HAL open science

Architecture d'amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences pour la génération de sources laser intenses de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen.

Gilles Dalla-Barba

To cite this version:

Gilles Dalla-Barba. Architecture d'amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences pour la génération de sources laser intenses de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen.. Physique [physics]. Université de Bordeaux; Institut national de la recherche scientifique (Québec, province), 2022. Français. NNT : 2022BORD0245 . tel-03847655

HAL Id: tel-03847655

https://theses.hal.science/tel-03847655v1

Submitted on 10 Nov 2022

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

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

THÈSE EN COTUTELLE PRÉSENTÉE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

SPÉCIALITÉ : LASER, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

ET DE L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

INSTITUT NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

SPÉCIALITÉ : SCIENCES DE L'ÉNERGIE ET DES MATÉRIAUX

Par **Gilles DALLA-BARBA**

Architecture d'amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences pour la génération de sources laser intenses de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen

Sous la direction d'**Éric CORMIER**
et de **François LÉGARÉ**

Soutenue le 21 Septembre 2022

Devant le jury composé de :

Thomas SÜDMEYER	Professeur, LTF, Neuchâtel	Président & rapporteur
Nicolas FORGET	Ingénieur de Recherche, Fastlite, Nice	Rapporteur
Rémy BOULESTEIX	Maître de conférences, IRCER, Limoges	Examinateur
Éric CORMIER	Professeur des Universités, LP2N, Bordeaux	Directeur
François LÉGARÉ	Professeur, INRS, Varennes	Co-directeur
Johan BOULLET	Ingénieur de Recherche, Alphanov, Bordeaux	Invité
Jean-Christophe DELAGNES	Maître de conférences, CELIA, Bordeaux	Invité

RÉSUMÉ

Au cours des années 2000, l'avènement des sources laser Titane:saphir (Ti:Sa) intenses stabilisées en CEP (phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique) a ouvert la voie à la mesure des phénomènes ultra-rapides pour la physique attoseconde. Grâce au processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG), prédit par le modèle en trois étapes en 1993, les physiciens parviennent désormais à générer des impulsions attosecondes pour sonder temporellement les dynamiques électroniques au sein de la matière. En raison de la dépendance quadratique entre la longueur d'onde du laser et l'énergie pondéromotrice acquise par les électrons lors du processus de HHG, l'intérêt de la communauté attoseconde est aujourd'hui tourné vers la création de nouvelles sources laser intenses dans l'infrarouge moyen (MIR), un domaine spectral encore peu couvert à cause du manque de milieux amplificateurs émettant à ces longueurs d'ondes.

Dans la première moitié de cette thèse, une architecture d'amplification paramétrique optique (OPA) dans l'espace des fréquences est présentée pour générer du rayonnement intense dans l'infrarouge moyen à partir d'une chaîne laser Titane:Saphir térawatt. La source MIR, accordable de $5,5\ \mu m$ à $13\ \mu m$ et stable en CEP, a été caractérisée temporellement par une technique pompe-sonde développée en 2019 au sein des laboratoires de l'Université de Bordeaux et de l'Institut national de la recherche scientifique, puis utilisée pour piloter une expérience de HHG en milieu solide, un phénomène observé pour la première fois en 2011. Une seconde architecture d'OPA est ensuite proposée pour générer du rayonnement intense cette fois-ci vers $3\ \mu m$ par différence de fréquences (DFG) dans l'espace des fréquences.

L'un des principaux freins à la réalisation de sources intenses MIR réside dans la faible efficacité de conversion depuis l'infrarouge proche (NIR). Par conséquent, l'expérimentation en physique attoseconde reste aujourd'hui limitée aux laboratoires disposant de sources Ti:Sa multi-térawatts, des installations peu répandues en raison de leurs coûts d'achat et de fonctionnement. Toutefois, cette situation évolue progressivement grâce aux progrès réalisés ces 10 dernières années dans les technologies Thulium et Holmium vers $2\ \mu m$, une longueur d'onde prometteuse pour le pompage d'OPA MIR. La seconde partie du manuscrit traite le développement de nouveaux milieux amplificateurs à base de céramiques dopées aux ions Holmium, des matériaux présentant certains avantages tels que la fabrication rapide et à bas prix de cristaux de grandes dimensions, ou encore la possibilité de créer des compositions chimiques inhomogènes le long d'un même cristal (gradient ou échelon de dopage, co-dopage d'une couche externe). Dans ce cadre, des céramiques dopées à l'Holmium ont été fabriquées par une université partenaire et une méthode innovante est ici présentée pour analyser et quantifier les processus d'émission et de pertes dans ces matériaux, avec l'objectif d'égaler puis de surpasser à long terme les performances optiques des monocristaux.

Mots clés : amplification paramétrique optique, céramiques dopées à l'Holmium, génération d'harmoniques d'ordres élevés, infrarouge moyen, lasers intenses, physique attoseconde.

ABSTRACT

During the last decades, emergence of intense and CEP-stabilized (career-envelope phase) Titanium:sapphire (Ti:Sa) lasers has allowed the measurement of ultrafast phenomena for attosecond physics. Thanks to high-harmonic generation (HHG), a process predicted by the three steps model in 1993, attosecond pulses can be emitted and used for scanning the temporal dynamics of electrons in matter. Due to the quadratic dependance of the driving laser wavelength on the electron ponderomotive energy during HHG process, scientists are now looking forward a new generation of intense coherent sources in the mid-infrared (MIR) domain, a range of wavelengths in which amplifier media are still lacking.

In the first part of this thesis, an architecture of optical parametric amplification (OPA) in the frequency domain is presented to produce MIR intense field derived from a terawatt Ti:Sa laser. This MIR source, tunable from $5.5\ \mu m$ to $13\ \mu m$ and CEP-stable, has been characterized in the temporal domain by a pump-probe technique developed by laboratories of University of Bordeaux (France) and *Institut national de la recherche scientifique* (Canada), before being used for driving a HHG experiment in solids, a phenomena discovered in 2011. A second architecture of OPA is also presented to generate intense field around $3\ \mu m$, based on a difference frequency generation (DFG) in the frequency domain.

To this day, the generation of intense MIR radiation is hindered by the low conversion efficiency of photons from near-infrared (NIR) to mid-infrared, restricting attosecond science to very costly multi-terawatts Titanium:sapphire facilities. However, innovations in Thulium and Holmium technologies over the last decade has intended $2\ \mu m$ lasers to become a viable solution for pumping MIR OPA. The second part of this manuscript is dedicated to the development of new amplifier media made of Holmium-doped ceramics. Thanks to a fast and cost-effective production process and the possibility to realize inhomogeneous chemical compositions, ceramics show some advantages compared to monocrystals. In this context, Holmium-doped ceramics have been fabricated by a partner and an innovative method is presented here to study and characterize optical losses and emission processes in these materials, with the ambition of equaling, even exceeding, optical performances of monocrystals.

