pompe	37		
	Synt	thèse .		40		
2	Caractéristiques générales d'un OPO picoseconde à pompage synchrone basé					
	sur un cristal APPLN					
	Obje	ectifs .		41		
	2.1	Matér	iel et méthodes	42		
		2.1.1	Détection d'impulsion par autocorrélation	42		
		2.1.2	Enregistrement de profil spectral tir à tir	42		
	2.2	Efficad	cité d'un OPO picoseconde non contraint	45		
		2.2.1	Présentation de la cavité OPO	45		
		2.2.2	Efficacité de conversion des différents réseaux	47		
		2.2.3	Comparaison avec les efficacités de conversion simulées	52		
	2.3	Impor	tance du synchronisme sur les propriétés de l'OPO non contraint	55		

		2.3.1	Influence du synchronisme sur l'efficacité de l'OPO	55
		2.3.2	Influence du synchronisme sur les propriétés spectrales de l'OPO	56
		2.3.3	Discussion sur les effets du synchronisme sur les propriétés de l'OPO	58
	2.4	Propr	iétés spectrales de l'OPO à forte puissance pompe	62
		2.4.1	Observations	62
		2.4.2	Effet THz cascade dans un OPO avec une forte puissance intracavité \therefore	64
	Synt	thèse .		69
3	Étu	de des	s propriétés spectrales spécifiques à un SPOPO picoseconde non	
	con	traint	basé sur un cristal APPLN	71
	Obj	ectifs .		72
	3.1	Étude	e expérimentale des cannelures spectrales	73
		3.1.1	Comportement spectral de l'OPO en fonction des puissances pompe et	
			du taux de chirp	73
		3.1.2	Comportement spectral de l'onde pompe	76
	3.2	Étude	e numérique des propriétés spectrales d'un OPO picoseconde non contraint	77
		3.2.1	Étude phénoménologique des facteurs influant les cannelures spectrales .	79
		3.2.2	Simulation de la dynamique spectrale des ondes paramétriques dans le	
			cristal	83
	3.3	Discus	ssion - Origine des cannelures spectrales	88
		3.3.1	Lien entre les évolutions des ondes paramétriques	89
		3.3.2	Hypothèse de processus SFG/DFG en cascade dans le réseau QPM chirpé	92
		3.3.3	Limites et validation de l'hypothèse de processus SFG/DFG en cascade .	94
	Synt	thèse .		97
4	Dét	ection	de gaz par imagerie active à l'aide d'un SPOPO contraint par un	
	VB	G intr	a-cavité	99
	Obj	ectifs .		99
	4.1	Matér	iel et méthode	100
		4.1.1	Réseau de Bragg en volume apériodique et condition de pompage synchrone	100
		4.1.2	Présentation des sources accordables pico- et femtosecondes dans le	
			moyen infrarouge	104
		4.1.3	Imagerie active de fuites de gaz dans le moyen infrarouge	105
	4.2	OPO	picoseconde contraint par un réseau de Bragg en volume chirpé	106
		4.2.1	Montage expérimental	106
		4.2.2	Comparaison des propriétés d'un SPOPO couplé par CVBG ou un miroir	
			plan	107

4.3	Accordabilité d'un OPO contraint par un VBG			
	4.3.1	Accordabilité statique	110	
	4.3.2	Accordabilité dynamique	113	
4.4	Imager	rie active d'une fuite de gaz à l'aide de l'OPO contraint par un VBG \ldots	115	
	4.4.1	Étude des bandes d'absorptions des gaz dans le MIR	115	
	4.4.2	Détection d'une fuite de N_2O par imagerie active $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	116	
	4.4.3	Discussions et perspectives	121	
Synt	thèse .		124	
Conclu	ision		125	

Α	Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal							
	de Niobate de Lithium							
	Objectifs	129						
	A.1 Présentation théorique de l'effet photoréfractif	131						
	A.2 Système d'écriture du réseau de Bragg	134						
	A.2.1 Montage expérimental	134						
	A.2.2 Affinement de la plage d'émission de la longueur d'onde	136						
	A.2.3 Modulation du faisceau laser d'écriture du réseau	138						
	A.2.4 Interféromètre de Mach-Zehnder	139						
	A.3 Montage de génération paramétrique.							
	A.4 Génération paramétrique et discussions							
	Synthèse							
в	Répartition dans l'impulsion des fréquences des spectres paramétriques	149						
С	C SPOPO contraint par un double passage dans un CVBG intracavité 151							
Bibliographie 157								

Table des matières

Introduction

Par sa capacité à détecter des gaz polluants ou à analyser l'atmosphère, la spectroscopie est une technique importante, qui répond à divers enjeux actuels, notamment en matière de diagnostic environnemental. La spectroscopie infrarouge exploite le fait que les molécules possèdent des fréquences spécifiques pour lesquelles elles tournent ou vibrent selon des niveaux d'énergie discrets (modes ro-vibratoires). Un nuage de gaz qui est traversé par un faisceau lumineux absorbe les photons dont l'énergie $\hbar\omega$ correspond aux modes ro-vibratoires de la molécule d'une espèce chimique contenue dans le nuage. Ces modes vibratoires s'étalent sur une large plage spectrale, dont le moyen infrarouge qui est communément défini comme allant de 3 à 8 μ m (soit de 1250 à 3333 cm⁻¹) [9]. Si les lasers émettant dans le proche infrarouge relèvent de techniques éprouvées, elles ne le sont pas autant dans le moyen infrarouge par manque de lasers solides pouvant osciller dans cette ba nde de longueur d'onde. Cette recherche de nouvelles sources suscite le développement de nouvelles architectures d'oscillateur opérant dans le moyen infrarouge. Cette bande spectrale est particulièrement intéressante pour la spectroscopie, à savoir la bande allant de 3 à 5 μ m : celle-ci est à la fois une fenêtre atmosphérique dans laquelle les faisceaux laser peuvent se propager avec une absorption minimale par les espèces gazeuses naturellement présentes dans l'atmosphère [40] et une région spectrale où de nombreuses espèces d'intérêt présentent des raies d'absorption bien différenciées. Les raies rovibrationnelles de différents gaz, notamment de gaz à effet de serre, se situent dans cette gamme. La Fig.1 indique les bandes d'absorption de différents gaz pouvant potentiellement être détectés grâce à des taux d'absorption importants : on citera notamment le protoxy de d'azote (N_2O) et le dioxy de carbone (CO_2) dont l'étude sera privilégiée par la suite.

Dans cette thèse, l'objectif est le développement d'une source cohérente afin de sonder les gaz possédant des bandes d'absorptions dans cette fenêtre atmosphérique. Or, afin de pouvoir étudier, avec une même source, plusieurs gaz différents, il est nécessaire de posséder une large bande de gain. Pour pouvoir discriminer les gaz étudiés, il nous est également important d'avoir une connaissance et un contrôle précis de la longueur d'onde générée. De plus, si l'accordabilité du dispositif a une vitesse assez importante, nous pouvons étudier dans une quasi-simultanéité différents gaz absorbant des longueurs d'onde couvertes par la large bande de gain de la source

cohérente.



Figure 1: Bande d'absorption de différents gaz dans la bande II dans le cas d'une longueur de traversée de 40 cm dans un mélange contenant le gaz étudié dans une proportion de 1/1000.

Il existe dans la littérature de multiples moyens pour couvrir l'infrarouge, comme schématisé sur la Fig.2, qui représente en gris la transmission atmosphérique afin de repérer les fenêtres atmosphériques. On voit que les technologies disponibles permettent de couvrir complètement la plage infrarouge. Évidemment, selon la plage spectrale de l'infrarouge, des différences majeures sont présentes en termes de performances et de maturité technologique des sources cohérentes. Ainsi, on voit qu'au delà de $3 \mu m$, les lasers solides sont peu nombreux à l'exception de lasers basés sur des cristaux amplificateurs en ZnSe : Fe²⁺ permettant d'obtenir une émission las er entre 4 et 5 μ m [70]. Les lasers semi-conducteurs permettent de couvrir la bande spectrale 3- $5\,\mu\mathrm{m}$ sur laquelle nous nous focalisons dans cette thèse : les lasers cascade interbande (ICL pour Interband Cascade Laser) permettent ainsi d'obtenir une puissance moyenne d'au moins 400 mW et une grande accordabilité à l'aide de couplage par cavité externe [59, 96, 95]. Une autre source cohérente pour couvrir les plages infrarouges est l'utilisation d'une source supercontinuum : on peut ainsi citer celle de Peterson et al. [78] ayant une couverture spectrale de $1.4 \text{ à } 13 \,\mu\text{m}$. Ce type de source permet de couvrir des spectres larges, mais comme les sources supercontinuum se basent sur des impulsions femtosecondes, elles génèrent des spectres larges. Une étude spectroscopique avec une source supercontinuum nécessite un détecteur avec une plage étroite de détection spectrale, ceci afin de pouvoir discriminer la longueur d'onde voulue. De plus, la puissance totale émise étant encore restreinte pour ces systèmes, la puissance disponible dans le canal spectral étroit de détection est limitée. Le moyen choisi dans cette thèse pour entreprendre des études spectroscopiques est au contraire d'utiliser un détecteur avec une large plage spectrale et d'utiliser un oscillateur délivrant un faisceau cohérent de faible largeur

Introduction

spectrale.

C'est pour développer une telle source cohérente que l'Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales (ONERA), notamment l'équipe Sources Laser et Métrologie (SLM) du Département PHY sigues instrumentation environnement espace (DPHY), a entrepris le développement de nouveaux Oscillateurs Paramétriques Optiques (OPO). Par un processus non linéaire de mélange à trois ondes, les OPO permettent de générer des fréquences optiques plus basses que celle incidente, permettant de couvrir le moyen infrarouge à partir de l'oscillation issue d'un laser proche infrarouge qui pompe un cristal non linéaire. Plus précisément, ce processus, que l'on nomme génération paramétrique, amplification paramétrique ou différence de fréquences (DFG pour difference frequency generation) selon le nombre d'ondes incidentes et leurs intensités relatives, permet de convertir un photon dit pompe de haute énergie, en une paire de photons signal et complémentaire qui sont différenciés (par convention) en désignant le photon signal comme celui de plus haute énergie ($\omega_s > \omega_c$). Pour renforcer le processus, le milieu non linéaire est situé dans une cavité optique résonnante, ce qui permet d'obtenir des efficacités de conversion conséquentes pouvant atteindre plusieurs dizaines de pourcents. Une différence majeure avec un laser conventionnel est qu'un OPO ne se base pas sur des transitions électroniques entre les niveaux d'énergie de l'atome, mais sur une conversion de fréquences hors résonance : il n'y a donc pas de stockage d'énergie mis en jeu dans le matériau. C'est pour cette raison que les OPO peuvent couvrir de larges bandes de longueur d'onde, car ils sont théoriquement limités uniquement par les plages d'absorption du cristal non linéaire utilisé. Ainsi, les cristaux non linéaires en niobate de lithium dopés en oxyde de magnésium (MgO :LiNbO₃), utilisés au cours de cette thèse, ont une plage de transmission s'étalant de 350 à 4500 nm [31], ce qui permet de couvrir la fenêtre atmosphérique souhaitée avec ce cristal.

Le principe de fonctionnement des OPO étant basé sur des conversions de fréquence, les propriétés des ondes générées dépendent des propriétés du laser de pompe, notamment ses propriétés en termes de puissance, de qualité de faisceau, de largeur spectrale et de durée d'impulsion. L'efficacité du processus non linéaire est directement reliée à l'intensité crête des ondes mises en jeu et donc dépend fortement de la durée des impulsions laser. C'est pourquoi il est courant de distinguer les systèmes en fonction du régime temporel de fonctionnement de la source de pompe : continu, nanoseconde, picoseconde, et femtoseconde. La très riche littérature scientifique relative aux OPO montre qu'il existe de multiples techniques permettant d'obtenir des sources variées en matière de durée d'impulsion et de profil spectral, ceci afin de répondre aux besoins d'analyse d'espèces gazeuses. Le régime picoseconde reste par contre assez peu exploité pour ces applications. Ce régime temporel permet pourtant d'obtenir un bon compromis entre les avantages et inconvénients inhérents aux régimes nano- et femtosecondes. Des impulsions picosecondes permettent ainsi d'obtenir des impulsions avec une finesse spectrale de l'ordre du cm⁻¹ [35, 82], inaccessible avec un régime femtoseconde et suffisante pour les appli-



Figure 2: Plages d'émissions de différentes sources cohérentes disponibles dans l'infrarouge, superposées avec la transmission atmosphérique (en gris).

cations, telle l'imagerie active de gaz à pression atmosphérique, qui ne nécessite pas une haute résolution spectrale. De plus, le régime picoseconde permet d'obtenir des taux de répétition et des puissances crêtes seuil plus basses que le régime nanoseconde grâce à la méthode de pompage synchrone ne nécessitant pas de reconstruire l'oscillation à chaque impulsion. Cela autorise l'obtention d'une accordabilité rapide grâce à sa cadence de plusieurs dizaines de mégahertz. À travers ces avantages, un OPO picoseconde constitue donc une bonne option pour des applications de spectroscopie de gaz multi-espèces (grâce à l'accordabilité rapide), tout en étant une source avec une puissance d'oscillation basse.

C'est pour ces raisons que l'ONERA a conceptualisé des OPO picosecondes depuis une dizaine d'années. Ainsi, cette thèse s'inscrit dans la suite de la thèse de Delphine Descloux (2016,[22]), qui elle-même prolongeait celle de Cédric Laporte (2014,[55]), elle même reliée à une partie des travaux de la thèse de Jean-Baptiste Dherbecourt (2011,[25]). Dans la thèse de ce dernier, une étude portait sur le développement d'un OPO picoseconde basé sur un cristal non linéaire en Zinc Germanium Phosphide (ZGP) possédant une bande de gain de 4 à 6 μ m. Le pompage de cet OPO était assuré par un autre OPO picoseconde possédant un cristal en niobate de lithium à retournement périodique de la polarisation (PPLN pour Periodically Poled Lithium Niobate) qui émet des longueurs d'onde de 1,85 à 2,55 μ m. Ce cristal à retournement périodique d'une vingtaine de millimètres a constitué la référence pour les travaux ultérieurs développés par C.Laporte (2014) et D.Descloux (2016), pour concevoir des cristaux non linéaires en niobate de lithium à retournement de polarisation apériodique (APPLN pour APeriodically Poled Lithium Niobate). L'apériodicité de ce retournement de polarisation permet d'élargir la bande de gain paramétrique de l'OPO picoseconde [16]. Ainsi, D.Descloux (2016) a montré

qu'un des cristaux APPLN développé permettait d'obtenir une largeur de 40 nm de la bande de gain de l'onde signal, ceci autour de 1470 nm, et pour l'onde complémentaire, une largeur de 275 nm autour de 3859 nm (ce qui équivaut à un intervalle de nombre d'onde de 185 cm⁻¹).

La thèse de D.Descloux a pour partie porté sur la caractérisation d'un OPO picoseconde reposant sur un cristal APPLN pour une cavité ne possédant aucun système de filtrage spectral interne ou externe à la cavité. En effet, il est vite apparu que le caractère picoseconde et la large bande de gain d'un tel OPO amenaient leur lot de singularités et de restrictions dont l'analyse détaillée restait à faire. On peut notamment citer la condition de synchronisme venant du fait que, les impulsions étant picosecondes, les impulsions signal et pompe doivent arriver en même temps en entrée du cristal non linéaire pour que l'impulsion signal résonnante dans la cavité soit ré-amplifiée à chaque tour de cavité : cela pose une condition d'égalité des longueurs optiques des cavités du laser de pompe et de l'OPO. D.Descloux a notamment démontré, par des analyses numériques et expérimentales, que lors de la construction de l'oscillation paramétrique, la longueur d'onde signal varie avec l'augmentation de la puissance intra-cavité. Sachant que chaque longueur d'onde signal est amplifiée dans une zone différente du cristal apériodique, cette variation de longueur d'onde signifie que des positions différentes du cristal sont sollicitées selon les puissances mises en jeu dans l'OPO.

Grâce à un tel cristal incorporé dans un OPO picoseconde, une accordabilité rapide de l'oscillateur a été obtenue en plaçant dans la cavité un réseau de diffraction en configuration Littrow : la longueur d'onde pouvant osciller dans la cavité est dépendante de l'angle d'incidence du faisceau sur ce réseau [23]. Ce dispositif permettant une vitesse d'accordabilité de 30 nm en $40 \ \mu$ s, a permis une étude de la concentration en N₂O dans une cellule de gaz en simple passage

Cette thèse a débuté lorsque D.Descloux terminait la sienne et nous nous sommes ensemble efforcés d'améliorer le dispositif d'accordabilité de l'OPO picoseconde en utilisant comme filtre spectral, non plus un réseau de diffraction, mais un réseau de Bragg en volume chirpé (CVBG pour *Chirped Volume Bragg Grating*). Le CVBG est un verre où est inscrit un réseau de Bragg apériodique : la longueur d'onde réfléchie par le réseau dépend linéairement de la position dans le matériau. En déplaçant ce réseau autour de la position permettant de respecter la condition de synchronisme, nous modifions alors la longueur d'onde réfléchie et amplifiée. Ce dispositif permet de garder constante la direction axiale du faisceau signal lors de la modification de la longueur d'onde et ainsi d'éviter de perturber sa caustique et par répercussion ses performances spectrales. L'OPO ainsi développé permet de balayer plus de 80% de la bande de gain disponible avec une vitesse d'accordabilité du complémentaire de 150 nm en 100 μ s [24], ce qui en fait l'outil idéal pour la détection de gaz par imagerie active.

La détection de gaz par imagerie active est une technique de spectroscopie consistant à filmer (dans notre cas avec une caméra moyen-infrarouge) un environnement que l'on vient illuminer avec le faisceau complémentaire extrait de l'OPO accordable : en éclairant la scène avec une

Introduction

longueur d'onde absorbée par le gaz étudié, celui-ci devient opaque à la caméra. Cette opacité est plus ou moins importante selon la concentration locale du gaz, ce qui permet de mettre sa présence en évidence et éventuellement de le quantifier avec une caméra.

Ce manuscrit est divisé en quatre chapitres. Le chapitre 1 présente en premier lieu les principes théoriques permettant la compréhension des phénomènes physiques se produisant dans les OPO picosecondes, et ensuite les caractéristiques des cristaux APPLN et des lasers de pompe Nd :YVO₄. Le chapitre 2 vise à compléter les études initiées par D.Descloux (2016) pour caractériser un OPO picoseconde basé sur des cristaux APPLN sans filtrage spectral. L'accent est mis sur l'étude expérimentale des efficacités de conversion des réseaux APPLN et des possibilités pour l'augmenter cette efficacité. Des comparaisons avec des calculs numériques sont faites, afin de valider les résultats obtenus. Suite à cela, le chapitre porte sur la dépendance des propriétés spectro-temporelles de l'OPO en fonction du synchronisme. Ce second chapitre se clôture sur l'étude des propriétés spectrales de l'OPO picoseconde à forte puissance de pompe où on observe l'apparition de pics secondaires éloignés d'environ 10 et 21 nm du pic signal principal. Ces pics pouvant dépasser en puissance de plusieurs décibels le pic principal, il est primordial d'en comprendre l'origine physique et leurs implications.

Le chapitre 3 porte exclusivement sur l'étude spectrale d'un OPO picoseconde large bande sans filtrage intracavité. En effet, dès le seuil d'oscillation franchi, on observe un spectre cannelé constitué d'un pic principal et d'une succession de pics latéraux situés sur un seul côté du pic principal. Selon le signe du chirp du cristal APPLN, ces cannelures ne se situent pas du même côté du pic principal. Ces propriétés spectrales apparaissent comme spécifiques aux SPOPO picoseconde basés sur un cristal à retournement apériodique de polarisation et n'ont pas été rapportées dans la littérature. Pour comprendre l'origine de ces modulations spectrales, l'étude est menée en plusieurs étapes : (i) une étude expérimentale permet de dégager les facteurs influençant l'apparition et le maintien du profil spectral cannelé, (ii) une étude numérique pour extraire de nouvelles informations sur les cannelures et leurs origines, (iii) en se focalisant particulièrement sur l'évolution de la génération paramétrique lors du passage des faisceaux dans le cristal non linéaire. Cela permet de proposer une hypothèse sur l'origine du spectre signal cannelé.

Le chapitre 4 présente l'utilisation d'un CVBG pour contraindre la longueur d'onde de l'OPO picoseconde. Après avoir démontré que l'utilisation du CVBG filtre efficacement les pics secondaires et cannelures observés précédemment, nous étudions les efficacités de conversion d'un tel système. Suite à cela, nous étudions l'accordabilité du système pour une variation de sa longueur d'onde pas à pas ou continue. Cet OPO accordable est utilisé comme une source moyen-infrarouge pour une détection d'une fuite de gaz de protoxyde d'azote (N₂O) par imagerie active.

Outre ces chapitres portant sur le développement d'un OPO picoseconde ayant une large

bande de gain, a également été entrepris dans cette thèse des travaux d'une toute autre nature. L'annexe A synthétise ces travaux conduits pendant six mois au laboratoire *High energy OPtic* and Electronics (HOPElab) de la National Tsing Hua University (NTHU) située dans la ville de Hsinchu à Taïwan. Ces travaux ont été réalisés dans le cadre d'une collaboration internationale associant plusieurs laboratoires. Dans un objectif de miniaturisation d'un OPO, nous proposons l'écriture d'un réseau de Bragg dans un cristal non linéaire : le réseau de Bragg permet d'obtenir un mode d'oscillation unique indépendant de la température et de s'affranchir de miroirs de cavité. Ces travaux n'ayant qu'un lien très relatif avec ceux entrepris à l'ONERA, il est plus judicieux de présenter les résultats obtenues séparément afin d'éviter toute confusion.

Le manuscrit se clôture par une conclusion générale présentant le bilan de ces travaux et dressant des perspectives. Deux annexes viennent enfin compléter le document.

Introduction

Chapitre 1

Concepts généraux et outils

Objectifs

Un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) est une source cohérente qui repose sur des interactions non linéaires d'ordre deux. Un OPO permet l'obtention de longueurs d'onde dans des plages de fréquence difficilement accessibles avec des lasers, dont les longueurs d'onde produites dépendent des transitions électroniques des milieux amplificateurs. Ce chapitre introductif décrit tout d'abord les outils théoriques de l'optique paramétrique et permet la compréhension des paramètres physiques entrant en jeu dans les OPO. En particulier, nous étudions les caractéristiques de ces sources dans le régime temporel picoseconde devant vérifier une condition de synchronisme. Nous avons aussi développé et utilisé des cristaux non linéaires originaux que nous présentons : il s'agit de cristaux à retournement apériodique de leur polarisation. Du fait de cette apériodicité, ils présentent une bande de gain paramétrique élargie. Ce chapitre se conclue par la présentation des lasers de pompe nécessaires à l'oscillation paramétrique dans les OPO picosecondes développés.

1.1 Optique paramétrique - Processus non linéaire d'ordre deux

Les phénomènes d'optique non linéaire se produisent dès qu'une onde électromagnétique intense se propage dans un milieu, le champ électrique de l'onde modifiant la polarisation du matériau qui va en retour rayonner un champ électromagnétique. En plus du terme linéaire usuel $P_{linéaire}$ qui rayonne un champ à la même fréquence que celle incidente, la polarisation du matériau s'écrit comme un développement en puissance du champ électrique : $P = P_{linéaire} +$ $P_{non linéaire} = P^{(1)} + \left[P^{(2)} + P^{(3)} + \dots + P^{(n)}\right]$, où $P^{(n)}$ est la polarisation d'ordre n, polarisation qui dépend de E^n . $P_{non linéaire}$ pourra être considérée non-nulle uniquement si l'amplitude du champ électrique E de l'onde électromagnétique incidente est non négligeable, condition qui peut être satisfaite avec un laser. La polarisation à l'ordre n peut se définir comme $P^{(n)}$ = $\epsilon_0 \chi^{(n)} : E^n$, où ϵ_0 est la constante de permittivité du vide, et $\chi^{(n)}$ est le tenseur de susceptibilité non linéaire d'ordre n du matériau. La polarisation d'ordre trois, est un phénomène important à l'origine entre autres de la diffusion Raman ou de l'effet Kerr, toutefois elle peut être considérée négligeable si la polarisation d'ordre deux est non nulle, sous réserve que le champ appliqué ne soit pas trop intense et qu'on se situe hors résonances du matériau (comme ce le sera par la suite). Pour que la polarisation d'ordre deux soit non nulle, il est nécessaire que le matériau traversé soit non-centrosymétrique [9], c'est-à-dire qu'il s'agisse d'un matériau dont la structure cristalline ne possède pas de centre d'inversion. Ce type de cristal sera utilisé tout au long de cette thèse, la polarisation non-linéaire résultante permettant la conversion de fréquence dans un mélange à trois ondes, conversion dite paramétrique.

 $P^{(2)}$ dépendant du carré du champ électrique traversé, il a fallu attendre l'invention du laser de Maiman [62] en 1960, pour avoir un outil avec une puissance optique assez élevée pour permettre la première conversion paramétrique. Dès 1961, Franken *et al.* [28] ont, à l'aide d'un laser à rubis, réussi à effectuer un doublage de fréquence dans un morceau de quartz. Toutefois, cette première démonstration présentait une efficacité de conversion très faible car la condition d'accord de phase n'était pas vérifiée entre l'onde fondamentale et le second harmonique. Cette limitation a été dépassée en 1962 par Giordmaine [32] et Maker [63] qui ont utilisé la différence d'indice de réfraction en fonction de la polarisation dans un matériau biréfringent pour satisfaire la condition d'accord de phase. Un autre article important dans l'histoire de l'optique nonlinéaire est celui de Armstrong et Bloembergen en 1962 [5], qui finit de poser l'essentiel des équations et des principes encore utilisés aujourd'hui.

Dans cette partie du manuscrit, nous présentons les équations issues de ces travaux permettant la compréhension des processus paramétriques ayant lieu dans un oscillateur paramétrique optique (OPO), utilisé tout au long de ce travail.

1.1.1 Présentation des équations de conversion paramétrique

Afin de décrire l'évolution d'un champ électrique \overrightarrow{E} dans un milieu non linéaire et les phénomènes de conversion paramétrique associés, il est nécessaire de débuter le développement mathématique à partir des équations de Maxwell. Ainsi, en considérant une onde plane se propageant selon l'axe optique z et en prenant le rotationnel de l'équation de Maxwell-Faraday $(\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{E} = -\frac{\partial \overrightarrow{B}}{\partial t})$ couplée à l'équation de Maxwell-Ampère $(\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{B} = \mu_0(\frac{\partial \overrightarrow{P}}{\partial t} + \varepsilon_0 \frac{\partial \overrightarrow{E}}{\partial t}))$, on obtient :

$$\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{E} = -\frac{\partial (\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{B})}{\partial t} = -\mu_0 (\frac{\partial^2 \overrightarrow{P}}{\partial t^2} + \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{E}}{\partial t^2})$$
(1.1)

où μ_0 est la constante magnétique reliée à la vitesse de la lumière dans le vide par : $\mu_0 \varepsilon_0 = c^{-2}$, avec ε_0 la permittivité diélectrique du vide. Le premier terme de l'Éq.1.1 peut être simplifié en utilisant l'équation de Maxwell-Gauss ($\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} = 0$) qui est nulle dans un milieu sans source de charge :

$$\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{E} = \overrightarrow{\nabla} (\overrightarrow{\nabla} . \overrightarrow{E}) - \nabla^2 \overrightarrow{E} = -\nabla^2 \overrightarrow{E}$$

On suppose alors pour l'Éq.1.1 une interaction colinéaire dans l'approximation des ondes planes; de plus en négligeant les effets d'anisotropie (le tenseur $\chi^{(2)}$ est diagonal) et en se plaçant dans une zone de transparence du milieu (les éléments de $\chi^{(2)}$ sont réels), on obtient finalement l'équation d'onde :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = +\mu_0 \frac{\partial^2 (P^{(1)} + P^{(2)})}{\partial t^2} \Leftrightarrow \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1 + \chi^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P^{(2)}}{\partial t^2} \tag{1.2}$$

Si $P^{(2)}$ est nulle, l'Éq.1.2 correspond à l'équation de Helmholtz dans un milieu d'indice de réfraction n, ce qui nous permet de déduire que $n^2 = 1 + \chi^{(1)}$. Si $P^{(2)}$ est non-nulle, il constitue, comme démontré par la suite, le terme source à l'origine de nouvelles fréquences.

Mélange non linéaire à trois ondes

Soit deux ondes planes de pulsations respectives ω_1 et ω_2 (en supposant $\omega_1 < \omega_2$) incidentes sur un milieu non linéaire non-centrosymétrique. On définit les champs électriques de ces ondes comme :

$$E_1(z,t) = \frac{1}{2} \left(A_1(z,t) e^{-j\omega_1 t} + c.c \right)$$
(1.3)

$$E_2(z,t) = \frac{1}{2} \left(A_2(z,t) e^{-j\omega_2 t} + c.c \right)$$
(1.4)

Où c.c est le complexe conjugué. Le mélange non linéaire de ces champs induit un terme de polarisation non linéaire $P^{(2)}$ valant :

$$P^{(2)}(z,t) = \varepsilon_0 \chi_{eff}^{(2)} : E_1(z,t) E_2(z,t)$$

$$P^{(2)}(z,t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi_{eff}^{(2)} : A_1(z) A_2(z) e^{-j(\omega_1 + \omega_2)} + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi_{eff}^{(2)} : A_1^*(z) A_2(z) e^{-j(\omega_1 - \omega_2)} + \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi_{eff}^{(2)} : A_1(z) A_2(z) e^{-2j\omega_1 t} + c.c + \dots$$

Chacun des termes de la polarisation non linéaire produit de nouvelles ondes à des fréquences $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 + \omega_2$, et $\omega_2 - \omega_1$ ou de la rectification optique $\omega_1 - \omega_1$. Du fait de la polarisation $P^{(2)}$, nous avons de fait un mélange non linéaire à trois ondes : les deux ondes originales et l'onde obtenue par génération paramétrique. Ces générations de fréquence sont de plusieurs sortes, telles que : (i) la génération de différence de fréquences (DFG pour *Difference frequency generation*) $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ et $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$; (ii) la génération de somme de fréquences (SFG pour *Sum-Frequency Generation*) $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. En émettant certaines hypothèses simplificatrices usuelles (enveloppes lentement variables, ondes planes, etc.), on peut résoudre l'Éq.1.2 et obtenir le système d'équations couplées suivant [25] :

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,1}} \frac{\partial A_1}{\partial t} + i \frac{\beta_1}{2} \frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} = \frac{-j\omega_1}{2n_1 c} \chi_{eff}{}^{(2)} A_3 A_2^* e^{(+j\Delta kz)}$$
(1.5)

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} + \frac{1}{\upsilon_{g,2}} \frac{\partial A_2}{\partial t} + i \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A_2}{\partial t^2} = \frac{-j\omega_2}{2n_2c} \chi_{eff}{}^{(2)} A_3(z) A_1^*(z) e^{(+j\Delta kz)}$$
(1.6)

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} + \frac{1}{\upsilon_{g,3}} \frac{\partial A_3}{\partial t} + i \frac{\beta_3}{2} \frac{\partial^2 A_3}{\partial t^2} = \frac{-j\omega_3}{2n_3c} \chi_{eff}^{(2)} A_3(z) A_2(z) e^{(-j\Delta kz)}$$
(1.7)

où pour $j = \{1, 2, 3\}$ les termes :

$$\frac{1}{v_{q,j}}\frac{\partial A_j}{\partial t} + i\frac{\beta_j}{2}\frac{\partial^2 A_j}{\partial t^2}$$

permettent la prise en compte des effets de dispersion dans le cristal non linéaire; ces effets sont introduits en considérant le développement limité du vecteur d'onde k_j autour de la porteuse ω_j du champ électrique, donnant la vitesse de groupe de l'impulsion $v_{g,j}$ et la dispersion de cette vitesse de groupe $\beta_j = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}$, définie comme :

$$\upsilon_{g,j} = c \left[n_0 - \lambda_0 \frac{\partial n}{\partial \lambda} \right]^{-1}
\beta_0 = \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2}$$
(1.8)

La vitesse de groupe intervient dans la prise en compte du décalage temporel entre les ondes lors de leur propagation dans le cristal non linéaire. La dispersion de la vitesse de groupe décrit les effets d'étalement en fréquence des impulsions pendant leur propagation dans le milieu; ce terme n'est significatif que pour des impulsions sub-picosecondes ayant des largeurs spectrales de plusieurs centaines de cm⁻¹ [86].

1.1.2 Le quasi-accord de phase

Le terme Δk présent dans les équations couplées (Éq.1.5-1.7) correspond au désaccord de phase défini par :

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 2\pi \left(\frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_1}{\lambda_1}\right)$$
(1.9)

où n_j est l'indice de réfraction de l'onde j. Afin de comprendre l'importance de ce désaccord de phase, considérons le cas particulier d'un processus de différence de fréquence $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$, en supposant une non-déplétion des ondes ω_2 et ω_3 à chaque position z dans le cristal (soit $A_2(z) = A_2(0) \equiv A_2$ et $A_3(z) = A_3(0) \equiv A_3$). Dans ce cas, nous pouvons résoudre l'Éq.1.5 décrivant l'évolution $A_1(z)$ en fonction de la position dans le cristal :

$$A_1(z) = -\frac{j\omega_1}{2n_1c} \mathcal{X}_{eff}^{(2)} E_2^* E_3 \frac{\sin(\Delta kz/2)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)} \times exp\left(\frac{-j\Delta kz}{2}\right)$$
(1.10)

Sachant que l'intensité d'une onde dépend de la valeur du champ électrique $I = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c|E|^2$, nous pouvons écrire l'intensité de l'onde ω_1 en fonction de la position z dans le milieu non linéaire comme :

$$I_1(z) = \left(\frac{\omega_1}{n_1 c} \mathbf{X}_{eff}^{(2)}\right)^2 \frac{I_3 I_2}{2\varepsilon_0 c} z^2 sinc^2 \left(\frac{\Delta k z}{2}\right)$$
(1.11)

Cette équation nous informe que l'intensité issue d'un mélange non linéaire quadratique est le produit des intensités des deux ondes incidentes. De plus, si l'accord de phase n'est pas atteint (soit $\Delta k \neq 0$), l'intensité suit une évolution sinusoïdale avec des cycles d'interférences constructifs et destructifs, le maximum étant atteint tous les $z_m = \frac{q\pi}{\Delta k} \equiv q\Lambda_c$, où Λ_c est appelé longueur de cohérence (et q est un entier). Cette dépendance au terme Δk sera présente même sans les hypothèses simplificatrices employées ici, telle que celle de non-déplétion des ondes. Afin d'obtenir une conversion paramétrique efficace, il est donc nécessaire d'avoir un accord de phase exact. Pour cela, deux techniques sont largement utilisées : la première consiste à utiliser des matériaux biréfringents, la seconde, utilisée au cours de cette thèse, est d'obtenir un quasi-accord de phase (QPM pour *Quasi-Phase Matching*).

La technique de quasi-accord de phase consiste en une compensation périodique du déphasage accumulé entre les ondes lors de leur propagation dans un milieu non linéaire, par une inversion de la polarisation non linéaire du milieu [27]. L'inversion de polarité du matériau fait alterner le signe de $\chi_{eff}^{(2)}$, ce qui revient à induire un basculement de π à la phase relative et ce à chaque longueur de cohérence, soit avant que les interférences ne deviennent destructives. Les ondes sont ainsi remises périodiquement en phase, ce qui permet à l'intensité de l'onde d'augmenter régulièrement en fonction de la position z dans le cristal. Cela revient à avoir un accord de phase effectif défini comme suit :

$$\Delta k_{eff} = k_3 - k_2 - k_1 - K_g = \frac{2\pi n_3}{\lambda_3} - \frac{2\pi n_2}{\lambda_2} - \frac{2\pi n_1}{\lambda_1} - \frac{2\pi}{\Lambda_c}$$
(1.12)

où $K_g = \frac{2\pi}{\Lambda_c}$ est le vecteur réseau du cristal QPM (l'indice "g" est l'initiale de "grating"). Comparé à la technique de l'accord de phase par biréfringence qui consiste à compenser la dispersion chromatique en adaptant la polarisation des ondes (dans un cristal biréfringent), le quasi-accord de phase voit son coefficient non linéaire effectif d_{eff} modifié en première approximation par rapport à celui par biréfringence d_{ij} de :

$$d_{eff} = \frac{2}{\pi} d_{ij} \tag{1.13}$$

L'accord de phase par biréfringence permet a priori d'obtenir une meilleure efficacité de conversion que le quasi-accord de phase, comme schématisé sur la Fig.1.1. En pratique, cette meilleure efficacité peut être remise en cause. En effet, pour obtenir un accord de phase par biréfringence, il faut contrôler la polarisation des ondes incidentes sur le milieu, ce qui ne garantit pas une propagation selon l'axe cristallographique permettant le plus fort coefficient non linéaire. A l'inverse, la technique du quasi-accord de phase permet de se propager selon cet axe optimal, ce qui fait qu'au final, le quasi-accord de phase peut avoir une meilleure efficacité de conversion qu'une interaction paramétrique par biréfringence, comme schématisé sur la Fig.1.1.

La technique du quasi-accord de phase a été proposée dès les années 1960 [5] et a pu être mise en œuvre efficacement que dans les années 90, grâce au développement du retournement, sous champ électrique, de la polarité dans les matériaux ferroélectriques [27, 73]. C'est un tel cristal ferroélectrique qui est utilisé dans cette thèse : le niobate de lithium (LiNbO₃). Ce cristal a une zone de transparence qui s'étend environ de 330 à 4300 nm (soit de 30300 à 2325 cm⁻¹), ce qui en fait un cristal couramment utilisé pour mettre en œuvre la technique du quasi-accord de phase. On parle alors de niobate de lithium périodiquement polarisé ou plus généralement de PPLN pour *Periodically Polled Lithium Niobate*. Outre les matériaux ferroélectriques, il existe également des semi-conducteurs pour lesquels un motif de quasi-accord de phase est possible, en produisant, par épitaxie, des domaines alternés [43].

Les cristaux QPM, et plus particulièrement le PPLN, sont donc désormais des matériaux usuels pour obtenir des conversions paramétriques efficaces et sont notamment utilisés pour développer les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) de cette thèse.



Figure 1.1: Efficacité de conversion de l'onde générée par différence de fréquence en fonction de la longueur de matériau non linéaire traversé, normalisée par la longueur de cohérence Λ_c , dans le cas d'un accord de phase par biréfringeance (bleu), d'un quasi-accord de phase (vert) et d'un désaccord de phase (rouge). La courbe en tiretés bleus représente le cas où l'axe cristallographique permettant l'accord de phase par biréfringeance, donne un coefficient non linéaire faible.

1.1.3 Oscillateur paramétrique optique

Soit le cas du mélange à trois ondes décrit par le système d'équations 1.5-1.7, où ω_3 est une onde pompe ω_p de forte intensité qui se propage dans un cristal non linéaire, cette onde va se mélanger avec les deux autres ondes de pulsations ω_1 et ω_2 qui correspondent à ω_c et ω_s , soit respectivement les pulsations des ondes signal et complémentaire , où par convention $\omega_s > \omega_c$. Ces ondes vérifient la condition de conservation de l'énergie lors de l'interaction non linéaire, soit :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c \Leftrightarrow \omega_p = \omega_s + \omega_c \tag{1.14}$$

Lorsqu'en entrée du cristal, seule l'onde intense ω_p est incidente, la conversion d'un photon pompe pour générer une paire de photons signal-complémentaire ne s'explique pas par le système d'équations couplées 1.5-1.7, A_2 et A_3 étant nuls. Pour traiter rigoureusement ce phénomène dit de fluorescence paramétrique, une approche quantique serait nécessaire rendant le formalisme plus complexe. Afin de rester dans une approche classique, il est d'usage, notamment dans les simulations informatiques, de traiter le problème en supposant la présence d'un demiphoton signal et complémentaire en entrée du cristal par mode, ce demi-photon représentant le bruit quantique venant ensemencer les ondes signal et complémentaire [25].

Un système optique où une onde pompe et une onde signal sont incidents sur un cristal non linéaire, et donnant une amplification des ondes signal et complémentaire tout en dépeuplant l'onde pompe est appelé OPA pour *Optical Parametric Amplificator* (Fig.1.2(a)). Un système où seule l'onde pompe est incidente et où les ondes signal et complémentaire sont produites par fluorescence paramétrique à partir du bruit quantique est appelé OPG pour *Optical Parametric Generator* (Fig.1.2(b)).

Afin d'obtenir une meilleure efficacité de conversion non-linéaire, il est possible de placer le cristal non linéaire dans une cavité optique (Fig.1.2(c)), comme c'est le cas des oscillateurs laser avec milieu à gain. Lorsque le gain petit signal d'un passage dans le cristal est supérieur aux pertes dans la cavité, l'oscillation non linéaire est permise. On parle alors d'un OPO pour Oscillateur Paramétrique Optique, qui contrairement à une amplification laser classique, ne met pas en jeu d'excitation électronique rendant la réponse instantanée sans stockage d'énergie dans le milieu non linéaire.