Keywords : attosecond physics, high-harmonic generation, Holmium-doped ceramics, intense lasers, mid-infrared, optical parametric amplification.

REMERCIEMENTS

Avant toute chose, je tiens à remercier l'ensemble des personnes ayant contribué de près comme de loin à la réussite de cette thèse, à commencer par Mr Manuel Tunon De Lara, président de l'Université de Bordeaux et Mr Philippe-Edwin Bélanger, directeur du service des études supérieures et postdoctorales de l'INRS. Un grand merci à Patrick Audebert, Serge Carrez, Guillaume Dupuis, René Farci, Yves Bernard et Clemens Hönninger qui m'ont apporté leur soutien en me recommandant pour cette thèse à travers des lettres pour certaines très touchantes et gratifiantes. Merci aussi aux professeurs Eric Cormier et François Légaré de m'avoir accordé leur confiance sur ce projet et d'avoir mis en oeuvre les moyens nécessaires à sa réalisation aussi bien en France qu'au Canada. Dans un autre contexte, merci aux membres du personnel administratif de l'Université de Bordeaux et de l'INRS pour leur aide régulière dans les nombreuses démarches de cotutelle internationale et de bi-diplomation.

De nombreux résultats de ce manuscrit découlent de la participation de certaines personnes que je tiens particulièrement à saluer. Tout d'abord, un grand merci à Jean-Christophe Delagnes, pour son investissement dans le dimensionnement du FDFG, son aide sur les projets laser à $2\ \mu m$ mais aussi son inlassable soutien scientifique et personnel du début jusqu'à la fin de la thèse. Merci aussi à Adrien Leblanc et Philippe Lassonde de m'avoir offert l'opportunité de poursuivre le projet du FOPA-MIR, c'était une thématique de recherche passionnante et j'espère avoir été à la hauteur de vos attentes. Je garderai en mémoire les bons moments passés avec vous ainsi que Antoine Laramée, Elissa Haddad ou encore Gaëtan Jargot en salle d'expérience au ALLS. Merci à Lucas Viers pour la fabrication des céramiques et à Simon Guené-Girard pour leur caractérisation spectroscopique. Enfin, merci à Ojoon Kwon pour son travail sur la mise en forme spectrale de l'injecteur du FDFG.

Un merci plus général aux collègues canadiens et français pour leur présence et leur soutien au quotidien : Lilia Pontagnier, Katherine Légaré, Adriàn Grande, Catherine Blackman, Guilhem Revet, Alexandra Bourterau, Jérôme Lhermite, Johan Boullet, Rezza Seyed Mohammad, Mayank Kumar, Fan Guangyu, Stephane Petit, Roopa Prakash, Laurent Merzeau et tant d'autres qu'il sera impossible de tous les citer. Mes excuses à celles et ceux qui ne figureront pas dans cette liste assurément non exhaustive.

Pour finir, je tiens à remercier profondément la famille pour leur soutien indéfectible pendant les longues périodes d'isolement au Canada ou encore lors de la rédaction du manuscrit de thèse. Merci aussi à Elise Lautard, Guillaume Bonamis, Christophe Quenel et Mathieu Lacaze pour leur amitié fidèle et bienveillante, ainsi qu'à Yohann Ayoul et Marie Letourneur pour tous les moments inoubliables partagés au Canada comme en France.

A vous tous, merci mille fois.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ i

ABSTRACT iii

REMERCIEMENTS v

TABLE DES MATIÈRES vii

LISTE DES ABRÉVIATIONS ix

1 INTRODUCTION À LA GÉNÉRATION DE RAYONNEMENT INTENSE DANS L'INFRAROUGE MOYEN 1

1.1 PLAGES D'ÉMISSION DES MATÉRIAUX LASER DANS L'INFRAROUGE PROCHE ET MOYEN 1

1.2 AMPLIFICATION PARAMÉTRIQUE OPTIQUE 2

1.3 AMPLIFICATION PARAMÉTRIQUE OPTIQUE DANS L'ESPACE DES FRÉQUENCES 3

1.4 APPLICATION DE GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS 5

2 RÉALISATION D'UNE SOURCE LASER ACCORDABLE DE QUELQUES CYCLES OPTIQUES DANS L'INFRAROUGE MOYEN 9

2.1 MODÉLISATION DE DISTORSIONS SPATIO-TEMPORELLES AVEC LE FORMALISME DE KOSTENBAUDER 9

2.1.1 Présentation du modèle 9

2.1.2 Validation du code 13

2.1.3 Modélisation d'une ligne 4f 16

2.2 DESCRIPTION DE LA SOURCE MIR 18

2.2.1 Vue d'ensemble 18

2.2.2 Mise en forme du signal avant le FOPA 19

2.2.3 Mise en forme du signal à l'intérieur du FOPA 25

2.2.4 Mise en forme de la pompe 27

2.2.5 Amplification dans le FOPA 29

2.2.6 Synthèse d'impulsions MIR par différence de fréquences 40

2.2.7 Discussions sur la source MIR accordable 49

2.3 EXPÉRIENCE DE GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS 50

2.3.1 Objectif de l'expérience 50

2.3.2 Résultats et discussions 51

3 SYNTHÈSE D'IMPULSIONS INTENSES DANS L'INFRAROUGE MOYEN PAR DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES DANS L'ESPACE DES FRÉQUENCES 53

3.1 CONTEXTE 53

3.2 DESCRIPTION DE LA SOURCE MIR 54
3.2.1 Vue d'ensemble 54
3.2.2 Accord de phase 54
3.2.3 Mise en forme spectrale du signal 55
3.2.4 Architecture de DFG dans l'espace des fréquences 56
3.2.5 Dispersion et recombinaison des composantes spectrales 57
3.2.6 Estimation du spectre idler 58
3.3 DISCUSSIONS 59
4 DÉVELOPPEMENT DE MILIEUX AMPLIFICATEURS À BASE DE CÉRAMIQUES DOPÉES AUX IONS HOLMIUM 61
4.1 CONTEXTE 61
4.2 RÉALISATION DE SOURCES ACCORDABLES CONTINUES DANS LES PLAGES D'ABSORPTION ET D'ÉMISSION DE L'HOLMIUM 62
4.2.1 Spectroscopie de l'ion Holmium 62
4.2.2 Laser de pompe à fibres dopées Thulium 63
4.2.3 Laser d'injection à fibres co-dopées Thulium-Holmium 73
4.3 ETUDE DE CÉRAMIQUES DOPÉES AUX IONS HOLMIUM 78
4.3.1 Etat de l'art 78
4.3.2 Caractérisation optique de céramiques dopées à l'Holmium 79
CONCLUSION 99
A FORMULES DE CHANGEMENT DE DOMAINE ET EXPRESSION DES PROPRIÉTÉS SPATIO-TEMPORELLES DANS LE FORMALISME DE KOSTENBAUDER 103
A.1 CHANGEMENT DE DOMAINE 103
A.2 EXPRESSION DES PROPRIÉTÉS SPATIO-TEMPORELLES BASIQUES 103
B CORRECTION DES RÉSULTATS DE DFG EN FONCTION DE LA RÉPONSE DU MONOCHROMATEUR ET DE LA TRANSMISSION DES FILTRES 105
B.1 RÉPONSE DU MONOCHROMATEUR 105
B.2 TRANSMISSION DES FILTRES LP2500 ET LP3500 ET CORRECTION DES SPECTRES MIR 105
C CARACTÉRISATION TEMPORELLE FROST 107
D SIMULATION DE PROPAGATION SPATIALE PAR FFT-BPM 109
LISTE DES FIGURES 110
LISTE DES TABLEAUX 119
BIBLIOGRAPHIE 121

LISTE DES ABRÉVIATIONS

Institutions

ALLS	Advanced Laser Light Sources (Varennes, Canada)
CELIA	Centre Lasers Intenses et Applications (Bordeaux, France)
ICMCB	Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (Bordeaux, France)
INRS	Institut national de la recherche scientifique (Varennes, Canada)
IRCer	Institut de Recherche sur les Céramiques (Limoges, France)
LP2N	Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences (Bordeaux, France)

Termes techniques

ASE	Emission spontanée amplifiée
CCD	Capteur à transfert de charges
CEP	Phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique
CPA	Amplification à dérive de fréquences
DFG	Génération (d'idler) par différence de fréquences
FDFG	Génération (d'idler) par différence de fréquences dans l'espace des fréquences
FOPA	Amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences
FROG	Méthode de caractérisation temporelle d'impulsions courtes (Frequency Resolved Optical Gating)
FROSt	Méthode de caractérisation temporelle d'impulsions courtes basée sur l'absorption transitoire d'un matériau
HCF	Fibre à cœur creux
HHG	Génération d'harmoniques d'ordres élevés
MFD	Diamètre modal dans une fibre optique
MIR	Infrarouge moyen
NIR	Infrarouge proche
OPA	Amplification paramétrique optique
OPCPA	Amplification paramétrique optique à dérive de fréquence
PFT	Inclinaison du front d'impulsion
SHG	Génération de seconde harmonique
SPM	Automodulation de phase
THG	Génération de troisième harmonique
TVA	Rotation temporelle ultrabrève de front d'onde

Matériaux

BBO	Bêta-borate de barium (BaB_2O_4)

CaF_2	Fluorure de calcium
Cr	Chrome
Er	Erbium
Fe	Fer
GaSe	Séléniure de gallium
HeNe	Hélium-néon
Ho	Holmium
Kr	Krypton
$LiNbO_3$	Niobate de lithium
Lu_2O_3	Oxyde de lutecium
N_2O	Protoxyde d'azote
PPLN	Niobate de lithium à polarisation périodique
Pr	Praséodyme
Ti:Sa	Titane:saphir (Ti:Al_2O_3)
Tm	Thulium
YAG	Grenat d'yttrium-aluminium ($Y_3Al_5O_{12}$)
Yb	Ytterbium
YLF	Fluorure de lithium et d'yttrium ($LiYF_4$)
ZnSe	Séléniure de zinc

Constantes physiques

c	Vitesse de la lumière dans le vide	$c = 3.10^8\, m.s^{-1}$
h	Constante de Planck	$h = 6,626.10^{-34}\, J.Hz^{-1}$
$\hbar$	Constante de Planck réduite	$\hbar = h/2\pi$
ε_0	Permittivité du vide	$\varepsilon_0 = 8,854.10^{-12}\, F.m^{-1}$

1 INTRODUCTION À LA GÉNÉRATION DE RAYONNEMENT INTENSE DANS L'INFRAROUGE MOYEN

Depuis une vingtaine d'années, les sources laser intenses de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen (MIR) entre $3\ \mu m$ et $20\ \mu m$ suscitent un intérêt croissant pour les applications scientifiques telles que la physique attoseconde [1; 2; 3; 4; 5; 6; 7] ou encore la spectroscopie moléculaire [8; 9; 10; 11]. À ce jour, la production de ce type de rayonnement demeure toutefois contraignante, aussi bien en raison du coût des installations laser que du savoir-faire requis pour la réalisation des architectures optiques.

1.1 Plages d'émission des matériaux laser dans l'infrarouge proche et moyen

Dans l'infrarouge proche (NIR) entre $0,8\ \mu m$ et $2\ \mu m$, les impulsions femtosecondes intenses sont le plus souvent générées par des chaînes laser constituées d'un oscillateur à blocage de modes [12; 13] et d'un ou plusieurs amplificateurs à dérive de fréquences [14]. La grande maturité des technologies Titane:Saphir, Ytterbium et Erbium offre aujourd'hui un accès direct à des impulsions NIR intenses via des solutions commerciales. Vers $2\ \mu m$, les matériaux à base d'ions Thulium et Holmium, en plein essor depuis une décennie, représentent aujourd'hui des solutions prometteuses pour la génération d'impulsions intenses dans l'infrarouge moyen par amplification paramétrique optique [15; 16; 17]. Au-delà de $2\ \mu m$, les cristaux dopés au Chrome ou au Fer permettent de produire des impulsions femtosecondes entre $2\ \mu m$ et $4,5\ \mu m$ [18; 19; 20; 21; 22; 23; 24; 25; 26]. Bien que peu exploitée, on mentionnera aussi la possibilité d'émettre des impulsions intenses à $3\ \mu m$ avec l'ion Erbium [27; 28]. Enfin, quelques travaux témoignent d'un potentiel pour l'ion Praseodyme d'émettre des impulsions courtes dans l'infrarouge moyen en co-dopage avec d'autres ions actifs comme l'Holmium [29; 30; 31]. La figure 1.1 résume les familles de matériaux disponibles pour la génération d'impulsions femtosecondes NIR et MIR intenses par émission stimulée.