Figure 1.2: Schéma de fonctionnement d'un OPA (a), d'un OPG (b) et d'un OPO (c).

Dans un OPO tel que celui schématisé sur la Fig.1.2(c), l'onde signal oscille dans la cavité, tandis que les ondes pompe et complémentaire sont extraites par le miroir M2. Alors que le miroir M1 réfléchit totalement l'onde signal, le coupleur de sortie M2 transmet partiellement l'onde signal ce qui permet d'extraire une fraction de l'onde oscillante de la cavité. L'OPO présenté dans ce manuscrit est plus complexe que celui schématisé précédemment, avec notamment des miroirs sphériques employés pour focaliser l'onde résonante au centre du cristal et obtenir un recouvrement optimal entre les faisceaux pompe et signal. L'efficacité du processus de conversion est directement liée à l'intensité des ondes mises en jeu. De ce fait, les OPO sont généralement classés selon différents régimes temporels du laser de pompe, qui vont influencer les intensités et le comportement général de l'OPO. Il existe principalement trois régimes de fonctionnement temporels différents : (i) le régime continu et quasi-continu pour lequel les variations de l'intensité de la pompe sont très lentes au regard des temps de construction de l'oscillation paramétrique; (ii) le régime transitoire où les effets de construction de l'oscillation paramétrique et la compétition de modes doivent être considérés, comme pour les OPO nanosecondes notamment; (iii) le dernier régime temporel est celui des impulsions courtes, soit picosecondes ou femtosecondes. Ce dernier régime permet notamment d'atteindre de très fortes puissances-crête et donc des seuils d'oscillations très bas en termes de puissance moyenne si le taux de répétition est assez élevé. Les OPO picosecondes se rapprochent des OPO continus, car ils peuvent atteindre un état stationnaire, soit un état où l'onde signal est reproduite identiquement à elle-même d'un tour de cavité à l'autre [9].

1.1.4 Condition de pompage synchrone

Le laser de pompe employé dans la suite de l'étude émet des impulsions picosecondes, avec une largeur d'impulsion d'environ 8 ps, les impulsions signal et complémentaire sont ellesmêmes picosecondes. Pour assurer une oscillation dans de telles conditions, il faut s'assurer que les impulsions signal et pompe se recouvrent l'une l'autre dans le cristal non linéaire, afin que l'interaction paramétrique puisse se faire, comme schématisé sur la Fig.1.3. Cela suppose que la cavité OPO et la cavité du laser pompe aient la même longueur optique. Une telle condition est nommée *condition de pompage synchrone* (ou condition de synchronisme). Si on prend pour exemple l'OPO employé dans ce travail, le laser pompe Nd :YVO₄ utilisé ayant une fréquence de répétition de 76 MHz, on en déduit que la longueur de cavité OPO doit être de :

$$L_{OPO} = \frac{c}{2f_r} \approx 1,98 \, m \tag{1.15}$$

où la division par un facteur deux s'explique car la cavité utilisé est linéaire : l'onde signal se propage donc de $2L_{OPO}$ par tour de cavité. Un OPO respectant une telle condition de pompage synchrone est appelé SPOPO pour *Synchronously Pumped Optical Parametric Oscillator*. La longueur de désynchronisme que l'on peut définir comme la différence de longueur optique entre les cavités du laser de pompe et de l'OPO n'a pas la nécessité d'être exactement nul pour qu'une oscillation paramétrique soit entretenue dans la cavité OPO. En effet, les impulsions étant picosecondes, une différence de longueur de cavité peut toujours assurer un recouvrement entre les ondes : une impulsion d'une dizaine de picosecondes a une extension spatiale de 3 mm, et la différence de longueur de cavité doit donc être forcément moindre. Dans le cas d'un synchronisme non-exact, deux situations peuvent alors apparaître : soit l'impulsion signal est en avance sur l'impulsion pompe, soit elle est en retard lors de leur entrée dans le cristal non linéaire. Cette différence influe sur le profil temporel des ondes paramétriques. Elle peut notamment être exploitée pour réaliser de la compression d'impulsions, où l'impulsion OPO devient plus brève que l'impulsion pompe [47, 26]. L'influence du synchronisme sera plus longuement étudiée ultérieurement (Cf. Chap.2.3), notamment quant à son effet sur les propriétés spectrales de l'onde signal. Dans le Chap.4, cette condition de pompage synchrone sera également exploitée pour réaliser un OPO accordable au moyen d'un réseau de Bragg en volume chirpé.



Figure 1.3: Schéma du principe de pompage synchrone entre un laser de pompe picoseconde et un OPO résonant au signal [22].

1.2 Élargissement de la bande de gain d'un cristal non linéaire

Afin de développer une source paramétrique largement et rapidement accordable, la solution développée dans cette thèse repose sur l'association d'un OPO large bande de gain à un filtre spectral intracavité.

Si on prend pour exemple le cas d'un cristal QPM à retournement périodique, un seul pas de réseau Λ_c est présent dans le cristal non linéaire. Selon l'Eq.1.12, il est alors possible de ne générer qu'une seule onde signal monochromatique grâce au quasi-accord de phase. Dans les faits, le spectre signal généré n'est pas monochromatique, car l'onde pompe n'est elle-même pas monochromatique. De plus, puisque l'accord de phase possède une acceptance spectrale [68], il est possible d'obtenir une longueur d'onde signal proche de celle permettant l'accord de phase. La bande de gain d'un cristal QPM périodique possède toutefois une bande de gain paramétrique étroite : lors de sa thèse, J-B.Dherbecourt a démontré une largeur spectrale de la bande de gain 2,3 nm (soit une différence de nombre d'onde 10 cm⁻¹) autour de 1470 nm, pour un cristal à retournement périodique en niobate de lithium de 20 mm de longueur [25]. Pour modifier la longueur d'onde signal lorsque la bande de gain paramétrique est étroite, une solution consiste à faire varier la température du cristal : la modification de la température du cristal fait varier l'indice de réfraction et donc la longueur signal permettant de respecter l'accord de phase, ce qui déplace la position de la bande de gain du cristal. La vitesse d'accordabilité d'un tel système est toutefois lente, car dépendante du temps de chauffe et de refroidissement du cristal non linéaire et n'est donc pas envisagée dans cette thèse, car nous visons une vitesse d'accordabilité rapide de la source paramétrique.

Afin d'élargir la bande de gain du dispositif, il est possible de se placer à proximité de la dégénérescence, soit pour des longueurs d'onde signal et complémentaire telles que $\lambda_s = \lambda_c = \frac{\lambda_p}{2}$. Cet élargissement est dû au fait que, près de la dégénérescence, la différence de vitesse de groupe est minime, ce qui augmente l'acceptance spectrale de l'accord de phase [68]. Une bande de gain élargie par dégénérescence est située dans une plage spectrale fixée par la longueur d'onde du laser de pompe : celle-ci étant dans nos travaux de 1064 nm, la bande de gain paramétrique sera située autour de $\lambda_s = 2, 12 \,\mu m$. Or, les bandes d'absorption des gaz qu'on souhaite sonder au Chap.4 sont situées dans la plage spectrale de 3 à 4 μ m et de ce fait, cette méthode n'est pas pertinente dans le cadre de cette thèse.

Une autre méthode d'élargissement de la bande de gain paramétrique a été proposée par Gale *et al.* [30]; elle consiste à utiliser une interaction non-colinéaire pour diminuer la dispersion d'ordre deux. Une bande de gain optimale est obtenue lorsque l'angle de non-colinéarité est tel que les projections des vitesses de groupe signal et complémentaire sur le vecteur d'onde signal soient égales. Le cristal utilisé dans l'étude de Gale (1998) est un β -baryum borate (ou BBO), pompé dans l'ultra violet pour obtenir une émission dans le visible. La principale limitation de cette méthode vient justement du fait qu'elle génère un fort décalage spatial qui réduit la longueur d'interaction possible entre les ondes paramétriques présentant des incidences différentes dans le cristal, ce qui se prête surtout aux impulsions de forte puissance crête (donc plutôt en régime femtoseconde).

1.2.1 Cristaux apériodiques large bande par retournement apériodique

Pour obtenir un élargissement de la bande de gain paramétrique du cristal non linéaire, la solution choisie est l'utilisation d'un cristal à quasi-accord de phase apériodique. Ce type de cristal a été proposé pour la première fois dans les années 1990 [75, 92] et consiste en une modification de la longueur du pas du quasi-accord de phase au cours de la propagation du faisceau. Pour chaque position z dans le cristal, une valeur du pas $\Lambda(z)$ est associée à un couple spécifique de longueurs d'ondes signal et complémentaire $(\lambda_s(z); \lambda_c(z))$ qui satisfont la condition d'accord de phase à cette position z. Le motif le plus simple, représenté sur la figure 1.4 correspond à une variation linéaire du pas d'inversion des domaines avec z. Nous nommons cristal à QPM chirpé un cristal ayant une telle variation linéaire du retournement de polarisation. Pour un tel cristal de longueur L_{chirp} , la largeur de la bande de gain paramétrique de largeur $\Delta \omega_{chirp}$ s'exprime comme [22, 14] :

$$\Delta\omega_{\rm chirp} = \left|\frac{\kappa'}{\delta v_{sc}}\right| L_{\rm chirp} \tag{1.16}$$

où δv_{sc} est la différence de vitesse de groupe entre les ondes signal et complémentaire, soit :

$$\delta v_{sc} \equiv \frac{1}{v_{gs}} - \frac{1}{v_{gc}} \tag{1.17}$$

et κ' ! représente au taux de chirp du réseau soit :

$$\kappa' = -\left. \frac{\mathrm{d}K_g\left(z\right)}{\mathrm{d}z} \right|_{z=0} \tag{1.18}$$

où z = 0 est situé au centre du cristal non linéaire, et $K_g(z) = 2\pi/\Lambda(z)$ est le vecteur réseau. Un taux de chirp positif correspond de fait à une augmentation du pas du réseau $\Lambda(z)$ dans le cristal, alors qu'un taux de chirp négatif correspond à une diminution de ce pas. Une augmentation de la valeur absolue du taux de chirp entraine une augmentation de la largeur de bande de gain du cristal, puisque d'avantage de longueurs d'onde signal peuvent respecter localement un quasiaccord de phase. Toutefois, pour une longueur de cristal non-linéaire fixe, une augmentation de ce taux entraine une diminution du gain crête de la bande de gain paramétrique. Des travaux de Charbonneau-Lefort *et al.* [14] ont ainsi montré que si le gain crête diminue bien, le logarithme du gain multiplié par la bande passante se conserve pour deux taux de chirp différents κ'_1 et κ'_2 :

$$\ln(G_{\kappa_1'}) \times \Delta\omega_{\kappa_1'} = \ln(G_{\kappa_2'}) \times \Delta\omega_{\kappa_2'} \tag{1.19}$$

où $G_{\kappa'_j}$ est le gain paramétrique du cristal au taux de chirp κ'_j . Augmenter la longueur du cristal est une façon d'augmenter le gain crête, car pour obtenir la même largeur de bande de gain qu'un cristal plus petit, un taux de chirp plus faible est nécessaire. Charbonneau-Lefort *et al.* (2008) ont ainsi démontré que pour avoir un cristal QPM chirpé avec le même gain que celui d'un cristal QPM périodique, la longueur du cristal chirpé L_{chirp} peut être déduite par l'équation :

$$\ln G_{\rm chirp} \times \Delta \omega_{\rm chirp} / L_{\rm chirp} = \frac{\pi}{4} \ln G_{\rm unif.} \times \Delta \omega_{\rm unif.} / L_{\rm unif.}$$
(1.20)

Ainsi, en considérant une longueur de 60 mm pour le cristal QPM chirpé (longueur maximale disponible auprès du fournisseur), D. Descloux a montré dans sa thèse [22] qu'il était possible de concevoir un cristal QPM chirpé présentant le même gain crête qu'un cristal périodique (de longueur $L_{unif} = 20 \text{ mm}$) avec une bande de gain environ trois fois plus large, soit : $L_{chirp} = 3L_{unif} = 60 \text{ mm}$. C'est cette longueur de 60 mm qui nous sert de référence dans la conception des différents cristaux utilisés dans cette thèse.

x (confondu avec l'axe c du cristal)



Figure 1.4: Schéma d'un cristal à retournement apériodique des domaines ferroélectriques pour un taux de chirp κ' positif. Le pas Λ du retournement varie selon l'axe z des propagations des impulsions paramétriques, ce qui induit une variation du couple de longueur signal et complémentaire vérifiant le quasi-accord de phase [22].

1.2.2 Dimensionnement d'un cristal non linéaire accordable de 3 à 4 micromètres

Les cristaux non linéaires utilisés dans cette thèse sont en MgO : $LiNbO_3$, soit des cristaux de niobate de lithium dopés à 5% en oxyde de magnésium MgO. Un tel dopage est couramment utilisé dans la littérature afin d'abaisser les effets photoréfractifs pouvant être nuisibles aux interactions paramétriques [77].

Afin d'élargir leurs bandes de gain, ces cristaux MgO :LiNbO₃ sont chirpés. Ils sont par la suite nommés cristaux APPLN (pour *APeriocally Poled Lithium Niobate*), c'est-à-dire des cristaux de niobate de lithium à retournement apériodique. Tous les cristaux utilisés dans cette thèse sont chirpés linéairement dans la zone centrale, mais en leurs extrémités sont implantés des zones d'apodisation qui constituent des régions de variation rapide des pas du cristal. La fonction d'apodisation utilisée s'inspire de celle suggérée par Charbonneau-Lefort *et al.* et Phillips *et al.* [15, 79], afin de limiter les rebonds de la bande de gain paramétrique. En effet, comme on peut le voir sur la Fig.1.5(b) des rebonds sont observés dans la bande de gain paramétrique dans le cas d'un cristal simplement chirpé (et de taille finie). Leur origine vient des variations très abruptes de l'interaction paramétrique aux extrémités du cristal. Comme la polarisation non linéaire démarre brutalement à l'extrémité du cristal non linéaire, des termes de haute fréquence spatiale génèrent des effets d'interférence sur la fonction de transfert du réseau de quasi-accord de phase. Ces effets sont indésirables, car ils provoquent des variations d'efficacité paramétrique selon la longueur d'onde. Il est donc préférable d'avoir une bande de gain large et plate pour éviter ces variations. Une façon de réduire les rebonds de la bande de gain consiste à rendre aussi fluide que possible la transition avant et après la région où se déroule l'interaction. Pour cela, une solution consiste à démarrer avec une interaction très loin de l'accord de phase pour la ramener progressivement à une interaction en phase. Dans notre cas, on ajoute une composante polynomiale d'ordres élevés à la partie linéairement apériodique de notre cristal. Ainsi, la fonction d'apodisation n'affecte pas la partie centrale qui varie linéairement, par contre, les variations du pas du cristal sont importantes à ses extrémités, comme le montre la figure 1.5 (a). En utilisant une telle fonction d'apodisation, le vecteur du pas du réseau peut être exprimé comme :

$$K_g(z) = \frac{2\pi}{\Lambda_0} - \kappa' \left(z - \frac{L}{2} \right) - \mu_1 \frac{\kappa' L}{2} \left(\frac{2z}{L} - 1 \right)^{\nu_1} - \mu_2 \frac{\kappa' L}{2} \left(\frac{2z}{L} - 1 \right)^{\nu_2}$$
(1.21)

Cette équation comprend quatre termes : (i) le premier terme correspond au vecteur du pas Λ_0 au centre du cristal, (ii) le second décrit la variation linéaire du pas réseau dans la partie centrale du cristal, (iii) le troisième terme est la fonction d'apodisation proposée par Charbonneau-Lefort (2008), (iv) le dernier terme est un terme que nous rajoutons afin de rendre plus abrupte la décroissance en bord de gain.



Figure 1.5: (a) Évolution du pas du réseau sans (tiretés rouge) et avec une fonction d'apodisation (noir) dans le cas d'un taux de chirp $\kappa' = -39000 \, m^{-2}$. (b) Avec le même code couleur sont représentées les bandes de gain paramétriques.

C'est à partir de cette équation que sont conçus les réseaux des cristaux APPLN utilisés dans cette thèse. Chaque cristal peut contenir au maximum six réseaux différents, chaque réseau agit de fait comme un cristal APPLN à part entière. Les bandes de gain des réseaux ont été déterminées grâce à des calculs numériques en régime picoseconde. Une fois ces calculs réalisés, les motifs de retournement des domaines ferroélectriques sont transmis à l'entreprise *HCPhotonics* qui fabrique les cristaux selon nos indications. Pour ce faire, nous utilisons un code de simulation en ondes planes, conçu au sein du laboratoire lors de thèse de J-B. Dherbecourt [25]. Ce code est basé sur une méthode de différences finies dans le domaine temporel pour résoudre les équations non linéaires couplées (Éq.1.5-1.7), en tenant compte de la différence et la dispersion des vitesses de groupe définies par des équations telles que celles proposées par Arisholm *et al.* [2]. Ce code numérique applique un facteur de correction de 0.25 au paramètre de couplage non linéaire d_{eff} afin de prendre en compte les effets des profils transverse des faisceaux sur la bande de gain paramétrique. Ce facteur de correction a été estimé lors de la thèse de D. Descloux [22], par un processus expérimental consistant en une adaptation de la méthode de Findlay-Clay aux OPO [37] : celle-ci consiste en la mesure du seuil d'oscillation de l'oscillateur pour différentes valeurs de réflectivité du coupleur de sortie, afin de déterminer les pertes passives de la cavité optique, puis d'en déduire le facteur de correction à appliquer à la formule du gain paramétrique.

Deux cristaux APPLN étaient utilisés dans le travail de D. Descloux (2016) : (i) le premier nommé APPLN#1 permet l'étude des propriétés des SPOPO pour différentes valeurs du taux de chirp κ' , mais ne sera pas utilisé dans cette thèse ; (ii) le second cristal (nommé APPLN#2) possède deux réseaux d'intérêts G4' et G6'¹. Leurs propriétés, retranscrites dans le Tab.1.1, permettent d'obtenir des bandes de gains (Fig.1.6) plates grâce à la fonction d'apodisation ajoutée à la formule du vecteur réseau. L'apériodicité du réseau permet bien d'élargir la bande de gain, comme pour le réseau G6' qui, avec un taux de chirp de $\kappa' = 117000 m^{-2}$, permet d'avoir une largeur de la bande de gain de l'onde signal $\Delta \lambda_s$ de 40 nm autour de 1470 nm, ce qui correspond à une bande de gain pour l'onde complémentaire de 275,4 nm autour de 3852 nm. Ce réseau G6' a une bande de gain de largeur et de position idéales pour sonder le protoxyde d'azote N₂O : D.Descloux (2016) a utilisé ce réseau pour mesurer la bande d'absorption d'une cellule de gaz N₂O, grâce à un SPOPO où un réseau de diffraction était utilisé comme filtre spectral. Si ce réseau G6' est particulièrement intéressant pour des applications de spectroscopie, le réseau G4' est également utile pour faciliter l'alignement de la cavité optique, car la valeur de son gain étant plus élevée, la puissance du seuil d'oscillation est plus basse.

^{1.} Les autres réseaux possèdent un taux de chirp trop élevés pour obtenir une oscillation ou possède un vecteur réseau $K_g(z)$ selon une fonction non continue proposée par le fabriquant. Il a été démontré dans la thèse de D.Descloux (2016), que ces derniers, donnent les mêmes résultats que les réseaux G4' et G6' du cristal APPLN#2.

Réseau	$\Lambda_{0}\left(\mu m\right)$	$\kappa'\left(m^{-2}\right)$	μ_1	v_1	μ_2	ν_2	$\Delta \lambda_s(nm)$	$\Delta \lambda_c(nm)$	$\Delta\sigma\left(cm^{-1}\right)$
G4'	29, 15	$3,9 \times 10^4$	4, 2	9	4, 6	39	13, 4	92	62
G6'	29, 15	$1,17 \times 10^5$	7,8	17	6, 8	39	40	275, 4	185, 1

Table 1.1: Paramètres utilisés pour les différents réseaux du cristal APPLN#2 dans l'Éq.1.21, donnant les largeurs à mi-hauteur des bandes de gains signal $\Delta \lambda_s$ et complémentaire $\Delta \lambda_c$, sachant que les deux réseaux sont centrés autour de la même longueur d'onde signal de 1470 nm, soit une longueur d'onde du complémentaire de 3859 nm. L'intervalle du nombre d'onde $\Delta \sigma$ est également inscrit, et est égal pour le signal et le complémentaire



Figure 1.6: Bande de gain des réseaux apodisés G4' et G6' du cristal APPLN#2. Les paramètres d'apodisation sont décrits dans le Tab.1.1.

Si le cristal APPLN#2 possède des valeurs du gain paramétrique différentes mais centrée à la même longueur d'onde, le cristal APPLN#3 fabriqué lors de cette thèse, a été développé pour que chaque réseau QPM le composant ait la même valeur de gain paramétrique, mais situé dans des plages spectrales différentes. En concevant un cristal avec un gain constant, l'objectif est de faciliter la comparaison des résultats obtenus par l'utilisation des différentes réseaux. De plus, les bandes de gain du cristal (dont les propriétés sont répertoriées dans le Tab.1.2) ont été choisies pour couvrir le plus possible la bande $3-4 \mu$ m. Cette plage de fréquence correspond à une fenêtre atmosphérique : les espèces gazeuses naturellement présentes dans l'atmosphère y ont une absorption minimale [40]. L'utilisation d'un cristal couvrant l'étendue de cette fenêtre atmosphérique, permet d'étudier grâce au système OPO les multiples gaz possédant une absorption dans cette plage fréquentielle. On verra ainsi dans le Chap.4 que APPLN#3 permet notamment de sonder le N₂O, le CO₂ ou le SO₂.

Pour couvrir différentes bandes spectrales, nous modifions le pas central Λ_0 du réseau, ce qui change la longueur d'onde signal et complémentaire permettant d'obtenir un quasi-accord de phase au centre de la bande de gain. Toutefois, un déplacement de la bande de gain dans l'espace fréquentiel, induit également un changement de différence de vitesse de groupe. Comme expliqué précédemment, en s'éloignant de la dégénérescence ($\lambda_s = \lambda_c$), la différence de vitesse de groupe augmente, ce qui ce qui conduit à une bande de gain plus faible pour un taux de chirp donné. De plus, le fait de s'éloigner de la dégénérescence conduit à un couplage non linéaire plus faible, celui-ci étant proportionnel à $1/(\lambda_s \lambda_c)$. Il est donc nécessaire que les réseaux les plus éloignés de la dégénérescence aient un taux de chirp κ' abaissé afin de maintenir un gain crête constant, ce qui accentue d'autant plus la réduction de largeur de bande de gain. On voit ainsi sur le Tab. 1.2 qu'avec le réseau H1, le taux de chirp κ' peut être élevé (70 800 m⁻²) pour une longueur d'onde centrale de 1577, 2 nm, alors que pour la voie H6, dont la longueur centrale λ_s est de 1429, 9 nm, il est nécessaire d'abaisser le taux de chirp à 62 400 m⁻² pour obtenir un gain crête équivalent.

Comme le montre la Fig.1.7, la modification du taux de chirp en fonction de la position de la bande de gain, conduit à une valeur du gain crête égale entre les voies du cristal. Ainsi, la baisse du gain, due à l'augmentation de la différence de vitesse de groupe est compensée. En contrepartie, les réseaux les plus éloignés en longueur d'onde de la dégénérescence, soit ceux avec le taux de chirp le plus bas, ont une largeur spectrale moindre. On note également sur cette figure que les bandes de gain sont plates, et ce grâce à la fonction d'apodisation ajoutée à l'équation du vecteur réseau. Pour le cristal APPLN#3, les termes de cette fonction d'apodisation sont les mêmes que ceux de la voie G6' du cristal APPLN#2 (voir Tab.1.1).

Ces différentes bandes de gain paramétriques plates et élargies seront au cœur de tous les oscillateurs paramétriques présentés dans cette thèse (à l'exception du Chap.??), et pourront notamment au Chap.4 être associées à un filtre spectral, afin d'obtenir une accordabilité dans
Réseau	$\lambda_{s0}\left(nm\right)$	$\lambda_{c0}\left(nm\right)$	$\Lambda_{0}\left(\mu m\right)$	$\kappa'\left(m^{-2}\right)$	$\Delta \lambda_s(nm)$	$\Delta \lambda_c(nm)$	$\Delta\sigma\left(cm^{-1}\right)$
H1	1577, 2	3274, 7	28, 28	70800	37, 34	161, 1	150, 1
H2	1527, 8	3510, 3	28,60	68400	33	175, 5	142, 2
H3	1472, 4	3842, 5	28,90	66000	20, 21	137, 8	93, 2
H4	1457, 6	3947, 1	29, 18	64800	17, 51	128, 4	82,4
H5	1443, 4	4055, 2	30,05	63600	15, 25	120, 4	73, 2
H6	1429, 9	4165, 7	30, 50	62400	13, 34	113, 3	65, 3

la gamme $3-4 \,\mu\text{m}$.

Table 1.2: Paramètres utilisés pour les réseaux H1 à H6 du cristal APPLN#3 dans l'Éq. 1.21. Les paramètres d'apodisation sont identiques à ceux du réseau G6' du cristal APPLN#2 (Tab.1.1), pour les largeurs à mi-hauteur des bandes de gains signal $\Delta \lambda_s$ et complémentaire $\Delta \lambda_c$, ainsi que pour l'intervalle du nombre d'onde $\Delta \sigma$. La bande de gain signal est située autour de λ_{s0} .



Figure 1.7: Bandes de gain des réseaux apodisés H1 à H6 du cristal APPLN#3. Les propriétés de ces bandes de gain sont décrites dans le Tab.1.2.

1.3 Laser de pompe Nd :YVO₄

Pour le pompage de la source OPO picoseconde, nous avons été amené à utiliser deux lasers picosecondes basés sur des cristaux d'orthovanadate d'ytrrium dopé aux ions néodyme nommé Nd :YVO₄. Ces lasers permettent de délivrer une puissance suffisante pour réaliser efficacement le pompage de l'OPO tout en conservant une largeur spectrale proche de la limite de Fourier, nécessaire pour la réalisation de sources accordables avec la finesse spectrale requise pour les applications d'imagerie active de gaz. Nous décrivons dans la suite les principales caractéristiques de ces lasers et leur mise en œuvre pour le pompage de l'OPO.

1.3.1 Propriétés des lasers Nd :YVO₄ utilisés

Les deux lasers Nd :YVO₄ utilisés dans cette thèse sont commercialisés par l'entreprise High Q Laser (modèle picoTRAIN), avec une architecture interne de type MOPA (Master Oscillator Power Amplifier) : elle est composée d'un oscillateur maître suivie d'un étage d'amplification. L'oscillateur maître est une cavité optique, contenant un cristal Nd :YVO₄ pompé par une diode laser à 808 nm donnant une émission stimulée à 1064 nm. La longueur de la cavité optique est d'approximativement de 4 mètres de long (aller-retour puisque la cavité est linéaire) et délivre des impulsions picosecondes avec une fréquence de répétition de 76 MHz. Le verrouillage de modes de l'oscillateur, permettant le fonctionnement impulsionnel picoseconde, de l'oscillation laser est réalisé au moyen d'un miroir à absorbant saturable semi-conducteur (SESAM).

Cet oscillateur maître permet à lui seul d'obtenir une puissance moyenne de 4,5W. Cette puissance moyenne peut ensuite être augmentée pour atteindre une vingtaine de watts, via le passage dans l'étage d'amplification construite par le fabriquant et situé dans le même boitier. Comme présenté sur la Fig.1.8, cet étape d'amplification est assurée par un simple passage du faisceau à travers un nouveau cristal Nd :YVO₄. Ce cristal contrairement à celui de l'oscillateur maître n'est pas pompé par une diode laser à 808 nm, mais par deux diodes laser oscillant à 888 nm. Cette différence de longueur d'onde a vraisemblablement été retenue par le constructeur pour éviter un effet de lentille thermique. En effet, en pompant le cristal à une longueur d'onde moins absorbée par le Nd :YVO₄, on évite cet effet de lentille thermique pouvant diminuer l'amplification de l'onde à 1064 nm [20].

Si le pompage du cristal d'amplification par les diodes laser se fait correctement, l'étape d'amplification permet d'augmenter la puissance moyenne de 4,5W à approximativement 20W. Cette puissance maximale n'a pas été obtenue avec les deux lasers utilisés dans nos travaux. En effet, dans le cas du laser#1, le cube permettant la réunification des faisceaux des deux diodes laser est décollé, empêchant la diode laser 1 de pomper le cristal amplificateur. Pour le laser#2, la diode mise en cause est la deuxième dont le faisceau n'atteint pas le cristal Nd :YVO₄. Dans les deux cas, le cristal amplificateur n'est donc pompé que par une seule diode laser, ce qui signifie que le faisceau à 1064 nm n'est amplifié que jusqu'à une valeur moyenne d'une douzaine de watts, ce qui correspond à une puissance crête des impulsions d'approximativement 20 kW. On verra dans la suite de cette thèse que cette valeur amoindrie de la puissance sortant de ces lasers n'est que rarement un facteur limitant dans les études entreprises.

Nous avons utilisé deux lasers de pompe dans cette thèse, car le cristal amplificateur du



Figure 1.8: Schéma de l'étape d'amplification extra-cavité dans l'architecture interne du laser de pompe Nd :YVO₄.

laser#1 a été dégradé, ce qui a diminué les performances spectrales et spatiales de l'OPO. Comme vu dans l'annexe C, des solutions ont été envisagées pour pallier ce défaut, mais sans s'affranchir d'une augmentation conséquente du seuil d'oscillation du SPOPO. La solution à ce problème de dégradation de faisceau a alors simplement été de changer ce laser#1 pour le laser#2 qui était également disponible au laboratoire.

Même si les deux lasers sont du même modèle, ils présentent des différences dans leurs propriétés spectro-temporelles. Ainsi, comme on peut le voir sur la Fig. 1.9(a), le changement de laser conduit à un déplacement de la longueur d'onde centrale de l'onde pompe λ_{p0} , de 1064,54 à 1064,62 nm, mais également à un élargissement du spectre à mi-hauteur $\Delta \lambda_p$, de 0,15 à 0,32 nm (soit un intervalle du nombre : d'onde de 1,3 à 2,9 cm⁻¹), sachant que l'instrument de mesure utilisé entraîne une incertitude de 0,01 nm sur cet écart. En supposant que la limite de Fourier est atteinte pour les deux laser, il est également attendu qu'il existe une différence de la largueur des impulsions pompe avec l'impulsion du laser#2 plus courte que celle du laser#1 (la caractérisation par auto-corrélation à deux photons présentée au Chap.2.1.1 n'est pas réalisable avec notre dispositif doté d'un détecteur silicium directement sensible à un photon à 1064 nm).

La fréquence de répétition des impulsions 76MHz est toutefois identique (Fig.1.9(b)), avec un écart entre chaque impulsion d'approximativement 13,2 ns. La condition de pompage synchrone à respecter pour obtenir une oscillation dans l'OPO est donc obtenue pour la même taille de cavité optique.



Figure 1.9: (a) Spectres des lasers de pompe Nd : YVO_4 obtenus à l'analyseur de spectre optique (OSA) ainsi que le taux de répétition (b) du laser#2 obtenu grâce à la photodiode intégrée à l'oscillateur.

1.3.2 Mise en place de la caustique pompe

En sortie de laser, le faisceau pompe est peu divergent permettant de facilement le propager jusqu'à l'OPO, sans adaptation de son faisceau. Cette adaptation est toutefois nécessaire pour le passage du faisceau dans le cristal APPLN, car le cristal n'a qu'une largeur de 1 mm et qu'un contrôle du recouvrement des faisceaux signal et pompe est indispensable pour optimiser l'interaction paramétrique. La caustique du faisceau de l'onde signal est calculée à partir des caractéristiques des miroirs sphériques et des autres composant constituant la cavité optique de l'OPO qui sont décrites dans le Chap. 2.2. À partir de ces paramètres de cavité, nous évaluons qu'à la position du waist signal, située au centre du cristal, le rayon à mi-hauteur du faisceau vaut 120 µm.

Afin d'obtenir la meilleure conversion paramétrique lors du passage de l'onde pompe dans le cristal, il faut maximiser le recouvrement entre les faisceaux signal et pompe sur toute la longueur du cristal. Pour cela, un travail sur la taille du faisceau au waist est nécessaire, puisque la divergence du faisceau n'est pas la même pour les ondes signal et pompe, en raison de la différence de longueur d'onde. Pour avoir le plus grand recouvrement sur la longueur du cristal, il est nécessaire d'avoir une égalité des demi-angles de divergence θ [87] :

$$\theta = M_p^2 \frac{\lambda_p}{\pi w_{p0}} = M_s^2 \frac{\lambda_s}{\pi w_{s0}}$$
(1.22)

où M^2 est le facteur de qualité du faisceau (il est de 1 pour un faisceau gaussien), et w_{j0} le rayon

au waist de l'onde j. Or, la qualité du faisceau signal dépendant de celle du faisceau pompe [9], le facteur M^2 des ondes paramétriques peut être considéré égal en première approximation. Nous pouvons donc déduire la valeur de w_{p0} pour obtenir un recouvrement des ondes le long du cristal, en prenant comme longueur d'onde signal celle du milieu de la bande de gain du réseau G6' du cristal APPLN#2 (soit $\lambda_s = 1470 \text{ nm}$) :

$$w_{p0} = \frac{\lambda_p}{\lambda_s} w_{s0} = 87\,\mu m \tag{1.23}$$

A cette fin deux lentilles d'injection, avec des distances focales de respectivement 300 et 1000 mm, sont accolées et placées en amont de la cavité OPO. La distance focale équivalente est celle d'une lentille unique de 353 mm de distance focale. Cette double lentille permet d'obtenir l'évolution du rayon du faisceau pompe du laser#2 représentée en Fig.1.10. Les données de cette figure, sont obtenues au moyen d'une caméra silicium (USBeamPro, Photon inc.). Ainsi, à la position du waist, soit à 354,5 mm de la lentille d'injection, le rayon à mi-hauteur est de $w_{0x} = 91 \pm 3 \,\mu\text{m}$ pour l'axe horizontal et $w_{0y} = 85 \pm 3 \,\mu\text{m}$ pour l'axe vertical, ce qui se rapproche de la valeur voulue de $87 \,\mu\text{m}$. La distance de Rayleigh z_0 , soit la distance entre le waist et la position où le rayon est de $w = w_0 \sqrt{2}$, est un facteur également important dans l'étude de cette caustique. Ainsi, le fait que cette valeur soit approximativement égale en amont et aval du waist démontre la qualité du faisceau. De plus, comme les cristaux APPLN utilisés ont une longueur de 60 mm et que l'indice de réfraction dans ce milieu est d'approximativement de 2,16 à une longueur d'onde de 1064 nm, la distance de Rayleigh totale dans le niobate de lithium (so it approximativement $2, 16 \times 2z_0$) vaut environ 78 mm et est plus grande que la longueur du cristal : l'intensité lumineuse du faisceau pompe est donc relativement constante sur l'ensemble du cristal.

La distance de Rayleigh est également supérieure à la longueur du cristal dans le cas du laser#1, mais le rayon à mi-hauteur est d'approximativement $110 \,\mu$ m. On montrera dans le prochain chapitre, que le rétrécissement du faisceau du laser#2 comparé au laser#1 permet de diminuer efficacement la puissance du seuil d'oscillation.



Figure 1.10: Caustique du faisceau du laser#2 en fonction de la distance avec une lentille de 35,3 cm de focale. Les valeurs du rayon du waist w_0 pour l'axe horizontal X et l'axe vertical Y, ainsi que la distance de Rayleigh z_0 sont indiquées. Le facteur M² résultant de cette caustique est évalué à 1,22.

Synthèse

L'objectif de ce chapitre introductif a été de présenter les outils nécessaires à la compréhension des processus physiques des OPO picosecondes. En premier lieu, les équations liées au processus non linéaire d'ordre deux qui entrent en jeu dans la génération de nouvelles fréquences ont été explicitées et elles ont été implémentés dans les codes de modélisation utilisés dans les prochains chapitres. Les OPO fonctionnent dans le régime picoseconde : ils vérifient la condition de pompage synchrone, qui permet à l'oscillation paramétrique d'être ré-amplifiée à chaque tour de cavité.

Dans ce chapitre, nous avons décrit les cristaux APPLN utilisés. Ces cristaux ont la spécificité d'avoir un retournement apériodique de leur polarisation. Cette apériodicité permet l'élargissement de la bande de gain paramétrique. Par exemple, un des cristaux utilisé permet d'obtenir une largeur de la bande de gain de 40 nm pour l'onde signal, ce qui correspond à une largeur pour le complémentaire de 275 nm. Afin d'obtenir d'obtenir un gain paramétrique constant dans une plage spectrale comprise entre 3 et 4 μ m, nous avons dimensionné et utilisé un nouveau cristal au cours de thèse.

Nous avons terminé ce chapitre par la caractérisation des lasers de pompe utilisés. Un changement du laser de pompe a été l'occasion de modifier la caustique du faisceau lors de sa propagation dans la cavité optique. Le résultat de ce changement sur les efficacités de conversion paramétrique est présenté dans le prochain chapitre.

Chapitre 2

Caractéristiques générales d'un OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal APPLN

Objectifs

Nous avons présenté dans le chapitre précédent les réseaux à quasi-accord de phase apériodiques qui ont été façonnés afin d'avoir une large bande de gain, avec une dépendance spectrale la plus plate possible. Ces réseaux sont implémentés dans un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) pompé par un laser picoseconde Nd :YVO₄. Dans le régime picoseconde où les extensions spatiales des impulsions peuvent être bien plus courtes que la longueur de la cavité, les impulsions doivent respecter une condition de synchronisme. Cette condition permet la réamplification à chaque tour de cavité de l'onde signal. Dans le cas contraire, on parle de désynchronisme et les propriétés spectrales et temporelles des ondes produites sont modifiées, tout comme les rendements énergétiques. De même, l'apériodicité du réseau altère le comportement de l'OPO comparé à celui d'un OPO reposant sur un cristal à quasi-accord de phase périodique. Afin de déterminer ces différences et de caractériser l'OPO picoseconde, nous détaillons les systèmes optiques nécessaires pour mesurer la durée des impulsions et leur spectre, soit en moyenne sur des temps longs, soit tir à tir. Après cette présentation des outils de caractérisations temporelle, les performances de l'OPO picoseconde non contraint sont étudiées en fonction de la puissance pompe. L'influence du synchronisme de la cavité sur les propriétés de l'OPO est alors traitée et discutée. Le spectre des rayonnements produits à forte puissance de pompe montre que des pics signal secondaires apparaissent; nous déterminerons leur origine.

2.1 Matériel et méthodes

2.1.1 Détection d'impulsion par autocorrélation

Afin de caractériser pleinement les propriétés spectrales et temporelles d'un OPO picoseconde reposant sur un cristal QPM apériodique, de nombreux outils d'analyse sont nécessaires. Certains se composent de montages optiques extérieurs à la cavité OPO dont le fonctionnement est expliqué ci-après.

Pour étudier les propriétés temporelles du SPOPO, il est utile de pouvoir caractériser la durée de ses impulsions. Les temps de réponse des détecteurs optoélectroniques classiques ne permettant pas d'observer des impulsions aussi courtes que des impulsions picosecondes, un montage d'autocorrélation a été réalisé [61, 4, 93]. Un tel montage d'autocorrélation est proche d'un interféromètre de Michelson : un faisceau incident est séparé sur deux voies dont une de longueur variable en raison de la présence d'un miroir mobile (Fig.2.1 (a)). Les miroirs présents dans chaque voie renvoient la lumière vers le cube séparateur et les faisceaux se recombinent ainsi avant d'être incidents sur une photodiode. En déplaçant le miroir mobile M2, on induit un retard entre les deux voies. Sur un détecteur on observe la superposition des deux faisceaux, durant le balayage du miroir mobile. Une impulsion de 10 femtosecondes correspond à une course spatiale d'environ 3 μm , une telle distance est mécaniquement contrôlable et mesurable par une platine micrométrique [93]. Notre système est utilisé sur une échelle picoseconde, le déplacement nécessaire pour l'autocorrélation est d'environ 3 mm.

Le système de détection consiste en un détecteur en silicium (détecteur DET10A, Thorlabs) dont la bande passante est centrée autour de 750 nm. Le détecteur en silicium n'est pas sensible aux longueurs d'onde autour de 1480 nm, la longueur d'onde signal ne sera pas ainsi détectée de manière traditionnelle, par absorption à un photon. La détection à de telles longueurs d'onde résulte d'une absorption à deux photons (Fig.2.1(b))[7]. Un déplacement de M2, modifie le retard temporel entre les deux répliques de l'impulsion et donc l'intensité reçue par le détecteur. Ce dispositif permet de déterminer la fonction d'autocorrélation du profil temporel des impulsions paramétriques signal et ainsi d'en estimer la durée ([22]).

2.1.2 Enregistrement de profil spectral tir à tir

Pour étudier le profil spectral des ondes paramétriques de l'OPO, le faisceau signal sortant de la cavité est couplé par une fibre à un analyseur de spectre optique (OSA pour *optical spectrum analyser*). Le spectre est alors mesuré par l'OSA par rotation d'un réseau de diffraction. C'est donc par une rotation mécanique qu'est obtenu le spectre mesuré par l'OSA, ce qui fait que le temps d'enregistrement d'un spectre est typiquement de l'ordre de la seconde (voire davantage selon la résolution et la bande sélectionnées). Le laser de pompe Nd :YVO₄ ayant une fréquence



Figure 2.1: Schéma du montage d'autocorrélation à deux photons (a), composé d'un cube séparateur, de deux miroirs dont un mobile qui renvoie les faisceaux séparés sur la photodiode en silicium. (b) Schéma de l'absorption à deux photons dans le cas d'un semi conducteur à gap indirect (Silicium) [8].

de répétition de 76 MHz, l'écart temporel entre deux impulsions est alors approximativement de 13,2 nanosecondes : un spectre obtenu par OSA représente donc de fait une moyenne sur un grand nombre d'impulsions successives. Or, pour étudier le comportement et la stabilité du spectre de l'OPO, une étude pour chaque impulsion est plus adéquate. C'est dans cet objectif qu'a été mis au point un montage s'inspirant de ceux élaborés par Kelbar *et al.* et Goda *et al.* [45, 34] pour caractériser des sources supercontinuum. Il est basé sur la propagation de l'impulsion dans un milieu présentant de la dispersion chromatique : l'étalement en fréquence de l'impulsion se traduit par un étalement temporel. Le montage optique est représenté sur la figure 2.2 et consiste à coupler en sortie d'OPO le faisceau signal à une fibre dispersive liée à une photodiode rapide et à un oscilloscope rapide.



Figure 2.2: Schéma expérimental du montage d'observation des spectres tir à tir de l'OPO. Le faisceau signal de sortie de l'OPO est injecté dans une fibre à forte dispersion spectrale reliée à une photodiode et à un oscilloscope rapide.

Les fibres dispersives SMF-DK (de la marque OFS) utilisées ont été développées pour des applications en télécommunications, afin de compenser la dispersion subie par les fibres en silice

sur une grande distance. Ainsi, la fibre utilisée est conçue pour compenser 40 km de dispersion des fibres télécoms pour une longueur d'onde de 1550 nm. Cette fibre longue de 4 km possède un coefficient de dispersion de -688 ps.nm⁻¹. Autour de 1470 nm, soit la longueur d'onde signal attendue, ce coefficient est abaissé à $C_a = -500 \ ps.nm^{-1}$. La fibre dispersive est alors couplée à une photodiode rapide en InGaAs, ayant une bande passante de 5 GHz (modèle DET08C de Thorlabs), et connectée à un oscilloscope rapide (LeCroy) de 13 GHz de bande passante.



Figure 2.3: Schéma de la dispersion d'impulsions courtes par une fibre à fort taux de dispersion.

Grâce aux propriétés dispersives de la fibre, chaque longueur d'onde qui compose le profil spectral signal, se déplace à une vitesse différente dans cette fibre. Si la dispersion est assez forte, il est possible de mesurer le spectre grâce à l'évolution du profil temporel de l'impulsion en sortie de fibre. L'objectif est d'élargir au maximum l'impulsion, sans avoir un recouvrement entre deux impulsions successives, comme représenté sur la Fig. 2.3. L'impulsion peut alors être élargie jusqu'à $T = 1/f_r = 13, 2 ns$ au maximum, où f_r est la fréquence de répétition de l'OPO. La fibre dispersive utilisée mène ainsi à une fenêtre d'observation spectrale de $\Delta\lambda_{obs} = T/C_a = 26, 4 nm$, ainsi qu'à une résolution limitée par la bande passante de la photodiode de $\delta\lambda = 1/(C_a \times BP_{lim}) = 0, 4 nm$.

La Fig. 2.4(b) présente un exemple d'enregistrement de profil spectral tir à tir, où ont été détectées trois impulsions successives en sortie de fibre dispersive. Ce résultat peut être comparé au profil spectral moyen obtenu par l'OSA (Fig.2.4 (a)) : on retrouve les trois pics observés à l'oscilloscope ainsi que le même écart relatif entre chaque pic. Cette technique sera un outil utile dans la détermination de l'origine des pics secondaires discutée dans la dernière partie de ce chapitre. On note que dans la thèse de D. Descloux [22], cette technique couplée avec une cellule de Pockels agissant comme un interrupteur, a permis de réaliser une étude détaillée de la construction des ondes paramétriques dans la cavité OPO. D. Descloux a ainsi pu montrer que le signal subit un décalage de sa longueur d'onde lors de sa construction. Cela correspond au démarrage de l'oscillation à des longueurs d'onde situées proches du centre de la bande de gain et qui se décalent, une fois le régime stationnaire atteint, vers le bord de la bande de gain correspondant à une zone du réseau de QPM se situant plus près de l'entrée du cristal.



Figure 2.4: Exemple d'utilisation de la fibre dispersive, pour obtenir le spectre tir à tir (b), comparé au spectre absolu moyenné par l'analyseur de spectre (a)

Maintenant que nous avons présenté les outils nécessaires à une étude complète du SPOPO basé sur un cristal apériodique large bande, cet OPO va être décrit et caractérisé.

2.2 Efficacité d'un OPO picoseconde non contraint

2.2.1 Présentation de la cavité OPO

La Fig. 2.5 détaille le montage expérimental de la cavité OPO étudiée dans ce chapitre. Cette cavité est optiquement pompée par le laser Nd :YVO₄ (présenté dans le Chap. 1.3), délivrant des impulsions picosecondes, incidente sur la cavité optique. La fréquence de répétition du laser de pompe est de 76 MHz, délivrant des impulsions d'environ 8 ps. La puissance de ce laser est réglée par la combinaison d'une lame demi-onde suivie par un polariseur. La cavité optique est une cavité linéaire, composée de deux branches colinéaires (M2M1 et M3M4) et d'une branche focalisée (M2M3) où se situe le cristal non linéaire APPLN. Ces deux miroirs sphériques M2 et M3 sont transparents aux longueurs d'onde de la pompe et du complémentaire, mais réfléchissent totalement le signal situé autour de 1480 nm : ces caractéristiques sont celles d'une cavité simplement résonante pour le signal. Ces miroirs possèdent un rayon de courbure de 500 mm, ce qui conduit au waist signal, à un rayon à mi-hauteur du faisceau évalué à 120 μ m.

Le cristal APPLN, situé au niveau de ce waist, est placé dans un four le chauffant à 80°C, cette température pouvant être ajustée. Ce four contenant le cristal, est situé sur un support trois axes permettant de le translater dans l'espace, ce qui permet de changer le réseau du cristal étudiée, ainsi que d'inverser le signe du taux de chirp du réseau par simple rotation du four. Si le

miroir plan M1 est totalement réfléchissant au signal, le miroir M4 plan est un coupleur de sortie avec un taux de réflectivité de 98%, pouvant être changé pour un autre miroir de réflectivité 90%. Le signal sortant de ce coupleur peut être étudié par divers instruments de mesure tels qu'un OSA (AQ6317B, Ando) ou une caméra infrarouge (Pyrocam, Ophir Photonics).

Comme nous avons une pompe picoseconde, les ondes paramétriques seront elles-mêmes picosecondes. Pour que l'impulsion signal soit ré-amplifiée à chaque tour de cavité, il est nécessaire que les impulsions pompe et signal arrivent au même instant dans le cristal, condition dite de pompage synchrone. Comme vu dans la section 1.1.4, cela se traduit par une égalité des longueurs de la cavité pompe et OPO. Pour assurer cette condition dans le montage expérimental, la position axiale du miroir M4 est réglable par une vis micrométrique. Lorsqu'une oscillation signal est observée, nous déplaçons ce miroir, dans le but d'obtenir la position où le seuil d'oscillation est minimal, cette position satisfait alors à la condition de pompage synchrone. L'effet de ce synchronisme sur les performances et les propriétés spectrales de l'OPO sera étudié dans la partie 2.3 de ce chapitre.

En respectant la condition de pompage synchrone, il est alors important d'évaluer les performances de ce SPOPO, par une étude de l'efficacité de conversion des différents réseaux.



Figure 2.5: Montage expérimental de l'OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal apériodiquement polarisé.

2.2.2 Efficacité de conversion des différents réseaux

Taux de pompage optimal

Les OPO sont généralement utilisés à des taux de pompage qui permettent une efficacité de conversion optimisée, soit un taux de conversion des ondes paramétriques le plus élevé possible.

Pour les OPO continus simplement résonants à base de cristaux à accord de phase ou quasi-accord de phase, la théorie prévoit une efficacité de conversion de 100% pour un taux de pompage de $(\frac{\pi}{2})^2 \approx 2.5$ [52]. Dépasser ce taux de pompage conduit à une conversion paramétrique inverse, soit un transfert d'énergie du signal et du complémentaire vers la pompe par somme de fréquences. Les OPO à pompage synchrone, délivrant des trains d'impulsions picosecondes ou femtosecondes, peuvent, tout comme les OPO continus, atteindre un régime stationnaire avec une réamplification à chaque tour de cavité, rendant possible des analogies entre les deux types d'OPO. Cette analogie entre les OPO picosecondes et continus, ne peut être faite avec un OPO nanoseconde, où chaque impulsion est construite à partir de la fluorescence paramétrique indépendamment de l'impulsion précédente. Toutefois, l'émission picoseconde de la pompe incidente étant large bande comparée au spectre monomode d'une pompe continue, on observe un comportement différent en termes de puissance convertie ou de saturation. Ainsi, en régime picoseconde, nous pouvons citer McCarthy *et al.* [66] qui ont rapporté, pour un OPO basé sur un accord de phase par biréfringence, une efficacité de conversion maximale de 80%, à un taux de pompage de 3,7.

Dans le cas des cristaux à quasi-accord de phase apériodique, des études théoriques ont été conduites pour obtenir des amplificateurs paramétriques optiques (OPA) continus avec une conversion paramétrique totale sans phénomène de reconversion à haut niveau de pompage : on parle dans ce cas de conversion adiabatique par analogie avec le transfert adiabatique de population en physique, dont la mise en équation est analogue [69]. Leur comportement théorique a ainsi été généralisé dans le cas d'un mélange à trois ondes divisé en plusieurs étapes, chacune permettant des approximations différentes dans le raisonnement. Expérimentalement, Leshem et al. [56] rapportent pour une SHG dans un cristal APPLN pompé à 1064 nm, un taux de conversion de 60 et 74%.

Par ailleurs, nous pouvons également cité le cas d'un OPO picoseconde avec un accord de phase par biréfrigeance où le taux de conversion obtenue est de 80% [66]; ou encore le cas d'une DFG de Moses *et al.* [71] avec un taux de conversion 100%.

Dans notre cas, le système a été conçu pour obtenir une bande de gain la plus large et la plus plate possible, sans chercher spécifiquement à optimiser l'efficacité de conversion, ces taux de conversion seront moins performants que dans la bibliographie précédemment citée. Avant d'étudier en détail l'efficacité de conversion des cristaux employés, il est important d'analyser la variation des seuils d'oscillations en fonction du taux de chirp. Une étude détaillée a été faite

Chapitre 2 - Caractéristiques générales d'un OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal APPLN



Figure 2.6: Puissance de seuil moyenne en fonction du taux de chirp \varkappa' du cristal APPLN. Ces mesures ont été prises avec un waist du faisceau pompe de 150 µm et un taux de réflectivité pour le coupleur de sortie de l'OPO de R=90%. La droite en pointillé correspond à un ajustement calculé sans prendre en compte le point avec le taux de chirp le plus élevé [22].

préalablement à ma thèse, sur le cristal APPLN#1, qui possède une grande variété de taux de chirp [22]. Ainsi, la figure 2.6 représente la puissance seuil moyenne, en fonction du taux de chirp κ' , déterminée à partir d'un grand nombre de données expérimentales récoltées. Ces données ont été prises avec une configuration du laser de pompe où le waist de pompe est de 150 µm, valeur plus élevée que les configurations utilisées par la suite (voir Sec.1.3), et un taux de réflectivité du miroir M4 de 90%. On note que vues les propriétés du montage de ce SPOPO, les puissances de seuil sont plus élevées que celles obtenues ultérieurement dans cette thèse. On observe toutefois une évolution linéaire de ces puissances de seuil en fonction du taux de chirp, excepté pour le taux le plus élevé. Ce dernier point s'écarte de la variation linéaire observée, avec un écart qui peut s'expliquer par un défaut dans le réseau utilisé. Dans l'hypothèse d'une pompe non dépeuplée, le gain paramétrique en puissance d'un cristal QPM chirpé est de [14] :

$$\Gamma = exp\left(\frac{\pi\gamma^2}{\kappa'}\right) \tag{2.1}$$

où γ est le coefficient de couplage du mélange à trois ondes défini comme :

$$\gamma^2 = \frac{\omega_s \omega_c}{n_s n_c} \frac{2d_{\text{eff}}^2}{c^2} \times I_p \tag{2.2}$$

avec I_p l'intensité de la pompe en W.m⁻², et d_{eff} le coefficient non linéaire effectif. La puissance seuil est donc proportionnelle au taux de chirp, pour maintenir un gain constant compensant les pertes de la cavité, ce qui est bien observé sur la Fig.2.6.



Efficacité de conversion des réseaux

Figure 2.7: Puissance signal extraite d'un OPO avec un coupleur de sortie de R=90%, en fonction de la puissance de pompe incidente. Les cristaux APPLN (en noir) et PPLN (violet) placés dans cette cavité, ont été façonnés pour avoir le même gain crête, impliquant une longueur plus grande pour le cristal APPLN de 60 mm, comparé au 20 mm du cristal PPLN [22].

Contrairement à un cristal à retournement périodique où une importante reconversion de pompe se produit au-delà d'un certain taux de pompage, un cristal apériodique permet de réduire les effets de saturation à de forts taux de pompage [91]. Sur la Fig.2.7, nous comparons la puissance signal extraite d'une cavité SPOPO picoseconde, avec un cristal PPLN de 20 mm, ou un cristal APPLN de 60 mm, les deux cristaux ayant été conçus pour avoir le même gain petit-signal [22]. Ce même gain petit-signal conduit à une puissance seuil égale pour les deux OPO. Au démarrage, la puissance signal issue de l'OPO avec un cristal périodique est plus importante à basse puissance pompe, mais elle présente un effet de saturation à haute puissance de pompe. Un tel phénomène de saturation n'est pas observé dans le cas du quasi-accord de phase apériodique, et la puissance signal évolue linéairement avec la puissance pompe, et cela pour tous les cristaux utilisés.

La Fig.2.8 représente l'évolution des puissances signal (a) et complémentaire (b) pour les réseaux G4' et G6' et un chirp du réseau QPM positif ou négatif. Une évolution linéaire est observée pour chaque voie et les deux signes du chirp ; et aucune saturation n'est observée à haut taux de pompage. Nous ne pouvons extraire un comportement empirique quand à l'influence du signe de chirp sur la puissance extraite : si plus de puissance est extraite avec un taux de chirp positif pour le réseau G4', le réseau G6' est plus efficace avec un taux de chirp négatif. Une différence est toutefois notée quant à l'évolution de la puissance complémentaire extraite



Chapitre 2 - Caractéristiques générales d'un OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal APPLN

Figure 2.8: Étude expérimentale de la puissance signal (a) et complémentaire (b) à la sortie de l'OPO en fonction de la puissance pompe incidente. La cavité OPO étudiée possède un coupleur de sortie signal de R=98% et est pompé par le laser#1. Sont représentées en rouge les données issues de la voie G4' ($|\kappa'| = 39000 \ m^{-2}$) et en bleu celles issues de la voie G6' ($|\kappa'| = 117000 \ m^{-2}$), les carrés pleins étant les valeurs pour un taux de chirp positif et les carrés creux un taux de chirp négatif.

en fonction du taux de chirp : le gain paramétrique étant plus élevé pour le réseau G4' que pour le réseau G6'; on voit que l'augmentation de la puissance complémentaire en fonction de la puissance pompe est plus forte pour ce premier réseau, cela se traduit également par une puissance signal globalement plus élevée pour le réseau G4'.

Comme lors d'une génération paramétrique, un photon pompe est utilisé pour générer une paire de photons signal et complémentaire, on devrait s'attendre à ce que l'évolution de la puissance signal et complémentaire ait le même coefficient directeur à un facteur λ_c/λ_s près, ce qui n'apparait pas sur la Fig.2.8. Cette différence est due à un effet cascade THz discuté ultérieurement dans ce chapitre (Sec.2.4) : quand le signal initial est assez élevé, il tient le rôle d'onde pompe dans la génération de deux autres pics signal (comme observé sur la Fig.2.4), les ondes complémentaires issues de ces générations paramétriques étant situées dans une gamme térahertz. En mesurant au puissance-mètre la puissance signal, la mesure ne filtre pas la puissance issue des pics signal secondaires obtenus par effet cascade THz et la mesure acquise intègre donc l'ensemble du spectre proche infrarouge. En mesurant le complémentaire, la mesure ne se fait que sur le pic complémentaire issu de la génération paramétrique initiale.

Des résultats similaires ont également été obtenus avec les réseaux du cristal APPLN#3, avec entre autre une évolution linéaire de la puissance sans saturation. À partir de ces résultats, il est possible de calculer l'efficacité de conversion du système OPO. La cavité OPO utilisée

étant résonante pour le signal, il est judicieux dans ce cas de définir l'efficacité de conversion η en fonction de la puissance extraite complémentaire $P_{complémentaire}$ en sortie du miroir M3 :

$$\eta = \frac{N_c}{N_p} = \frac{P_{complémentaire} \times \lambda_c}{P_{pompe} \times \lambda_p}$$
(2.3)

où N_c et N_p représente le nombre photons complémentaire et pompe. On note que cette efficacité de conversion peut également être définie en fonction de la puissance pompe dépeuplée (en sortie d'OPO); toutefois, l'élément optique séparant le complémentaire de la pompe après le coupleur M3 induit de forte pertes dans le faisceau pompe, ce qui rend ces mesures imprécises. À partir de l'évolution de la puissance complémentaire de la Fig.2.8, on peut calculer l'évolution du rendement quantique des voies du cristal APPLN#2 (cf. Fig.2.9). La longueur d'onde complémentaire nécessaire pour ce calcul est obtenue en la calculant à partir de l'équation de conservation de l'énergie, la longueur d'onde signal étant connue par une mesure à l'OSA.



Figure 2.9: Efficacité de conversion de la voie G4' et G6' du cristal APPLN#2, en fonction de la puissance pompe, pour les deux signes de taux de chirp. Ces courbes sont calculées à partir des données de la Fig.2.8.

Comme observé pour la puissance, l'efficacité de conversion est plus élevée pour le réseau G4' que pour le réseau G6'. Pour le réseau G4', l'efficacité de conversion semble plus haute pour un taux de chirp négatif, avec une valeur maximale d'environ 8,2%. Ces valeurs de conversion sont moins élevées que celles relevées dans la bibliographie, mais la comparaison est difficile, car les références existantes ont été obtenues soit dans un autre régime temporel, soit pour

un processus paramétrique différent ou d'autres cristaux non linéaires. On peut néanmoins citer une efficacité de conversion de 40% obtenue dans le cas d'un SPOPO picoseconde basé sur un cristal PPLN, mais pour un complémentaire proche de la dégénérescence [25]. Nous ne pouvons donc avoir avec ce dispositif une conversion de fréquence adiabatique, le taux de chirp et l'apodisation du cristal n'ayant pas été conçus pour une telle application [97, 79]. L'utilisation dans notre travail d'un cristal à retournement apériodique de polarisation amène bien à une large bande de gain aux dépens de l'efficacité de conversion.

Si les voies du cristal APPLN#2 ont été conçues pour avoir une bande de gain différente, mais centrée sur la même longueur d'onde signal, les voies du cristal APPLN#3 sont conçues pour avoir un gain égal sur les différentes partie du spectre infrarouge. La Fig. 2.10 représente l'efficacité de conversion des voies du cristal APPLN#3, où est indiqué l'emplacement de leurs bandes de gain pour les ondes signal. Sachant que la valeur du gain des voies du cristal AP-PLN#3 (de H₁ à H₆) se trouvent entre celle du réseau G4' et G6' (voir Sec.1.2.2), il est cohérent que la valeur des puissances seuil des réseaux APPLN#3 se trouvent entre celles des réseaux G4' et G6' : la puissance seuil est approximativement de 1W pour les voies de APPLN#3, de 1,25W pour G6' et de 0,5W pour G4'.

L'efficacité de conversion varie en fonction de l'emplacement de la bande de gain : nous observons une décroissance notable de l'efficacité de conversion lorsqu'on s'éloigne de la dégénérescence, on passe ainsi d'un taux de conversion d'environ 7% pour la voie H2 à une efficacité d'environ 3,5% pour la voie H6 la plus éloignée de la dégénérescence. Cette différence s'explique par la définition de l'efficacité de conversion, ici choisi comme étant le rapport des photons complémentaire par les photons pompe (Eq.2.3). Ce coefficient ne prend pas l'efficacité de conversion au niveau énergétique, ce qui explique cette différence entre des réseaux conçus pour avoir la même valeur de gain. Un autre facteur impactant l'efficacité de conversion de notre système correspond aux variations des pertes induites par les optiques de la cavité OPO ; ainsi nous n'avons pu faire osciller l'OPO avec le réseau H1, car la bande de gain attendue est en dehors de la bande de réflexion des miroirs utilisés.

2.2.3 Comparaison avec les efficacités de conversion simulées

Afin de comparer les efficacités de conversion mesurées avec des résultats numériques, nous utilisons un code numérique développé au laboratoire et préalablement validé [25, 21]. Ce code est utilisé dans l'approximation des ondes planes et résout les équations non linéaires couplées grâce à une méthode des différences finies dans le domaine temporel. Ce code prend également en compte la différence de vitesse de groupe ainsi que la dispersion.

Nous pouvons grâce à ce code numérique, calculer les puissances des ondes paramétriques à l'état d'équilibre (soit quand cette puissance est égale d'un tour de cavité à l'autre), en



Figure 2.10: Évolution de l'efficacité de conversion des réseaux du cristal APPLN#3 (avec un taux de chirp positif) en fonction de la puissance moyenne de la pompe. Les différents réseaux permettent de couvrir différentes plages spectrales comme indiqué dans la légende.

fonction des propriétés des impulsions pompe incidente et notamment la puissance moyenne. Il est alors possible de calculer numériquement l'évolution de l'efficacité de conversion en fonction des propriétés du cristal non linéaire.

Une étude préalable à cette thèse a été faite pour évaluer la valeur du coefficient non linéaire effectif d_{eff} d'un tel OPO basé sur cristal APPLN [22], en adaptant la méthode de Findlay-Clay aux OPO. Cette technique expérimental consiste à mesurer la puissance seuil de l'OPO pour de multiples valeurs de réflexion du coupleur de sortie et à partir de la courbe $P_{seuil} = f(R_c)$, et en extraire la valeur du coefficient non linéaire effectif.

Cette valeur mesurée à $d_{eff} = 3,91 \ pm/V$, n'est pas valable pour les cristaux utilisés dans cette thèse. Il s'avère alors qu'une valeur de $d_{eff} = 4,96 \ pm/V$ et une perte par tour de cavité équivalente à celle donnée par un coupleur avec un réflexion partielle de 90% (qui s'ajoute à celle du au coupleur de sortie) nous permettent d'obtenir des efficacités de conversion cohérentes avec l'expérience. Cette amélioration du coefficient non linéaire effectif, peut être dû soit à l'amélioration de la qualité des réseaux fournis par le fabriquant, ou par une diminution des pertes dans la cavité optique.

La Fig.2.11 montre l'évolution calculée de l'efficacité de conversion de la génération paramétrique issue d'un OPO basé sur les réseaux du cristal APPLN #3. Cette étude numérique retransmet bien l'évolution rapide de l'efficacité de conversion à basse puissance, ainsi que l'atteinte d'un niveau stationnaire qui reflète l'évolution linéaire de la puissance vue sur la



Figure 2.11: Efficacité de conversion simulée de l'OPO basé sur les réseaux du cristal APPLN#3. Le coefficient non linéaire effectif utilisé est $d_{eff} = 4,96 \ pm/V$, un coupleur de sortie d'OPO $R_s=98\%$ et des pertes intracavité de $R_c=90\%$.

Fig.2.8(b). Les différences d'efficacité de conversion selon la bande spectrale sont également bien représentées, le réseau H2 délivrant de meilleures efficacités de conversion que la voie H6. Dans l'Éq.2.3, nous avons traduit l'efficacité de conversion comme un rapport de conversion de photons complémentaire par les photons de pompe. Ce parti pris ne prend pas en compte l'aspect énergétique de la conversion paramétrique et sa dépendance fréquentielle, ce qui explique les écarts entre les efficacités de conversion des réseaux de la Fig.2.11, alors que les voies du cristal ont été conçus pour avoir la même valeur de gain.

Si la valeur de l'efficacité de conversion numérique est proche de celle observée par l'expérience, la puissance seuil d'oscillation $P_{seuil} = 1, 8 \pm 0, 1 W$ est éloignée de la puissance seuil expérimentalement mesurée à environ 1W. Cette différence provient que nous avons adapté d_{eff} afin de reproduire numériquement la valeur obtenue expérimentalement de l'efficacité de conversion et non pas celle de la puissance seuil. Le fait que nous ne puissions pas avoir ces deux facteurs concordant simultanément avec l'expérience, vient des approximations opérées dans le code : en effet, le code numérique ne simule pas l'effet cascade THz et utilise l'approximation des ondes planes. Les études numériques nous permettent toutefois de confirmer les résultats expérimentaux, notamment sur les dynamiques spectrales comme cela sera démontré dans le Chap.3.

2.3 Importance du synchronisme sur les propriétés de l'OPO non contraint

2.3.1 Influence du synchronisme sur l'efficacité de l'OPO

Comme vu dans la Sec.1.1.4, pour que l'OPO oscille et atteigne un état d'équilibre, il faut ré-amplifier l'impulsion signal à chaque tour de cavité. Pour cela, il est nécessaire d'avoir un recouvrement des impulsions pompe et signal dans le cristal, ce qui induit une égalité des longueurs optiques des cavités pompe et OPO. Le désynchronisme ΔL_{sync} est alors défini comme la différence de longueur de cavité entre la cavité signal et la cavité pompe, et le temps de désynchronisme comme la différence de temps de trajet dans la cavité OPO et dans la cavité pompe, soit :

$$\Delta T_{sync} = \frac{\Delta L_{sync}}{c} = \frac{L_{OPO} - L_{pompe}}{c}$$
(2.4)

Cette condition de synchronisme est supposée respectée dans la suite du manuscrit en minimisant le seuil d'oscillation de l'OPO par translation axiale de la position du coupleur de sortie M4.

Les effets du synchronisme ont été étudiés dans la littérature dans le cas de divers OPO picosecondes [18, 66, 26, 82]. L'objectif ici est de voir comment l'effet de ce synchronisme in-fluence les propriétés spectrales, temporelles et d'efficacité d'un OPO picoseconde ayant comme particularité d'être basé sur un cristal apériodique à large bande de gain.

Une étude préalable à ma thèse avait été réalisée pour analyser l'influence du synchronisme sur la largeur temporelle des impulsions signal [22]. Ainsi, la Fig.2.12(a) représente la puissance signal en fonction du désynchronisme de la cavité OPO, modifiée en utilisant la vis micrométrique du miroir M4 permettant une résolution de $\pm 5 \ \mu$ m. Cette même figure représente, toujours en fonction du désynchronisme, la largeur de la trace d'autocorrélation à deux photons signal obtenue selon la méthode présentée dans la Sec.2.1.1, ainsi que trois exemples de ces traces à des valeurs de désynchronisme différentes. Cette étude a été faite pour un taux de pompage de trois, et un coupleur de sortie de R=90%. Nous pouvons schématiquement diviser la Fig.2.12 en trois zones correspondant à trois évolutions différentes : (i) la zone I correspond à un désynchronisme positif, soit une cavité OPO plus longue que la cavité pompe. Dans cette zone, la puissance chute rapidement et la durée des impulsions décroit; (ii) la zone II est également caractérisée par une baisse de la puissance signal, lorsqu'on s'éloigne du synchronisme exact, mais cette baisse est plus modérée que celle observée en zone I; la durée de l'impulsion est peu variable dans la zone II et vaut environ $\tau_{pompe}/\sqrt{2}$; (iii) dans la zone III, on observe une continuité de la baisse de la puissance observée en zone II ainsi qu'une augmentation notable de la durée d'impulsion. Le synchronisme exact est situé entre les zones I et II. Ces effets du

synchronisme sur une source picoseconde, ne sont pas spécifiques à notre cristal QPM chirpé, mais ont été observés dans nombre de sources picosecondes. Ryasnyanskiy *et al.* [82] ont ainsi exploité les effets du synchronisme pour obtenir une source accordable en durée d'impulsion de 9 à 17 ps ou de 12 à 20 ps.



Figure 2.12: Puissance signal en sortie d'OPO (en noir) et largeur des figures d'autocorrélation (en bleu), en fonction du désynchronisme de la cavité ou du temps de désynchronisme (a). Cette étude a été réalisée avec un coupleur de réflectivité de 90%, un taux de pompage de 3 et le réseau G4'($\kappa' > 0$). Les traces d'autocorrélations (b) ont été mesurées pour les points numérotés dans (a) [22].

2.3.2 Influence du synchronisme sur les propriétés spectrales de l'OPO

Nous savons que le synchronisme influe sur la durée de l'impulsion signal et doit donc agir également sur le profil spectral. Pour confirmer cette hypothèse, nous avons lors de cette thèse, étudié l'effet du synchronisme sur la génération paramétrique du réseau H3 (APPLN#2) avec un chirp positif, pour une cavité avec un taux de réflectivité du coupleur de sortie de 98%. La Fig.2.13 représente l'évolution du profil spectral signal obtenue à l'OSA, en fonction de la valeur du désynchronisme. Le profil spectral en noir est enregistré pour le synchronisme exact $\Delta L_{sync} = 0$. L'origine de sa forme particulière, composée d'un pic principal et de pics secondaires sur un de ses côtés, n'est pas discutée dans cette partie du manuscrit, mais au cours du Chap.3.

Deux caractéristiques majeures se détachent de cette figure, à savoir une dépendance de la longueur d'onde des profils spectraux en fonction du désynchronisme, mais aussi de la largeur



Figure 2.13: Profil spectral signal normalisé en fonction du désynchronisme de la cavité. Ces données sont enregistées pour le réseau H3 ($\kappa' > 0$), avec un coupleur de sortie de taux de réflectivité R=98% et un taux de pompage de 3.



Figure 2.14: Longueur d'onde centrale et largeur du pic principal à $1/e^2$ des spectres signal de la Fig.2.13 en fonction du désynchronisme de la cavité.

des pics. Pour mettre en évidence ces phénomènes, la Fig. 2.14 montre l'évolution de la longueur d'onde du pic principal en fonction du désynchronisme, mais également l'évolution de la largeur du pic principal à $1/e^2$. Cette figure est séparée en trois zones distinctes selon le même principe que la Fig. 2.12(a).

Pour la zone I, nous observons une augmentation rapide vers les grandes longueurs d'onde, en ayant une largeur du pic globalement croissante. La zone II se caractérise par une longueur d'onde minimale, accompagnée d'une grande largeur du pic signal. Enfin la zone III se caractérise par une augmentation lente de la longueur d'onde et une diminution globale de largeur du pic lorsqu'on s'éloigne du synchronisme exact. Pour être comprises, ces variations spectrales doivent être reliées aux variations de la puissance observées en Fig.2.12; de plus, il faut tenir compte du fait que la localisation de la génération paramétrique se rapproche du début du cristal lorsque la puissance signal intracavité augmente, ce qui sera démontré au Chap.3. On sait que lorsque $|\Delta L_{sync}|$ est élevé (soit en bord de zone I et zone III), nous avons une décroissance de la puissance signal, ce qui implique un décalage de la génération paramétrique vers la sortie du cristal. Or, le cristal étant ici chirpé positivement, cela implique un pas du réseau plus élevé et donc une longueur d'onde signal plus élevée pour respecter l'accord de phase $\Delta k = 0$. La décroissance en puissance étant plus lente en zone III qu'en zone I, la longueur d'onde augmente moins. Au contraire, la puissance dans le cristal étant plus forte en zone II et autour du synchronisme exact, la longueur d'onde signal est basse.

Par transformée de Fourier, nous pouvons relier la largeur du spectre signal et la durée de l'impulsion. L'impulsion étant courte en zone I, la largeur spectral est alors élevée, alors que l'impulsion étant longue en zone III, la largeur spectrale correspondante est courte. Les points en zone II ont une largeur spectrale plus élevé que en zone I, alors que les impulsions de cette dernières zones sont plus courtes. Cette incohérence s'explique car la puissance en zone II est plus grande, permettant donc d'avoir une génération paramétrique sur une plus grande longueur de cristal et autant de longueur d'onde satisfaisant la condition de phase.

2.3.3 Discussion sur les effets du synchronisme sur les propriétés de l'OPO

Si on a vu que le désynchronisme avait un effet sur la puissance de l'onde paramétrique, sur sa durée d'impulsion et de facto sur sa largeur spectrale et sa longueur d'onde, nous n'avons pas discuté des effets du synchronisme sur la génération paramétrique dans le cristal. En effet, lorsque le synchronisme est changé, nous modifions l'évolution du recouvrement des impulsions. Pour étudier cette évolution, il faut prendre en compte la différence de vitesse de groupe (GVM pour *group velocity mismatch*) entre la pompe et le signal résonant, ainsi que, dans une moindre mesure, la dispersion de vitesse de groupe du signal (GVD pour *group velocity dispersion*) [26, 55]. La différence de vitesse de groupe est définie comme :

$$GVM_{ij} = \frac{1}{\nu_{gi}} - \frac{1}{\nu_{gj}} = \frac{n_{gi} - n_{gj}}{c}$$
(2.5)

où ν_g est la vitesse de groupe de l'onde considérée et n_g son indice de groupe. Ainsi pour calculer la GVM, il est nécessaire de connaitre l'indice de groupe, qui est calculé grâce aux formules de Sellmeier avec comme coefficients ceux proposés par Gayer *et al.* [31], pour le niobate de lithium. À partir de ces coefficients, nous obtenons la Fig. 2.15 où est calculée la vitesse de groupe en fonction de la longueur d'onde.



Figure 2.15: Vitesse de groupe dans le niobate de lithium en fonction de la longueur d'onde. Les barres verticales marquent l'emplacement d'une pompe à 1064 nm, d'un signal à 1470 nm et du complémentaire équivalent à 3852 nm.

La vitesse de groupe signal est toujours plus élevée que la vitesse de groupe de la pompe, entrainant une différence de vitesse de groupe positive. Ainsi, pour une pompe à 1064 nm, un signal à 1470 nm et un complémentaire correspondant à 3852 nm, nous avons une différence de vitesse de groupe entre pompe et signal de $GVM_{ps} = 89 \ fs.mm^{-1}$, entre pompe et complémentaire de $GVM_{pc} = -63 \ fs.mm^{-1}$, et entre signal et complémentaire de $GVM_{sc} = -152 \ fs.mm^{-1}$. Le SPOPO étudié ici étant résonant au signal, avec une onde complémentaire complètement extraite à chaque tour de cavité, le paramètre principal à prendre en compte est la différence de vitesse de groupe entre la pompe et le signal. Si on néglige la valeur de GVD_{ps} (qui est faible au vu de la largeur de la bande de gain), et sachant que le cristal non linéaire est long de 60 mm, la différence de temps de groupe est d'environ 5, 3 ps pendant la propagation dans le cristal. Ce résultat est à mettre en perspective avec les 432 ps nécessaires à une impulsion signal pour traverser le cristal. Le signal se déplaçant plus rapidement que la pompe dans le cristal, l'évolution des impulsions en fonction du synchronisme peut être comprise et schématisée.

Sur la Fig. 2.16 est schématisée l'évolution des impulsions des ondes en fonction de la zone du désynchronisme définie en Fig. 2.12.

En zone II, soit pour une quasi-égalité entre les longueurs de cavités pompe et signal, nous avons un recouvrement total entre les deux impulsions en milieu de cristal, l'impulsion signal est donc en retard en première moitié de cristal et en avance en seconde moitié. Une variation légère du désynchronisme déplace la position du recouvrement total, mais celui-ci a toujours lieu dans le cristal. Les impulsions signal et pompe sont donc synchrones, entrainant un gain paramétrique maximal comme observé en Fig. 2.12.

Pour la zone I, soit pour une cavité OPO plus longue que celle de pompe, l'impulsion pompe est en avance sur celle du signal lors de son déplacement dans le cristal non linéaire. Nous n'avons alors pas de recouvrement entre l'avant de l'impulsion pompe et la fin de l'impulsion signal. Si le front montant de l'impulsion signal est amplifié, son front descendant ne le sera pas forcément : en effet, la génération paramétrique ne peut se faire si le retard engendré par le désynchronisme empêche un recouvrement total. Ceci explique qu'avec un désynchronisme croissant, on observe une baisse de la puissance et de la durée de l'impulsion signal.

En zone III, l'impulsion signal est en avance en entrée de cristal : si le front ascendant est peu amplifié par manque de recouvrement, celui-ci est important pour le front descendant de l'impulsion signal. Nous avons donc un gain plus élevé pour le front descendant de l'impulsion signal, ce qui favorise des impulsions signal élargies.



Figure 2.16: Évolution des impulsions signal (vert) et pompe (bleu) dans le cristal APPLN, en fonction des zones du désynchronisme définies en Fig.2.12.

L'impulsion signal étant de courte durée dans la zone I, on comprend que nous avons une moins grande tolérance au désynchronisme que la zone III où la durée des impulsions est plus grande. Ces considérations sur la durée des impulsions permettent d'expliquer l'asymétrie de la courbe de puissance signal en fonction du désynchronisme de la cavité [46], ainsi que celle de la largeur des spectres signal.

En fonction de la zone de désynchronisme, la génération paramétrique va avoir lieu à un endroit différent dans le cristal. Ainsi, la zone III a un recouvrement possible en début de cristal, l'impulsion signal se séparant ensuite de l'impulsion pompe, alors que le recouvrement pour la zone I se fera plus loin dans le cristal, l'impulsion signal devant d'abord rattraper l'impulsion pompe. Cette notion d'emplacement dans le cristal du recouvrement des ondes paramétriques est essentielle au vu du caractère apériodique du réseau QPM : si pour un réseau PPLN, la longueur d'onde signal néccessaire pour respecter la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ reste fixe; la variation du pas dans le cristal APPLN, entraîne une variation de la longueur d'onde respectant l'accord de phase. Les résultats présentés ici étant ceux observés pour un cristal chirpé positivement, cela implique un pas de réseau plus court pour la zone III que la zone I. Pour respecter la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$, cette différence de pas donne une longueur d'onde signal plus basse pour la zone III que pour la zone I, ce qui est bien observé sur la Fig.2.14.

Comme expliqué plus longuement dans le Chap.3, nous avons une dépendance de la longueur d'onde signal à la puissance signal intracavité. Le désynchronisme de la cavité fait donc varier la longueur d'onde signal par la position du recouvrement, mais également par son influence sur la puissance signal. Ces deux phénomènes peuvent rentrer en compétition, ou être complémentaire. Ainsi, en zone III de la Fig.2.14, le fait que le désynchronisme continue de croitre, peut laisser penser que le recouvrement se fera de plus en plus tôt dans le cristal et que nous devrions avoir une diminution continue de la longueur d'onde, or celle-ci augmente. Cette augmentation lente est due à la baisse de la puissance signal qui entraîne une augmentation de la longueur d'onde, ce qui contre-balance la baisse dû au déplacement du recouvrement vers l'entrée du cristal. En zone II, nous avons une longueur d'onde minimale, due à un désynchronisme négatif (et donc un recouvrement en entrée de cristal), ainsi que à une puissance signal élevée. En zone I, la baisse de la puissance signal et le recouvrement en aval du cristal, agissent alors ensemble pour une augmentation de la longueur d'onde signal.

L'utilisation de cristal à base de quasi-accord de phase apériodique a donc un effet notable concernant les effets du désynchronisme sur les propriétés spectrales de l'OPO. En revanche, les effets sur l'évolution de la puissance émise et la durée d'impulsion restent très analogues à ceux observés avec un SPOPO picoseconde basé sur un PPLN. Ces derniers effets sont avant tout gouvernés par la différence de vitesse de groupe et sont indépendants de la nature périodique ou apériodique du QPM [55].