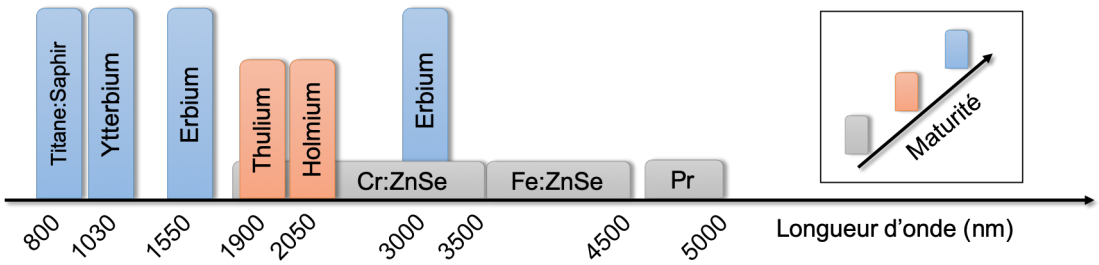


Figure 1.1 : Milieux amplificateurs utilisés pour générer des impulsions femtosecondes par émission stimulée dans l'infrarouge proche et l'infrarouge moyen.

Au-delà de 5 μm, aucun milieu amplificateur connu à ce jour ne permet de produire ni d'amplifier par émission stimulée des impulsions à la fois ultra-brèves et énergétiques. Les technologies térahertz ($\lambda > 20\ \mu m$) sont quant à elles difficiles à transposer vers l'infrarouge

moyen : les fréquences en jeu sont trop élevées pour être produites par des antennes et la rectification optique dans l'infrarouge moyen est pour l'instant réservée aux applications de faible énergie [32; 33; 34; 35]. Actuellement, la solution la plus répandue pour générer du rayonnement intense MIR est l'amplification paramétrique optique (OPA) [36], un processus non linéaire intervenant dans les cristaux non centrosymétriques.

1.2 Amplification paramétrique optique

L'amplification paramétrique optique (OPA) est un processus couramment utilisé pour modifier les fréquences optiques des lasers. La matière étant constituée de charges positives et négatives, la propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu matériel provoque une polarisation de la matière, généralement exprimée dans le domaine fréquentiel par le polynôme suivant [37] :

$$\overrightarrow{P}(\omega) = \overrightarrow{P}^{(1)}(\omega) + \overrightarrow{P}^{(2)}(\omega) + \overrightarrow{P}^{(3)}(\omega) + ... \tag{1.1}$$

avec :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{P}^{(1)}(\omega) &= \varepsilon_0 \otimes \left[\chi^{(1)}(\omega) \cdot \overrightarrow{E}(\omega)\right] \\ \overrightarrow{P}^{(2)}(\omega) &= \varepsilon_0 \otimes \left[\chi^{(2)}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2) : \overrightarrow{E}(\omega_1) \otimes \overrightarrow{E}(\omega_2)\right] \\ \overrightarrow{P}^{(3)}(\omega) &= \varepsilon_0 \otimes \left[\chi^{(3)}(\omega = \omega_3 \pm \omega_4 \pm \omega_5) \therefore \overrightarrow{E}(\omega_3) \otimes \overrightarrow{E}(\omega_4) \otimes \overrightarrow{E}(\omega_5)\right] \end{aligned} \tag{1.2}$$

où $\omega = 2\pi c/\lambda$ représente la pulsation (ou fréquence angulaire), λ la longueur d'onde, ε_0 la permittivité du vide et $\chi^{(i)}$ la susceptibilité électrique du milieu à l'ordre i.

Dans les équations 1.1 et 1.2, le terme $\overrightarrow{P}^{(1)}$ représente la réponse linéaire du matériau, pour laquelle un champ électrique incident de fréquence ω génère une polarisation de même fréquence. Les autres termes du polynôme réfèrent à des réponses non linéaires dont notamment l'amplification paramétrique optique pour $\overrightarrow{P}^{(2)}$ et l'effet Kerr optique pour $\overrightarrow{P}^{(3)}$. Ici, l'intérêt sera porté sur le coefficient de susceptibilité $\chi^{(2)}$, non nul dans tout cristal non centrosymétrique. À travers le processus d'OPA, l'expression de $\overrightarrow{P}^{(2)}$ indique que deux champs électriques incidents de fréquences ω_1 et ω_2 sont susceptibles de polariser la matière à une fréquence $\omega = \omega_1 \pm \omega_2$ qui n'était potentiellement pas présente à l'origine. Sous respect des conditions d'accord de phase et du recouvrement spatio-temporel des différents faisceaux, le processus d'amplification paramétrique permet un échange d'énergie entre des impulsions de fréquences ω, ω_1 et ω_2 par conversion de photons.

La figure 1.2 montre l'utilisation courante de l'OPA pour générer des photons dans l'infrarouge moyen. Dans cet exemple, un photon de fréquence ω_1 (*pompe*, en bleu) est scindé en deux photons moins énergétiques de fréquences ω_2 (*signal*, en vert) et ω_3 (*idler*, en orange). Comme indiqué sur le diagramme d'énergie à droite de la figure 1.2, la loi de conservation de l'énergie impose la relation suivante :

$$\omega_{pompe} = \omega_{signal} + \omega_{idler} \tag{1.3}$$

Parmi tous les couples signal/idler tolérés par l'accord de phase, la stimulation du processus d'OPA par un photon signal (ou idler) à la fréquence ω_2 (ou ω_3) permet de favoriser la résonance du couple de fréquences $(\omega_2; \omega_3)$. Par convention, le terme *amplification paramétrique optique* (OPA) est plutôt employé pour les applications visant l'amplification du signal (ou de l'idler) injecté avec la pompe dans le cristal. Pour la production du photon complémentaire (idler ou signal) et son amplification, l'expression *génération par différence de fréquences* (DFG) est généralement préférée. En toute rigueur, ces deux dénominations (OPA et DFG) réfèrent toutefois au même phénomène physique.

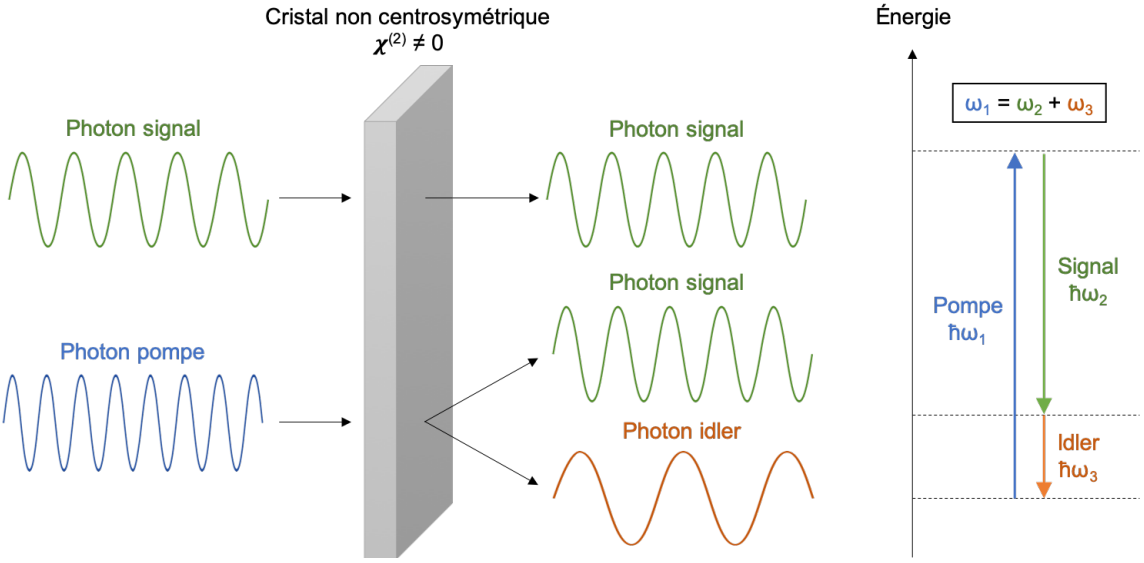


Figure 1.2 : A gauche, amplification d'un signal et génération d'un idler par amplification paramétrique optique. À droite, diagramme d'énergie des photons de pompe, signal et idler.