2.4 Propriétés spectrales de l'OPO à forte puissance pompe

2.4.1 Observations

Nous avons vu que le profil spectral signal d'un SPOPO picoseconde, basé sur un cristal à base de quasi-accord de phase apériodique, est composé d'un pic principal et de modulations sur un de ses côtés, comme observé sur la Fig.2.13. À ce profil spectral dont l'origine est expliquée en Chap.3, se rajoutent deux pics secondaires à forte puissance pompe. Ainsi, on observe, sur la Fig.2.17, deux pics supplémentaires pour un profil spectral obtenu avec la voie G6' ($\kappa' > 0$) pompée avec un taux de pompage de 4. Le pic nommé s2 est situé à +10,2 nm du pic original s1 (soit 43 cm⁻¹) et apparait approximativement à un taux de pompage de deux. Le pic s3 est situé à +22.2 nm du premier pic (soit 103 cm⁻¹) et est généré pour un taux de pompage de environ trois. Ces pics secondaires sont toujours situés à des longueurs d'onde plus élevées que le pic d'origine, à des distances relativement fixes de ce pic, même si le pic principal subit une variation de sa position fréquentielle. La longueur d'onde des pics secondaires peut même se situer hors de la bande de gain paramétrique théorique comme c'est le cas sur la Fig.2.17, où le troisième pic se trouve à une valeur quasi-nulle de l'amplitude du gain de la voie G6'. Si ces résultats sont observés pour chaque réseau et chaque signe de chirp étudiés, ces paramètres de chirp vont toutefois influer sur le taux de pompage requis pour la génération des pics secondaires.



Figure 2.17: Profil spectral signal sur un spectre large (noir), de la génération paramétrique induite par le réseau G6' avec un chirp positif et un taux de pompage de quatre. L'amplitude du gain de la voie G6' dans le cas d'une pompe à 1064 nm, est représentée en vert.

Afin de savoir si l'oscillation de ces pics secondaires est stable ou si des échanges d'énergie sont observés entre ces pics, l'utilisation de l'OSA n'est pas possible puisqu'il permet d'enregistrer une moyenne sur un grand nombre d'impulsions picosecondes. Nous utilisons donc la technique reportée en Chap.2.1.2 : l'enregistrement de profil spectral tir à tir à l'aide d'une fibre dispersive. Comme expliqué précédemment, cette fibre permet d'obtenir une fenêtre d'observation sans recouvrement de 26,4 nm (avec une résolution de 0,4 nm), ce qui permet d'observer les pics secondaires ; l'écart entre le pic d'origine et celui le plus éloigné étant d'approximativement de 22,2 nm.



Figure 2.18: (a) Profil spectral signal moyen obtenu à l'OSA, ainsi que le profil spatial du faisceau correspondant, pour le réseau G6' ($\kappa' > 0$) et un taux de pompage de quatre. Grâce à la technique d'enregistrement des profils spectraux tir à tir, nous enregistrons le spectrogramme (b), où les profils spectraux sont enregistrés sur un grand nombre de tours de cavité.

La Fig. 2.18(b) représente le profil spectral tir à tir du signal pour un taux de pompage suffisant pour observer les trois pics du spectre. Ces profils relatifs sont complétés par une mesure absolue obtenue à l'OSA (Fig. 2.18(a)). On peut alors faire correspondre chaque pic par comparaison de leur puissance. Le spectrogramme est mesuré en fonction de l'écart au premier pic ainsi déterminé. On voit que les pics sont bien retranscrits dans l'espace temporel grâce à la fibre dispersive, et qu'il est possible d'enregister les différences de puissance entre les pics ainsi que leurs largeurs spectrales. On observe notamment les modulations spectrales sur le côté du premier pic, sans pour autant distinguer l'alternance de pics et creux. La Fig. 2.18(b) montre que les pics secondaires sont stables dans le temps, sans variation de leurs puissances, laissant supposer que ce sont des ondes résonantes dans la cavité ayant atteint un état d'équilibre. De plus, ces ondes résonantes ne dégradent pas le profil spatial du faisceau, celui restant quasigaussien (Fig.2.18(a)).

2.4.2 Effet THz cascade dans un OPO avec une forte puissance intracavité

Comprendre l'origine de ces pics secondaires est primordial pour une étude détaillée du SPOPO, car leur puissance peut dépasser celle du pic principal. Une étude de Sanna *et al.* sur l'effet Raman [84], montre que pour du MgO :LiNbO₃, les premiers pics Raman ont des décalages de 150-151 cm⁻¹ et 252-255 cm⁻¹. Des pics secondaires dues à effet Raman seraient donc situés à approximativement 32 et 55 nm du pic principal. Ces valeurs éloignées de celles observées dans nos expériences suggèrent qu'un effet Raman n'est pas à l'origine de ces pics secondaires. Une preuve supplémentaire, étant le fait qu'un pic Raman décalé de 150-151 cm⁻¹ doit avoir une polarisation transverse à celle du pic original. Une simple expérience avec un polariseur montre que cela n'est pas le cas dans notre SPOPO. Aucune autre étude ne rapporte des pics dus à un effet Raman ayant des écarts fréquentiels similaires à ceux observées. [9, 72, 38, 76].

Des pics analogues ont été relevés dans un OPO continu basé sur un cristal PPLN en 2009 par Kiessling *et al.* qui l'ont attribué à un effet THz cascade. Alors que la puissance du signal principal s1 augmente dans la cavité, il devient lui même la pompe de générations paramétriques, et conduit à la formation des ondes résonantes dans la cavité s2 et s3. Par conservation de l'énergie, les ondes complémentaires issues de ces interactions non linéaires, se trouvent dans le domaine Terahertz. Cet effet a été employé pour créer une source THz à partir d'un OPO picoseconde toujours basé sur un cristal PPLN en 2012 par Liu *et al.* [58].

Si l'étude des ondes THz nous est expérimentalement inaccessible par manque de détecteur approprié, il est possible d'observer le spectre moyen infrarouge (MIR). L'objectif de l'étude du MIR est la validation de l'hypothèse cascade THz : en effet, si les deux pics secondaires sont bien dus à un effet cascade, nous devrions ne trouver qu'un seul pic dans le moyen infrarouge, correspondant à l'onde complémentaire générée par l'interaction paramétrique entre s1 et la pompe à 1064 nm. Pour étudier le moyen infrarouge, nous utilisons un monochromateur (iHR320 - Horiba) suivi par une photodiode. Ce monochromateur permet de filtrer spectralement un faisceau incident, par le jeu d'un réseau de diffraction, son mouvement changeant la longueur d'onde du faisceau sortant de l'appareil et incident sur la photodiode. Ce dispositif nous permet de sonder le MIR avec une résolution de 0,5 nm.

La Fig.2.19 compare le profil spectral signal obtenu à l'OSA (noir) avec le profil spectral MIR obtenu grâce au monochromateur (bleu). On voit que pour chaque pic signal du proche infrarouge, nous trouvons son pic complémentaire correspondant dans le MIR. On note que la résolution du monochromateur est assez bonne pour distinguer les modulations spectrales du pic principal, avec pour ces modulations une forte correspondance de puissance entre les deux profils spectraux. Le fait que nous trouvions l'équivalent des pics secondaires dans le MIR,



Figure 2.19: Comparaison du profil spectral signal obtenu dans le proche infrarouge (en noir) à l'OSA, avec le profil spectral moyen infrarouge complémentaire obtenu avec le monochromateur (en bleu) pour la voie G4'. Les abscisses sont reliées par conservation de l'énergie avec une pompe à 1064 nm.

n'invalide pas l'hypothèse d'un effet cascade THz. En effet, alors que les puissances des pics du profil spectral dans le proche infrarouge ont toutes le même ordre de grandeur, la puissance du pic principal dans le MIR est au moins 20 dB plus élevée que celles des pics secondaires, ce qui signifie que leur origine est due à une DFG parasite entre la pompe à 1064 nm et les pics secondaires générés par effet cascade par s1. Cette DFG parasite n'est pas exceptionnelle, puisque plusieurs autres interactions non linéaires parasites existent également. Ainsi, suite au passage dans le cristal de LiNbO₃, la pompe à 1064 nm est à la source d'une génération de seconde harmonique à 532 nm. Dès le seuil d'oscillation atteint, une SFG se produit également entre la pompe et le signal, donnant lieu à une oscillation orange/rouge autour de 617 nm ; c'est d'ailleurs ce processus qui nous informe expérimentalement que le seuil a été franchi.

La Fig.2.20 détaille l'ensemble des processus paramétriques liés à l'effet cascade THz ainsi que la condition de quasi-accord de phase pour chacun des processus. En premier lieu apparait la génération paramétrique initiale, où la pompe génère le signal s1 et le complémentaire c1 dans le MIR. Avec l'augmentation du signal s1 dans la cavité, celui-ci sert de pompe pour les OPO cascade terahertz. Pour respecter dans le même temps le quasi-accord de phase et la longueur d'onde terahertz imposée par la conservation de l'énergie, l'onde terahertz sera soit propagative ou contre-propagative par rapport aux autres ondes impliquées dans le cristal [58]. Ainsi, l'onde THz3 se propage dans le sens inverse du couple (s1,s2), également impliqué dans cette interaction. À contrario, l'onde THz3 sera co-propagative avec les ondes (s1, s3). Enfin,



Figure 2.20: Schéma d'explication des processus paramétriques rencontrés dans le SPOPO picoseconde dû à l'effet cascade THz. Pour chaque interaction non linéaire est schématisée sa condition d'accord de phase par représentation des vecteurs d'onde \vec{k} et des vecteurs d'onde du réseau \vec{K} impliqués dans chaque processus. Les indices {p,s,c} correspondent respectivement aux ondes pompe, signal et complémentaire, tandis que l'indice {THz} correspond aux complémentaires impliquées dans l'effet cascade et oscillant à l'échelle térahertz. Les fréquences et vecteurs d'onde soulignés sont oscillants dans la cavité OPO. une fois les ondes résonantes s2 et s3 générées par l'effet cascade THz, elles interagissent par DFG avec la pompe à 1064 nm pour donner les pics oscillants dans le moyen infrarouge c2 et c3. Pour que l'effet cascade soit possible, il est nécessaire que le chirp du réseau remplisse la condition d'accord de phase, et donc d'avoir une taille de domaine d'inversion Λ_{THz2} et Λ_{THz3} telle que :

$$\Lambda_{THz2} = \left| \left(\frac{n_{s1} \left(\lambda_{s1}, T \right)}{\lambda_{s1}} - \frac{n_{s2} \left(\lambda_{s2}, T \right)}{\lambda_{s2}} + \frac{n_{THz2} \left(\lambda_{THz2}, T \right)}{\lambda_{THz2}} \right)^{-1} \right|$$
(2.6)

$$\Lambda_{THz3} = \left| \left(-\frac{n_{s1}\left(\lambda_{s1}, T\right)}{\lambda_{s1}} + \frac{n_{s3}\left(\lambda_{s3}, T\right)}{\lambda_{s3}} + \frac{n_{THz3}\left(\lambda_{THz3}, T\right)}{\lambda_{THz3}} \right)^{-1} \right|$$
(2.7)

Les indices de réfraction sont calculés grâce aux équations de Sellmeier, avec comme coefficients pour les proche- et moyen-infrarouges ceux proposés par Gayer *et al.*[31]; pour le domaine Terahertz, les coefficients proposés par Kiessling *et al.*[49] sont plus adéquats. On note que l'indice de réfraction du niobate de lithium a environ une valeur de 5 dans une gamme terahertz, alors que dans l'infrarouge, sa valeur est approximativement de 2,1. Il est alors possible de démontrer que nous avons $\Lambda_{THz2} < \Lambda_{OPO} < \Lambda_{THz3}$ [58], où Λ_{OPO} est le pas du réseau à l'accord de l'OPO initiale ($\omega_p \rightarrow \omega_{s1} + \omega_{c1}$). Cet ordre est bien respecté sur la Fig. 2.21 où est représentée la position des accords de phase des processus paramétriques générant le spectre de la Fig. 2.19, en fonction de l'évolution des pas du réseau G6'. On voit ainsi que l'effet cascade THz co-propagatif (THz₃) se trouve dans une zone où les pas du réseau sont longs, alors que le THz contre-propagatif (THz₂) se trouve celle où les pas du réseau sont les plus courts. Le fait que le THz₃ se situe dans une zone où le cristal est apodisé, explique que la puissance pompe seuil nécessaire pour sa génération soit plus élevée que la puissance seuil pour THz₂, le gain étant faible dans cette région spécifique.

Ainsi, l'effet cascade térahertz nécessite de multiples valeurs du vecteur d'onde du réseau, ce qui suggère que l'utilisation d'un cristal à retournement apériodique est plus adéquat qu'un cristal périodique si l'objectif est une génération THz efficace. On voit ainsi sur la Fig. 2.19 que le signal s1 est plus faible de plusieurs dB comparé aux pics secondaires, ce qui est n'est pas le cas pour l'utilisation d'un OPO picoseconde basé sur un cristal PPLN [58].



Figure 2.21: Évolution du pas du réseau G6' avec un taux de chirp positif en fonction de la position dans le cristal. Les points représentent la position d'accord de phase des différents processus paramétriques à l'origine des pics du spectre signal et MIR de la Fig.2.19. Les ronds correspondent à une DFG engendrée par le laser Nd :YVO₄, et les triangles aux DFG cascades THz.

Synthèse

Nous avons au cours de ce chapitre présenté les multiples propriétés d'un OPO picoseconde basé sur un cristal non linéaire à retournement apériodique. Cette apériodicité entraîne un élargissement de la bande de gain aux dépend de sa valeur et donc de l'efficacité de conversion. On a toutefois démontré que ce dispositif permet d'obtenir une efficacité de conversion de l'ordre de 8% ce qui correspond à une puissance complémentaire dans le moyen infrarouge d'une centaine de mW. L'OPO est pompé par des impulsions picosecondes ce qui impose une condition de synchronisme. Nous avons étudié les effets de ce synchronisme sur la durée des impulsions signal, et par transformée de Fourier, sur la largeur spectrale des ondes paramétriques. Un décalage temporel entraîne une variation des positions de recouvrement des ondes signal et pompe dans le cristal non-linéaire. Cette dépendance de la position du recouvrement dans un cristal apériodique entraîne une variation de la longueur d'onde signal produite. La dernière partie du chapitre a été consacrée à l'étude des propriétés spectrales de l'OPO lors de l'utilisation d'un taux de pompage élevé. Nous avons mis en évidence la présence d'ondes complémentaires produites dans le domaine THz par des effets cascades, bien plus présents que ce qui est rapporté dans la littérature, en raison de l'apériodicité du réseau QPM. Nous avons également observé, dès le seuil d'oscillation paramétrique franchi, des modulations spectrales dans le pic signal principal. L'identification et l'interprétation des ces modulations sont l'objet du chapitre 3.
Chapitre 2 - Caractéristiques générales d'un OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal APPLN

Chapitre 3

Étude des propriétés spectrales spécifiques à un SPOPO picoseconde non contraint basé sur un cristal APPLN

Objectifs

Le chapitre 2 a porté sur l'étude de divers caractéristiques d'un SPOPO picoseconde simplement résonant, basé sur un cristal non linéaire à retournement apériodique sans filtrage spectral intracavité. Plusieurs spécificités notamment spectrales sont ressorties de cette étude. En particulier, nous avons interprété l'apparition de pics secondaires à fort taux de pompage et conclu à un effet cascade THz. Cependant, nous avons volontairement omis l'analyse détaillée du spectre signal proprement dit (hors effet cascade). Dès le seuil d'oscillation paramétrique franchi, nous observons un spectre cannelé constitué d'un pic principal et d'une succession de pics latéraux situés d'un seul côté. La position de ces cannelures dépend du signe du chirp du cristal. Ces propriétés spectrales sont spécifiques aux SPOPO picosecondes basés sur un cristal à retournement apériodique de polarisation et n'ont pas été rapportées dans la littérature.

Le chapitre 3 est dédié à l'étude détaillée de ces propriétés spectrales et constitue l'une des contributions principales de mon travail de thèse. Une étude expérimentale est menée afin d'identifier les facteurs influant sur la génération des cannelures, comme le taux de pompage et le taux de chirp. Cette étude expérimentale est complétée par une étude numérique, qui permet notamment sous forme de spectrogrammes d'analyser l'évolution des spectres paramétriques lors de leur propagation dans le cristal non linéaire. Les résultats sont alors discutés et comparés aux mesures et nous permettent de formuler une hypothèse sur l'origine des cannelures.

3.1 Étude expérimentale des cannelures spectrales

La Fig.3.1 représente le spectre signal pour le réseau G6' dans le cas d'un signe de chirp positif (rouge) ou négatif (noir). Nous observons pour chaque spectre, une forme asymétrique avec un pic principal et des lobes secondaires de moindre intensité dénommés cannelures. Ces cannelures spectrales sont également observées dans le spectre complémentaire à l'aide d'un monochromateur, comme vu précédemment sur la Fig.2.19. En fonction du signe du chirp κ' , ces lobes secondaires sont situés du côté rouge ou bleu du pic principal, tout en gardant un profil spatial non perturbé. On voit que si le spectre signal avec un chirp positif a une modulation spectrale clairement distincte, cette modulation est brouillée dans le cas d'un chirp négatif. Afin de comprendre l'origine des cannelures dans un tel cristal à retournement apériodique, nous étudierons donc préférentiellement le chirp positif, plus facilement interprétable, ce qui permettra de définir des tendances et déterminer les facteurs influents sur ces cannelures spectrales.



Figure 3.1: Spectre signal en sortie de l'OPO avec un coupleur R=98%, pompé par le laser#1, pour le réseau G6' et un de taux de chirp positif (rouge) et négatif (noir), ainsi que le profil spectral signal correspondant.

3.1.1 Comportement spectral de l'OPO en fonction des puissances pompe et du taux de chirp

Nous avons mesuré pour chaque cristal et les différents réseaux, le spectre moyen signal avec l'OSA, le profil spatial à la caméra Pyrocam ainsi que les puissances signal et complémentaire de sortie. La Fig.3.2 représente ainsi l'évolution du spectre signal en fonction de la puissance



Figure 3.2: Évolution du spectre signal en fonction de la puissance pompe du laser#2, pour les réseaux G4' (a) et et G6'(b) pour un coupleur de sortie R=98%.

pompe issue du laser#2, pour les réseaux G4' (Fig.3.2(a)) et G6' (Fig.3.2(b)). On voit que pour chaque réseau, le nombre de cannelures augmente avec la puissance pompe, de même que la largeur spectrale totale. Ces cannelures sont plus prononcées dans le cas du réseau G6' que dans celui du réseau G4'. Le brouillage observé pour le réseau G4' se fait dès une puissance pompe de 2,5W, qui correspond à l'apparition d'un premier pics secondaire due à un effet cascade THz (voir Sec.2.4). Les pics secondaire due à un effet cascade THz, sont par la suite nommé pics cascade THz pour éviter toutes confusions avec les cannelures signal.

Pour le réseau G6', nous observons en premier une diminution de la longueur d'onde correspondant au pic du lobe principal lorsque la puissance pompe augmente. Cette évolution indique une corrélation entre la longueur d'onde du pic principal et la puissance signal intracavité. Plus la puissance signal est élevée, plus le début du cristal est favorisé. En effet, la même étude avec un réseau au chirp négatif montre une augmentation de la longueur d'onde du pic principal en fonction de la puissance pompe, ce qui pour un chirp négatif correspond à une interaction non linéaire mettant en jeu des pas du cristal de plus en plus proches de l'entrée du cristal. Pour un chirp positif la diminution de la longueur d'onde progresse jusqu'au seuil d'apparition du premier pic dû à l'effet cascade THz (soit pour une puissance pompe de 3,5W), où on relève alors une augmentation de la longueur d'onde principale. L'apparition des pics cascades THz conduit à un dépeuplement du pic principal signal vers les raies secondaires et donc à une diminution de la puissance des cannelures [22], ce qui explique l'augmentation de la longueur d'onde, l'interaction paramétrique ayant lieu plus loin dans le cristal non linéaire. Ces différentes évolutions sont moins fortes dans le cas du réseau G4', d'une part car la bande de gain est plus étroite, ce qui empêche de grandes variations, et d'autre part, parce que les pics cascade THz apparaissent peu après le seuil d'oscillation, dépeuplant d'emblée le signal.

Afin de mieux observer les comportements des cannelures en fonction de la valeur du chirp, les spectres signal issus des réseaux G4' et G6' sont représentés sur la Fig.3.3, pour des taux de pompage respectifs de 1,5 et de 2. Nous observons également une influence du taux de chirp sur les cannelures : un taux de chirp plus élevé s'accompagne d'une augmentation du nombre de cannelures et de la distance entre elles, donnant finalement une plus grande largeur spectrale totale. On note que de telles comparaisons ne peuvent être faites sur un grand nombre de taux de pompage différents, car l'effet cascade THz rentre en compétition et dépeuple le signal dès un taux de pompage de 2 (Fig.3.3(b)).



Figure 3.3: Spectre signal en sortie d'un OPO basé sur le réseau G4'(rouge) et G6'(noir), avec un coupleur de sortie R=98%. La puissance du laser#1 à un ratio de puissance de 1,5(a) et de 2(b).

Afin de déterminer la dépendance de l'emplacement de la bande de gain, nous étudions le cristal APPLN#3, qui est conçu de sorte que les bandes de gain de chaque réseau le composant, couvrent une zone du spectre différente (voir Chap1.2.2). La Fig. 3.4 représente les spectres signal issus des différents réseaux pour un taux de pompage de 2 et un coupleur de sortie de R=98%. Les cannelures sont présentes pour chaque voie, mais peuvent être perturbées par les propriétés de réflexion et de transmission des optiques de la cavité OPO : alors que la voie H3 a son spectre proche des longueurs d'ondes les plus basses de sa bande de gain, le spectre de la voie H4 se trouve dans les longueurs d'onde les plus hautes de sa bande de gain. La position de l'amplification paramétrique dans le réseau H4 est donc plus éloignée dans le cristal non linéaire que l'amplification paramétrique dans la cavité, qui privilégie les longueurs d'onde correspondant aux bandes de gain du cristal APPLN#2, soit environ de 1460 à 1500 nm.

L'étude de l'effet de l'emplacement de la bande de gain sur les cannelures nécessiterait donc

d'avoir des optiques permettant d'avoir des pertes constantes dans la cavité. On peut toutefois noter que la distance entre les cannelures de la voie H2 semble plus grande que celle observée pour les voies H3 et H4 ayant un chirp moins élevé, ce qui est un comportement déjà observé entre les voies G4' et G6' de la Fig.3.2.



Figure 3.4: Spectre signal des différents réseaux du cristal APPLN#3 pompé par le laser#1, avec un coupleur de sortie de R=98% et un taux de pompage de deux. Les courbes en tirets correspondent aux bande de gain des différents réseaux.

3.1.2 Comportement spectral de l'onde pompe

Dès l'installation de l'oscillation paramétrique dans la cavité, est observé le développement de cannelures dont le nombre augmente avec la puissance pompe. Afin de comprendre l'établissement des modulations spectrales observées dans les spectres signal et complémentaire, il est utile d'étudier le spectre de la pompe et les variations qu'il subit du fait des interactions paramétriques ayant lieu dans le cristal non linéaire.

La Fig.3.5 représente l'évolution du spectre pompe en sortie d'OPO basé sur le réseau G6' ($\kappa' = 117000 \ m^{-2}$). Sur la Fig.3.5(a), la cavité est intentionnellement désalignée, afin de ne pas avoir d'onde signal oscillante dans la cavité. La Fig.3.5(b) montre le spectre pompe lorsque la cavité est alignée et qu'un signal oscille dans celle-ci. On voit que lorsque le signal est non oscillant, une modification assez légère de la forme du spectre pompe s'opère en même temps que la puissance pompe augmente. L'origine de cette modification n'est pas clairement identifiée. Les effets pouvant être à son origine sont les differents processus non linéaires parasites pouvant altérer la pompe sans que l'OPO n'oscille : SHG parasite (observé expérimentalement par l'apparition d'un faisceau vert), effets quadratiques en cascade [89]...

En revanche, on observe sur la Fig.3.5 des modifications beaucoup plus marquées du spectre pompe transmis lorsqu'on augmente la puissance pompe avec un signal oscillant dans la cavité avec émergence de bandes latérales des deux côtés du pic central de pompe. Dès la puissance seuil franchie, une bande latérale "rouge" apparait à environ $\Delta \lambda = 0, 15 nm$. Une seconde bande



Figure 3.5: Spectre pompe du laser#2 en sortie de l'OPO avec le réseau G6', en fonction du taux de pompage. Le spectre pompe post-OPO est étudié dans le cas d'une cavité intention-nellement désalignée afin d'empêcher une oscillation paramétrique de se mettre en place (a), et dans le cas d'une cavité alignée et un signal oscillant dans celle-ci (b).

latérale rouge se forme ensuite à plus forte puissance pompe se situant à environ 0,3 nm du pic principal. Enfin, une bande latérale bleue émerge également à forte puissance.

La Fig.3.6 montre l'évolution de la longueur d'onde du pic principal des spectres pompe de la Fig.3.5(b). On voit que lorsque la puissance pompe augmente, se produit un déplacement du pic principal en sortie de cristal vers les basses longueurs d'onde d'environ 0,1 nm pour une variation de la puissance pompe de 2,5W. Cette diminution va de pair avec la diminution observée pour la longueur d'onde signal, favorisant l'entrée du cristal (voir Fig.3.2).

Comme il n'y a pas d'apparition de bande latérale dans le spectre pompe lorsque le signal n'oscille pas dans la cavité, on peut conclure que l'apparition des cannelures dès le seuil d'oscillation franchi, est liée à l'émergence de ces bandes latérales, et spécialement à l'émergence de la première bande latérale rouge.

3.2 Étude numérique des propriétés spectrales d'un OPO picoseconde non contraint

L'outil numérique présenté dans le Chap.2.2 permet d'étudier les évolutions des propriétés intrinsèques à cet OPO picoseconde basé sur un cristal non linéaire à retournement apériodique. Ces évolutions peuvent être celles déjà observées expérimentalement, mais également des évolutions ne pouvant être accessibles par l'expérience. Si les premières permettent de vali-



Figure 3.6: Longueur d'onde du pic principal des spectres de pompe post-OPO figuré en Fig.**3**.5(b), en fonction de la puissance pompe du laser#2.

der l'outil numérique en le confrontant aux résultats expérimentaux, les secondes apportent des informations et des données cruciales pour comprendre les processus à l'origine de l'apparition des cannelures dans les spectres signal et complémentaire. Le code utilisé simule les évolutions de l'interaction paramétrique dans l'espace temporel, en utilisant la technique des différences finies. Cet échange paramétrique débute par la définition des ondes paramétriques initiales, la forme temporelle de l'onde de la pompe étant supposée être gaussienne, alors que les ondes signal et complémentaire débute du bruit quantique. Le bruit quantique se retranscrit numériquement comme étant équivalent à l'énergie d'un demi-photon pour chaque fréquence de la fenêtre fréquentielle considérée. Le code utilise la méthode des différences finies sur un grand nombre de tours de cavité, la pompe et le complémentaire étant totalement éliminés à chaque tour et renouvelés par leurs valeurs initiales. La valeur du champ électrique signal lors d'un nouveau tour de cavité $U_{s-i}(n)$, est dépendante de celle finale du tour précédent $U_{s-f}(n-1)$, des pertes dues au coupleur de sortie R_s et celles inhérentes aux autres éléments de la cavité qui sont prises en compte via une réflectivité équivalente R_c :

$$U_{s-i}(n) = U_{s-f} \times \sqrt{R_c R_s} \tag{3.1}$$

La simulation commence par une phase de construction de l'oscillation paramétrique où le signal final n'est pas égal d'un tour de cavité à l'autre (soit $U_f(n) \neq U_f(n-1)$). Après cette phase dite transitoire, on atteint un régime stationnaire où les impulsions se reproduisent à l'identique à chaque tour (soit $U_f(n) = U_f(n-1)$). Dans certains cas extrêmes, pour de très forts taux de pompage, cet état stationnaire n'est pas atteint. C'est d'ailleurs également le cas expérimentalement comme observé lors de la thèse de Delphine Descloux [[21]]. Dans l'étude numérique qui suit, nous nous placerons toujours dans des situations où un régime stationnaire est atteint, et ne considèrerons pas le cas de ces régimes extrêmes.

Comme nous le voyons sur la Fig.3.7(a), la forme asymétrique du spectre signal, constitué d'un pic principal et de lobes secondaires sur un côté, est bien prédite par la simulation numérique. L'effet du signe du chirp du cristal concernant la localisation des cannelures sur le côté rouge ou bleu du pic principal est également bien retranscrit. Toutefois, on peut remarquer que l'inversion du signe du chirp produit une symétrie et ne retranscrit pas le spectre perturbé observé expérimentalement pour les chirps négatifs. L'origine de cette différence n'est pas encore déterminée. Nous pouvons néanmoins supposer qu'elle peut être due à un effet non pris en compte dans notre modèle numérique. Ce modèle étant basé sur des ondes planes, il ne prend pas ainsi en compte les effets transverses ou les interactions non-colinéaires spécifiques aux cristaux QPM chirpés, qui pourraient également induire une telle dépendance au signe du chirp [14]. Des effets non-linéaires de plus haut ordre peuvent également perturber le spectre [6], mais doivent être peu importants au vu de notre profil spatial quasi-gaussien (voir Fig.3.1) et des puissances crête peu intenses.

Sur la Fig.3.7(b) sont reportés les spectres complémentaires obtenus numériquement. On voit qu'ils sont également composés de cannelures, comme cela a été vérifié expérimentalement à l'aide d'un monochromateur (voir Fig.2.19). On dénote toutefois que les cannelures sont moins marquées pour le complémentaire, avec notamment des creux moins profonds. Le code numérique qui à l'origine a été développé pour l'étude d'OPO basé sur des cristaux PPLN [25], est donc également adapté pour des cristaux APPLN.

L'étude présentée dans ce manuscrit se limitera au cas des deux réseaux G4' et G6. En effet, des analyses numériques portant sur d'autres cas (notamment les réseaux du cristal APPLN#3) ne seront pas nécessaires pour la compréhension de l'origine des cannelures et ne seront donc pas présentées dans cette partie. De même, comme on peut le voir sur la Fig.3.7, les profils spectraux signal à l'état d'équilibre pour un chirp négatif ou positif présentent une symétrie, la majorité de l'étude sera donc faite dans le cas d'un chirp positif, cela dans un souci de simplification. L'étude numérique se divisera en deux parties : (i) l'étude phénoménologique des facteurs influant sur les cannelures, (ii) et l'étude de la dynamique spectrale intracristal à l'état stationnaire.

3.2.1 Étude phénoménologique des facteurs influant les cannelures spectrales

Le code numérique employé permet de comparer les spectres des ondes signal expérimentale et simulée en fonction du taux de chirp κ' des réseaux. La Fig.3.8 représente les spectres signaux des réseaux G4' et G6' obtenus pour un taux de pompage de 3 (Fig.3.8(a)), ainsi que la distance

Chapitre 3 - Étude des propriétés spectrales spécifiques à un SPOPO picoseconde non contraint basé sur un cristal APPLN



Figure 3.7: Profils spectraux signal (a) et complémentaire (b) numériques à l'état d'équilibre en sortie d'un OPO basé sur le réseau G6', pour un sens de chirp positif (rouge) et négatif (noir)



Figure 3.8: Spectre signal numérique d'un OPO basé sur le réseau G4' ou G6' pour un taux de pompage de 3 (a). Pour chaque spectre est représentée la distance entre le pic n et le pic n+1 des cannelures, en fonction de la distance entre le pic n et le pic principal (b).

entre les pics n et n+1 des cannelures en fonction de la distance au pic principal de ces spectres (Fig.3.8(b)). On observe un moins grand nombre de cannelure avec le réseau G4' et que celles-ci sont plus rapprochées entre elles, par comparaison à celles observées pour le réseau G6', ce qui concorde avec les spectres expérimentaux étudiés précédemment (Fig.3.2).



Figure 3.9: Spectre signal numérique, issu d'un OPO basé sur le réseau G6', en fonction du taux de pompage (a). De ces spectres, est représentée l'évolution de la distance entre le pic n et le pic n+1 des cannelures en fonction de la distance entre le pic n et le pic principal (b).

Dans le but de confirmer les résultats expérimentaux, nous avons également étudié numériquement l'influence de la puissance pompe sur l'évolution des cannelures. La Fig. 3.9(a) montre l'évolution du spectre signal numérique issu d'un OPO basé sur le réseau G6', en fonction du taux de pompage. On voit tout d'abord, conformément aux résultats expérimentaux, une dépendance de la longueur d'onde du pic principal qui décroit avec l'augmentation de la puissance. Une étude similaire avec un taux de chirp négatif révèle une augmentation de la longueur d'onde avec la puissance pompe, confirmant ainsi que l'interaction paramétrique en début du cristal est privilégié avec l'augmentation de la puissance. À partir de ces spectres, la Fig. 3.9(b) représente la distance entre les cannelures en fonction de la distance au pic principal, les résultats pour un taux de pompage de 10 ayant de plus été ajoutés. Les différentes courbes montrent une augmentation du nombre de cannelures avec l'augmentation de la puissance, ainsi qu'un rétrécissement de la distance entre ces cannelures. Si le nombre de cannelures évolue continuellement avec la puissance, le rétrécissement des cannelures proches du pic principal atteint une stabilité à fort taux de pompage. On voit ainsi que la distance entre le pic principal et la première cannelure atteint une valeur de $\Delta \lambda = 1,033 \pm 0,016 nm$ à partir d'un taux de pompage de 3,5 et reste fixe (dans la limite de la résolution du code numérique) jusqu'à des taux aussi élevés que 10. Il existe toutefois une différence de longueur entre les cannelures pour

les pics les plus éloignés du pic principal, et ce même pour les taux de pompage les élevés. Le fait que nous ayons plus de cannelures à forte puissance pompe, peut être expliqué car la pompe peut interagir sur une plus grande longueur de la bande de gain paramétrique avant son dépeuplement. Une différence entre l'expérience et les simulations numériques est observée sur l'évolution de la longueur d'onde à fort taux de pompage : sur l'expérience (Fig.3.2 (b)) la longueur d'onde du pic principal augmente à fort taux de pompage, alors qu'elle est stable dans les études numériques. Cette différence s'explique par la non prise en compte dans le code numérique de l'effet cascade THz. C'est cet effet présenté au Chap.2.4.2, qui transfère l'énergie du pic principal vers les pics cascade secondaires, diminuant la puissance du pic principal et causant alors une augmentation de la longueur d'onde.

L'utilisation du code numérique permet de varier plusieurs paramètres ne pouvant l'être par l'expérience. La Fig.3.10 montre ainsi l'évolution du spectre signal en sortie de l'OPO, en fonction de la durée de l'impulsion de pompe allant de 1 à 40 ps. La puissance crête incidente est gardée constante entre ces impulsions pompe. Une augmentation de la durée des impulsions s'accompagne à la fois d'un rétrécissement de la distance entre les cannelures et d'une augmentation de ces cannelures, avec néanmoins un raccourcissement de la largeur spectrale totale. Un calcul du produit de la bande spectrale et de la durée d'impulsion (valant 0,44 pour la limite de la transformée de Fourier d'une impulsion gaussienne), donne une augmentation non linéaire de ce produit avec la durée de l'impulsion : on passe d'une valeur de 0,58 pour $\Delta T = 1 ps$, à 1,95 pour $\Delta T = 40 \ ps$. Ce produit a été calculé en prenant comme largeur spectrale celle du pic principal à mi-hauteur. L'augmentation de ce produit peut être comprise comme une plus grande variation de la phase du champ électrique de l'impulsion signal. On note également une diminution de la longueur d'onde du pic principal, lorsque la durée des impulsions augmente. Le raccourcissement de la largeur spectrale et la diminution de la longueur d'onde avec l'augmentation de la durée d'impulsion, sont deux évolutions déjà observées précédemment lorsque le synchronisme est modifié (voir Chap.2.3). En effet, nous avons montré qu'en agissant sur le synchronisme, la durée de l'impulsion signal est également altérée. Or le fait de modifier la durée des impulsions paramétriques modifie l'emplacement dans le cristal du recouvrement des ondes paramétriques. De plus longues impulsions paramétriques signifient que le recouvrement se fait sur une plus grande longueur de cristal. Le processus paramétrique se fait alors plus proche de l'entrée, ce qui dans le cas des réseaux de chirp positif, donne un quasi-accord de phase pour des basses longueurs d'onde de l'onde signal. La modification de la longueur d'onde en fonction de la durée des impulsions est stable quand la différence de temps de parcours dans le cristal des ondes paramétriques (due à leur différence de vitesse de groupe), devient négligeable devant la taille des impulsions, soit quand les ondes paramétriques ont un recouvrement pendant toutes leurs traversées du cristal non linéaire. Ainsi, à partir d'une durée d'impulsion signal et pompe de 30 ps, nous avons peu de variations de la longueur d'onde principale, car la différence de

temps de propagation dans le cristal des ondes $\Delta T = GVM_{ps} \times L_{cristal} = 5,3 \, ps$ (voir Sec.2.3), a peu d'influence dans cette gamme de durées d'impulsion.



Figure 3.10: Évolution numérique du spectre signal, en sortie d'un OPO basé sur le G6', en fonction de la durée d'impulsion à mi-hauteur de l'impulsion pompe. Les impulsions pompes incidentes ont la même puissance crête.

En conclusion, les résultats des simulations numériques montrent que divers facteurs influencent les propriétés des cannelures. Nombres des résultats obtenus sont en accord avec les résultats expérimentaux présentés préalablement, ce qui confirme la justesse du code numérique utilisé dans ces études. Nous avons ainsi vu qu'une augmentation de la puissance pompe incidente ou de la durée des impulsions, augmentait le nombre des cannelures et rétrécissait la distance entre elles. Il est intéressant de noter que ces facteurs augmentent également les longueurs d'interactions des processus paramétriques présents dans ce cristal. On peut donc en déduire que les longueurs d'interactions sont étroitement liées à l'apparition et au développement de ces cannelures. Pour mieux comprendre leurs influences dans la génération du spectre signal cannelé, il est nécessaire d'investiguer les évolutions des ondes paramétriques dans le cristal où sont situés ces longueurs d'interactions des échanges paramétriques.

3.2.2 Simulation de la dynamique spectrale des ondes paramétriques dans le cristal

Dans l'étude numérique précédente, nous avons étudié les facteurs influençant l'apparition des cannelures et leur développement. Toutefois, un aspect important non encore abordé est la relation entre les spectres pompe et signal. En effet, nous avons observé expérimentalement que le développement des cannelures dans le spectre signal s'accompagne du développement dans le spectre pompe de bandes latérales (voir Chap.3.1). Dans cette nouvelle partie, nous analysons

l'évolution du spectre pompe et du spectre signal dans le cristal non linéaire afin de déterminer comment les interactions paramétriques couplent ces spectres et conduisent à leurs évolutions au cours de la propagation. On note que l'OPO étant résonnant au signal, la différence entre la puissance spectrale signal incidente au cristal et celle sortante ne serait pas assez contrastée sur un spectrogramme; il est donc plus utile d'étudier l'évolution du spectre signal dans le cristal non linéaire soustrait par le spectre signal incident. Cette différence correspond à l'évolution de la génération paramétrique dans le cristal.



Figure 3.11: Spectre signal normalisé en sortie de cristal pour un chirp positif (a) et négatif (b). Le spectrogramme simulé, pour le réseau G6' à l'état d'équilibre, de l'évolution du spectre signal dans le cristal soustrait par le spectre signal incident est représenté, pour un taux de chirp positif (c) et négatif (d). Le taux de pompage de l'OPO est de 4.

Cette évolution de la génération paramétrique signal dans le réseau G6' est représentée sur la Fig.3.11 pour un chirp positif (c) et négatif (d), leur spectre signal en sortie de cristal est également représenté (réciproquement (a) et (b)). La symétrie observée précédemment au niveau des spectres de sortie entre les signes de taux de chirp est, en fait, présente sur l'ensemble du spectrogramme. Là encore, cette symétrie permet de simplifier l'étude en se concentrant uniquement sur un taux de chirp positif. On peut noter que l'évolution de la génération paramétrique dans le cristal est dépendante de la longueur d'onde, selon qu'elle correspond à un pic ou un creux des cannelures. Les creux sont en effet caractérisés par une baisse de leur puissance en début de cristal, alors que dans cette même zone, les pics subissent un gain important.