En choisissant judicieusement les longueurs d'onde de la pompe et du signal, le processus de DFG permet de produire des photons idler dans l'infrarouge moyen (MIR). La conversion directe du proche (NIR) au moyen infrarouge est toutefois limitée par les plages de transparence des cristaux non linéaires. De façon générale, les matériaux transparents dans le NIR sont absorbants dans le MIR et inversement, avec une plage de transparence commune aux alentours de $2\ \mu m$. Le plus souvent, les conversion de fréquences du NIR vers le MIR sont donc réalisées sur deux étages non-linéaires dans deux cristaux différents, avec une étape intermédiaire vers $2\ \mu m$. Pour des impulsions femtosecondes, certains paramètres comme l'intensité-crête, la largeur spectrale ou encore la dispersion de vitesse de groupe limitent également les performances de l'amplification paramétrique optique. Pour contourner ces difficultés, de nouvelles architectures optiques ont progressivement été développées comme l'OPCPA [38], le DC-OPA [39] ou plus récemment le FOPA [40].

1.3 Amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences

En 2014, des chercheurs de l'Institut national de la recherche scientifique (INRS) ont présenté une nouvelle architecture d'OPA, baptisée *amplification paramétrique optique dans l'es-*

pace des fréquences (FOPA) [40]. Cette approche permet entre autres de réduire l'intensité-crête dans les cristaux tout en s'affranchissant des contraintes liées à la tolérance spectrale afin d'amplifier des impulsions très courtes ($12\ fs$ dans la démonstration expérimentale). La spécificité du FOPA repose sur la mise en forme spatio-temporelle du signal (ou de l'idler) incident par une imagerie $4f$, comme illustré sur la figure 1.3. En entrée de FOPA, les longueurs d'onde du faisceau incident sont dispersées à l'aide d'un réseau de diffraction puis focalisées côte à côte dans un plan de Fourier avec une optique convergente (lentille ou miroir courbe). Après le plan de Fourier, les composantes spectrales sont recombinées par une imagerie $2f$ symétrique à celle d'entrée, l'ensemble formant une ligne à dispersion nulle. Au final, le faisceau signal subit une forte distorsion spatio-temporelle dans le plan de Fourier mais ressort du FOPA avec ses propriétés d'origine (en négligeant les pertes, le gain, la divergence naturelle du faisceau ainsi que la dispersion dans d'éventuelles optiques utilisées en transmission).

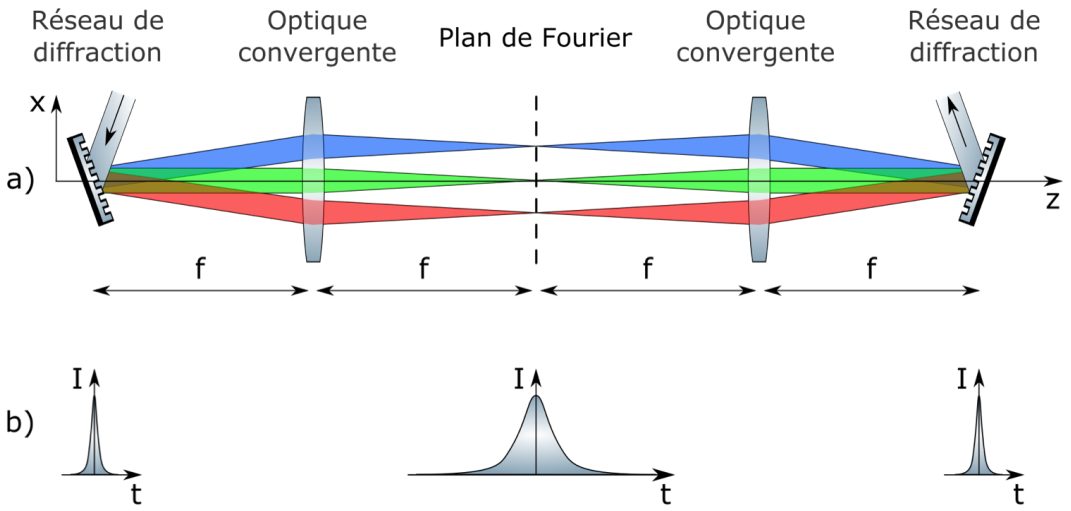


Figure 1.3 : a) Imagerie 4f avec f la distance focale des optiques convergentes, b) évolution de la durée d'impulsion au cours de la propagation avec I l'intensité et t le temps.

Le principe du FOPA consiste à réaliser une amplification paramétrique dans le plan de Fourier d'une imagerie $4f$. Dans ce plan en particulier, la dispersion et la focalisation des composantes spectrales par l'imagerie $2f$ d'entrée engendre un rétrécissement local de la largeur spectrale et donc, intrinsèquement, un élargissement de la durée d'impulsion à une durée de l'ordre de quelques picosecondes. On précisera que, contrairement aux architectures d'OPCPA [38], l'élargissement temporel dans un FOPA ne s'accompagne pas de dispersion temporelle. En approximation paraxiale, toutes les longueurs d'onde franchissent donc le plan de Fourier en même temps. En revanche, ces dernières sont dispersées spatialement, offrant l'opportunité de répartir le spectre dans plusieurs cristaux non linéaires afin d'ajuster individuellement l'accord de phase de chaque portion spectrale. Grâce à cette propriété, l'architecture FOPA permet de contourner les limitations liées à la tolérance spectrale de l'accord de phase, voire d'augmenter la bande spectrale amplifiée en utilisant une répartition d'intensité de pompe non uniforme dans le plan de Fourier.