Afin de préciser ces variations, il est utile de réaliser une représentation 2D de ce spectrogramme pour des longueurs d'onde spécifiques, tel que représentée sur la Fig.3.12(c). Les



Figure 3.12: Évolution numérique du spectre de génération paramétrique de longueurs d'onde particulière signal (c), et évolution des longueurs d'onde (p₋₁, p₀ et p₁) du spectre pompe (d), dans le cristal non linéaire pour un taux de pompage de 4. Dans l'inset (a) est représenté le spectre signal en sortie de cristal, avec l'indication des longueurs d'onde correspondant à celles de (c). L'inset (b) montre le spectre pompe en sortie de cristal normalisé par le spectre pompe incident, où les longueurs d'onde étudiées en (d) sont repérées.

longueurs d'onde $(s_{1},s_{0},s_{1} \text{ et } s_{2})$ étudiées ont leurs positions dans le spectre signal indiquées sur la Fig.3.12(a). La longueur d'onde s₀ correspond à la longueur d'onde du pic principal des cannelures, s_2 correspond au premier creux, et les longueurs d'onde s_{-1} et s_1 sont situées à mi-hauteur du premier pic. L'accroissement du signal à s_0 a une allure similaire à celle attendue pour une onde monochromatique dans un cristal QPM chirpé et apodisé, comme reporté dans la bibliographie [15, 97], avec une nette augmentation autour du point d'accord de phase exact (PPMP pour Perfect Phase Matching Point) situé à la position z_{PPMP} , où $\Delta k(z_{PPMP}) = k_p - k_s - k_c - K_g(z_{PPMP}) = 0$. Cette forte amplification est suivie d'un signal oscillatoire amorti, également reporté dans la littérature pour un réseau QPM chirpé et apodisé. La longueur d'onde du creux s_2 , et celle à mi-hauteur du premier pic s_1 , présente un accroissement initial similaire à celui de s_0 autour de leurs PPMP, toutefois un comportement oscillatoire décroissant amorti est ensuite observé. L'évolution de la longueur d'onde s_{-1} se distingue des autres, car elle débute par une décroissance jusqu'à environ 16 mm, puis augmente nettement autour de son PPMP jusqu'à environ 22 mm dans le cristal et enfin se termine par un accroissement plus doux avec un caractère oscillatoire sur le reste du cristal. Si cette étude de l'évolution des longueurs d'onde spécifiques a été présentée uniquement pour le premier pic, les autres pics des cannelures donnent des résultats analogues. On peut en effet voir sur la Fig.3.11(c), que le motif du premier pic se répète sur les autres pics, la différence se faisant sur les positions des fortes augmentations, qui se situent plus loin dans le cristal avec l'augmentation de la longueur d'onde signal. L'OPO ayant atteint l'état stationnaire, on peut enfin souligner que, malgré ces évolutions assez différentes, le gain est identique à la fin pour chaque longueur d'onde, égal aux pertes de cavité.

Pour étudier la relation entre les cannelures signal et les bandes latérales de pompe, nous avons tracé le spectre de pompe et son évolution dans le cristal sur la Fig.3.13 pour chaque signe du taux de chirp. Sur cette figure, les sous-parties (a) et (c) représentent les spectres pompe incident et sortant du cristal non linéaire. Ces spectres sont en accord avec les résultats expérimentaux de la Fig.3.5, avec pour un taux de pompage de 4, la même présence de deux bandes latérales rouge (une intense et une moindre) et d'une bande latérale bleue. On voit que le spectre pompe est transformé par son passage dans le cristal, avec l'émergence des bandes latérales pendant que le pic central est dépeuplé. On note que, comme pour le spectrogramme signal, il y a une symétrie des évolutions en fonction du signe du taux de chirp, nous permettant d'étudier seulement le taux de chirp positif.

Il est utile comme dans le cas de l'étude de la génération paramétrique signal, de suivre l'évolution dans le cristal de longueurs d'onde pompe spécifiques (Fig.3.12(d)). Les longueurs d'onde p_{-1} , p_1 et p_0 correspondent, comme on peut le voir sur la Fig.3.12(b), respectivement aux bandes latérales bleu et rouge et au pic principal. Le pic principal p_0 a, comme pour la longueur d'onde signal s_0 , un comportement similaire à celui d'une onde monochromatique



Figure 3.13: Spectre pompe en sortie de cristal (rouge) normalisé par le spectre pompe incident (noir) pour un signe de chirp positif (a) et négatif (b). Est également représenté le spectrogramme simulé, pour le réseau G6' à l'état d'équilibre, de l'évolution du spectre de pompe dans le cristal non linéaire avec un taux de chirp positif (c) et négatif (d). Le taux de pompage de l'OPO est de 4

utilisée pour de la conversion de fréquence dans un cristal QPM chirpé et apodisé [15, 97]. Le dépeuplement de p_0 est ainsi important à la même position ($z \approx 20 \, mm$) dans le cristal que celle où s_0 subit une forte augmentation et est suivi par une oscillation amortie. La bande latérale rouge p_1 est dépeuplée avant p_0 et atteint sa déplétion minimale à la position où p_0 subit son fort dépeuplement. Après ce minimum, p_1 est en lente augmentation avec un comportement oscillatoire amorti. Contrairement à ces deux longueurs d'onde, la bande latérale bleue p_{-1} augmente en début de cristal. La bande latérale bleue atteint alors un maximum à une position approximativement égale à celle où p_1 atteint son minimum. Suite à ce maximum, l'intensité de p_{-1} est fortement dépeuplée sur quelques millimètres avant d'atteindre une intensité relativement constante sur le reste du cristal. Si chaque bande latérale possède un caractère oscillatoire amorti en fin de cristal, celui de la bande latérale rouge est nettement croissant, ce qui fait qu'en sortie de cristal, l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalement plus basse que l'intensité de la bande latérale bleue est finalemen

Enfin, on peut noter que chaque tranche temporelle de l'impulsion, le spectre qui en issue possède les mêmes caractéristiques (voir Annexe B). Les échanges paramétriques observés ici sont donc applicables pour chaque temps des impulsions.

3.3 Discussion - Origine des cannelures spectrales

Toutes les études numériques et expérimentales de ce chapitre ont été réalisés pour comprendre l'origine du spectre signal atypique représenté sur la Fig.3.1. Ces modulations signal sont spécifiques au OPO picoseconde basé sur un cristal à quasi-accord de phase apériodique et n'ont jamais à notre connaissance été rapportées et expliquées précédemment.

Comme les profils QPM des réseaux du cristal sont chirpés, la longueur d'onde pompe centrale p_0 à un accord de phase exact pour une génération de différence de fréquence (DFG) avec un couple de longueur d'onde signal et complémentaire différents à chaques nouvelles positions dans le cristal. Ainsi pour un chirp positif, il y a un accord de phase avec les basses longueurs d'onde en entrée de cristal, alors que pour un chirp négatif, les pas du cristal à son entrée permettent un accord de phase pour les hautes longueurs d'onde. La DFG permettant d'obtenir le pic principal signal a donc lieu avant celles permettant d'obtenir les cannelures. La pompe disponible est donc moindre pour l'amplification paramétrique des cannelures suivantes. Ce dépeuplement de p_0 se poursuit lors de sa propagation dans le cristal à chaque nouvelle amplification d'un pic des cannelures. Pour maintenir un facteur d'amplification constant sur l'ensemble du spectre signal, et ainsi atteindre un état stationnaire, la hauteur des cannelures doit alors devenir de plus en plus basse. Le fait que l'accord de phase de la DFG donnant les longueurs d'onde signal dépende de la position dans le cristal, est spécifique au réseau QPM chirpé et explique la forme asymétrique décroissante de l'enveloppe du spectre signal. Toutefois, le dépeuplement de la pompe le long du réseau chirpé n'explique pas les modulations spectrales observées dans le spectre.

3.3.1 Lien entre les évolutions des ondes paramétriques

Pour amplifier une longueur d'onde signal tout en dépeuplant une longueur d'onde pompe, le processus paramétrique mis en jeu est la génération de différence de fréquence (DFG). A l'inverse, pour obtenir une longueur d'onde pompe par dépeuplement du signal et du complémentaire, le processus est la génération de somme de fréquence (SFG).

Soit la longueur d'onde centrale du spectre pompe p_0 , qui est utilisée pour amplifier la longueur d'onde s_0 du pic principal signal (voir Fig.3.12(a) et (b)), le complémentaire résultant de cette DFG est alors c_0 . À partir de la loi de conservation de l'énergie, on déduit que pour générer une bande latérale pompe bleue à partir de c_0 , celle-ci doit subir une interaction paramétrique de SFG avec une longueur d'onde signal λ_s telle que $\lambda_s < \lambda_{s0}$. De même, pour construire une bande latérale pompe rouge à partir de c_0 , la longueur d'onde devra interagir avec une longueur d'onde signal telle que $\lambda_s > \lambda_{s0}$. On voit que le fait de ne pas conserver un spectre pompe monochromatique en sortie d'OPO, nous informe qu'il existe des échanges dit croisés.

Pour comprendre l'implication de ces échanges croisés sur les modulations spectrales, il est utile d'observer les variations dans le cristal de longueurs d'onde discrètes comme fait précédemment sur la Fig. 3.12(c) et (d). Si les évolutions de ces ondes ont précédemment été étudiées isolément, elles n'ont pas été mises en relation entre elles. Comme vu précédemment, l'évolution de la pompe p_0 et du pic principal signal s_0 est celle prévue pour un échange paramétrique d'ondes monochromatiques dans un réseau chirpé, avec un fort échange d'énergie autour du PPMP (soit ici entre approximativement 15 et 24 mm dans le cristal), et suivi par une oscillation amortie pour le reste du cristal [15]. Cet échange sera similaire pour chaque maximum des cannelures, puisque la Fig.3.11 nous apprend que le même motif se répète pour chaque cannelure. Le signal minimum s₂ montre également une forte augmentation en même temps que p_0 est dépeuplé, toutefois son oscillation décroissante en fin de cristal semble davantage corrélée à l'augmentation de la bande latérale rouge p_1 au même endroit. Les évolutions des longueurs d'onde à mi-hauteur des pics signal s_{-1} et s_1 , ont des évolutions plus complexes. Ainsi l'augmentation précoce de s_1 (par comparaison avec s_0) et son comportement oscillatoire décroissant en fin de cristal semblent liés au dépeuplement de la bande latérale rouge p_1 en début de cristal ainsi qu'à son caractère oscillatoire croissant en fin de cristal. Seule la longueur d'onde s_{-1} est décroissante en début de cristal, avant de croître avec un caractère oscillatoire croissant en fin de cristal, ce qui peut être mis en relation avec l'augmentation en début de cristal de la bande latérale bleue p_{-1} ainsi que son dépeuplement en fin de cristal.

À partir de l'analyse de l'évolution de ces longueurs d'onde spécifiques, on voit alors que les différentes parties des spectres pompe, signal et complémentaire subissent plusieurs processus paramétriques croisés. Pour expliquer la génération des cannelures et des bandes latérales, il faut prendre en compte toutes les longueurs d'onde existantes et toutes les interactions paramétriques qui en découlent.

Ces échanges paramétriques sont plus importants autour du point d'accord de phase parfait, ce qui rend l'ordre d'apparition des PPMP de chaque processus paramétrique dans le cristal important. Pour déterminer la position dans le cristal du PPMP, il est nécessaire de déterminer le pas du réseau permettant d'obtenir l'accord de phase $\Delta k = 0$, soit la position z_{PPMP} où :

$$\Lambda(z_{PPMP}) = \left| \left(\frac{n_p(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n_s(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n_c(\lambda_c, T)}{\lambda_c} \right)^{-1} \right|$$
(3.2)

Comme dans le Chap.2.4, les indices de réfraction sont obtenus par les équations de Sellmeier en utilisant les coefficients de Gayer *et al.*[31], qui sont valables pour des longueurs d'onde de 0,5 à 4 μm .

A partir de cette équation, nous calculons et représentons sur la Fig.3.14, la position dans le réseau G6' des processus paramétriques possibles entre les longueurs discrètes. On retrouve alors le principe de processus paramétriques en cascade avec en vert les DFG permettant d'obtenir les ondes signal et complémentaire à partir de p_0 , et en bleu et rouge les accords de phase permettant d'obtenir des bandes latérales par SFG. Toutes ces interactions paramétriques respectent la loi de conservation de l'énergie. Un point à prendre en compte est le fait que la cavité OPO étant simplement résonnante au signal, le complémentaire est totalement extrait à chaque tour de cavité et est donc limité au bruit quantique en entrée de cristal. Cette absence de complémentaire implique que pour générer une bande latérale par SFG, le PPMP du DFG générant ce complémentaire doit se situer en amont du PPMP de la SFG. Sur la Fig.3.14, cette condition est satisfaite pour toutes les SFG générant les bandes latérales rouges (points rouges) : à titre d'exemple, la DFG correspondant au point vert $p_0 \rightarrow s_{-1} + c_{-1}$ va permettre de générer plus loin dans le cristal la SFG $s_0 + c_{-1} \rightarrow p_1$. Alors que la SFG à l'origine de la bande latérale bleue, a la position de son accord de phase située avant l'accord de phase de la DFG générant le complémentaire nécessaire.

Ainsi, la DFG correspondant au point vert $p_0 \rightarrow s_0 + c_0$ est située préalablement la SFG $s_{-1} + c_0 \rightarrow p_{-1}$. Pour expliquer l'existence de la bande latérale bleue, il faut considérer que les processus paramétriques ont lieu sur une certaine longueur dit d'interaction et non pas seulement au PPMP.

Pour cela, on peut se référer aux travaux de Yaakobi *et al.* qui ont développé une théorie générale du couplage de trois ondes dans un milieu non-uniforme et non linéaire $\chi^{(2)}[97]$. À



Figure 3.14: Position de l'accord de phase dans le réseau G6', pour la DFG avec la pompe à 1064 nm (vert), et la génération des bandes latérales bleue et rouge par SFG. La courbe noire correspond à l'évolution des pas du réseau dans le cristal. Les longueurs d'onde étudiées sont définies sur la Fig.3.12.

partir des équations d'onde couplées et l'utilisation de plusieurs approximations, ils ont obtenu une solution analytique de l'évolution des ondes dans de tels médias. Une des approximations nécessaires à leurs raisonnement est qu'une des ondes paramétriques ait une intensité largement supérieure aux autres, rendant son évolution (dépeuplement ou amplification) négligeable. Bien que cette approximation ne soit pas valable dans notre OPO, nous pouvons toutefois extraire de cette étude les facteurs prépondérants influant sur la valeur des longueurs d'interactions des processus paramétriques. Celles-ci dépendent lentement de la longueur d'onde et de l'indice de réfraction; elles sont également inversement dépendantes du taux de chirp κ' et linéairement dépendant de l'amplitude du champ électrique incident signal et pompe.

Pour un processus paramétrique donné, la longueur d'interaction peut atteindre quelques millimètres à forte puissance. Cette valeur peut expliquer pourquoi il y a génération d'une bande latérale bleue par SFG $(s_{-1}+c_0 \rightarrow p_{-1})$ alors que son accord de phase est situé en amont de celui de la DFG $(p_0 \rightarrow s_0 + c_0)$ permettant d'obtenir le complémentaire nécessaire à sa formation. La nécessité d'avoir une forte puissance pompe pour obtenir une bande latérale bleue a été confirmée expérimentalement sur la Fig.3.5 (b) : cette bande latérale commence à sortir du bruit pour un taux de pompage 3,5, contrairement à la bande latérale rouge p₁ et aux cannelures signal qui existent dès le seuil d'oscillation franchi. Le fait que p₋₁ existe essentiellement à forte puissance pompe, alors que les modulations spectrales signal commencent leurs développement à basse puissance, nous permet de confirmer que la génération de la bande latérale bleue est

principalement un effet du second ordre qui a un rôle marginal dans la formation des cannelures signal.

3.3.2 Hypothèse de processus SFG/DFG en cascade dans le réseau QPM chirpé



Figure 3.15: Schéma de la génération des modulations spectrales signal et de la bande latérale rouge dans le cristal QPM à retournement apériodique à taux de chirp positif, par des processus SFG/DFG en cascade. Les profils en bleu, vert et rouge correspondent respectivement aux spectres pompe, signal et complémentaire. Sont représentés de (a) à (e) les spectres paramétriques, au pas de réseau Λ du cristal, ainsi que l'interaction paramétrique permise par la valeur de ce pas (flèche noire).

À partir des études réalisées précédemment et de leurs résultats, il est possible de proposer une explication quant à l'origine des cannelures signal et des bandes latérales pompe. Pour illustrer cette hypothèse, la Fig.3.15 propose un schéma explicatif d'apparition des cannelures et de formation de la bande latérale rouge. Ayant montré que la bande latérale bleue était au final un effet du second ordre apparaissant à un fort taux de pompage, celle-ci n'est pas prise en compte dans ce schéma.

La Fig.3.15(a) représente les spectres pompe et signal existant à la position du cristal ayant un pas de réseau Λ_1 . Il n'y a alors pas de spectre complémentaire, celui-ci ayant été totalement extrait au tour de cavité précédent. Dans un souci de simplification, on suppose que le spectre pompe est gaussien et le spectre signal rectangulaire en ce début de cristal. Pour le pas de réseau Λ_1 la DFG $p_0 \rightarrow s_0 + c_0$ est permise, entre la pompe incidente et les longueurs d'onde courtes du spectre signal. Cette DFG amène une déplétion de la pompe et une amplification du signal, ce qui résultent en l'émergence du pic principal des cannelures signal ainsi que son pic complémentaire correspondant. Les spectres ainsi modifiés se déplacent jusqu'à un nouveau pas de réseau Λ_2 (Fig.3.15(b), correspondant à la position du PPMP d'une SFG entre le pic complémentaire nouvellement formé et les longueurs d'onde au dessus du pic signal. Cette SFG conduit à l'obtention d'une bande latérale rouge (soit le point $s_2 + c_1 \rightarrow p_1$ de la Fig.3.14). Du fait de cette interaction, à la position du cristal avec un pas de réseau Λ_3 (Fig.3.15(c)), le premier creux des cannelures a été formé, le pic complémentaire a été diminué, et il y a eu émergence de la bande latérale pompe rouge. Le pas du réseau Λ_3 permet ensuite un accord de phase pour une DFG entre le pic principal pompe p₀ et les longueurs d'onde signal supérieures au premier creux, soit l'interaction : $p_0 \rightarrow s_4 + c_4$. Cette interaction permet l'émergence du second pic des cannelures signal et complémentaire, ainsi qu'une déplétion supplémentaire du pic pompe principal. Les nouveaux pics sont moins importants que les pics principaux, car la pompe p₀ a été dépeuplée dans la DFG précédente. Le pas de réseau Λ_4 (Fig.3.15(d)), permet un accord de phase pour une SFG entre le second pic du complémentaire et les longueurs d'ondes signal supérieures au second pic des cannelures signal. Cette SFG diminue l'intensité du second pic complémentaire, mais également de la longueur signal de l'échange paramétrique, résultant en la formation du second creux des cannelures. De plus, la bande latérale pompe rouge est de nouveau amplifiée. Par la suite, les impulsions atteindront le pas de réseau Λ_5 (Fig.3.15(e)), qui permettra une DFG conduisant à l'obtention d'un troisième pic de cannelures. Ces processus SFG/DFG en cascade continuent jusqu'à ce que le pic central pompe soit trop dépeuplé pour permettre du gain paramétrique.

L'hypothèse de processus SFG/DFG en cascade représentée sur la Fig.3.15 est simplifiée et la réalité de la génération des cannelures spectrales est plus complexe. En effet, du fait des longueurs d'interactions, plusieurs processus SFG et DFG peuvent coexister. Ainsi, lorsque la première DFG avec le premier creux signal ($s_2 + c_1 \rightarrow p_1$) permet le développement de la bande latérale rouge, cette longueur d'onde signal est amplifiée par DFG par le pic principal pompe ($p_0 \rightarrow s_2 + c_2$). La coexistance de ces processus paramétriques impliquant la même longueur d'onde, conduit à un complémentaire c_2 affaibli et de ce fait, correspond à un minimum dans le spectre complémentaire. Comme le complémentaire c_2 est affaibli, le processus SFG avec le pic signal suivant ($s_4+c_2 \rightarrow p_1$) l'est également, faisant du processus DFG ($p_0 \rightarrow s_4+c_4$) le processus paramétrique prédominant : ceci explique l'émergence du second pic signal s_4 . L'origine des creux et des pics des cannelures signal dépend donc de quel processus paramétrique entre SFG et DFG est prédominant. Cette prédominance dépend de la puissance complémentaire générée préalablement dans le cristal, puissance qui dépend elle-même du dernier processus paramétrique prépondérant ayant lieu en amont le cristal.

Selon l'hypothèse proposée, ce sont donc des processus SFG/DFG en cascade qui sont à l'origine des modulations spectrales dans les spectres signal et complémentaire et des bandes latérales du spectre pompe. Ces processus sont en accord de phase à différentes positions dans le cristal, dues à l'aspect apériodique du réseau QPM. La séparation entre ces cannelures dépend de la taille des longueurs d'interaction des différents processus paramétriques.

3.3.3 Limites et validation de l'hypothèse de processus SFG/DFG en cascade

Pour vérifier formellement que l'origine des cannelures peut se trouver dans l'intensité des processus paramétriques SFG et DFG en fonction de la fréquence, il serait nécessaire d'élaborer un modèle mathématique. Il existe deux modèles d'intérêts proposés par Yaakobi *et al.*[97] et Porat et Arie [80].

Les deux modèles proposés débutent à partir des équations d'onde couplées, mais leurs approches se séparent à partir de ce point. Yaakobi et al. (2013) basent leur modèle sur des interactions trois ondes auto-résonnantes. Ces interactions apparaissent dans de nombreux champs de la physique tels que l'acoustique ou l'hydrodynamique, mais également en optique non linéaire. Comme son nom le sous-entend, des interactions trois ondes auto-résonnantes impliquent l'interaction entre deux ondes se combinant pour la formation d'une troisième [85]. Elle se base sur la faculté des ondes à rester en résonance, c'est-à-dire en blocage de phase, pour un déplacement adiabatique temporel ou spatial. L'équipe généralise ainsi son modèle en le rendant analogue à un modèle quantique d'un atome à deux niveaux. Un tel modèle mathématique nécessite la mise en place du blocage de phase sur une certaine distance entre les deux ondes paramétriques avant de pouvoir avoir un échange d'énergie vers la troisième onde paramétrique. Yaakobi et al. (2013) montrent que le blocage de phase, et donc l'échange d'énergie, ne peut se faire si le taux de non-uniformité est trop élevé, ce taux étant dans notre cas le taux de chirp κ' du réseau. De là, ils arrivent à transcrire les échanges d'énergie entre les ondes paramétriques par des facteurs courants et simplifiables.

Selon Porat et Arie (2013), il est fondamentalement faux de comparer un tel échange à trois ondes à un modèle quantique d'un atome à deux niveaux, car la non-linéarité des deux systèmes est de "nature différente". Le modèle d'un atome à deux niveaux trouve l'origine de sa nonlinéarité dans la susceptibilité atomique, alors qu'elle se fait, pour les interactions trois ondes, par l'amplitude des champs ondes paramétriques. Ils précisent toutefois que le modèle proposé par Yaakobi *et al.* (2013) reste valable, car ils imposent comme condition un haut ratio entre les amplitudes pompe et signal incidentes sur le milieu, ce qui dans notre OPO n'est pas possible. Porat *et al.* (2013) basent leur approche sur des interactions adiabatiques : ils développent ainsi une forme hamiltonienne des équations d'onde couplées permettant de parfaitement transcrire numériquement les échanges d'énergies dans les interactions à trois ondes, mais rendant toute étude analytique irréaliste en raison de la grande complexité des formules résultantes.

Nous n'avons donc pas à ce jour de modèle mathématique exploitable nous permettant de faire une étude analytique de l'hypothèse de processus SFG/DFG en cascade, car si le modèle de Yaakobi *et al.* (2013) nous permet de le relier à notre OPO, les approximations faites dans ce modèle ne sont pas valables. Le modèle de Porat et Arie (2013) est lui exact, mais s'avère trop complexe pour faire une étude analytique appliquée à l'OPO. De plus, outre la complexité ou les approximations non valables, ces modèles ne prenant en compte que des ondes monochromatique, ne permettent pas de prendre en compte la complexité des échanges croisés observés dans un tel OPO picoseconde.

Si notre hypothèse ne peut être confirmée par un modèle mathématique analytique, l'utilisation des outils numériques nous laisse penser que nos hypothèses sont correctes. Ainsi, nous avons postulé que la mise en place des cannelures est due à une succession de processus SFG et DFG plus ou moins importants. Or, ces processus en cascade sont inhérents à l'aspect apériodique du réseau QPM et ne dépendent sinon que des propriétés de l'impulsion pompe initiale. On représente sur la Fig.3.16(c) et (d) le spectrogramme de l'évolution du spectre signal en fonction du nombre de tours de la cavité OPO de l'onde signal, et cela pour réciproquement une onde signal initialement située dans le bruit et une impulsion signal égale à celle de la pompe incidente, soit une gaussienne de même valeur crête. Les spectres correspondants à l'état initial et à l'état d'équilibre sont représentés sur la Fig.3.16(a) et (b). On voit que l'état initial du spectre signal (et de son impulsion) n'influence pas le spectre signal final, qui à l'état stationnaire reste inchangé, montrant que l'origine et les propriétés des cannelures sont influencées uniquement par l'onde pompe incidente. La différence entre les deux spectrogrammes se fait sur le régime transitoire, tout d'abord au niveau du nombre de tours nécessaires pour atteindre l'état d'équilibre : ce nombre est d'environ 70 pour un spectre initial gaussien et de 100 pour un signal initial dans le bruit. Cette différence est due au fait que l'émergence du signal à partir du bruit dans le deuxième cas prend une vingtaine de tours, alors que dans le cas d'un spectre signal gaussien, cette étape n'est pas nécessaire. Le régime transitoire est caractérisé, comme expliqué dans un article préalable à cette thèse [21], par une évolution du spectre vers les basses longueurs d'onde. Ce déplacement s'explique par l'augmentation de la puissance signal intracavité qui décale la génération paramétrique vers l'entrée cristal. Les longueurs d'onde hautes sont alors filtrées, car non amplifiées à chaque tour de cavité. Ce sont donc les processus paramétriques croisés imposés par le chirp du cristal, qui empêchent la stabilité d'un spectre signal gaussien et son amplification.

En conclusion, le fait que l'état stationnaire de l'oscillation d'un OPO picosecondes basé sur un réseau QPM chirpé soit indépendant de l'impulsion signal initiale, tend à valider notre hypothèse de processus SFG et de DFG en cascade à l'origine des ces modulations spectrales. Cette hypothèse ne pourra toutefois être validée que par un modèle mathématique non monochromatique et ne faisant pas d'approximation telle celle d'une onde paramétrique dont les variations en puissance sont négligeables.

Chapitre 3 - Étude des propriétés spectrales spécifiques à un SPOPO picoseconde non contraint basé sur un cristal APPLN



Figure 3.16: Spectre signal final (noir) et initial (rouge) obtenu pour un signal initial situé dans le bruit quantique (a) et avec une distribution gaussienne (b). L'évolution des spectres en fonction du nombre de tours de cavité est représentée sous la forme de spectrogramme pour un signal initial situé dans le bruit quantique (c) et avec une distribution gaussienne (d).

Synthèse

Dans ce chapitre, les propriétés spectrales d'un SPOPO picoseconde simplement résonant, basé sur un cristal non linéaire à retournement apériodique sans filtrage spectral intra-cavité, ont été étudiées. Un tel SPOPO a comme propriété unique la présence de cannelures dans le spectre signal. Nous avons montré expérimentalement et numériquement que l'origine de ces cannelures est liée au développement de bandes latérales dans le spectre pompe initialement gaussien.

Le nombre et l'écart entre les cannelures dépendent des propriétés de l'impulsion pompe initiale, telles que sa puissance ou sa largeur, mais également de la valeur du taux de chirp κ' du réseau QPM. Notre étude, par des analyses numériques, a mis en relation les évolutions dans le cristal des différentes échanges paramétriques. Nous montrons que l'évolution de l'amplitude des ondes diffère selon qu'elle correspond à un creux ou à un pic dans le spectre signal en sortie de cristal. L'évolution des bandes latérales du spectre pompe a également été expérimentalement et numériquement comparée.

Sur la base de ces résultats, nous faisons l'hypothèse que le développement des cannelures est dû à des processus SFG et DFG en cascade. Cette alternance est due d'une part à l'aspect apériodique du réseau et d'autre part au spectre large de la pompe. L'intensité des interactions non-linéaires a une position donnée dépend des différentes conversion en amont dans le cristal. Par exemple, les creux des cannelures sont générés par des ondes signal qui ont interagit par SFG avec une onde complémentaire qui a été fortement amplifiée par DFG dans le début du cristal.

Si l'hypothèse n'est pas validée par un modèle analytique, qui nécessiterait de prendre en compte des mélanges d'onde non monochromatiques dans un milieu non uniforme, elle concorde avec les différents résultats expérimentaux et numériques obtenus.

Chapitre 4

Détection de gaz par imagerie active à l'aide d'un SPOPO contraint par un VBG intra-cavité

Objectifs

Dans les chapitres précédents, nous nous sommes efforcés de présenter les caractéristiques d'un OPO picoseconde basé sur un cristal QPM apériodique et sans filtage spectral intracavité. Nous obtenons un spectre signal présentant une large bande de gain. Pour contrôler finement la longueur d'onde émise, nous proposons l'utilisation d'un réseau de Bragg en volume apériodique. En effet, la longueur d'onde réfléchie par ce réseau est linéairement dépendante de la distance de propagation de la lumière à l'intérieur de celui-ci. La longueur d'onde signal respectant la condition de pompage synchrone dépend donc de la position du réseau et son déplacement permet une accordabilité rapide du système optique. Ce chapitre est dédié à la validation de l'utilisation du réseau de Bragg en volume comme un moyen d'accorder l'OPO picoseconde. Nous démontrons également que son utilisation permet de détecter par imagerie active une fuite de gaz dans le moyen infrarouge. Pour cela, ce chapitre se divise en quatre sous-parties : (i) une présentation des sources accordables dans le MIR et de l'imagerie active. Nous expliquerons aussi par quel moyen un réseau de Bragg en volume apériodique permet d'accorder la longueur onde émise par l'OPO, (ii) une présentation du montage expérimental et de ses performances en terme de puissance, (iii) une caractérisation de l'accordabilité statique et dynamique de notre système, (iv) ainsi qu'une étude de la détection d'une fuite de protoxy de d'azote (N_2O).

Chapitre 4 - Détection de gaz par imagerie active à l'aide d'un SPOPO contraint par un VBG intra-cavité

4.1 Matériel et méthode

4.1.1 Réseau de Bragg en volume apériodique et condition de pompage synchrone

Les réseaux de Bragg en volume (VBG pour *Volume Bragg Grating*) constituent un composant optique innovant, rendu récemment disponible sur le marché. Ils sont souvent utilisés pour remplacer avantageusement les réseaux de diffraction pour la compression et l'étirement d'impulsions laser courtes dans les amplificateurs à dérive de fréquence [33].



Figure 4.1: (a) Conception d'un réseau périodique par interférence de faisceaux collimatés, et d'un réseau apériodique par interférence de faisceaux convergents et divergents (b).

Un réseau de Bragg en volume périodique est un hologramme en volume produit en enregistrant le motif des interférences de deux faisceaux collimatés dans un verre (Fig.4.1(a)). Cet enregistrement résulte en une modification spatiale de l'indice de réfraction du matériau, ce processus est expliqué plus en détail dans l'annexe A. Une onde circulant dans un tel milieu avec une périodicité de l'indice de réfraction, subit une réflexion dont la longueur d'onde respecte la loi de Bragg :

$$\sin\left(\theta_{OPO}\right) = \frac{\lambda_s}{2n_s\Lambda_{VBG}}\tag{4.1}$$

où Λ_{VBG} est le pas du réseau VBG, n_s l'indice de réfraction du signal dans le cristal et θ_{OPO} l'angle d'incidence de l'onde signal sur le réseau. Dans le cas où le faisceau incident est colinéaire au vecteur réseau, soit $\theta_{OPO} = 90^{\circ}$, la relation se réécrit simplement :

$$\lambda_s = 2n_s \Lambda_{VBG} \tag{4.2}$$

Si une seule longueur d'onde est réfléchie dans un VBG périodique, il est également possible de

graver un réseau de Bragg avec une modulation linéaire du pas ce qui conduit à une évolution linéaire de la longueur d'onde réfléchie selon la position dans le VBG. L'anglicisme "chirpé", plus spécifique, est préféré au terme apériodique par la suite pour décrire ce type de VBG ayant une évolution linéaire des fréquences réfléchies. Il est réalisé en faisant interférer un faisceau convergent et un faisceau divergent (Fig.4.1(b)). La superposition des faisceaux convergent et divergeant fait que l'angle d'interférence varie en fonction de la position dans le cristal, ce qui génère une variation linéaire de la période du réseau de Bragg dans le verre. Ce réseau de Bragg en volume chirpé (CVBG pour *Chirped Volume Bragg Grating*) agit alors localement comme un miroir de Bragg, réfléchissant comme schématisé sur la Fig.4.2 une longueur d'onde différente pour chaque position dans le matériau.



Figure 4.2: Schéma d'un VBG chirpé réfléchissant différentes longueurs d'onde en fonction de la position dans le matériau.

Ce sont de tels CVBG qui sont utilisés dans cette thèse dans un double objectif : obtenir un affinement spectral et une accordabilité en longueur d'onde de l'OPO. Si nous avons spécifié les propriétés de ces composants optiques, leur conception a été réalisé par la société Optigrate. Comme on peut le voir sur le tableau 4.1, nous disposons de deux CVBG ayant une largeur de la bande de réflexion $\Delta \lambda_s$ autour de la longueur d'onde signal λ_s et permettant une réflectivité quasi-constante de R_{max} sur l'ensemble de la bande de réflexion. Le tableau indique également l'équivalent dans le moyen infrarouge $\Delta \lambda_c$ et $\lambda_{c-central}$ des largeurs spectrales et des longueurs d'onde centrale réfléchie par les CVBG, obtenue par respect de la loi de conservation de l'énergie avec le laser de pompe à 1064,5 nm.

Réseau	Longueur (mm)	$\lambda_{s-central}$ (nm)	$\Delta\lambda_s \ (\mathrm{nm})$	$\lambda_{c-central}$ (nm)	$\Delta\lambda_c \ (\mathrm{nm})$	$R_{max}(\%)$
CVBG#1	38	1470,3	40	3856,9	275,9	84,6
CVBG#2	47	1440	50	4082,2	403,6	95

Chapitre 4 - Détection de gaz par imagerie active à l'aide d'un SPOPO contraint par un VBG intra-cavité

 Table 4.1: Propriétés des deux cristaux CVBG utilisés. Ils ont été fabriqués par la société Optigrate qui a également mesuré ces propriétés.

Réseau de Bragg en Volume Chirpé et condition de pompage synchrone

L'utilisation de VBG uniformes dans des montages OPO continus ou nanosecondes n'est pas nouvelle [11, 33], mais ils n'ont été utilisés jusqu'à présent que pour leurs propriétés de filtre, comme peuvent l'être des filtres Fabry-Perot ou un réseau de diffraction. Le VBG est alors utilisé pour permettre un rétrécissement spectral de sources OPO en régime nanoseconde ou continu sans exploiter ses propriétés de dispersion. L'approche mise en œuvre dans cette thèse diffère par le fait que ce sont les propriétés de dispersion des VBG chirpés qui sont utilisées pour obtenir une accordabilité spectrale de l'OPO picoseconde. Cet3 OPO étant picoseconde, la sélectivité spectrale est obtenue par la nécessité de satisfaire la condition de pompage synchrone pour obtenir une oscillation paramétrique dans la cavité (voir Chap.1.1.4), soit la nécessité d'avoir une égalité des fréquences de répétition des ondes pompes et signal afin d'avoir une oscillation dans la cavité OPO. Expérimentalement, le pompage synchrone est respecté en ayant une égalité des longueurs des cavités du laser pompe et de l'OPO soit : $L_{laser} = L_{OPO}$. Dans les chapitres précédents, nous obtenions cette égalité en translatant le coupleur de sortie de l'OPO avec une vis micrométrique ; dans ce chapitre, cette égalité est utilisée comme un moyen d'obtenir une accordabilité de l'OPO.



Figure 4.3: Schéma d'utilisation de la condition de synchronisme alliée avec le réseau de Bragg en volume chirpé pour obtenir une accordabilité du SPOPO.

Comme schématisé sur la Fig. 4.3, la fréquence de répétition du laser de pompe étant de $f_r = 76 \ MHz$, la longueur de cavité du laser de pompe est de $L_{laser} = c/f_r \approx 3,94 \ m$. Il existe une position virtuelle z_0 dans la cavité OPO qui correspond à cette longueur optique de cavité. Quand on place le CVBG à cette position, la condition de synchronisme est respectée et le réseau de Bragg fait alors office de coupleur de sortie. Or, le fait que le VBG soit chirpé, fait qu'on a une variation de la longueur d'onde réfléchie selon la position dans le cristal : un déplacement le long de l'axe optique du CVBG autour de z_0 change donc la longueur d'onde de l'onde réfléchie par le réseau de Bragg et ré-amplifiée à chaque tour de cavité par le cristal non linéaire. C'est donc par un déplacement mécanique autour de la position de synchronisme que l'on obtient une accordabilité de l'OPO. Cette accordabilité est limitée seulement par la bande de gain du cristal non linéaire et par la bande de réflectivité du CVBG.



Figure 4.4: Bande de gain des réflectivités des cristaux APPLN#1 (a) et APPLN#2 (b). La bande de réflexion des CVBG #1 et #2 est représentée sur chaque figure.

Les longueurs d'ondes accessibles grâce à la combinaison des CVBG et des cristaux APPLN permettent d'avoir une accordabilité dans le proche infrarouge, d'environ 65 nm (soit 320 cm⁻¹) de 1425 à 1490 nm. L'équivalent pour le complémentaire situé dans le moyen-infrarouge, est une largeur spectrale de 480 nm (de 3927 à 4207 nm). Pour ce faire, le CVBG#1 est utilisé pour le cristal APPLN#1 et permet de couvrir l'intégralité de sa bande de gain (Fig.4.4(a)). Ce VBG permet également de couvrir les voies H4 et H3 du cristal APPLN#2 (Fig.4.4(b)). Les voies H5 et H6 de ce même cristal sont accordées par l'utilisation du CVBG2#. Si les réseaux de APPLN#2 permettent l'accordabilité sur une grande plage spectrale, cette accordabilité ne sera pas continue, mais nécessitera un changement de réseau par translation verticale du Chapitre 4 - Détection de gaz par imagerie active à l'aide d'un SPOPO contraint par un VBG intra-cavité

cristal. Il peut donc être plus intéressant de se servir de la voie G6, permettant de couvrir continuellement une largeur spectrale de 40 nm, au prix toutefois d'un gain crête plus faible que celui des réseaux du cristal APPLN#2.

4.1.2 Présentation des sources accordables pico- et femtosecondes dans le moyen infrarouge

L'utilisation d'un réseau de Bragg chirpé associé à une source picoseconde synchrone a déjà été mis en œuvre dans des lasers à fibre [11, 50, 74]. Dans les travaux de ces auteurs, l'accordabilité au sein de la bande de gain de ces fibres dopées Erbium, est réalisée, non pas par un déplacement mécanique comme dans notre cas (les réseaux étant gravés dans les fibres, cela n'était pas possible), mais en faisant varier le taux de répétition du pompage laser, de façon à modifier la position du point de synchronisme z_0 dans le réseau chirpé.

Concernant les OPO, des méthodes d'accordabilité exploitant la dispersion du cristal non linéaire ont été développées en régimes femtoseconde et picoseconde proches de la dégénérescence [44, 51]. L'utilisation de la dispersion du cristal non linéaire est toutefois limitée lorsqu'il s'agit de contraindre efficacement le spectre de l'OPO et fonctionne mal hors de la dégénérescence en régime picoseconde. On peut mentionner également des dispositifs d'OPO fibrés où l'accordabilité par dispersion a été démontrée avec des fibres à compensation de dispersion [98]. Dans le cas des OPO fibrés, l'accès à l'infrarouge moyen est difficile. Des travaux d'accordabilité par dispersion sont rapportés pour des sources OPO en régime femtoseconde [54, 88]. Avec un régime de dispersion contrôlé par l'ajout d'un élément dispersif, la taille de la cavité permet d'accorder la source large bande.

Un système d'accordabilité utilisé précédemment à cette thèse était l'utilisation d'un réseau de diffraction en configuration Littrow. Un déplacement mécanique de l'angle d'incidence permettait alors de modifier la longueur d'onde renvoyée dans la cavité. Une accordabilité de 160 nm autour de 3,86 μm a alors été mise en évidence, ainsi qu'une accordabilité rapide de 30 nm (20 cm⁻¹) en 40 μs [23]. Cette technique peut toutefois poser des problèmes de déflexion de faisceau, puisque le changement d'angle incident sur le réseau de diffraction implique que l'onde oscillante s'adapte à la nouvelle géométrie de la cavité. Un CVBG permet de s'affranchir de ce problème, puisqu'on obtient une accordabilité en ne modifiant pas la direction axiale. On note qu'une accordabilité des voies H1 et H2 du cristal APPLN#2 pourrait être obtenue avec ce réseau de diffraction, les CVBG disponibles ayant leurs bandes de réflexion en dehors des bandes de gain de ces réseaux.