Le concept de FOPA peut se décliner sous différentes variantes. Dans la version originale de 2014, Schmidt et al. [40] ont amplifié de $200\ \mu J$ à $1,4\ mJ$ des impulsions incidentes

de $12\ fs$ centrées à $1,8\ \mu m$ (soit $2,5$ cycles optiques). En utilisant la même technique en 2017, Gruson et al. [41] ont démontré une puissance-crête de $2,5\ TW$ à $10\ Hz$ pour des impulsions de $11,6\ fs$ centrées à $1,8\ \mu m$. Dans le chapitre 2 de ce manuscrit, une architecture FOPA sera présentée pour amplifier deux bandes spectrales d'un signal centré à $1,7\ \mu m$ puis générer, par DFG, des impulsions MIR de quelques cycles optiques accordables entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$. Dans le chapitre 3, un FOPA constitué de lignes $2f$ asymétriques sera proposé pour la génération d'impulsions intenses vers $2,7\ \mu m$ par DFG dans l'espace des fréquences.

1.4 Application de génération d'harmoniques d'ordres élevés

Les sources laser développées dans les chapitres 2 et 3 de ce manuscrit visent le pilotage de processus de générations d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) en milieu solide. Découvert puis prédit par un modèle en trois étapes dans les gaz en 1993 [42], ce processus non linéaire permet entre autres de générer des impulsions attosecondes pour sonder les dynamiques électroniques au sein de la matière [43]. En milieu gazeux, le modèle théorique décrit la HHG en trois étapes : l'ionisation de la matière par effet tunnel, l'accélération d'un électron par le champ laser et la recombinaison radiative de l'électron avec son noyau d'origine.

En présence d'un champ électrique intense, l'inclinaison des niveaux d'énergie d'un atome peut conduire à un phénomène d'ionisation par effet tunnel, avec un taux W_i relié au champ électrique $\mathcal{E}(t)$ par la relation de proportionnalité suivante [42] :

$$W_i \propto exp\left[-\gamma/\mathcal{E}(t)\right] \qquad ; \qquad \gamma = -\frac{4\,E_s^0\,\sqrt{2\,m_e\,E_s^0}}{3\,\hbar\,q} \tag{1.4}$$

avec E_s^0 le potentiel d'ionisation de l'atome, m_e la masse de l'électron, q la charge de l'électron et $\hbar = h/2\pi$ la constante de Planck réduite.

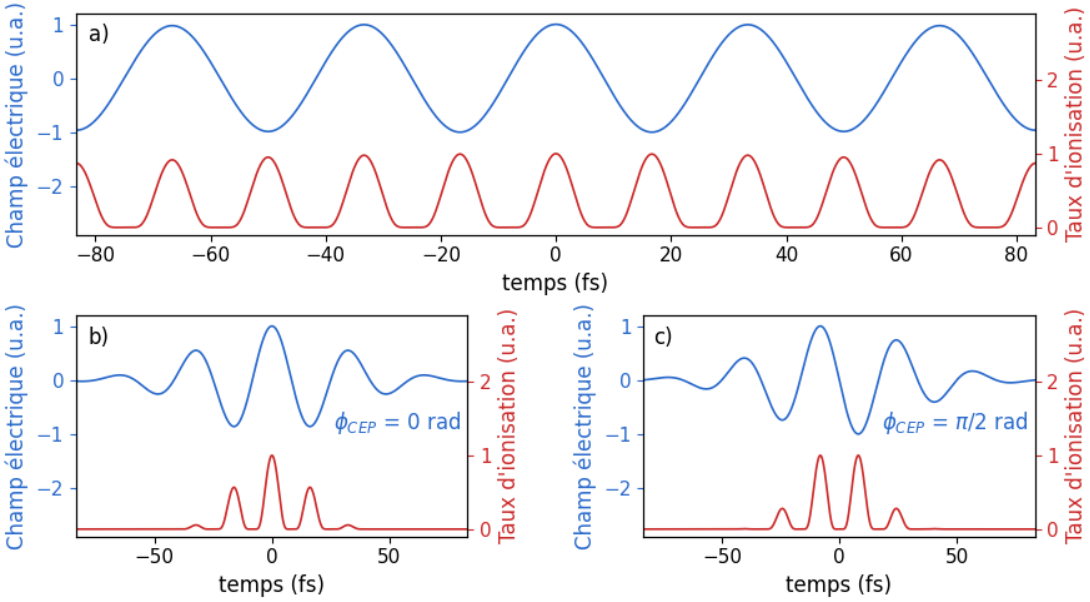


Figure 1.4 : Modélisation du champ électrique (bleu) et du taux d'ionisation (rouge) produits par des impulsions de a) 300 fs et b,c) 30 fs centrées à $10\ \mu m$.

Après ionisation de la matière par effet tunnel, les électrons libérés sont accélérés par le champ électrique du laser. Par application du principe fondamental de la dynamique à la force de Coulomb, l'accélération s'exprime par :

$$q\,\mathcal{E}(t) = m_e\,\ddot{x}(t) \tag{1.5}$$

avec q et m_e la charge et la masse d'un électron, $\mathcal{E}(t)$ le champ électrique, $x(t)$ la position de l'électron et $\ddot{x}(t) = \partial^2 x(t)/\partial t^2$ son accélération.

L'intégration de l'équation 1.5 permet de remonter à la vitesse de l'électron $\dot{x}(t)$, nulle à l'instant de l'ionisation $t = 0$. Intégrée une seconde fois, l'équation fournit la position de l'électron $x(t)$, également nulle à l'instant d'ionisation $t = 0$ en considérant la position du noyau comme référence. La figure 1.5 montre l'évolution de la trajectoire (panneau *b*) et de l'énergie cinétique (panneau *c*) de l'électron selon la phase d'ionisation par rapport au champ électrique incident.