On peut également citer l'existence d'OPO utilisant des VBG chirpés selon la direction transverse, un déplacement vertical assurant alors l'accordabilité du système. Un tel chirp transverse est fabriqué avec un réseau "fan-out", soit en éventail, un déplacement vertical équivalant à un changement de VBG périodique de périodes différentes [3]. Un VBG fan-out serait un outil alternatif intéressant à notre chirp axial, mais impose une plus grande rigueur quant à la taille du faisceau incident sur le réseau. Un faisceau trop grand sur un VBG fan-out crée une discontinuité de la taille de la période du réseau rencontrée en fonction de la position dans le faisceau, et donc est générateur d'instabilités temporelle et spectrale. Au vu de la taille de notre cavité optique, l'utilisation de VBG fan-out imposerait l'utilisation de lentilles convergentes pour générer un waist sur le réseau de Bragg : or, tout ajout d'optique augmente les pertes intracavités. Un CVBG, tel que celui-présenté sur la Fig.4.2, est donc le plus adéquat si on tient compte du régime picoseconde de notre système (et donc de la condition de pompage synchrone) et de la longueur de la cavité OPO.

L'utilisation d'un réseau de Bragg en volume chirpé comme élément dispersif, pour réaliser une accordabilité par dispersion au sein d'un OPO à pompage synchrone a été proposée et mise en œuvre pour la première fois dans les premiers mois de ce travail de thèse dans le cadre d'un travail collaboratif avec Dephine Descloux qui terminait sa thèse.

4.1.3 Imagerie active de fuites de gaz dans le moyen infrarouge

L'onde complémentaire doit permettre la détection de fuites de gaz par imagerie active. Comme schématisé sur la Fig.4.5(a), cette technique consiste à filmer une scène avec une caméra moyen infrarouge. Dans cette scène se situe une fuite de gaz qui, en conditions normales, est transparente pour la caméra. Si on vient éclairer la scène avec une source cohérente dans le moyen infrarouge, deux cas de figures peuvent survenir : (i) la lumière n'est pas absorbée par le gaz et la caméra ne peut détecter que le faisceau de la source sur l'écran cible (Fig.4.5 (b)), (ii) ou la lumière est absorbée par le gaz et la caméra observe toujours le faisceau de la source, mais avec un panache obscurci correspondant à la fuite de gaz qui se détache de la lumière non absorbée (Fig.4.5(c)). La détection de la fuite de gaz se fait donc par la détection d'une absence de lumière.

Le premier article sur la détection de fuites de gaz par imagerie (BAGI en anglais pour Backscatter Absorption Gas Imaging) a été publié par Thomas McRae et Thomas Kulp en 1993 [67]. Ils utilisaient alors un laser CO₂ accordable pour détecter et déterminer le seuil minimal de détection de 70 espèces de gaz dans l'infrarouge lointain (9-11,5 μ m). La même équipe s'est alors employée à étudier le moyen infrarouge (plus précisément le 3,27-3,65 μ m), dans des zones d'absorption de fuites d'hydrocarbures en employant une source laser nanoseconde [53]. Ils ont pu détecter du méthane pour des fuites de gaz aussi basses que 9,6 × 10⁻³ L/min et à une distance de détection d'une dizaine de mètres. Pour cela, ils ont éclairés la fuite avec un rayonnement complémentaire issu d'une DFG entre une source à 1064 nm et une source laser accordable autour de 800 nm, donnant une largeur spectrale du complémentaire d'environ 0,2


Figure 4.5: (a) schéma de présentation du principe d'une détection d'une fuite par imagerie active.
(b) vue de la caméra lorsque la lumière de la source cohérente n'est pas absorbée par le gaz, et lorsqu'elle l'est (c).

cm⁻¹. D'autres articles ont porté sur de l'imagerie active pour la détection d'hydrocarbures [90], mais également dans des gammes spectrales similaires à celles disponibles grâces à nos cristaux APPLN. Ainsi, Malcolm *et al. [64]* atteignent le MIR grâce à l'insertion d'un cristal PPLN dans la cavité d'un laser oscillant à 1064 nm, ce qui permet de profiter d'une forte puissance pompe pour la génération paramétrique. Le changement de réseau PPLN leur permet d'étudier une gamme spectrale différente pour l'imagerie active. Maidment *et al.* [60] utilisent un dispositif basé sur un cristal PPLN, dont la largeur spectrale du complémentaire est d'une centaine de nanomètres, couplé à un monochromateur externe à la cavité afin d'affiner le spectre et de pouvoir choisir la longueur d'onde voulue. Malcolm et al. (2009) et Maidment et al. (2015) utilisent toutefois cette technique d'imagerie sur des cellules de gaz et sur des liquides et non pas sur des panaches de gaz.

4.2 OPO picoseconde contraint par un réseau de Bragg en volume chirpé

4.2.1 Montage expérimental

Comme dans les chapitres précédents, le montage optique se repose sur un OPO picoseconde à pompage synchrone. Nous fixons la longueur de la cavité OPO égale à celle du laser de pompe, de sorte que les impulsions pompe et signal arrivent en même temps dans le cristal APPLN, ceci



Figure 4.6: Schéma du montage expérimental d'un OPO picoseconde basé sur un réseau QPM chirpé, pompé par un laser Nd : YVO_4 et accordé par un réseau de Bragg en volume apériodique (CVBG pour Chirped Volume Bragg Grating).

afin que l'oscillation paramétrique se fasse. En plaçant, comme sur la Fig.4.6, le VBG chirpé à la place du coupleur de sortie M4 de la Fig.2.5, nous assurons qu'une seule position z_0 vérifie la condition de synchronisme. Le taux de répétition du laser de pompe étant fixe, on ne peut changer cette position de synchronisme exact, mais nous pouvons translater le VBG chirpé selon son axe z et ainsi changer de fréquence oscillante dans notre cavité. Pour ce faire, le CVBG est installé sur une platine de translation (DDSM100, Thorlabs) permettant un déplacement axial de 100 mm avec une vitesse maximale de 350 mm.s⁻¹, le tout contrôlé informatiquement. Le CVBG agit comme un coupleur de sortie, et le faisceau signal en sortant est analysé par un analyseur de spectre OSA (AQ6317B, Ando) et une caméra infrarouge (Pyrocam, Ophir Photonics). Les ondes pompe et complémentaire sont extraites de l'OPO par le miroir sphérique M3 et séparées l'une de l'autre par un miroir réfléchissant seulement le complémentaire. Afin d'isoler complètement le complémentaire de l'onde pompe et des différentes longueurs d'onde issues d'une génération paramétrique parasite, il est utile également d'employer un filtre passebas ne laissant passer que les longueurs d'onde au-dessus de 2 micromètres.

4.2.2 Comparaison des propriétés d'un SPOPO couplé par CVBG ou un miroir plan

Le résultat de l'installation du CVBG sur le spectre paramétrique est représenté sur la Fig.4.7 où sont comparés les spectres signal issus d'un OPO couplé avec un miroir plan ou avec le

CBVG#1. Les cannelures spectrales relevées et expliquées dans le Chap.3, ne sont pas générées dans un montage comportant le CVBG et la largeur spectrale à $1/e^2$ en est significativement réduite de 2,72 à 0,7 nm, ce qui correspond à un intervalle de nombre d'onde diminuant de 12,45 à 3,21 cm⁻¹. Outre les cannelures, le CVBG permet également de s'affranchir des effets cascades THz, observés à fort taux de pompe (voir Chap.2.4), qui déstabilisaient le spectre signal et dépeuplaient le pic principal signal. Cet effet cascade est caractérisé par l'apparition de deux pics secondaires situés approximativement à 10 et 21 nm du pic principal, en étant résonnant à la cavité optique. Or, si la bande de réflectivité d'un miroir plan est suffisamment grande pour autoriser de multiples ondes d'être résonnantes à la même cavité, le caractère chirpé du VBG empêche ces pics secondaires de respecter la condition de pompage synchrone et donc d'être générés.



Figure 4.7: Spectres signal d'un SPOPO basé sur le réseau G6' en sortie d'une cavité couplée à un miroir plan de R=98% (noir), et d'une cavité couplée avec le CVBG#1 (rouge). Les cavités sont pompées par le laser#2 pour un taux de pompage de 2,5.

Si la Fig.4.7 nous apprend que l'installation du CVBG affine effectivement le spectre signal issu du l'OPO basé sur un cristal QPM apériodique, il est également important d'étudier les conséquences de cette installation sur l'efficacité du système. Le taux de réflexion des deux CVBG étant plus bas (84,6 et 95%) que celui du miroir plan de R=98%, cette baisse se traduit par une augmentation de la puissance du seuil d'oscillation. Le réseau de Bragg entraîne plus de pertes dans la cavité. Lors de la mise en place du réseau CVBG#1, le seuil d'oscillation de l'OPO (basé sur le réseau G6') est de 5,1 W, alors qu'elle n'était que de 1,1W avec un miroir plan (Fig.2.10).

Outre les puissances de seuil d'oscillation, on peut également comparer l'évolution des puissances signal et complémentaire en fonction de la puissance pompe incidente pour le réseau H3 (Fig.4.8(a)). Pour cette étude, la longueur d'onde choisie pour le signal est de $\lambda_s = 1471, 5$ nm, soit le centre de la bande de gain du réseau. En sortie du CVBG, le SPOPO permet d'obtenir quasiment 1,1W de signal à forte puissance de pompe et 130mW de complémentaire. De plus, en utilisant l'Eq.2.3, on évalue l'efficacité de conversion de ce processus paramétrique à approximativement 6% à fort taux de pompage, alors que cette efficacité était d'environ 5,5%dans le cas d'un miroir plan. Ceci montre que si la puissance seuil augmente avec l'incorporation du réseau de Bragg, l'efficacité de conversion n'en est pas affectée. On relève toutefois sur la Fig.4.8(a) que l'évolution des puissances des ondes paramétriques est moins linéaire qu'avec un miroir plan et semble s'infléchir à fort taux de pompage, ce qui pourrait indiquer que la mise en place du réseau sature la génération paramétrique dans le cristal non linéaire. En effet, avec un miroir plan, nous avons vu que la génération paramétrique se fait sur une longue distance du cristal, puisque le spectre signal est lui même large. Or, le CVBG affine le profil spectral, ce qui signifie que la génération paramétrique a lieu sur une courte distance dans le cristal. Une forte puissance signal est généré sur une plus courte distance ce qui explique l'effet de saturation observé. L'emploi du CVBG rapproche le SPOPO basé sur un cristal APPLN, du comportement en puissance d'un SPOPO basé sur un cristal PPLN avec l'atteinte d'un niveau de saturation dans les deux systèmes (2.7).



Figure 4.8: Évolution des puissances signal et complémentaire en sortie d'un OPO basé sur le réseau H3 et le CVBG#1 (a), en fonction de la puissance pompe du laser#2. Représentation de l'efficacité de conversion en fonction de la puissance complémentaire pour une longueur d'onde complémentaire de 3849 nm (b).

4.3 Accordabilité d'un OPO contraint par un VBG

La platine de translation permet un déplacement de 100 mm avec une vitesse maximale de 350 mm.s^{-1} . Les CVB #1 et #2 étant longs de 38 et 47 mm, le déplacement sur l'intégralité de

leur longueur se fait donc respectivement en 0,11 et 0,13 secondes. Ces temps courts empêchent d'étudier l'évolution de la longueur d'onde à l'analyseur de spectre OSA. L'étude de l'accordabilité du SPOPO par le VBG chirpé se fait alors en deux parties : (i) une accordabilité statique où le CVBG est déplacé pas à pas entre chaque enregistrement, (ii) une étude du SPOPO lors d'un déplacement continu de la platine de translation portant le CVBG.

4.3.1 Accordabilité statique

Le CVBG#1 utilisé dans un SPOPO basé sur le réseau G6' permet théoriquement l'accordabilité la plus large de toutes les combinaisons CVBG et réseau QPM disponibles (Fig.4.4), ce qui explique l'intérêt particulier porté sur cette combinaison dans cette étude. La Fig.4.9(a) montre l'évolution du spectre signal en fonction de la position du CVBG#1 pour un taux de pompage de 1,5 soit $P_{pompe} = 1, 5 \times P_{seuil} = 8W$. L'accordabilité, issue du mouvement du réseau de Bragg, est ici de 23,2 nm (107,4 cm⁻¹) autour de 1470 nm, ce qui correspond (par respect de la conversion de l'énergie) à une accordabilité du complémentaire de 157 nm autour de 3859 nm, soit 58% de la bande de gain du cristal non linéaire. Le facteur limitant dans cette largeur spectrale n'est pas ici la bande de gain du cristal ou la bande de réflexion du VBG chirpé, mais la puissance de pompe incidente permettant de dépasser le seuil d'oscillation sur une bande spectrale plus large. Ainsi lors de l'article de Descloux et al. (2016) [24], nous avions obtenu une largeur spectrale de 215 nm (147 cm⁻¹) autour de 3820 nm, ce qui correspond à 80% de la bande de gain du cristal non linéaire pour une puissance pompe moyenne de 12W, ce qui est une puissance non accessible avec le laser#2.

Le VBG étant chirpé linéairement, la longueur d'onde signal dépend linéairement de la position du cristal. Cette linéarité observée sur la Fig.4.9(a) est confirmée sur la Fig.4.10 (a) où le coefficient de détermination R² de l'ajustement linéaire de l'évolution de la longueur d'onde est 0,9997. On peut ainsi déterminer précisément la longueur d'onde signal (sans utilisation d'analyseur de spectre) par simple connaissance de la position du CBVG. Outre la variation linéaire de la longueur d'onde signal, le chirp linéaire du VBG assure l'absence de cannelures spectrale signal. Or, on a vu précédemment que ces cannelures étaient accompagnées de la formation de bandes latérales rouge et bleue dans le spectre pompe en sortie de cristal non linéaire (Chap.3). Ces bandes latérales n'existent pas dans le cas d'un SPOPO couplé par un CVBG (Fig.4.9(b)), ce qui est un indice supplémentaire de la validité de notre proposition que des mélanges croisés en cascade dans un réseau QPM apériodique sont à l'origine des cannelures et des bandes latérales pompe. Si nous n'avons donc pas d'apparition de bande latérales, nous observons tout de même une très légère modification de la forme du spectre pompe en sortie de cristal lorsque la cavité est désalignée afin d'empêcher la mise en place de l'oscillation



Figure 4.9: Évolution du spectre normalisé signal (a) et pompe (b) en fonction de la position du CVBG. Le SPOPO est basé sur le réseau G6', pompé par le laser#2 et accordé par le CVBG#1.

(Fig.3.5). Ces modifications sont attribuées à des processus paramétriques parasite (SFG, DFG), ceux-ci étant plus ou moins importants en fonction de la position du CVBG et de la longueur d'onde signal résultante.

Si la connaissance de la position du CVBG suffit pour connaitre la longueur d'onde signal, l'analyseur de spectre est toutefois nécessaire pour la détermination de la largeur spectrale à mi-hauteur, celle-ci étant dépendante de la position du réseau de Bragg (Fig.4.10(a)). Malgré ces variations, on obtient une largeur spectrale signal moyenne de $\Delta \lambda_s = 0, 28 \pm 0,004 nm$ (soit $\Delta \sigma_s = 1, 3 \pm 0,02 cm^{-1}$), soit une largeur spectrale moyenne à mi-hauteur du complémentaire de $\Delta \lambda_c = 1,94 \pm 0,03 nm$. Afin d'améliorer cet affinement et pour essayer d'uniformiser la largeur spectrale, un SPOPO contraint par un double passage dans le CVBG a également été construit (voir Annexe C). Cette étude a été réalisée en utilisant comme laser de pompe le laser#1, dont le profil spatial alors très dégradé donnait un profil spectral signal multiplepics chaotique pour une configuration avec un simple passage dans la cavité. La mise en place d'un double passage dans le CVBG améliore effectivement les profils spectraux, mais augmente également significativement la puissance du seuil d'oscillation. L'installation du laser#2 a donc été privilégiée à un double passage dans le réseau de Bragg.

Outre la largeur spectrale, le déplacement du CVBG entraîne également une modification des puissances signal et complémentaire générées par l'OPO, comme représenté sur la Fig.4.10(b). Avant de discuter de cette évolution, il est important de noter qu'une telle étude se fait expérimentalement en optimisant la cavité à une position du CVBG assurant la production d'une

longueur d'onde située en milieu de la bande de gain, soit pour le réseau G6' à $\lambda_{s-o} = 1471, 3nm$. Cette optimisation consiste en une minimisation de la puissance d'oscillation en alignant les miroirs de la cavité. Dans de tels conditions, on voit sur la Fig.4.10(b), que les puissances signal et complémentaire pour des longueurs d'onde $\lambda_s > \lambda_{s-0}$ sont en moyenne plus élevées que les longueurs d'onde où $\lambda_s < \lambda_{s-0}$. L'efficacité de la conversion paramétrique dépend de la longueur du CVBG traversée par l'onde, le réseau générant des pertes (par diffraction ou diffusion) plus importantes lorsqu'une plus grande portion du CVBG est traversée. Ainsi, l'étude réalisée en Fig.4.10(b), a été faite avec le VBG chirpé placé afin que les pas du réseau positionné proche de la cavité reflètent les hautes longueurs d'onde. De même, si on retourne le réseau de Bragg (soit la réflexion des basses longueurs d'onde proches de la cavité), on observe alors que la puissance des basses longueurs d'onde est plus forte que les hautes longueurs d'onde. Si ces pertes affectent l'évolution de la puissance en fonction de la longueur d'onde, elles n'affectent par contre pas la largeur spectrale dont les variations ne semblent pas liées à la longueur du réseau de Bragg traversé (Fig.4.10(a)). On note qu'outre la longueur de CVBG traversée pouvant générer des pertes, le déplacement du CVBG peut augmenter ces pertes dû à un problème de parallélisme avec l'axe optique : le faisceau signal renvoyé a une modification axiale, modifiant le recouvrement des faisceaux paramétrique dans le cristal non linéaire et diminuant la génération paramétrique. C'est pour cela que lors l'alignement de la cavité, il faut s'assurer d'avoir un parallélisme le plus correct possible.



Figure 4.10: (a) Évolutions de la longueur d'onde et de la largeur à mi-hauteur des pics de la Fig.4.9, avec les valeurs de l'ajustement de courbe linéaire reportées sur le tableau. (b) La puissance signal en sortie du CVBG#1 et la puissance complémentaire issue du SPOPO sont représentées en fonction de la longueur d'onde. La droite verticale en tirets signale la longueur d'onde pour laquelle l'alignement de la cavité est réalisée.

Nous avons donc grâce à l'installation du CVBG un profil spectral affiné, situé à une longueur

d'onde qui dépend uniquement de la position du réseau. L'accordabilité du système peut de plus être augmentée par une élevation de la puissance pompe, qui permet également de compenser les pertes dues au passage dans le réseau de Bragg. De plus, tout au long du déplacement du réseau de Bragg, le faisceau complémentaire extrait du SPOPO reste gaussien (Fig.4.11), ce qui est utile dans des applications d'imagerie active.



Figure 4.11: Divers profils spatiaux du faisceau complémentaire, correspondant chacun à une position du VBG d_{VBG}. Pour chaque image, on indique la valeur de la longueur d'onde λ_c du complémentaire.

4.3.2 Accordabilité dynamique

Au vu de la vitesse permise par la platine portant le CVBG, suivre l'accordabilité dynamique ne peut se faire grâce à l'analyseur de spectre optique, qui a un temps d'acquisition trop long. Afin de suivre l'évolution de la longueur d'onde, nous utilisons une technique d'analyse déjà présentée et utilisée dans le chapitre 2 : l'enregistrement de profil spectre tir à tir par l'utilisation de fibre dispersive (voir Chap.2.1.2). Ce montage permet de mesurer le profil spectral des impulsions successives, leur forme générale et leur largeur. Une mesure complémentaire à l'analyseur de spectre, en régime stationnaire permet de mesurer la longueur d'onde absolue, servant de référence. Cette référence n'est alors qu'un moyen de vérifier que la longueur d'onde signal correspond bien à celle prévue par la position du CVBG. Le déplacement du CVBG à la vitesse maximale de la platine se fait en approximativement 110 ms et la fréquence de répétition des systèmes optiques (OPO et laser de pompe) étant de 76 MHz, le nombre d'impulsions devant être enregistrées est de plus de 8,2 millions. Ce nombre dépassant la capacité d'enregistrement de l'oscilloscope utilisé, nous devons limiter la quantité de données à enregistrer et à analyser.

L'utilisation d'une carte d'acquisition (high-speed digitizer, Agilent) associée à un générateur de fonction, utilisé comme déclencheur, permet d'enregistrer les impulsions OPO au cours du balayage des fréquences, pour des segments de durée 1 µs et espacés de 100 µs. Nous enregistrons les impulsions pompes en même temps que les impulsions signal, afin qu'elles servent de références. On peut mesurer pour chaque segment l'écart temporel $d\tau$ entre le maximum des impulsions pompe et signal. La longueur d'onde signal variant linéairement avec le déplacement

du CVBG, l'écart temporel entre l'impulsion pompe et l'impulsion signal (dont le spectre est retranscrit dans le domaine temporel) est lui même linéaire.

La carte d'acquisition limite la résolution à un point toutes les 0,5 ns (un délai de 0,5 ns correspond à un décalage en longueur d'onde de 1 nm). Cette résolution est améliorée en moyennant sur l'ensemble des 76 impulsions du segment de 1 μs , donnant une résolution de $0, 5/\sqrt{76} = 57 ps$. Ce moyennage n'est valable que si la variation de la longueur d'onde est négligeable pendant cette durée de 1 μs . On vérifie que la longueur d'onde sur un segment de durée $\Delta t=1$ µs ne varie pas de façon significative pour la mesure du délai $d\tau$ mesuré entre les impulsions signal et pompe. On a :

$$d\tau = \Delta t \times v_{\text{platine}} \times \frac{d\lambda}{dz} \times \frac{d\tau}{d\lambda} = 1, 2.10^{-13} \,\text{s} = 0, 12 \, ps, \tag{4.3}$$

où v_{platine} correspond à la vitesse de la platine de translation, $\frac{d\lambda}{dz}$ représente la variation de longueur d'onde signal de l'OPO en fonction de la position du réseau de Bragg soit 0,7 nm.mm⁻¹ (voir Fig.4.10(a)). Enfin $\frac{d\tau}{d\lambda}$ correspond au coefficient de dispersion de la fibre utilisée soit -500 ps.nm⁻¹. Cette valeur du délai $d\tau$ est négligeable face à la résolution de la carte d'acquisition, rendant le moyennage pertinent. Comme vu précédemment, la dispersion de la fibre et le taux de répétition élevé de l'OPO limitent la plage de mesure à 26 nm dans le proche infrarouge (soit approximativement 120 cm⁻¹). Aux extrémités de la plage de mesure, lorsque les impulsions signal et pompe se croisent, la faible résolution de la carte d'acquisition implique une zone d'incertitude large, ce qui réduit la bande d'observation permise par la fibre dispersive à 25 nm.

La figure 4.12 présente l'évolution de la longueur d'onde en fonction du temps de translation du CVBG#1 : le dispositif d'observation permet une accordabilité rapide, en 100 ms et continue sur toute la plage permise, soit 25 nm (115 cm⁻¹) pour l'onde signal, correspondant à une accordabilité sur 160 nm pour l'onde complémentaire. Cette évolution est reportée ici pour deux vitesses de déplacement du CVBG#1 donnant dans les deux cas une variation linéaire de la longueur d'onde en fonction du temps de déplacement du CVBG. Une vitesse de 300 mm.s⁻¹ permet une dynamique d'accordabilité de 1,4 nm.ms⁻¹ de la longueur d'onde complémentaire, alors qu'une vitesse de 350 mm.s⁻¹ permet une dynamique de 1,7 nm.ms⁻¹. On note que le facteur limitant de la vitesse d'accordabilité est au final la vitesse de translation permise par la platine et non les propriétés du système optique.



Figure 4.12: Évolution relative des longueurs d'onde signal et complémentaire enregistrées lors d'une translation de la platine portant le CVBG#1, pour deux vitesses de balayage différentes de 300 mm.s⁻¹ (en vert) et 350 mm.s⁻¹ (en rouge)[24]. La translation se fait pour le SPOPO basé sur le réseau G6' et pompé par le laser#1.

4.4 Imagerie active d'une fuite de gaz à l'aide de l'OPO contraint par un VBG

Grâce au système optique SPOPO contraint par un CVBG, il est possible de détecter des gaz par une technique d'imagerie active (voir Chap.4.4). En effet, la grande accordabilité dans le moyen-infrarouge du SPOPO permet de suivre les évolutions des bandes d'absorptions de nombreux gaz, et ainsi de se placer, à la convenance de l'utilisateur, à la longueur d'onde la plus efficace pour discerner et discriminer le gaz voulu. Dans cette partie, nous déterminons d'abord les gaz pouvant être étudiés grâce à ce système optique, puis nous cherchons à détecter par imagerie active une fuite artificielle d'un de ces gaz.

4.4.1 Étude des bandes d'absorptions des gaz dans le MIR

Une partie du moyen-infrarouge, de 3 à 5 μm , est une bande spectrale plébiscitée par les spectroscopistes, car il s'agit à la fois d'une fenêtre atmosphérique dans laquelle les faisceaux lasers peuvent se propager avec une absorption minimale par les espèces gazeuses naturellement présentes dans l'atmosphère [40] et d'une région spectrale dans laquelle de nombreuses espèces d'intérêt présentes des raies d'absorption bien différenciées. Cette gamme spectrale est même

souvent dénommée comme étant la région spectrale "d'empreintes digitales" moléculaires.

Afin de déterminer les gaz ayant une bande d'absorption à des longueurs d'onde accessibles par les bandes de gain des réseaux APPLN, nous utilisons un code numérique développé au laboratoire pour déterminer l'absorption des gaz dans des expériences Lidar [13]. Ce code est basé sur les banques de données HITRAN. Grâce à ce code, nous simulons une situation où la fuite de gaz étudiée est large d'une vingtaine de centimètres; la lumière traverse alors 40 cm de gaz, puisque la simulation prend en compte un aller-retour dans le milieu. Ce milieu est simulé comme étant un mélange où le nombre de particules du gaz de la fuite correspond à un rapport de 1/1000 avec l'air ambiant. Un exemple de résultat obtenu par cette simulation numérique, est représenté sur la Fig.4.13, où sont tracées à la fois les bandes de gains dans le moyen-infrarouge des cristaux APPLN#1 (Fig.4.13(a)) et APPLN#2 (4.13(b)), et les bandes d'absorption issues du code numérique pour le CO_2 et le N_2O . Le protoxyde d'azote (N_2O) a une bande d'absorption qui s'étale environ de 3820 à 4200 nm (soit de 2617 à 2381 cm⁻¹), donc sur les réseaux G4' et G6' du cristal APPLN#1 ou les réseaux H3 à H5 du cristal APPLN#2. Le taux d'absorption peut s'élever à 10% à 3870 et 3930 nm (soit de 2584 et 2545 cm⁻¹). Grâce à ces mêmes bandes de gain, nous pouvons envisagé la détection de SO₂, dont l'absorption ne s'élève toutefois qu'à 3%. Nous pouvons également étudier la bande d'absorption du CO₂ grâce au réseau H6, l'absorption dépassant les 20% dans le domaine spectrale couvert par le réseau. Les réseaux H1 et H2 (pouvant être accordés par réseau de diffraction) peuvent quant à eux, être utilisés pour sonder la bande d'absorption de gaz comme le CH_4 ou NO_2 .

4.4.2 Détection d'une fuite de N_2O par imagerie active

Un extracteur de gaz mobile nommé "Boa" a été installé au laboratoire pour étudier des rejets de gaz contrôlés dans le respect des règles de sécurité. L'extraction est réalisée par une aspiration engendrée par une pompe. La fuite intentionnelle, objet de l'étude, est extraite d'une bouteille reliée à un débit-mètre (Bronkhorst) contrôlé par un analyseur (CRDM280, Alphagaz) : la fuite ainsi contrôlée présente des valeurs de flux entre 0,5 à 8 L par minute.

Cette fuite est observée par une caméra MIR mise à notre disposition dans le cadre d'une collaboration avec le Département d'Optique et Techniques Associées (DOTA) de l'ONERA. Cette caméra (CEDIP) possède un système de refroidissement interne de type Stirling, qui maintient le détecteur à 85°K. Cette caméra a une fréquence d'acquisition d'images de 50 Hz et détecte la bande $3 - 5, 2 \,\mu$ m. Elle est de plus dotée un filtre pour limiter la détecteur permettant d'observer cette bande spectrale est une matrice InSb (antimoniure d'indium) de 320 × 240 pixels mesurant chacun 30 μ m de côté. Le temps d'intégration de la caméra est pilotable par le logiciel CIRRUS; il sera fixé dans la suite de l'étude à 2100 μ s, qui empiriquement permet



Figure 4.13: Bande d'absorption du protoxyde d'azote (N_2O) et dioxyde de carbone (CO_2) dans le moyen-infrarouge dans le cas d'une longueur de traversée de 40 cm dans un mélange contenant le gaz étudié dans une proportion de 1/1000. Les bandes de gain des réseaux du cristal APPLN#1 (a) et APPLN#2 sont représentées (b).

d'obtenir un bon contraste. On place cette caméra moyen-infrarouge à environ 1,5 mètre de la cible (Fig.4.14).

Détection de N₂O dans un ballon par imagerie active

Afin de vérifier que notre système optique est un outil efficace pour l'observation de gaz par imagerie active, la première manipulation a consisté à remplir un ballon de baudruche de N_2O et à le fixer sur un mur pour en faire la cible de notre étude. En effet, ces ballons ont la propriété d'être transparents dans le moyen infrarouge et permettent d'obtenir un mélange à 100% de N_2O , augmentant ainsi le taux d'absorption du complémentaire. Ce ballon est éclairé par le rayonnement du complémentaire issu du SPOPO basé sur le réseau G6' et contraint par le CVBG#1. Le complémentaire éclaire la cible sur une surface de 10 cm de rayon suite à l'élargissement du faisceau au moyen d'une lentille divergente.

La Fig.4.15 (b) montre que le fait d'illuminer la cible avec une longueur d'onde absorbée par le N₂O, rend le ballon opaque, alors qu'il est transparent, lorsque le complémentaire est en dehors de la bande d'absorption du gaz (Fig.4.15(a)). En moyennant le niveau de gris des pixels sur l'ensemble de la surface du ballon, on peut obtenir l'évolution de la bande d'absorption du gaz en fonction de la longueur du complémentaire (Fig.4.15(c)). Cette évolution de la moyenne



Figure 4.14: Photo du dispositif d'imagerie montrant la bouteille de gaz reliée au débit-mètre dont le flux est contrôlé. Le panache de gaz est rejeté par une buse située sous la bouche d'aspiration du Boa et est observé grâce à la caméra moyen-infrarouge.

des niveaux de gris, suit celle de la bande de transmission obtenue numériquement en supposant un aller-retour de la lumière dans un milieu gazeux de 20 cm de diamètre et composé entièrement de N₂O. Cette estimation de la bande d'absorption ne peut être que qualitative au vu du nombre d'incertitudes de ce calcul (non prise en compte de l'absorption et réflexion parasite au ballon, de la résolution de la caméra, etc...), mais permet tout de même déterminer la nature du gaz.

Détection d'une fuite de N₂O

Dans l'expérience précédente, la visualisation de l'absorption de la lumière dans un ballon rempli de N₂O, est facilitée par son absorption quasi-totale au delà de 3860 nm. Dans le cas d'une fuite de gaz dans l'atmosphère, le mélange traversé par la lumière est composé du gaz étudié et de gaz ambiants, baissant ainsi le taux d'absorption. Ce taux affaibli impose un contrôle plus fin de de l'intensité lumineuse arrivant sur la cible afin d'éviter tout effet de saturation du capteur de la caméra. En effet, dans le cas précédent d'un ballon rempli de N₂O, l'absorption totale du gaz assure un bon contraste sans la nécessité de se soucier du flux lumineux incident. Cela n'est plus le cas pour une fuite : l'absorption de la lumière par le mélange est alors de l'ordre d'une dizaine de pour cent, ce qui impose de bien se situer dans la zone de linéarité du capteur pour discerner la fuite.

Expérimentalement, nous avons déterminé qu'il était nécessaire pour bien discerner la fuite, d'élargir le faisceau au-delà de la précédente surface de 10 cm de rayon. En optimisant ainsi les paramètres expérimentaux, nous pouvons démontrer la capacité du système d'imagerie active à



Figure 4.15: Ballon de baudruche rempli de N_2O éclairé par le SPOPO à deux longueurs d'onde complémentaire transmise par le gaz (a) et absorbée par le gaz (b). La moyenne des niveaux de gris de l'image du ballon est représentée en fonction de la longueur d'onde du complémentaire éclairant ce ballon, avec une indication de la bande de transmission du N_2O prévue par les données HITRAN (c).

visualiser une fuite de gaz comme représenté sur la Fig.4.16 (b), où il apparait qu'une longueur d'onde complémentaire de 3887 nm (2573 cm⁻¹) permet bien de discerner la fuite de protoxyde d'azote sortant avec un débit de 7L.min⁻¹, alors que (pour le même débit) une longueur d'onde complémentaire de 3824 nm (2615 cm⁻¹) ne permet pas d'observer cette fuite. Le carré noir sur l'image est une densité optique totalement opaque dans le moyen-infrarouge. Cette densité de quatre centimètres de côté est placée pour servir d'échelle, ce qui nous permet d'évaluer grossièrement l'étendue de la fuite comme ayant une longueur de 13 cm et une largeur maximum de 2,5 cm. Le gaz est alors bien identifié et son évolution spatiale peut être suivie à la cadence vidéo de la caméra.

La technique d'imagerie active nous permet d'observer la fuite jusqu'à la valeur du débit la plus basse permise par le débit-mètre (Fig.4.17). Le contraste est toutefois moins élevé que pour un fort flux. On note que si cette baisse de contraste rend plus difficile son discernement sur une image, elle reste parfaitement identifiable sur un film, le mouvement des pixels noirs ne laissant aucun doute sur sa position.



Figure 4.16: Détection d'une fuite de gaz de N₂O de 7L.min⁻¹, en éclairant la fuite avec le faisceau complémentaire, issu du SPOPO contraint par CVBG, pour une longueur d'onde non absorbée (a) et absorbée (b) par le gaz.



Figure 4.17: Détection d'une fuite de gaz de N_2O de 0,5L.min⁻¹, en éclairant la fuite avec le faisceau complémentaire, issu du SPOPO contraint par CVBG, pour une longueur d'onde absorbée par le gaz de 3887 nm.

4.4.3 Discussions et perspectives

Nous avons grâce à la technique d'imagerie active, utilisant comme source moyenneinfrarouge un SPOPO picoseconde large bande contraint par un VBG chirpé, détecté une fuite de protoxyde d'azote N_2O . Si nous avons ainsi fait une démonstration de principe de la validité de la technique d'imagerie active pour la détection de gaz avec notre système, il reste encore à réaliser tout un travail pour déterminer les possibilités et les limitations de ce système d'imagerie active.



Figure 4.18: Détection d'une fuite de gaz de N_2O de 7 L.min⁻¹, dans le cas d'une saturation de la caméra due à un éclairement trop intense de la fuite par le faisceau complémentaire issu du SPOPO contraint par CVBG, pour une longueur d'onde du complémentaire de 3887 nm.

Comme cela a déjà été souligné, un facteur important dans une telle étude est le contrôle de la saturation des pixels de l'image. Pour illustrer ce point, la Fig.4.18 présenté l'image issue de la caméra MIR pour la détection de N₂O dans les mêmes conditions expérimentales que la Fig.4.16(b), soit une fuite de 7 L.min⁻¹ et une longueur complémentaire de 3887 nm, mais pour un faisceau complémentaire éclairant une surface environ quatre fois plus petite (et donc une intensité environ quatre fois plus importante). On voit alors que l'éblouissement de la caméra rend la fuite de gaz non détectable, le contraste entre le fond de scène et le panache n'étant pas assez important. Pour s'assurer de la non-saturation du détecteur de la caméra, nous avons choisi ici d'élargir le faisceau complémentaire par un jeu de lentilles divergente, ce qui permet également d'augmenter le champ observé par la caméra. Dans le cas où l'augmentation de la surface éclairée n'est pas souhaitable, il est également possible de simplement atténuer le faisceau complémentaire. Dans ce cas, il faudra préférentiellement atténuer directement le faisceau

complémentaire plutôt que de diminuer la puissance pompe incidente sur le SPOPO. En effet, nous avons vu précédemment qu'une baisse de la puissance pompe implique une diminution de la plage d'accordabilité du SPOPO, ce qui limiterait le sondage en longueur d'onde au sein de la bande d'absorption du gaz. Des travaux supplémentaires doivent être menés pour définir des critères moins empiriques de détermination de la valeur optimale d'éclairement assurant un contraste le plus élevé à la caméra. Il reste également tout un travail à réaliser pour diminuer les tavelures (speckles en anglais) observées sur les images, sachant que nous avons observé leur augmentation avec l'ajout de lentilles. Les tavelures présentent sur la Fig.4.16 augmentent ainsi les incertitudes la détermination des niveaux de gris au sein de l'image et surtout sur leur évolution en fonction de la longueur d'onde. Or, l'estimation de cette évolution avec la longueur d'onde est indispensable pour être en mesure de donner une valeur qualitative de l'absorption du gaz. A partir de cette valeur de l'absorption déterminée en différents points de l'image moyen-infrarouge, on pourrait remonter à la valeur (là aussi qualitative) de la concentration du gaz au sein du panache. Une approche qui pourrait être mise en œuvre serait d'utiliser un système de brouillage des tavelures analogue à ceux développés pour les projecteurs d'image à base de lasers (systèmes à base d'éléments diffusants vibrants ou mobiles, micromiroirs à balayage rapide, fibres multimodes vibrantes...) [17], sachant que le transfert dans l'infrarouge moyen n'est pas forcement immédiat.

Une autre piste d'amélioration serait d'utiliser une caméra MIR plus récente. Celle utilisée actuellement datant du début des années 2000, il existe des caméras infrarouge plus récente permettant d'obtenir une fréquence d'image de l'ordre du kilohertz avec une amélioration du rapport signal à bruit.

Il serait également intéressant d'étudier plus en détails les intérêts apportés par l'utilisation d'un système picoseconde pour des applications d'imagerie active comparé à d'autres régimes temporels. En effet, le régime picoseconde offre apriori un bon compromis combinant à la fois une largeur spectrale suffisamment fine pour discriminer les bandes d'absorptions des différents gaz d'un mélange, et assez large pour englober plusieurs raies d'absorption (Fig.4.15(c)) : on ne se déplace pas d'une raie d'absorption à une autre mais le long de l'enveloppe de la bande d'absorption, permettant ainsi d'avoir une continuité d'absorption et autorisant l'utilisateur à avoir une précision moindre dans le contrôle de la longueur d'onde puisqu'il n'est pas nécessaire de se placer sur le pic des raies d'absorptions comme se serait le cas pour de sources plus fines (continues ou nanosecondes proches de la limite de Fourier). A l'inverse, la largeur spectrale émise par des sources femtosecondes ou supercontinuum risque d'être trop importante pour une mesure sélective, voire pour être en mesure de discerné la gaz du fond de scène, sans l'utilisation conjointe d'un filtrage spectral ou d'une caméra multispectrale ou hyperspectrale pour réaliser l'analyse spectrométrique.

Dans la continuité directe de ce travail, il serait également possible de réaliser des études

pour les autres gaz pouvant être visualisés par les différentes combinaisons de réseau QPM et de VBG chirpés disponibles. Ainsi, ce système pourrait constituer une première étape vers un outil utile dans des applications telles que la sécurité industrielle ou environnementale. En outre, à plus courte échéance, une démonstration de détection d'une fuite de CO_2 permettrait de montrer l'utilité du système dans d'autres domaines scientifiques. En particulier, on peut citer le projet PIONEER du Laboratoire de Physique des Plasmas dont l'objectif est le recyclage de CO_2 par plasmas : avoir un système permettant de visualiser la répartition spatiale du gaz serait fort utile dans de telles études.

Synthèse

Dans ce chapitre, un système innovant permettant d'accorder un SPOPO large bande a été présenté. Les propriétés de dispersion d'un réseau de Bragg en volume chirpé et la condition de pompage synchrone inhérente à un OPO picoseconde, conduisent à un contrôle précis de la longueur d'onde du signal oscillant dans la cavité optique. Nous avons alors démontré une accordabilité de l'onde complémentaire de 215 nm (147 cm⁻¹) autour de 3820 nm, ce qui correspond à variation de la longueur d'onde du signal de 32 nm autour de 1470 nm [24]. La présence du réseau de Bragg empêche également la génération des modulations spectrales (cannelures et effet cascade THz) observée dans les chapitres précédents. On obtient alors un spectre affiné dont l'accordabilité se fait en déplaçant le CVBG autour de la position de pompage synchrone. Une vitesse d'accordabilité rapide de 1,7 nm.m.s⁻¹ a pu être mesurée, seulement limitée par la vitesse de translation du réseau de Bragg. Cette source cohérente moyen-infrarouge nous a permis de détecter une fuite de protoxyde d'azote par une technique d'imagerie active.