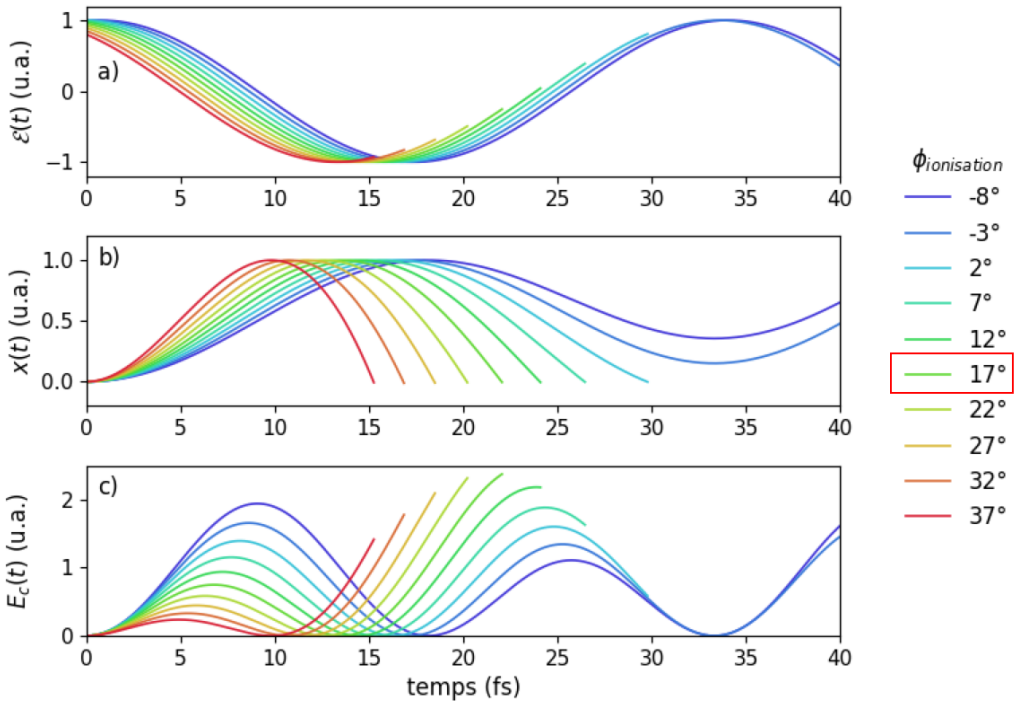


Figure 1.5 : a) Champ électrique, b) position et c) énergie cinétique de l'électron après ionisation par effet tunnel à différents déphasages par rapport au champ électrique.

Lors de la phase d'accélération, les électrons sont éloignés puis ramenés en direction de leur position initiale par l'oscillation du champ électrique (cf panneau *b* de la figure 1.5). Lors du retour, les électrons ionisés après un pic du champ électrique repassent par la position d'origine et sont susceptibles de se recombiner avec le noyau, tandis que ceux émis avant le pic sont progressivement éjectés par le champ. Au moment de la recombinaison, la théorie montre que l'énergie cinétique de l'électron est maximale pour une phase d'ionisation de 17° par rapport au champ électrique pilotant le processus de HHG (cf panneau *c*). La conversion de l'énergie

cinétique des électrons en rayonnement électromagnétique donne lieu à une émission brève et cohérente de photons pouvant atteindre des énergies supérieures au keV [4].

Pour un champ électrique de fréquence ω_0, la répétition du processus de HHG à chaque demi-cycle optique conduit à l'émission d'un train d'impulsions attosecondes périodique. La transformée de Fourier d'un signal temporel de période T étant $1/T$ périodique, l'interférence des impulsions issues de la HHG se traduit donc par un spectre de pics harmoniques espacés de $2\,\omega_0$. La fréquence de coupure du spectre harmonique est conditionnée par l'énergie pondéromotrice U_p acquise par les électrons, elle-même reliée au champ laser par :

$$U_P \propto I\,\lambda^2 \tag{1.6}$$

avec I l'intensité du laser et λ sa longueur d'onde centrale.

L'augmentation du champ pouvant conduire à une ionisation excessive et nuire au processus de HHG, l'équation 1.6 témoigne de l'intérêt des lasers MIR intenses pour augmenter l'énergie des photons émis par HHG. En 2011, le phénomène de HHG a été observé pour la première fois dans des semi-conducteurs [2], avec une description théorique un peu plus complexe que celle du modèle gazeux [44; 45; 46; 47; 48]. En milieu solide, deux processus de génération d'harmoniques se distinguent. Dans le premier, la déplétion d'électrons de la couche de valence vers la bande de conduction produit une interaction comparable à l'ionisation des gaz et donne lieu à la génération d'harmoniques *inter-bande* par recombinaison de paires électron-trou. Dans le second, l'accélération d'électrons par le champ laser dans la bande de conduction génère des oscillations de Bloch aboutissant à un rayonnement désigné par le terme d'harmoniques *intra-bande*. Dans le chapitre 2, une source MIR intense entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$ sera développée puis utilisée pour mener une expérience de HHG en milieu solide en régime d'harmoniques principalement intra-bande.

2 RÉALISATION D'UNE SOURCE LASER ACCORDABLE DE QUELQUES CYCLES OPTIQUES DANS L'INFRAROUGE MOYEN

L'objectif de ce chapitre consiste à produire, à partir d'un laser Titane:Saphir de quelques dizaines de millijoules, des impulsions laser d'intensité-crête de l'ordre de $10^{11}\ W/cm^2$ dans l'infrarouge moyen pour piloter des processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) dans des semi-conducteurs. Cette source repose sur une architecture d'amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA), un dispositif d'imagerie au sein duquel intervient une distorsion entre les propriétés spatiales et temporelles d'un faisceau (cf section 1.3). La résolution des propagations spatiale et temporelle étant impossibles indépendamment l'une de l'autre, la prochaine section sera dédiée à la réalisation d'une modélisation numérique permettant de prédire les propriétés spatio-temporelles d'impulsions femtosecondes à travers l'imagerie dispersive $4f$ d'un FOPA.

2.1 Modélisation de distorsions spatio-temporelles avec le formalisme de Kostenbauder

2.1.1 Présentation du modèle

Pour décrire la propagation d'impulsions courtes dans un système dispersif, il est souvent impossible d'écrire l'intensité spatio-temporelle comme un produit de variables séparées $I(r,t) = I_r(r) \times I_t(t)$ car il existe un couplage entre les propriétés spatiale et temporelle. La résolution des distorsions au premier ordre par des modèles matriciels [49; 50; 51; 52; 53] constitue une solution à la fois simples et efficace pour le cas des distributions d'intensité gaussiennes. Parmi les différentes approches, le formalisme de Kostenbauder [54] se pose comme la généralisation la plus aboutie pour l'étude de systèmes optiques dispersifs linéaires.

Pour introduire la notion d'optique matricielle, considérons dans un premier temps la propagation spatiale d'un faisceau avec un rayon défini par sa position transverse relative x et son orientation θ par rapport à l'axe optique. Conventionnellement, ces deux paramètres sont regroupés pour former le vecteur de coordonnées. Lors de la traversée d'un système optique, caractérisé par une matrice de dimension 2×2 nommée *matrice ABCD*, le rayon subit une modification de ses coordonnées. Le vecteur de sortie s'exprime alors comme le produit matriciel du vecteur d'entrée par la matrice ABCD :

$$\begin{bmatrix} x \\ \theta \end{bmatrix}_{sortie} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} x \\ \theta \end{bmatrix}_{entrée} \tag{2.1}$$

Pour des soucis de lisibilité, les indices $entrée$ et $sortie$ seront respectivement remplacés par e et s dans la suite du manuscrit.