Conclusion et perspectives

Ces travaux de thèse ont permis l'étude et l'utilisation d'une source OPO picoseconde à large bande de gain émettant dans le moyen-infrarouge. Cette large bande de gain paramétrique est obtenue grâce à un cristal APPLN, dont l'apériodicité du pas de réseau conduit à obtenir un quasi-accord de phase pour une multitude de longueurs d'onde signal. Ainsi, un des cristaux utilisés permet d'obtenir une bande de gain plate pour l'onde complémentaire de 275 nm autour de 3859 nm. L'utilisation d'un tel complémentaire situé dans le moyen-infrarouge est intéressante dans des applications de spectroscopie de gaz, puisque ceux-ci possèdent de multiples raies d'absorption entre 3 à $4 \,\mu$ m, dans une gamme spectrale de transmission des gaz atmosphériques. De plus, l'utilisation d'un filtrage spectral placé dans la cavité de l'OPO picoseconde permet d'obtenir une largeur spectrale de l'ordre du cm⁻¹. Cette largeur spectrale est bien adaptée pour sonder, non pas les raies d'absorption des gaz, mais les enveloppes de leurs bandes d'absorption, ce qui demande moins de précision dans le contrôle de l'accordabilité de la longueur d'onde. Cette accordabilité est obtenue grâce à un réseau de Bragg en volume chirpé (CVBG), dont le déplacement autour de la position respectant la condition de pompage synchrone, modifie la longueur d'onde oscillante dans la cavité.

Afin d'atteindre cet objectif, nous avons étudié dans le premier chapitre les outils nécessaires à la compréhension des processus physiques des OPO picosecondes. En premier lieu, les équations liées aux processus non linéaires d'ordre deux, qui entrent en jeu dans la génération de nouvelles fréquences, ont été explicitées. Elles ont été implémentées dans des OPO fonctionnant en régime picoseconde. Ce régime temporel impose une condition de pompage synchrone, pour que l'oscillation paramétrique soit ré-amplifiée à chaque tour de cavité. Dans ce même chapitre, nous avons décrit les cristaux APPLN développés pour avoir une large bande de gain. Nous avons ainsi dimensionné un cristal afin d'obtenir un gain paramétrique constant dans une plage spectrale comprise entre 3 et $4 \,\mu$ m. Enfin, ce chapitre s'est terminé par la caractérisation des lasers de pompe utilisés et la modification de caustique dans la cavité OPO, afin d'obtenir un recouvrement optimisé des faisceaux paramétriques dans le cristal non linéaire.

Pour caractériser l'OPO picoseconde à large bande sans filtre spectral, nous avons, dans le second chapitre, caractérisé les propriétés de ce type d'oscillateur. L'apériodicité du cristal

APPLN entraîne un élargissement de la bande de gain aux dépends de sa valeur crête et donc de l'efficacité de conversion. Nous avons toutefois démontré que, malgré l'apériodicité du cristal, nous obtenons une efficacité de conversion de l'ordre de 8%, ce qui correspond à une puissance complémentaire dans le moyen infrarouge d'une centaine de milliwatts. Nous avons de plus étudié les effets du synchronisme sur la durée des impulsions signal et la largeur spectrale des ondes paramétriques. Un décalage temporel entraîne une variation des positions de recouvrement des ondes signal et pompe dans le cristal non-linéaire. Cette dépendance de la position du recouvrement dans un cristal apériodique entraîne une variation de la longueur d'onde signal produite. La dernière partie du chapitre a été consacrée à l'étude des propriétés spectrales de l'OPO lors de l'utilisation d'un taux de pompage élevé. Nous avons mis en évidence la présence d'ondes complémentaires produites dans le domaine THz par des effets cascades, bien plus présents que ce qui est rapporté dans la littérature, en raison de l'apériodicité du réseau QPM.

Le troisième chapitre a porté sur la détermination de l'origine et sur les implications des propriétés spectrales spécifiques à un SPOPO picoseconde basé sur un cristal non linéaire à retournement apériodique sans filtrage spectral intracavité. En effet, dès le seuil d'oscillation franchi, on observe la présence de cannelures dans le spectre signal, qui se traduit par un spectre constitué d'un pic principal et d'une succession de pics latéraux situés d'un seul côté : nous montrons par des approches expérimentales et numériques complémentaires, que l'origine de ces cannelures est liée au développement de bandes latérales dans le spectre pompe initialement gaussien. Le nombre de cannelures et leur écartement dépendent des propriétés de l'impulsion pompe initiale, telles que sa puissance ou sa largeur, mais également de la valeur du taux de chirp κ' du réseau QPM. Notre étude, par des analyses numériques, a mis en relation les évolutions dans le cristal des différentes échanges paramétriques. Nous montrons que l'évolution de l'amplitude des ondes paramétriques dans le cristal non linéaire n'est pas uniforme, mais dépend fortement des longueurs d'onde signal et pompe. Ces résultats nous amènent à poser l'hypothèse que le développement des cannelures est dû à des processus SFG et DFG en cascade. L'alternance entre processus SFG et DFG s'explique d'une part par l'aspect apériodique du réseau et d'autre part par la largeur spectrale de la pompe. L'intensité des interactions nonlinéaires à une position donnée, dépend des différentes conversions en amont dans le cristal. Si notre hypothèse n'est pas validée par un modèle analytique, en raison du manque d'approximations pouvant être faites dans un tel OPO; cette hypothèse concorde avec les différents résultats expérimentaux et numériques obtenus.

Le quatrième chapitre a visé à avoir une accordabilité rapide de l'OPO et l'utilisation de cet OPO accordable comme un outil pour de la détection de gaz par imagerie active. L'accordabilité de ce système innovant est obtenue par l'utilisation des propriétés de dispersion d'un réseau de Bragg en volume chirpé et de la condition de pompage synchrone d'un OPO picoseconde. Nous avons ainsi démontré une accordabilité précise de l'onde complémentaire de 215 nm (147 cm⁻¹) autour de 3820 nm [24], ce qui correspond à une variation de la longueur d'onde du signal de 32 nm autour de 1470 nm. La présence du réseau de Bragg empêche également la génération des modulations spectrales (cannelures et effet cascade THz) observée dans les chapitres précédents. Une vitesse d'accordabilité rapide de 1,7 nm.ms⁻¹ a pu être mesurée, seulement limitée par la vitesse de translation du réseau de Bragg. Cette source cohérente moyen-infrarouge a permis de détecter une fuite de protoxyde d'azote par une technique d'imagerie active et a le potentiel de sonder de nombreux autres gaz tels que le dioxyde de carbone.

Si de nombreux résultats ont ainsi été obtenues lors de cette thèse, l'OPO picoseconde à large bande de gain possède encore un fort potentiel de développement. Ainsi, il serait intéressant d'utiliser l'effet cascade THz, présent dans notre OPO picoseconde basé sur un cristal QPM apériodique, comme une source efficace de génération d'un rayonnement THz : l'effet cascade THz est en effet plus accentué que dans la littérature, grâce au caractère apériodique des cristaux.

De nombreux travaux peuvent être entrepris sur système SPOPO accordé par un CVBG. Pour augmenter la vitesse d'accordabilité du système, il serait ainsi efficace de pouvoir modifier le taux de répétition du laser de pompe, ce qui changerait la position respectant la condition de pompage synchrone dans le réseau de Bragg chirpé : cela nécessiterait l'installation d'un système sur le laser de pompe pouvant être complexe, par exemple par l'installation d'un modulateur électro-optique [48]. De plus, si l'utilisation de l'OPO rapidement accordable comme outil viable pour la détection de gaz par imagerie active, a été faites lors d'une d'une démonstration de principe, de nombreux travaux restent à être fait sur cette technique de spectroscopie. Nous pourrions ainsi continuer cette étude pour évaluer le potentiel de cet OPO pour déterminer la concentration des gaz analysés. De plus, de nombreux gaz pouvant être étudiés n'ont pas été testés, tel que le CO_2 ou le CH_4 . Enfin, il serait intéressant d'exploiter l'accordabilité rapide de notre système pour la détection multi-espèces d'un mélange gazeux.

L'OPO rapidement accordable est un outil intéressant dans des projets divers. Outre le projet PIONEER du Laboratoire de Physique des Plasmas dont l'objectif est le recyclage de CO_2 par plasmas. Nous pouvons également citer le projet NAOMI qui a été réalisé en partenariat avec l'entreprise *Total*, visant à la détection de méthane et de dioxide de carbone à distance. Dans ce projet, des méthodes de détection de gaz, soit purement passives par caméra infrarouge multi-spectrale, soit purement actives de type Lidar, ont été développées. Notre système d'imagerie active qui vient coupler caméra et laser permettrait de compléter ces approches par une détection courte portée. De plus l'imagerie active peut également être employée pour aider les diagnostics optiques fait sur les nombreuses installations de combustion de l'ONERA.

Annexe A

Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

Objectifs

Dans le cadre d'une collaboration associant plusieurs laboratoires, j'ai passé six mois au laboratoire High energy OPtic and Electronics (HOPElab) de la National Tsing Hua University (NTHU) située dans la ville de Hsinchu à Taïwan. Cette collaboration porte sur la réalisation d'un réseau périodique de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium, afin d'obtenir un mode d'oscillation unique indépendamment de la température du cristal et de s'affranchir des miroirs. La réalisation de ce réseau, obtenu par un système interférométrique dans le bleu, serait un premier pas vers la miniaturisation d'oscillateurs paramétriques optiques. Après la présentation des réseaux de Bragg et une étude des processus physiques de gravure, nous présentons les expériences. Nous avons réalisé le système interférométrique pour l'écriture du réseau de Bragg dans un cristal non-linéaire. Nous avons obtenu une oscillation paramétrique dans ce cristal et nous analysons les spectres obtenus.

Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

Un réseau de Bragg se définit comme une modulation périodique de l'indice de réfraction d'un cristal : à chaque changement d'indice, une réflexion partielle est effectuée [9]. Dans la littérature, un tel réseau peut être créé de plusieurs manières, par exemple, par l'utilisation d'un masque et d'une lumière cohérente ou par la création de microfissures directement dans le milieu [39, 65]. Afin de permettre une plus grande flexibilité dans le choix du pas du réseau, nous utilisons comme moyen de gravure un système optique, où l'établissement d'interférences entre deux sources cohérentes, permet l'élaboration du réseau par effet photoréfractif. La loi de Bragg a été proposée pour la première fois en 1913 par William Lawrence Bragg et William Henry Bragg, afin d'expliquer sous certaines conditions la réflexion des rayons X sur des structures cristallines [10]. En effet, en illuminant un cristal avec des rayons X, on peut observer pour certains angles d'incidence et longueurs d'onde, un pic de réflexion intense nommé "pic de Bragg". W.L et W.H Bragg proposent alors qu'une structure cristalline est une structure constituée d'une succession de plans atomiques parallèles périodiques et que si les réflexions issues de chaque plan interfèrent positivement entre elles, un pic de référence intense se forme. La loi de Bragg dépend donc de la distance interatomique Λ , de l'angle d'incidence ϑ sur le plan, ainsi que de la longueur d'onde de l'onde électromagnétique dans le milieu λ , soit :

$$2\Lambda n \times \sin\left(\theta\right) = q\lambda \tag{A.1}$$

où q est un entier et n l'indice de réfraction dans le milieu. À partir de cette loi, les Bragg ont déterminé les structures période du NaCl, du ZnS et du diamant, ce qui leur a valu le prix Nobel de physique en 1915. La loi de Bragg s'applique pour d'autres phénomènes que cette succession de plans atomiques : la distance Λ peut ainsi être définie comme la période d'un variation périodique d'indices de réfraction dans un milieu, appelé réseau de Bragg, et qui connaît de nombreuses applications en optique : les miroirs de Bragg assurent par exemple une réflexion totale d'une longueur d'onde. On utilise également de tels réseaux pour la création de lasers solides miniaturisés : en disposant dans le milieu amplificateur une variation périodique de l'indice de réfraction, on génère une onde qui oscille dans le cristal. Le cristal agit donc à la fois comme milieu amplificateur et comme cavité optique [1]. Un tel laser est appelé "Distributed Feedback laser" (DFB laser) et permet une oscillation monofréquence, avec une largeur spectrale de l'ordre du kilohertz. Les longueurs d'onde que l'on peut produire avec un laser DFB sont limitées et dépendent des transitions atomiques du milieu amplificateur. Comme vu dans le Chap.1, la génération paramétrique se fait quant à elle sans échange d'énergie dans le cristal non linéaire et l'oscillation générée devient indépendante des transitions électroniques; elle permet ainsi de réaliser une oscillation laser dans des bandes fréquentielles difficilement accessibles par laser solide.

L'objectif de ce projet est de graver un réseau de Bragg dans un cristal en niobate de lithium

dopé MgO. Cette gravure permet au cristal de devenir de fait un DFB-OPO, qui assure une oscillation monomode et indépendante de la température du cristal, dans un système simplifié de tout filtre et cavité optique. Une difficulté majeure de ce projet est le fait que pour graver optiquement le réseau de Bragg, nous souhaitons modifier l'indice de réfraction dans un cristal dopé MgO. Or, le MgO est précisément utilisé pour minimiser un tel changement d'indice, qui génère un effet lentille pouvant abîmer le cristal lors de la propagation d'un faisceau : la modification d'indice de réfraction est diminuée d'environ trois ordres de grandeur grâce à un dopage 5% MgO [29]. Si un tel dopage augmente la difficulté de réalisation d'une gravure, elle permet toutefois d'obtenir une oscillation paramétrique avec un seuil d'endommagement élevé.

Nous présentons tout d'abord, dans ce chapitre, les phénomènes physiques qui permettent l'écriture d'un réseau de Bragg dans un cristal non linéaire. Suite à cela, nous présentons et caractérisons le montage expérimental en deux parties : (i) la première permet l'écriture du réseau de Bragg dans un cristal Niobate de Lithium dopé par de l'oxyde de magnésium (MgO : LiNbO₃) (ii) la seconde permet l'obtention d'une génération paramétrique dans ce cristal non linéaire.

A.1 Présentation théorique de l'effet photoréfractif

Dans un cristal non linéaire, l'indice de réfraction est une fonction du champ électrique oscillant incident \overrightarrow{E} . En effet, en ignorant l'anisotropie du matériel et la nature vectorielle du champ électrique (on suppose une colinéarité) pour simplifier les équations, on peut alors définir la perméabilité électrique η comme [9] :

$$\eta(E) = \frac{1}{n^2(E)} = \frac{1}{n_0^2} + rE + \varsigma E^2 + \dots$$
(A.2)

où n_0 est l'indice de réfraction du milieu sans champ électrique. Cette formule peut alors être développée pour obtenir l'indice de réfraction en fonction de termes dépendant des propriétés du milieu (r et ς) et du champ électrique incident :

$$n(E) = n_0 \sqrt{\frac{1}{1 + n_0^2 r E + n_0^2 \varsigma E^2 + \dots}} = n_0 - \frac{1}{2} n_0^3 r E - \frac{1}{2} n_0^3 \varsigma E^2 - \dots$$
(A.3)

où le développement limité utilisé est possible, car r et ς sont largement inférieurs à 1. Ainsi, pour un cristal de LiNbO₃, r vaut 31 pm.V⁻¹selon l'axe extraordinaire et ς vaut typiquement entre 10⁻¹⁴ et 10⁻²⁰m²/V² [36]. Le terme linéaire $n(E) = n_0 - \frac{1}{2}n_0^3 rE$ est responsable de l'effet Pockels, qui modifie l'indice de réfraction par l'intermédiaire du champ électrique. Le terme quadratique $n(E) = n_0 - \frac{1}{2}n_0^3 \varsigma E^2$ est lui responsable de l'effet Kerr, qui peut être négligé, car Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

le Niobate de Lithium est non-centrosymétrique et l'effet ne sera influant que dans le cas d'un laser haute puissance [9].

La lumière peut donc changer l'indice de réfraction d'un milieu et également exciter des photocourants dans certains matériaux [36, 77]. C'est le champ électrique de ce photocourant qui va nous permettre de graver le réseau de Bragg selon l'Eq.A.3. La Fig.A.1 schématise les étapes de la génération du photocourant, qui est ensuite utilisé pour graver le réseau de Bragg dans le cristal non linéaire. Ce schéma illustre le cas d'une variation spatiale sinusoïdale de l'intensité du faisceau incident (1). Les trous ou électrons du cristal sont excités par photoexcitation, migrent et sont piégés à un autre emplacement du milieu (2). Ce déplacement de trous et d'électrons crée une différence de charge au sein du matériau (3), qui est à l'origine d'un champ électrique variable le long de celui-ci (4). Cette modulation du champ électrique entraine une modulation de l'indice de réfraction par effet Pockels (5). Cette combinaison d'un phénomène de photoconductivité et d'un processus d'électro-optique (effet Pockels dans ce cas) est appelée *effet photoréfractif.* Dans un matériau dopé tel que le MgO :LiNbO₃ utilisé dans la suite de l'étude, ce sont les impuretés qui sont photoexcitées, étant situées plus proches de la bande de valence [94]. La densité d'électrons photoexcités $\rho_t(z)$ de ces trous est donc étudiée.



Figure A.1: Schéma des différentes étapes de l'élaboration d'un réseau de Bragg par effet photoréfractif, pour le cas d'un éclairement sinusoïdal sur le cristal non linéaire.

Afin de déterminer le changement d'indice induit par l'effet Pockels, il est nécessaire de déterminer la valeur du champ électrique induit par photoionisation. Dans un matériau photoréfractif, deux courants sont en compétition, le premier étant le courant électrique généré par photoexcitation $J_e = \sigma E = e\mu_e\rho_t(z)E(z)$, qui est contrebalancé par le courant de diffusion

thermique $J_d = k_b T \mu_e \frac{d\rho_t}{dz}$, où k_b est la constante de Boltzmann, T la température, e la charge d'un électron, et μ_e la mobilité de l'électron [77]. Nous pouvons également prendre en compte le courant photovoltaïque, qui est un phénomène anisotrope lié au caractère polaire du cristal. Ce courant est majoritaire pour les cristaux LiNbO₃dopés au fer, mais négligeable pour nos cristaux dopés MgO[83]. Sachant que la différence de ces deux courants doit être nulle à l'équilibre, et que par ailleurs $\rho(z)$ est directement proportionnel à l'intensité optique incidente, nous pouvons en tirer la valeur du champ électrique en utilisant l'Éq.A.3 pour obtenir la variation de l'indice de réfraction à l'équilibre :

$$E(z) = \frac{k_b T}{e} \times \frac{1}{I} \times \frac{dI(z)}{dz}$$
(A.4)

$$\Delta n(z) = -\frac{1}{2}rn^3 \times \frac{k_b T}{e} \frac{1}{I} \frac{dI}{dz}$$
(A.5)

Afin d'obtenir un réseau de Bragg, il faut une intensité modulée le long d'une direction spatiale z, soit $I(z) = I_0(1+C \times \cos(2\pi z/\Lambda))$, où I_0 est l'intensité moyenne, C est le contraste, et Λ est le pas du réseau. En incorporant cette formule dans l'Éq.A.5, nous obtenons le changement d'indice théorique possible :

$$\Delta n(z) = -\Delta n_{max} \frac{Csin(\frac{2\pi x}{\Lambda})}{1 + Ccos(\frac{2\pi z}{\Lambda})}$$
(A.6)

où :

$$\Delta n_{max} = -\frac{1}{2}rn^3 \times \frac{k_b T}{e} \times \frac{2\pi}{\Lambda} \tag{A.7}$$

Comme nous pouvons le voir, à l'état d'équilibre, le changement d'indice ne dépend aucunement de l'intensité optique incidente, mais uniquement des propriétés cristallographiques, du contraste et de la température du cristal. L'intensité incidente aura toutefois un rôle primordial dans la rapidité d'atteinte de cet état d'équilibre [42].

L'onde incidente joue indirectement un rôle sur ce changement d'indice de réfraction par sa polarisation. En effet, le terme utilisé du tenseur électro-optique [r] dépend de la polarisation incidente. Nous polarisons donc l'onde incidente selon l'axe extraordinaire du cristal pour maximiser r et donc la variation d'indice de réfraction Δn_{max} .

L'effet photoréfractif est totalement réversible [77]. Une variation locale de l'indice de réfraction peut être effacée par deux procédés : (i) le premier consiste à éclairer le cristal par une lumière spatialement uniforme qui redistribue les charges dans le matériau; (ii) le second repose sur l'excitation thermique, qui redistribue également les charges dans le milieu et efface ainsi la variation d'indice, le chauffage du cristal accélérant ce processus. Le matériau possède Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

ainsi un effet de mémoire, d'une durée dépendant du courant d'obscurité du matériau (et donc la température du cristal) et pouvant être de quelques secondes à plusieurs années [77, 12].

A.2 Système d'écriture du réseau de Bragg

A.2.1 Montage expérimental

Le système expérimental créé lors de ce projet peut être séparé en deux parties, celle dédiée à la génération paramétrique dans un cristal MgO :LiNbO₃ et celle permettant l'écriture du réseau Bragg. Les caractéristiques de ces deux montages seront traitées séparément.

La Fig.(A.2) représente le schéma du montage réalisé pour graver un réseau de Bragg dans un cristal. Ce montage peut être séparé en quatre étapes, ayant chacune leur rôle spécifique. Ainsi, juste après la diode laser bleue oscillant à 445 nm, on dispose d'un système d'autoasservissement de la longueur d'onde permettant d'affiner la plage d'émission de la longueur d'onde du laser (I). La polarisation est contrôlée par l'alliance d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur (II). Le faisceau laser est ensuite modifié par un jeu de lentilles (III). Ainsi, avant que le faisceau laser ne soit incident sur un interferomètre de Mach-Zehnder (IV), nous contrôlons sa longueur d'onde, sa polarisation et sa longueur d'onde.

De plus, la diode laser bleue continue à 445 nm (DTR's Laser shop) a une puissance réglable par une alimentation électrique variable. Cette diode, dont la puissance maximale est normalement de 5W selon le fabricant, a, après vérification, une puissance maximale de 3,29W.

Le rôle de la partie d'écriture du système optique est de procéder à la gravure d'un réseau de Bragg avec un pas permettant d'avoir une onde complémentaire de 1300 nm. Cette longueur d'onde a été retenue, car c'était déjà celle visée lors d'une étude faites préalablement au laboratoire HOPElab [41]. Lors de cette étude antérieure, un réseau de Bragg a été gravé dans de l'oxyde d'indium dopé à l'étain (ITO pour *indium tin oxide*). Une telle gravure dans du MgO :LiNbO₃ permettrait de profiter des propriétés intrinsèques de ce matériau, telles qu'une haute valeur du coefficient non linéaire $\chi^{(2)}$, du seuil d'endommagement et une réponse rapide à l'éffet photoréfractif [36].

La Fig.A.3 représente la génération paramétrique théorique dans un cristal MgO :LiNbO₃, en fonction de la température, pour un pompage à 532 nm. Elle est calculée grâce aux équations de Sellmeier avec les coefficients de Gayer[31]. On voit que le choix de créer un réseau de Bragg pour permettre une oscillation complémentaire à 1300 nm, se justifie d'une part par le fait que nous sommes loin de la dégénérescence, où la longueur d'onde paramétrique évolue rapidement, et d'autre part par la température relativement basse, le four utilisé ne pouvant assurer une haute température stabilisée.

Pour assurer une oscillation dans le cristal à 1300 nm, le pas de réseau nécessaire est selon



Figure A.2: Schéma du montage d'écriture optique du réseau de Bragg ayant pour source une diode laser à 445 nm. Ce système peut être divisé en quatre parties aux rôles distincts : (I) un affinement de la longueur d'onde, (II) un contrôleur de polarisation, (III) un système de mise en forme du faisceau laser, et (IV) un système interférométrique de type Mach-Zehnder modifiant spatialement l'intensité optique.



Figure A.3: Génération paramétrique théorique, en fonction de la température, par un cristal LiNbO₃ pompé par un laser vert oscillant à 532 nm. La courbe verte suit l'évolution de l'onde signal et la rouge celle complémentaire.

Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

la loi de Bragg (Eq.A.1) $\Lambda_{Bragg} = \frac{\lambda_{Bragg}}{2n} = 308, 52 nm$, pour le cas d'un laser de pompe incident sur le réseau de Bragg avec un angle normal $(sin (\theta) = 1)$. Connaissant la valeur nécessaire du pas du cristal, on peut, toujours grâce à la loi de Bragg, calculer l'angle θ nécéssaire (du système interférométrique de la Fig.A.2), pour obtenir une variation de l'intensité lumineuse avec une période valant Λ_{Bragg} :

$$\theta = \arcsin\left(\frac{\lambda_{Bragg}}{2 \times \Lambda_{Bragg}}\right) = 46,15^{\circ} \tag{A.8}$$

On note que l'indice de réfraction de ce calcul est celui de l'air (approximé à 1), la différence de phase à l'origine de l'interférence ne se faisant pas dans le milieu non linéaire. Avant de décrire l'interféromètre pouvant générer par effet photoréfractif ce réseau de Bragg, il convient d'abord de décrire les différentes parties du montage représenté sur la Fig.A.2.

A.2.2 Affinement de la plage d'émission de la longueur d'onde



Figure A.4: Schéma de fonctionnement d'une configuration Littman-Metcalf pour l'autoasservissement de la longueur d'onde. La focale f' de la lentille vaut : $f' = d_m = d + D$

L'effet photoréfractif à l'origine de la conception du réseau de Bragg n'est pas instantané. Comme le pas du réseau dépend de la longueur d'onde incidente, si celle-ci n'est pas stabilisé, l'efficacité du réseau sur la génération paramétrique sera diminuée, car la résolution du réseau sera moindre. Afin de fixer temporellement cette longueur d'onde, nous utilisons une configuration Littmann-Metcalf, configuration qui s'apparente à celle de Littrow[57]. Comme le montre la Fig.A.4, une telle configuration est composée d'un réseau de diffraction et d'un miroir plan en sortie de la diode laser. Le réseau de diffraction sépare le faisceau laser incident en plusieurs ordres. Si l'ordre zéro est transmis dans le montage optique, l'ordre -1 est réfléchi par le miroir et devient de nouveau incident sur le réseau; celui-ci diffracte alors une partie de la lumière vers le laser de pompe. Les différents angles réfléchis ϑ_r peuvent être calculés par l'équation des réseaux (Eq.A.9) et dépendent de l'angle d'incidence ϑ_i , de la longueur d'onde, du pas du réseau de diffraction D, ainsi que de l'ordre de diffraction m.

$$n(\sin(\theta_r) + \sin(\theta_i)) = \frac{m\lambda}{2D}$$
(A.9)

Selon cette formule, tourner le miroir de la configuration Littman-Metcalf permet de changer la longueur d'onde retournant dans le laser et donc d'influencer son émission par couplage. L'intérêt de cette configuration pour notre projet n'est pas tant l'accordabilité qu'elle permet la stabilisation de la diode laser. L'efficacité du dispositif dépend de la lumière renvoyée dans la diode laser : pour maximiser ce retour, une lentille est placée dans la branche comportant le miroir de Littmann, en faisant en sorte que la focale soit égale à la distance séparant d'une part la lentille au miroir, mais également à celle de la lentille à la diode laser. Avec un tel système, le profil spatial de la lumière retournant dans la diode est le même que celui qui en sort. La Fig.A.5 montre l'évolution du spectre signal et la largeur à mi-hauteur en fonction de l'angle d'incidence sur le réseau de diffraction θ_i , les deux courbes en rouge montrant les données sans cette configuration.



Figure A.5: Spectre normalisé de la diode laser en fonction de la longueur d'onde pour différents angles d'incidence θ_i sur le réseau de diffraction (a). La valeur des largeurs à mi-hauteur de ces spectres est représentée en fonction de la longueur d'onde du pic. La courbe et le point en rouge sont les valeurs obtenues sans réseau de diffraction.

Afin de mesurer ces spectres, nous utilisons un spectromètre HR4000 (Oceanoptics) permettant d'étudier des longueurs d'onde jusqu'à 1200 nm, avec une résolution de 0,16 nm. La Fig.A.5 montre que le fait de tourner le réseau de diffraction influe sur la longueur d'onde d'oscillation dans une limite de quelques nanomètres. De plus, la Fig.A.5(b) indique que nous Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium

obtenons une diminution de largeur spectrale en présence du réseau de diffraction. Cette diminution relativement faible est due à la qualité du réseau de diffraction, qui ne possède que 800 lignes/mm. Par comparaison, dans la littérature Ruhnke et al., 2014 arrivent à obtenir une largeur de spectre d'une vingtaine de picomètres en utilisant un réseau de 3600 lignes par millimètre [81]. Toutefois, le rôle de cette configuration Littman-Metcalf n'est pas de diminuer la largeur spectrale du laser d'écriture, mais de le stabiliser temporellement, et le fait que la largeur spectrale soit diminuée montre l'asservissement de la diode laser, et donc sa stabilité temporelle. Par la suite, l'angle d'incidence θ_i est fixée à 60° assurant une largeur spectrale à mi-hauteur de 1, 1 ± 0, 1 nm.

A.2.3 Modulation du faisceau laser d'écriture du réseau

Le cristal non linéaire MgO : LiNbO₃ utilisé possède une épaisseur de 1 mm, une largeur de 10 mm et une longueur de 40 mm. Afin de maximiser l'effet du réseau de Bragg sur l'oscillation paramétrique, il est important que le réseau soit présent pendant toute la traversée de l'onde optique dans le cristal : le réseau de Bragg doit donc dans l'idéal faire 40 mm de long. Toutefois, nous sommes limités par la taille des différents miroirs du système d'écriture, qui ne font que 20 mm de longueur, empêchant d'atteindre la taille idéale.



Figure A.6: Largeurs horizontale et verticale du faisceau laser en fonction de la distance de la diode, ainsi que deux exemples de profil spatial à deux distances d différentes.

Le profil spatial issu de la diode laser est rectangulaire et son évolution est représentée sur la Fig.A.6. Le diamètre horizontal du faisceau augmente rapidement, alors que le diamètre vertical est quasiment collimaté. Afin d'obtenir le réseau de Bragg le plus grand possible en maximisant la densité optique incidente sur le cristal, il faut obtenir que la direction horizontale du faisceau couvre entièrement la largeur des miroirs utilisés, tout en rétrécissant le plus possible la direction verticale. Dans de telles conditions, nous devrions normalement utiliser deux jeux de deux lentilles cylindriques, toutefois le chemin optique parcouru par le laser est exactement celui nécessaire à la diamètre horizontal pour couvrir les miroirs du système interférométrique : l'ajout de lentilles pour contrôler la direction horizontale ne rajouterait donc que des pertes supplémentaires. Ainsi, bien que le laser n'a au final qu'un diamètre horizontal de 2 cm, comme il est incident sur le cristal avec un angle θ , le recouvrement est de $\Delta X/cos(\theta) = 3, 10\pm 0, 01cm$, l'angle d'incidence étant de 46,15° (Eq.A.8). Les deux lentilles cylindrique utilisées pour focaliser la direction verticale du faisceau, de focales 320 mm et 125 mm, permettent d'obtenir un ΔY de largeur 0, 486 \pm 0, 005 mm dans le cristal non linéaire.

A.2.4 Interféromètre de Mach-Zehnder

Le faisceau incident sur l'interféromètre a donc une surface et une stabilité temporelle contrôlées avant son arrivée sur l'interféromètre représenté sur la Fig.A.7. Cet interféromètre est composé de deux miroirs hautement réfléchissants (R>99%) et d'une lame séparatrice. La modification de l'angle θ se fait par des changements de distance inter-optique d et D.

De multiples types d'interféromètres ont été conçus et caractérisés. Nous avons notamment réalisé un interféromètre de type Mach-Zehnder, dont les deux branches sont séparées et réunies par un cube polarisateur, la polarisation d'une des deux branches étant modifiée par une lame demi-onde. Une séparation par un réseau de diffraction a également été construite, les deux branches de l'interféromètre correspondant à l'ordre -1 et 1 de la diffraction. Ces montages généraient cependant des pertes de puissance optique trop importantes et ne permettaient pas d'avoir un contraste élevé.

Le pas de réseau de Bragg visé valant 308,52 nm, pour vérifier si l'interféromètre est efficace, on ne peut le faire que pour une inter-frange plus élevée, la résolution de la caméra utilisé étant de 5 μ m. Un exemple de profil interférométrique relevé à la caméra est représenté sur la Fig.A.8, pour un angle θ de 0,47°. Sur ce profil, on observe bien une variation sinusoïdale horizontale de l'intensité due aux interférences entre les deux branches de l'interféromètre. On relève alors une interfrange de $\Lambda_{Bragg} = 27, 5\pm 5\mu$ m. Les interférences cylindriques de cette figure sont dues à des endommagement optiques sur le capteur de la caméra et non à notre système. L'interféromètre construit doit donc normalement pouvoir permettre la conception d'un réseau de Bragg, en faisant interférer les deux voies sur le cristal avec l'angle θ calculé à l'Éq.A.8.

Un aspect important pour la réussite du projet est d'avoir un contraste C le plus proche possible de 1, avec : Chapitre A - Développement d'un système d'écriture de réseau de Bragg dans un cristal de Niobate de Lithium



Figure A.7: Schéma de l'interferomètre de Mach-Zehnder conçu pour permettre une variation spatiale de l'intensité en faisant interférer, par un angle ϑ , les deux branches séparées par une lame séparatrice. d et D sont les distances inter-optiques. P₁ et P₂ sont les puissances moyennes de chaque branche.



Figure A.8: (a) Profil spatial relevé à la caméra spatiale résultant d'un interféromètre Mach-Zehnder, avec un angle $\theta = 0,47^{\circ}$. (b) évolution de l'intensité horizontal du profil spatial (a).

$$C = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \tag{A.10}$$

où I_{max} et I_{min} sont respectivement les intensités maximale et minimale de l'évolution sinusoïdale de l'intensité. Un contraste élevé accélère la gravure vers de l'état d'équilibre de l'effet photoréfractif, ainsi que la valeur de la différence d'indice de réfraction (Eq.A.7), en raison d'une plus grande différence locale de charge, comme vu dans le Chap.A.1. C vaut 1, s'il y a une égalité des puissances dans chacune des branches de la Fig.A.7, soit si $P_1 = P_2$ [19]. Le contraste ne pouvait être élevé dans le cas de la Fig.A.8(b), les conditions expérimentales faisant que d devait être petit et de ce fait, la répartition de puissance entre les deux branches ne pouvait être équilibrée. En effet, la séparation en puissance de la lame séparatrice dépendant de l'angle d'incidence sur celle-ci, la taille de d empêchait l'ajustement de cet angle. Ce problème est résolu dans le cas du système interférométrique voulu, qui permet d'assurer une variation périodique de l'intensité $\Lambda_{Bragg} = \frac{\lambda_{pompe}}{2n} = 308, 52 nm$. Ainsi, nous pouvons obtenir un ratio en puissance de 47,4/52,6 permettant d'atteindre en première approximation un contraste de 0,9. La puissance incidente sur le cristal est au final de $P_1 + P_2 = 1.62 \pm 0.01 W$. En effet, outre la puissance maximale du laser sur-évaluée par le fabricant, environ 41% de la puissance de la diode laser est utilisée par la configuration Littman-Metcalf afin d'assurer la stabilité temporelle de la longueur d'onde.

En prenant ainsi en compte une valeur du contraste de 0,9, un pas du réseau Λ_{Bragg} nécessaire de 308,52 nm correspondant à une température T=116,8°C selon la Fig.A.3, on peut alors estimer la valeur de différence d'indice induit par notre système d'écriture (grâce à l'Eq.A.7) de :

$$\Delta n_{max} = \frac{1}{2} r_{max} n^3 \times \frac{k_b T}{e} \times \frac{2\pi C}{\Lambda} \approx 9,7 \times 10^{-5}$$

où le terme r_{max} correspond dans le tenseur électroptique [r] à une onde polarisée extraordinairement (soit l'axe c du cristal), et est évalué dans la littérature par : $r_{max} = r_{33} = 31 \, pm.V^{-1}$. La différence d'indice de réfraction est donc, selon la bibliographie [42], suffisamment élevée pour assurer une oscillation dans ce cristal et en faire un OPO à rétroaction répartie (DFB-OPO pour *Distributed FeedBack OPO*).

En conclusion, nous avons construit une source interférométrique oscillant autour de 445 nm, temporellement stable, et ayant une variation horizontale de l'intensité avec un pas de 308,52 nm. Cette source éclaire le cristal non linéaire sur une surface de $31 \times 0,486 m^2$.
A.3 Montage de génération paramétrique.

Maintenant que nous avons caractérisé le montage d'écriture du réseau de Bragg dans le cristal non linéaire, nous allons décrire les caractéristiques du montage permettant une génération paramétrique dans ce cristal non linéaire.

La Fig.A.9 détaille le montage de la génération paramétrique dans le cristal non linéaire en MgO :LiNbO₃. Le laser de pompe *Tempest-10* (Elemental Scientific Laser) est un laser Nd :YAG couplé avec un cristal non linéaire permettant une oscillation à 532 nm, par génération de seconde harmonique (SHG pour second harmonic generation). Cette oscillation laser à 532 nm émet des impulsions d'environ 7.12 nanosecondes toutes les 0,1 secondes (soit une fréquence de répétition de 10 Hz). Après filtration du faisceau de 1064 nm restant, un polarisateur modifie la polarisation du faisceau et une lentille de focale 125 mm le focalise, permettant d'obtenir un rayon de faisceau au waist de 0, $382 \pm 0.002 mm$.



Figure A.9: Montage du système de génération paramétrique dans un cristal de MgO :LiNbO₃. Le système est pompé par un laser Nd :YAG originellement à 1064 nm qui par une génération de seconde harmonique, permet d'obtenir une oscillation à 532 nm. Le système d'écriture du réseau de Bragg est incident sur la longueur du cristal par une longueur d'onde à 445 nm.

Étude du laser de pompe Nd :YAG

Le laser de pompe Nd :YAG oscillant à $\lambda_{Nd:YAG} = 1064 \ nm$ passe dans un cristal non linéaire pour produire par SHG une oscillation λ_{pompe} à 532 nm. C'est ce signal produit par SHG qui sert de pompe pour l'interaction paramétrique dans le cristal de niobate de lithium. On note que nous n'avons pas accès au cristal non linéaire générant λ_{pompe} , celui-ci étant incorporé dans le produit du fabricant. Le spectre issu de ce laser est représenté sur la Fig.A.10, dans le visible et le proche infrarouge. Outre les ondes attendues $\lambda_{Nd:YAG}$ et λ_{pompe} à réciproquement 1064, 36 ± 0, 16 nm et 532, 34 ± 0, 16 nm, un pic est également relevé à 355, 52 ± 0, 16 nm. Étant donnée la longueur d'onde de ce dernier pic, il est issu d'une génération de fréquence somme, soit : $1/\lambda_{SHG} = 1/\lambda_{pompe} + 1/\lambda_{Nd:YAG}$. Le processus non linéaire permet également une augmentation de l'écart en nombre d'onde : on passe ainsi d'un pic Nd :YAG d'environ 11,5 cm⁻¹ à mi-hauteur à un écart en nombre d'onde d'environ 33,5 cm⁻¹ à mi-hauteur pour le pic λ_{pompe} .



Figure A.10: Spectres issus du laser de pompe dans le visible et le proche infrarouge, normalisés par le pic λ_{pompe} généré par SHG.

L'énergie maximale du pulse à 532 nm est de 70 mJ, soit une puissance crête du pulse 9,74MW. Ainsi, bien que la puissance moyenne soit basse (environ 0,7W), cette haute puissance crête assure la génération paramétrique, celle-ci dépendant du carré de l'énergie crête.

A.4 Génération paramétrique et discussions

Le cristal non linéaire MgO :LiNbO₃ n'est pas à retournement de polarisation comme peut l'être un cristal APPLN ; pour satisfaire la condition d'accord de phase, il faut de ce fait utiliser les propriétés biréfringeantes du cristal (Cf. Chap.1). L'utilisation d'une lame demi-onde afin de changer la polarisation de laser de pompe avant son insertion dans le cristal, est alors nécessaire. Ce cristal est placé dans un four fabriqué dans le laboratoire et possède une ouverture latérale permettant à notre système d'écriture de réseau de Bragg d'être incident sur le cristal. Ce four est contrôlé par thermostat et permet une résolution thermique de $0,1^{\circ}$ C.

Afin de déterminer si le réseau de Bragg a bien été gravé dans le cristal non linéaire, nous

étudions l'évolution de la génération paramétrique dans le cristal en fonction de la température : un réseau de Bragg établi dans le milieu permet en effet d'obtenir une longueur d'onde fixe en fonction de la température du cristal [42].



Figure A.11: Évolution du spectre normalisé en sortie du cristal MgO :LiNbO₃ en fonction de la température du cristal. La droite en tirets noirs correspond à la longueur d'onde attendue grâce au système d'écriture du réseau de Bragg

L'évolution du spectre de fluorescence paramétrique, en présente de la gravure du réseau de Bragg, est représentée en fonction de la température du cristal sur la Fig.A.11. Tout le long de cette évolution, on observe un pic à 1064 nm qui correspond au résidu de l'onde issue du laser de pompe. On observe une variation de la longueur d'onde en fonction de la température, qui est comparable à la courbe théorique calculée grâce aux équations de Sellmeier, en utilisant les coefficients proposés par Gayer *et al.[31]*. (cf. Fig.A.3). D'autre part, la largeur spectrale augmente lorsque l'on se rapproche de la dégénérescence, ce qui est également en accord avec la théorie de la fluorescence paramétrique. Par contre, entre 80° et 90°C, les longueurs d'onde produites sont proches de 1064 nm, on attribut cet effet à une amplification paramétrique de la pompe résiduelle.

La Fig. A.12 montre que le spectre issu du cristal MgO :LiNbO₃, suit l'évolution prédite par la simulation entre 90° et 120°C, À plus basse température se produit un asservissement de la génération paramétrique sur le résidu de 1064 nm du laser Nd :YAG ; il faut alors un éloignement suffisant de la dégénérescence et de sa bande de gain élargie, pour que cette amplification paramétrique n'est plus lieu. Au-dessus de 120°C, les données expérimentales s'écartent égale-



Figure A.12: Évolution de la longueur d'onde du spectre de la génération paramétrique en fonction de la température du cristal. En vert est représenté l'évolution du signal, et en rouge l'évolution du complémentaire obtenu des données signal en satisfaisant la conservation de l'énergie avec une pompe à 532 nm $\omega_c = \omega_{pompe} - \omega_s$. Les valeurs en trait plein sont issus de calculs numériques, et les points sont issus des spectres de la Fig.A.11.

ment de la courbe théorique. Cet écart est probablement dû au four utilisé, dont la température est mal régulée quand celle-ci est élevée.

Les Fig.A.12 et Fig.A.11 ne font pas apparaître un pic qui correspondrait à une longueur d'onde fixe produite par une résonance paramétrique : l'effet de la gravure du réseau de Bragg n'a donc pas été établi. Des études similaires ont été conduites pour des temps de mises en marche du système de gravure allant jusqu'à deux heures, sans apparition de pic de Bragg pour chacune des mesures.

Il a été démontré également, dans la littérature, que l'utilisation d'une lampe UV, en surplus d'un système de gravure de réseau de Bragg, permet d'exciter les électrons de surface du cristal et ainsi d'accélérer l'écriture de ce réseau [19]. Cette technique n'a toutefois pas été efficace dans notre cas.

Le facteur limitant de notre système est la puissance du système d'écriture. En effet, si cette puissance n'influence pas la valeur de Δn_{max} , elle rentre en compte dans la vitesse de gravure du réseau de Bragg [42]. Le fait que la puissance moyenne incidente sur le cristal ne soit que de 1,62W, ralentit l'écriture du réseau. Une solution pour augmenter cette puissance serait de retirer le montage en configuration Litmann-Metcalf, qui génère une perte de 41% de la puissance initiale, mais cela empêcherait de stabiliser temporellement la longueur d'onde laser et brouillerait le réseau.

Il est donc nécessaire d'utiliser un nouveau laser d'écriture de plus haute puissance. Une étape intermédiaire pour confirmer la gravure du réseau pourrait être une experience de diffraction. Le passage d'un faisceau à travers le réseau graver doit faire apparaître différents faisceaux [39].

Synthèse

Lors de cette thèse, un projet international m'a conduit à passer 6 mois dans un laboratoire taïwanais (HopeLab). Le but était de concevoir un OPO à rétroaction répartie (DFB OPO), qui permet d'assurer une oscillation paramétrique monomode qui ne dépende pas de la température de cristal et qui s'affranchit de miroirs de cavités. La cavité résonnante est en effet substituée par une modulation de l'indice de réfraction dans le milieu non linéaire, formant un réseau de Bragg. Cette modulation, obtenue par effet photoréfractif, est générée par un interféromètre de Mach-Zehnder incident sur un cristal non linéaire de MgO :LiNbO₃. Préalablement à cet interféromètre, une configuration Littman-Metcalf permet d'asservir le faisceau laser et ainsi d'assurer une stabilité temporelle de son émission. Nous montrons que l'interféromètre permet la création d'une modulation spatiale de l'intensité laser sur une grande partie de la longueur du cristal non linéaire. La modulation ainsi gravée dans le cristal permet normalement d'assurer une oscillation complémentaire monomode oscillant à 1300 nm à partir d'un laser pompe à 532 nm. Toutefois, l'étude expérimentale a montré qu'aucun pic de Bragg n'est observé, malgré l'obtention d'une génération paramétrique dans le cristal non linéaire : cela montre que le réseau de Bragg n'a pas été gravé. Le point limitant de notre système est la puissance du laser du montage d'écriture de réseau de Bragg, qui ralentit la mise en place de l'effet photoréfractif. Ce système devrait donc être fonctionnel en se procurant un laser de plus haute puissance.

Annexe B

Répartition dans l'impulsion des fréquences des spectres paramétriques

Dans le cadre de la compréhension de l'apparition d'un spectre signal cannelé et d'un spectre pompe (initialement gaussien) avec des bandes latérales, il peut également être utile d'obtenir le spectrogramme des impulsions : soit obtenir la répartition fréquentielle des spectres paramétrique dans les impulsions. Le spectrogramme de la Fig.B.1 représente le spectre en fréquence de la pompe (a) et du signal (b) en fonction de la position temporelle de l'impulsion. Pour obtenir ces résultats, nous avons utilisé une fonction Matlab, qui nous a empêché d'adapter les axes aux réels valeurs en temps et en fréquence et nous donne de ce fait des résultats relatifs. Malgré les difficultés d'adaptation dans les échelles réelles de l'OPO, cette fonction numérique nous apprend que la répartition fréquentielle des impulsions est globalement homogène. Ainsi l'étude du spectrogramme pompe nous informe que la bande latérale pompe bleue, qui est située dans les fréquences négatives, n'est présente qu'au milieu de l'impulsion pompe, soit là où l'intensité est la plus élevée, ce qui confirme le fait qu'il s'agit d'un effet d'ordre deux arrivant à forte puissance. L'effet de l'évolution du recouvrement des impulsions lors de leurs déplacement est également observable sur ces spectrogrammes : pour des unités de temps élevées (soit pour la crête de l'impulsion), nous avons les cannelures signal qui sont moins intenses que pour des unités de temps plus basses. L'impulsion signal étant plus rapide que l'impulsion pompe, allié au fait que les cannelures éloignées du pic principal se forment plus tard dans le cristal, fait que le gain paramétrique est moins élevé pour l'avant de l'impulsion. La situation inverse est observée pour l'impulsion pompe, où l'avant de l'impulsion a des bandes latérales plus développées qu'en fin d'impulsion. Toutefois, malgré cette différence d'intensité, le fait que l'ensemble des fréquences des cannelures et des bandes latérales pompe existent sur toute l'impulsion, montre que leur origine n'est pas un phénomène isolé, mais commun et causé par le passage dans le réseau chirpé.



Figure B.1: Spectrogramme numérique de l'impulsion pompe (a) et de l'impulsion signal (b) en sortie du cristal non linéaire, pour une oscillation en régime stationnaire.

Annexe C

SPOPO contraint par un double passage dans un CVBG intracavité

Suite à une détérioration du laser#1, le profil spectral signal issu d'un SPOPO accordé par un CVBG n'était plus affiné. Afin de palier ce problème, un montage est mis en place permettant de passer deux fois dans le CVBG afin d'augmenter ses propriétés de dispersion lors de la réflexion du signal. Ce montage schématisé sur la Fig.C.1 consiste en l'ajout d'un cube séparateur polarisant, d'une lame quart d'onde et d'un miroir plan R=100%. L'onde signal polarisé p est incidente sur le cube, vu sa polarisation elle est totalement transmise. L'onde passe alors dans la lame quart d'onde rendant sa polarisation circulaire; elle est alors incidente et réfléchie par le CVBG, ce qui constitue le premier passage dans le réseau. Suite à la réflexion, l'onde signal repasse par la lame quart d'onde, transformant sa polarisation circulaire en polarisation s. Cette polarisation fait qu'elle est totalement réfléchie par le cube polarisant. Suite à cette réflexion, l'onde est incidente sur un miroir plan renvoyant une nouvelle fois le faisceau sur le cube séparateur : l'onde signal étant toujours polarisée s, elle est de nouveau totalement réfléchie par le cube séparateur vers le CVBG. Avant d'atteindre le CVBG pour un deuxième passage, l'onde est polarisée circulairement par la lame quart d'onde. Suite à la réflexion dans le CVBG, le faisceau signal passe une dernière fois par la lame quart d'onde rendant la polarisation de l'onde p. Cette polarisation permet une transmission totale du cube ce qui renvoie l'onde vers le cristal non linéaire. Ce montage permet ainsi un double passage dans le CVBG. On note toutefois que le SPOPO devant toujours respecter la condition de pompage synchrone, la distance optique que nous avions pour un simple aller-retour entre le miroir plan et le CVBG du montage simple passage, doit être la même que la distance parcourue par l'onde signal dans le cas dans le cas du montage double passage : cela induit un rapprochement entre les optiques. De plus, un montage double passage induit expérimentalement de plus grandes difficultés d'alignement de la cavité, à cause des nouvelles réflexions dues au double passage.



Figure C.1: Schéma des montages permettant un simple ou un double passage dans le VBG chirpé.

Le résultat de l'installation du montage double passage sur le profil spectral signal est représenté sur la Fig.C.2(b). On voit que le profil spectral signal chaotique simple passage (Fig.C.2(a)) est affiné efficacement par le montage double passage. Le souci principal de l'installation du montage double passage est l'augmentation conséquente de la puissance du seuil d'oscillation : pour le réseau H3, on passe d'une puissance seuil de 4W à une puissance de 7,4W. Or la puissance maximum du laser#1 étant alors d'une dizaine de watts, nous sommes rapidement limités par la puissance pompe. Cela induit donc une efficacité de conversion moindre pour le double passage, et une accordabilité possible plus faible.

Malgré les avantages indéniables d'un double passage sur les propriétés spectrales des ondes paramétriques, la solution utilisée pour améliorer le profil spectral a été de remplacer le laser de pompe trop dégradé. Ce remplacement a également été l'occasion d'abaisser la puissance seuil par un changement de la focalisation du faisceau pompe dans la cavité OPO.



Figure C.2: Évolution du spectre signal normalisé en fonction la position du CVBG#1 pour un simple (a) ou un double passage (b). L'OPO est basé sur le réseau H3 et pompé par le laser#1.

Chapitre C - SPOPO contraint par un double passage dans un CVBG intracavité

Liste des publications et communications

Liste des communications :

[C1] G. Walter, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, D. Henry, C. Drag, <u>A.</u> <u>Godard</u>, "Fast and widely-tunable, VBG spectrally narrowed, picosecond optical parametric oscillator for backscatter absorption gas imaging", Laser Applications to Chemical, Security and Environmental Analysis-LACSEA 2018 (Orlando, FL, USA, 25–28 juillet 2018), papier LM5C. 3

[C2] G. Walter, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, D. Henry, C. Drag, <u>A.</u> <u>Godard</u>, "Backscatter absorption gas imaging with a narrow-linewidth picosecond optical parametric oscillator", CLEO :2018-Science & Innovation (San Jose, USA, 13–18 mai 2018), papier Stu3N.7

[C3] <u>G. Walter</u>, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, D. Henry, C. Drag, A. Godard, "Narrow-linewidth picosecond optical parametric oscillator for backscatter absorption gas imaging", Mid-Infrared Coherent Sources-MICS 2018 (Strasbourg, 26–28 mars 2018), papier MM4C.6

Liste des posters :

[P1] <u>G. Walter</u>, J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, C. Drag, A. Godard, "Spectral dynamics of a picosecond non constraint OPO based on an APPLN crystal", CLEO :2019-Science & Innovation (San Jose, USA, 05-10 mai 2019)

Liste des articles :

[A1] D.Descloux, G.Walter, E.Cadiou, J-B.Dherbecourt, G.Gorju, J-M.Melkonian, M.Raybaut, C.Drag, A.Godard,"Wide and fast dispersion tuning of a picosecond OPO based on aperiodic quasi-phase matching using an axially chirped volume Bragg grating", Optics letters, sept 2016, vol 41, n°17, 4060-4064

[A2] G.Walter, D.Descloux, J-B.Dherbecourt, J-M.Melkonian, M.Raybaut, C.Drag, A.Godard, "Picosecond synchronously-pumped optical parametric oscillator based on chirped quasi-phase matching ", JOSAB, soumis

Bibliographie

- Joseph H. APFEL. "Phase retardance of periodic multilayer mirrors". In : Appl. Opt. 21.4 (1982), p. 733-738. DOI: 10.1364/AO.21.000733. URL: http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-21-4-733.
- G. ARISHOLM, G. RUSTAD et K. STENERSEN. "Importance of pump-beam group velocity for backconversion in optical parametric oscillators". In: J. Opt. Soc. Am. B 18.12 (2001), p. 1882-1890. DOI: 10.1364/JOSAB.18.001882. URL: http://josab.osa.org/ abstract.cfm?URI=josab-18-12-1882.
- [3] Julie ARMOUGOM. "Nouvelles sources optiques pour la detection d'especes chimiques dans la bande III". These de doctorat dirigee par Boulanger, Benoit Optique et radiofrequences Grenoble Alpes 2018. Thèse de doct. 2018. URL : http://www.theses.fr/2018GREAT077.
- J. A. ARMSTRONG. "Measurement of picosecond laser pulse widths". In : Applied Physics Letters 10.1 (1967), p. 16-18. DOI : http://dx.doi.org/10.1063/1.1754787. URL : http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/10/1/10.1063/1.1754787.
- J.A ARMSTRONG et al. "Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric". In : Phys. Rev. 127 (6 1962), p. 1918-1939. DOI : 10.1103/PhysRev.127.1918. URL : http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.127.1918.
- [6] Gianpiero BANFI, Ilaria CRISTIANI et Vittorio DEGIORGIO. "Wavelength shifting by cascaded second-order processes". In : J. Opt. A Pure Appl. Opt. 2.4 (2000), p. 260. URL : http://stacks.iop.org/1464-4258/2/i=4/a=303.
- F. BOITIER et al. "Measuring photon bunching at ultrashort timescale by two-photon absorption in semiconductors". In : Nat Phys 5.4 (avr. 2009), p. 267-270. ISSN : 1745-2473. URL : http://dx.doi.org/10.1038/nphys1218.
- [8] Fabien BOITIER. "Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs". Thèse de doct. Ecole doctorale de l'Ecole Polytechnique (EDX), 2011.

- R. W. BOYD. "Nonlinear Optics (Third Edition)". In : sous la dir. de R. W. BOYD. Burlington : Academic Press, 2008. Chap. 9 Stimulated Brillouin and Stimulated Rayleigh Scattering, p. 415-471. ISBN : 978-1-4020-5409-9. DOI : http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-12-369470-6.00009-5.
- [10] Henry. BRAGG et Lawrence. BRAGG. "The reflection of X-rays by crystals". In : Proc. R. Soc. Lond. A (1913), p. 429-438.
- B BURGOYNE et Alain VILLENEUVE. "Programmable lasers : design and applications". In : t. 7580. 2010, p. 758002-758015. URL : http://dx.doi.org/10.1117/12.841277.
- W.J BURKE et al. "Volume Phase Holographic Storage In Ferroelectric Crystals". In : Optical Engineering 17.4 (1978), p. 308 -316. DOI : 10.1117/12.7972238. URL : https: //doi.org/10.1117/12.7972238.
- [13] Erwan CADIOU. "LIDAR DIAL multi espi¿œces ᅵ base de sources parami¿œtriques optiques pour la dᅵtection des gaz ᅵ effet de serre depuis l'espace." Thᅵse de doctorat dirigᅵe par Pelon, Jacques Physique Paris Saclay 2017. Thèse de doct. 2017. URL : http://www.theses.fr/2017SACLX102.
- [14] Mathieu CHARBONNEAU-LEFORT, Bedros AFEYAN et M M FEJER. "Competing collinear and noncollinear interactions in chirped quasi-phase-matched optical parametric amplifiers". In : J. Opt. Soc. Am. B 25.9 (2008), p. 1402-1413.
- [15] Mathieu CHARBONNEAU-LEFORT, Bedros AFEYAN et M M FEJER. "Optical parametric amplifiers using chirped quasi-phase-matching gratings I : practical design formulas". In : J. Opt. Soc. Am. B 25.4 (2008), p. 463-480. DOI : 10.1364/JOSAB.25.000463. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-25-4-463.
- [16] Mathieu CHARBONNEAU-LEFORT, Bedros AFEYAN et M M FEJER. "Optical parametric amplifiers using nonuniform quasi-phase-matched gratings. II. Space-time evolution of light pulses". In : J. Opt. Soc. Am. B 25.4 (2008), p. 683-700. DOI : 10.1364/JOSAB.25.
 000683. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-25-4-683.
- Kishore V. CHELLAPPAN, Erdem ERDEN et Hakan UREY. "Laser-based displays : a review". In : Appl. Opt. 49.25 (2010), F79-F98. DOI : 10.1364/A0.49.000F79. URL : http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-49-25-F79.
- [18] E C CHEUNG et J M LIU. "Theory of a synchronously pumped optical parametric oscillator in steady-state operation". In : J. Opt. Soc. Am. B 7.8 (1990), p. 1385. DOI : 10.1364/JOSAB.7.001385. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-7-8-1385.

- [19] A. C. CHIANG et al. "Distributed-feedback optical parametric oscillation by use of a photorefractive grating in periodically poled lithium niobate". In : Opt. Lett. 27.20 (2002), p. 1815-1817. DOI : 10.1364/0L.27.001815. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm? URI=ol-27-20-1815.
- [20] Xavier DELEN. "Amplificateurs laser a cristaux massifs pompes par diode : fibres cristallines Yb : YAG et cristaux Nd : YVO4". These de doctorat dirigee par Balembois, Francois Physique Palaiseau, Institut d'optique theorique et appliquee 2013. Thèse de doct. 2013. URL : http://www.theses.fr/2013I0TA0002.
- [21] D DESCLOUX et al. "Spectrotemporal dynamics of a picosecond OPO based on chirped quasi-phase-matching". In : Opt. Lett. 40.2 (2015), p. 280-283. ISSN : 0146-9592. DOI : 10.1364/0L.40.000280. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-40-2-280.
- [22] Delphine DESCLOUX. "Rapidly tunable optical parametrical sources based on aperiodically quasi-phase matched nonlinear crystals". Theses. Université Paris-Saclay, nov. 2016. URL : https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01421283.
- [23] Delphine DESCLOUX et al. "Rapidly tunable optical parametric oscillator based on aperiodic quasi-phase matching". In : Opt. Express 24.10 (2016), p. 11112-11125. URL : http: //www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-24-10-11112.
- [24] Delphine DESCLOUX et al. "Wide and fast dispersion tuning of a picosecond OPO based on aperiodic quasi-phase matching using an axially chirped volume Bragg grating". In : Opt. Lett. 41.17 (2016), p. 4060-4063. DOI : 10.1364/OL.41.004060. URL : http: //ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-41-17-4060.
- [25] Jean-Baptiste DHERBECOURT. "Processus non linéaires pour la génération d'impulsions picosecondes largement accordables dans l'infrarouge moyen". Thèse de doct. Ecole doctorale de l'Ecole Polytechnique (EDX), 2011, 1 vol. (242 p.) URL : http://www.theses. fr/2011EPXX0005.
- [26] C FALLNICH et al. "Experimental investigation and numerical simulation of the influence of resonator-length detuning on the output power, pulse duration and spectral width of a cw mode-locked picosecond optical parametric oscillator". In : Appl. Phys. B 60.5 (1995), p. 427-436. ISSN : 0946-2171. DOI : 10.1007/BF01081322. URL : http://dx.doi.org/10.1007/BF01081322.
- [27] M. M. FEJER et al. "Quasi-phase-matched second harmonic generation : tuning and tolerances". In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 28.11 (1992), p. 2631-2654. ISSN : 0018-9197.

- [28] P. A. FRANKEN et al. "Generation of Optical Harmonics". In: Phys. Rev. Lett. 7 (4 1961),
 p. 118-119. DOI: 10.1103/PhysRevLett.7.118. URL: http://link.aps.org/doi/10.
 1103/PhysRevLett.7.118.
- [29] Yasunori FURUKAWA et al. "Stoichiometric Mg :LiNbO3 as an effective material for nonlinear optics". In : Opt. Lett. 23.24 (1998), p. 1892-1894. DOI : 10.1364/OL.23.001892. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-23-24-1892.
- [30] G. M. GALE, F. HACHE et M. CAVALLARI. "Broad-bandwidth parametric amplification in the visible : femtosecond experiments and simulations". In : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 4.2 (1998), p. 224-229. ISSN : 1077-260X.
- [31] O. GAYER et al. "Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃". In : Applied Physics B 91.2 (2008), p. 343-348. ISSN : 1432-0649. DOI : 10.1007/s00340-008-2998-2. URL : http://dx. doi.org/10.1007/s00340-008-2998-2.
- J. A. GIORDMAINE. "Mixing of Light Beams in Crystals". In: Phys. Rev. Lett. 8 (1 1962),
 p. 19-20. DOI: 10.1103/PhysRevLett.8.19. URL: http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.8.19.
- [33] Leonid GLEBOV et al. "Volume-chirped Bragg gratings : monolithic components for stretching and compression of ultrashort laser pulses". In : Optical Engineering 53.5 (2014), p. 051514. DOI : 10.1117/1.0E.53.5.051514. URL : http://dx.doi.org/10.1117/1.0E.53.5.051514.
- [34] K. GODA et Jalali B. "Dispersive Fourier transformation for fast continuous single-shot measurements". In : *Nature Photonics* 7.2 (2013), p. 102-112.
- [35] D. E. GRAGSON et al. "High-power broadly tunable picosecond IR laser system for use in nonlinear spectroscopic applications". In : J. Opt. Soc. Am. B 13.9 (1996), p. 2075-2083.
 DOI: 10.1364/JOSAB.13.002075. URL: http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-13-9-2075.
- [36] P GUNTER et J.-P HUIGNARD. In : *Photorefractive Materials and their applications I*. Springer-Verlag, 1988.
- [37] D C HANNA et al. "Synchronously pumped optical parametric oscillator with diffractiongrating tuning". In: J. Phys. D. 34.16 (2001), p. 2440. URL: http://stacks.iop.org/ 0022-3727/34/i=16/a=308.

- [38] Angus HENDERSON et Ryan STAFFORD. "Spectral broadening and stimulated Raman conversion in a continuous-wave optical parametric oscillator". In: Opt. Lett. 32.10 (2007), p. 1281-1283. DOI: 10.1364/0L.32.001281. URL: http://ol.osa.org/abstract.cfm? URI=ol-32-10-1281.
- [39] K. O. HILL et al. "Bragg gratings fabricated in monomode photosensitive optical fiber by UV exposure through a phase mask". In : Applied Physics Letters 62.10 (1993), p. 1035-1037. DOI : 10.1063/1.108786.
- [40] John HOUGHTON. "The physics of atmospheres (3rd edition". In : sous la dir. de CAMBRIDGE. U.K. New York : Cambridge University Press, 2013, p. 50. ISBN : 978-0-521-80456-1.
- [41] Y-C HSU. "Transient Grating toward tunable distributed feedback(DFBᅵ optical parametric oscillator (OPO)". Mém. de mast. National Tsing Hua University, Taiwan.
- [42] Yen-Chieh HUANG et Yuan-Yao LIN. "Coupled-wave theory for distributed-feedback optical parametric amplifiers and oscillators". In : J. Opt. Soc. Am. B 21.4 (2004), p. 777-790.
 DOI: 10.1364/JOSAB.21.000777. URL: http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-21-4-777.
- [43] D. C. HUTCHINGS et T. C. KLECKNER. "Quasi phase matching in semiconductor waveguides by intermixing : optimization considerations". In : J. Opt. Soc. Am. B 19.4 (2002), p. 890-894. DOI : 10.1364/JOSAB.19.000890. URL : http://josab.osa.org/abstract. cfm?URI=josab-19-4-890.
- [44] Tolga KARTALOGLU et al. "Femtosecond optical parametric oscillator based on periodically poled KTiOPO4". In: Opt. Lett. 23.1 (1998), p. 61-63. DOI: 10.1364/0L.23.000061.
 URL: http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-23-1-61.
- [45] P V KELKAR et al. "Time-domain optical sensing". In : *Electron. Lett* 35.19 (1999), 1661-1662(1). ISSN : 0013-5194. URL : http://digital-library.theiet.org/content/ journals/10.1049/el{_}19991116.
- [46] John D. V. KHAYDAROV, James H. ANDREWS et Kenneth D. SINGER. "Pulse compression in a synchronously pumped optical parametric oscillator from group-velocity mismatch". In : Opt. Lett. 19.11 (1994), p. 831-833. DOI : 10.1364/OL.19.000831. URL : http: //ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-19-11-831.
- [47] John D V KHAYDAROV, James H ANDREWS et Kenneth D SINGER. "Pulse-compression mechanism in a synchronously pumped optical parametric oscillator". In : J. Opt. Soc. Am. B 12.11 (1995), p. 2199-2208. DOI : 10.1364/JOSAB.12.002199. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-12-11-2199.

Bibliographie

- [48] Florian KIENLE et al. "High-power, variable repetition rate, picosecond optical parametric oscillator pumped by an amplified gain-switched diode". In : Opt. Express 18.8 (2010), p. 7602-7610. DOI : 10.1364/OE.18.007602. URL : http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-8-7602.
- [49] Jens KIESSLING, Karsten BUSE et Ingo BREUNIG. "Temperature-dependent Sellmeier equation for the extraordinary refractive index of 5% MgO-doped LiNbO₃ in the terahertz range". In : J. Opt. Soc. Am. B 30.4 (2013), p. 950-952. DOI : 10.1364/JOSAB.30.000950. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-30-4-950.
- [50] Youngjae KIM et al. "Picosecond programmable laser sweeping over 50 mega-wavelengths per second". In : t. 7914. 2011, 79140Y-79140Y-8. URL : http://dx.doi.org/10.1117/ 12.875552.
- [51] M E KLEIN et al. "Rapid infrared wavelength access with a picosecond PPLN OPO synchronously pumped by a mode-locked diode laser". In : Appl. Phys. B 73.1 (2001), p. 1-10. ISSN : 1432-0649. DOI : 10.1007/s003400100595. URL : http://dx.doi.org/10.1007/s003400100595.
- [52] LB KREUZER. "Single and multimode oscillation of the singly resonant optical parametric oscillator". In : Proceedings of the joint conference on lasers and Opto-electronics. 1969, p. 52-63.
- [53] Thomas J. KULP et al. "Development of a pulsed backscatter-absorption gas-imaging system and its application to the visualization of natural gas leaks". In : Appl. Opt. 37.18 (1998), p. 3912-3922. DOI : 10.1364/AO.37.003912. URL : http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-37-18-3912.
- [54] T. LANG et al. "High power ultra-widely tuneable femtosecond pulses from a non-collinear optical parametric oscillator (NOPO)". In : Opt. Express 20.2 (2012), p. 912-917. DOI : 10.1364/OE.20.000912. URL : http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI= oe-20-2-912.
- [55] Cédric LAPORTE et al. "Analysis of cavity-length detuning in diffraction-grating narrowed picosecond optical parametric oscillators". In : J. Opt. Soc. Am. B 31.5 (2014), p. 1026-1034. DOI : 10.1364/JOSAB.31.001026. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm? URI=josab-31-5-1026.
- [56] Anat LESHEM et al. "Adiabatic second-harmonic generation". In : Opt. Lett. 41.6 (2016),
 p. 1229-1232. DOI : 10.1364/0L.41.001229. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm?
 URI=ol-41-6-1229.

- [57] Michael G. LITTMAN et Harold J. METCALF. "Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander". In: Appl. Opt. 17.14 (1978), p. 2224-2227. DOI: 10.1364/AO.17.002224.
 URL: http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-17-14-2224.
- [58] T LIU et al. "Cascaded synchronous terahertz optical parametric oscillations in a single MgO :PPLN crystal"". In : Laser Physics 22.4 (2012), p. 678-683.
- [59] A. LYAKH et al. "External cavity quantum cascade lasers with ultra rapid acousto-optic tuning". In : Applied Physics Letters 106.14, 141101 (2015). DOI : http://dx.doi.org/ 10.1063/1.4917241. URL : http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/ 106/14/10.1063/1.4917241.
- [60] Luke MAIDMENT et al. "Stand-off Detection of Liquid Thin Films using Active Mid-Infrared Hyperspectral Imaging". In : CLEO : 2015. Optical Society of America, 2015, JTh2A.88. DOI: 10.1364/CLE0_AT.2015.JTh2A.88. URL: http://www.osapublishing. org/abstract.cfm?URI=CLE0_AT-2015-JTh2A.88.
- [61] M. MAIER, W. KAISER et J. A. GIORDMAINE. "Intense Light Bursts in the Stimulated Raman Effect". In: *Phys. Rev. Lett.* 17 (26 1966), p. 1275-1277. DOI: 10.1103/PhysRevLett. 17.1275. URL: http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.17.1275.
- [62] T. H. MAIMAN. "Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby". In : Phys. Rev. Lett. 4 (11 1960), p. 564-566. DOI : 10.1103/PhysRevLett.4.564. URL : http://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.4.564.
- [63] P. D. MAKER et al. "Effects of Dispersion and Focusing on the Production of Optical Harmonics". In : *Phys. Rev. Lett.* 8 (1 1962), p. 21-22. DOI : 10.1103/PhysRevLett.8.21.
 URL : http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.8.21.
- [64] G. MALCOLM et al. "Active infrared hyperspectral imaging system using a broadly tunable optical parametric oscillator". In: 7486 (2009). DOI: 10.1117/12.833602. URL: https: //doi.org/10.1117/12.833602.
- [65] A. MARTINEZ et al. "Direct writing of fibre Bragg gratings by femtosecond laser". In : *Electronics Letters* 40.19 (2004), p. 1170-1172. ISSN : 0013-5194. DOI : 10.1049/el: 20046050.
- [66] M. J. MCCARTHY et D. C. HANNA. "All-solid-state synchronously pumped optical parametric oscillator". In : J. Opt. Soc. Am. B 10.11 (1993), p. 2180-2190. DOI : 10.1364/ JOSAB.10.002180. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-10-11-2180.

- [67] Thomas G. MCRAE et Thomas J. KULP. "Backscatter absorption gas imaging : a new technique for gas visualization". In : Appl. Opt. 32.21 (1993), p. 4037-4050. DOI : 10. 1364/A0.32.004037. URL : http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-32-21-4037.
- [68] Jean-Michel MELKONIAN. "Mise en forme spectrale et temporelle de sources optiques infrarouges par melange non-lineaire a trois ondes". Thèse de doct. Ecole doctorale de l'Ecole Polytechnique (EDX), 18 déc. 2007. URL : https://pastel.archives-ouvertes. fr/tel-00318682.
- [69] Albert MESSIAH. "Quantum mechanics volume I". In : North Holland, 2005.
- [70] S MIROV et al. "Progress in Cr^{2+} and Fe^{2+} doped mid-IR laser materials". In : Laser & Photon. Rev. 4 (2010), p. 21-41. DOI : 10.1002/lpor.200810076.
- Jeffrey MOSES, Haim SUCHOWSKI et Franz X. KÄRTNER. "Fully efficient adiabatic frequency conversion of broadband Ti :sapphire oscillator pulses". In: Opt. Lett. 37.9 (2012), p. 1589-1591. DOI: 10.1364/0L.37.001589. URL: http://ol.osa.org/abstract.cfm? URI=ol-37-9-1589.
- T-H. MY et al. "Stimulated Raman scattering in an optical parametric oscillator based on periodically poled MgO-doped stoichiometric LiTaO₃". In : *Opt. Express* 17.7 (2009), p. 5912-5918. DOI : 10.1364/0E.17.005912. URL : http://www.opticsexpress.org/ abstract.cfm?URI=oe-17-7-5912.
- [73] L. E. MYERS et al. "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO3". In : J. Opt. Soc. Am. B 12.11 (1995), p. 2102-2116. DOI : 10.1364/JOSAB.12.002102. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-12-11-2102.
- [74] Yuichi NAKAZAKI et Shinji YAMASHITA. "Fast and wide tuning range wavelength-swept fiber laser based on dispersion tuning and its application to dynamic FBG sensing". In : Opt. Express 17.10 (2009), p. 8310-8318. DOI : 10.1364/OE.17.008310. URL : http: //www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-17-10-8310.
- [75] Moshe NAZARATHY et David W DOLFI. "Spread-spectrum nonlinear-optical interactions : quasi-phase matching with pseudorandom polarity reversals". In : Opt. Lett 12 (1987), p. 823-825.
- [76] A. V. OKISHEV et J. D. ZUEGEL. "Intracavity-pumped Raman laser action in a mid-IR, continuous-wave (cw) MgO :PPLN optical parametric oscillator". In : Opt. Express 14.25 (2006), p. 12169-12173. DOI : 10.1364/0E.14.012169. URL : http://www. opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-14-25-12169.
- [77] G PAULIAT et G ROOSEN. In : (1999). Sous la dir. d'EDP SCIENCES.

- [78] C PETERSON et al. "Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4-13.3 micrometers molecular fingeriprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre". In : Nature Photonics (2014), p. 830-834.
- [79] C R PHILLIPS et al. "Apodization of chirped quasi-phasematching devices". In : J. Opt. Soc. Am. B 30.6 (2013), p. 1551-1568.
- [80] Gil PORAT et Ady ARIE. "Efficient, broadband, and robust frequency conversion by fully nonlinear adiabatic three-wave mixing". In : J. Opt. Soc. Am. B 30.5 (2013), p. 1342-1351. DOI : 10.1364/JOSAB.30.001342. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI= josab-30-5-1342.
- [81] N. RUHNKE et al. "400mW external cavity diode laser with narrowband emission at 445nm". In: Opt. Lett. 39.13 (2014), p. 3794-3797. DOI: 10.1364/OL.39.003794. URL: http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-39-13-3794.
- [82] Aleksandr RYASNYANSKIY et al. "Fourier transformed picosecond synchronously pumped Optical Parametric Oscillator without spectral filtering element". In : Journal of the European Optical Society : Rapid publications 3 (2008), p. 08037-08041. URL : https: //hal-iogs.archives-ouvertes.fr/hal-00560947.
- [83] Jassem SAFIOUI. "Nouvelle technique de photo-inscription dans LiNbO3 : autofocalisation controle par effect pyroelectrique". These de doctorat dirigee par Chauvet, Mathieu et Devaux, Fabrice Optique. Photonique Besancon 2010. Thèse de doct. 2010, 1vol. (176 p). URL : http://www.theses.fr/2010BESA2018.
- [84] S. SANNA et al. "Raman scattering efficiency in LiTaO₃ and LiNbO₃ crystals". In : *Phys. Rev. B* 91 (22 2015), p. 224302. DOI : 10.1103/PhysRevB.91.224302. URL : http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.224302.
- [85] Harvey SEGUR et Nicolas GRISOUARD. Lecture 13 : Triad (or 3-wave) resonances. 2009.
- [86] Jozsef SERES et Janos HEBLING. "Nonstationary theory of synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillators". In : J. Opt. Soc. Am. B 17.5 (2000), p. 741-750. DOI : 10.1364/JOSAB.17.000741. URL : http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI= josab-17-5-741.
- [87] S.GUHA. "Focusing dependence of the efficiency of a singly resonant OPO". In : Applied Physics B (1998), p. 663-675.
- [88] Karolina STANKEVIČIŪTĖ et al. "Tuning characteristics of femtosecond optical parametric oscillator with broadband chirped mirrors". In : Optical Engineering 54.12 (2015), p. 126111. DOI : 10.1117/1.0E.54.12.126111. URL : http://dx.doi.org/10.1117/1.0E.54.12.126111.

Bibliographie

- [89] G. I. STEGEMAN, D. J. HAGAN et L. TORNER. "χ(2) cascading phenomena and their applications to all-optical signal processing, mode-locking, pulse compression and solitons". In : Optical and Quantum Electronics 28.12 (1996), p. 1691-1740. ISSN : 1572-817X. DOI : 10.1007/BF00698538. URL : https://doi.org/10.1007/BF00698538.
- [90] David J. M. STOTHARD, Malcolm H. DUNN et Cameron F. RAE. "Hyperspectral imaging of gases with a continuous-wave pump-enhanced optical parametric oscillator". In : Opt. Express 12.5 (2004), p. 947-955. DOI : 10.1364/OPEX.12.000947. URL : http://www. opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-12-5-947.
- [91] Haim SUCHOWSKI et al. "Robust adiabatic sum frequency conversion". In : Opt. Express 17.15 (2009), p. 12731-12740.
- [92] T. SUHARA et H. NISHIHARA. "Theoretical analysis of waveguide second-harmonic generation phase matched with uniform and chirped gratings". In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26.7 (1990), p. 1265-1276. ISSN : 0018-9197.
- [93] Yoshihiro TAKAGI et al. "Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors". In : Opt. Lett. 17.9 (1992), p. 658-660. DOI : 10.1364/
 OL.17.000658. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-17-9-658.
- [94] T. VOLK et al. "Relation of the photorefraction and optical-damage resistance to the intrinsic defect structure in LiNbO3 crystals". In : *Optical Materials* 23.1 (2003). Proceedings of the 8th International Conference on Electronic Materials, IUMRS-ICEM 2002, p. 229 -233. ISSN : 0925-3467. DOI : https://doi.org/10.1016/S0925-3467(02)00294-X. URL : http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S092534670200294X.
- [95] I VURGAFTMAN et al. "Interband cascade lasers". In : Journal of Physics D : Applied Physics 48.12 (2015), p. 123001. URL : http://stacks.iop.org/0022-3727/48/i=12/ a=123001.
- [96] G. WYSOCKI et al. "Widely tunable mode-hop free external cavity quantum cascade lasers for high resolution spectroscopy and chemical sensing". In : Applied Physics B 92.3 (2008), p. 305-311. ISSN : 1432-0649. DOI : 10.1007/s00340-008-3047-x. URL : http://dx.doi.org/10.1007/s00340-008-3047-x.
- [97] O YAAKOBI et al. "Complete energy conversion by autoresonant three-wave mixing in nonuniform media". In : Opt. Express 21.2 (2013), p. 1623-1632. DOI : 10.1364/OE.21.
 001623. URL : http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-21-2-1623.
- [98] Yue ZHOU et al. "Fast and wide tuning wavelength-swept source based on dispersiontuned fiber optical parametric oscillator". In : Opt. Lett. 35.14 (2010), p. 2427-2429. DOI : 10.1364/OL.35.002427. URL : http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-35-14-2427.



Titre : Étude et développement d'un oscillateur paramétrique optique picoseconde rapidement accordable utilisant des cristaux à quasi-accord de phase apériodique - application à la détection de gaz par imagerie active

Mots clés : Oscillateur paramétrique Optique ; picoseconde ; quasi-accord de phase ; imagerie active

Résumé : Nous rapportons l'étude d'un *Oscillateur* Paramétrique Optique (OPO) picoseconde à base de cristaux apériodiques à large bande, utilisé pour des applications en spectroscopie rapide. Cette source paramétrique permet de sonder des gaz possédant des raies d'absorptions dans le moyen infrarouge, soit une plage spectrale difficilement accessible avec un laser solide conventionnel. La spécificité de l'OPO étudié est, outre son régime temporel picoseconde, son cristal non linéaire à quasi-accord de phase apériodique. Cette apériodicité élargit intrinsèquement la bande de gain paramétrique. Les travaux entrepris dans cette thèse portent dans un premier temps sur la caractérisation et l'explication des comportements propres à ce type d'OPO non contraint par filtre spectral.

Nous étudions plus particulièrement l'origine du profil spectral cannelé observé dès que la puissance seuil d'oscillation est dépassée : ce profil est composé d'un pic principal et d'une succession de pics latéraux et n'est pas reporté dans la littérature. La deuxième partie de l'étude consiste à l'asservissement de la longueur d'onde de l'OPO picoseconde en utilisant la condition de pompage synchrone intrinsèque à ce régime temporel, et un réseau de Bragg en volume chirpé (CVBG) : un déplacement du CVBG autour de la position respectant la condition de pompage synchrone, modifie la longueur d'onde oscillant dans la cavité. Cet OPO contraint permet l'étude d'émissions de gaz (N₂O, CO₂, etc.) dans l'atmosphère par imagerie active.

Title: Study and development of rapidly tunable picosecond optical parametric oscillator using aperiodically poled nonlinear crystals – Backscattering gas imaging applications

Keywords: Optical Parametric Oscillator, picosecond, Quasi phase matching, Active gas sensing

Abstract: Spectroscopy applications related to greenhouse gases or other gaseous pollutants involve the development of optical sources emitting in the mid-infrared region. A picosecond optical parametric oscillator (OPO) is one of these few sources. The specificity of the picosecond OPO reported in this thesis is its wide gain bandwidth obtained through the use of aperiodically poled nonlinear crystals. The first study aims to characterize and develop the specificity of broadband picosecond OPO, with an emphasis on the origin of the spectral

modulation observed from the threshold: the signal spectrum consists of a main peak and a succession of lateral secondary peaks. This OPO is then associated with a chirped volume Bragg grating (CVBG) whose displacement, around the position which respects the synchronous pumping condition, changes the oscillating wavelength. The ability of this highly tunable OPO is finally tested to detect N2O gas emissions with a backscattering gas imaging technique.