En développant le produit matriciel de l'équation 2.1, les termes A, B, C et D apparaissent directement comme la variation linéaire des paramètres x et θ de sortie par rapport à leurs valeurs d'entrée. En d'autres termes, la matrice ABCD contient l'ensemble des dérivées partielles croisées de x et θ au premier ordre :

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial x_s}{\partial x_e} & \frac{\partial x_s}{\partial \theta_e} \\ \frac{\partial \theta_s}{\partial x_e} & \frac{\partial \theta_s}{\partial \theta_e} \end{bmatrix} \tag{2.2}$$

Pour traiter une distribution d'intensité gaussienne plutôt qu'un rayon lumineux unique, il est d'usage d'introduire au modèle un paramètre complexe q qui regroupe l'ensemble des propriétés spatiales dans une seule grandeur complexe :

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - i\frac{\lambda_0}{\pi n w^2} \tag{2.3}$$

avec R le rayon de courbure du front d'onde, λ_0 la longueur d'onde centrale, n l'indice de réfraction du milieu et $2w$ le diamètre du faisceau à $1/e^2$.

A partir du paramètre complexe du faisceau, il est alors possible de reconstruire le champ électrique complexe à travers la relation suivante :

$$\tilde{E}(x) = exp\left(-i\frac{\pi}{\lambda_0} q\, x^2\right) \tag{2.4}$$

Pour un faisceau gaussien, la relation de transfert à travers un système optique est quant à elle donnée par une expression analogue à l'équation 2.1 :

$$\begin{bmatrix} q \\ 1 \end{bmatrix}_{sortie} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} q \\ 1 \end{bmatrix}_{entrée} \tag{2.5}$$

Ce qui aboutit à la relation bien connue du formalisme *ABCD* :

$$q_s = \frac{A\, q_e + B}{C\, q_e + D} \tag{2.6}$$

L'un des formalismes de Kostenbauder [54] reprend la même démarche en intégrant deux nouvelles coordonnées temporelles au rayon : le retard t et la fréquence optique ν. On rappellera le caractère relatif de ces paramètres en notation matricielle, ainsi les coordonnées $t = 0$ et $\nu = 0$ réfèrent respectivement au barycentre temporel et à la fréquence centrale de l'impulsion. Le système optique, défini comme la liste des dérivées partielles de chaque composante, adopte un format matriciel 4×4 pour s'adapter aux deux nouvelles dimensions temporelles. Cette matrice, notée K et nommée matrice de Kostenbauder s'exprime alors par la relation 2.7.

$$K = \begin{bmatrix} \frac{\partial x_s}{\partial x_e} & \frac{\partial x_s}{\partial \theta_e} & \frac{\partial x_s}{\partial t_e} & \frac{\partial x_s}{\partial \nu_e} \\ \frac{\partial \theta_s}{\partial x_e} & \frac{\partial \theta_s}{\partial \theta_e} & \frac{\partial \theta_s}{\partial t_e} & \frac{\partial \theta_s}{\partial \nu_e} \\ \frac{\partial t_s}{\partial x_e} & \frac{\partial t_s}{\partial \theta_e} & \frac{\partial t_s}{\partial t_e} & \frac{\partial t_s}{\partial \nu_e} \\ \frac{\partial \nu_s}{\partial x_e} & \frac{\partial \nu_s}{\partial \theta_e} & \frac{\partial \nu_s}{\partial t_e} & \frac{\partial \nu_s}{\partial \nu_e} \end{bmatrix} \tag{2.7}$$

Pour un système optique sans conversion de fréquence et invariant dans le temps, l'expression de K dans l'équation 2.7 se simplifie en posant $\partial x/\partial t = \partial \theta/\partial t = \partial \nu/\partial x = \partial \nu/\partial \theta = \partial \nu/\partial t = 0$ et $\partial t/\partial t = \partial \nu/\partial \nu = 1$. La relation de transfert spatio-temporelle devient alors :

$$\begin{bmatrix} x \\ \theta \\ t \\ \nu \end{bmatrix}_s = \begin{bmatrix} A & B & 0 & E \\ C & D & 0 & F \\ G & H & 1 & I \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} x \\ \theta \\ t \\ \nu \end{bmatrix}_e \tag{2.8}$$

Considérons maintenant des distributions d'intensité gaussiennes pour la durée d'impulsion et le profil spatial. L'ajout de la dimension temporelle à l'équation 2.4 conduit à l'expression quadratique suivante pour le champ électrique gaussien :

$$\tilde{E}(x,t) = exp\left(-i\frac{\pi}{\lambda_0}\begin{bmatrix} x \\ -t \end{bmatrix}^T Q^{-1} \begin{bmatrix} x \\ t \end{bmatrix}\right) \tag{2.9}$$

avec $Q = \begin{bmatrix} Q^{-1}_{(11)} & Q^{-1}_{(12)} \\ Q^{-1}_{(21)} & Q^{-1}_{(22)} \end{bmatrix}$ le paramètre complexe du faisceau.

De la même façon que le scalaire q contenait à lui seul toute l'information spatiale du faisceau, ici la matrice Q est suffisante pour définir exhaustivement les propriétés spatio-temporelles d'une impulsion gaussienne. L'écriture du champ électrique complexe en forme développée permet de faire apparaître les différentes composantes du paramètre complexe matriciel :

$$\tilde{E}(x,t) = exp\left(-i\frac{\pi}{\lambda_0}\left(Q^{-1}_{(11)}x^2 + Q^{-1}_{(12)}xt - Q^{-1}_{(21)}xt - Q^{-1}_{(22)}t^2\right)\right) \tag{2.10}$$

L'interprétation physique du paramètre complexe Q n'étant pas explicite, il est d'usage d'introduire une nouvelle variable $\tilde{Q}$ définie par :

$$\tilde{Q} = \begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} & \tilde{Q}_{xt} \\ \tilde{Q}_{tx} & \tilde{Q}_{tt} \end{bmatrix} = -i\frac{\pi}{\lambda_0}Q^{-1} \tag{2.11}$$

Dans ses travaux, Kostenbauder [54] démontre l'opposition $\tilde{Q}_{xt} = -\tilde{Q}_{tx}$ pour les termes croisés, conduisant à l'expression suivante de Q^{-1} :

$$Q^{-1} = \frac{\tilde{Q}}{-i\frac{\pi}{\lambda_0}} = i\frac{\lambda_0}{\pi}\tilde{Q} = i\frac{\lambda_0}{\pi}\begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} & \tilde{Q}_{xt} \\ -\tilde{Q}_{xt} & \tilde{Q}_{tt} \end{bmatrix} \tag{2.12}$$

La substitution de Q^{-1} par son équivalent $\tilde{Q}$ dans l'équation 2.10 offre finalement une vision directe de la contribution des différentes composantes matricielles avec l'expression du champ électrique sous la forme d'une distribution gaussienne elliptique :

$$E(x,t) = exp\left(\tilde{Q}_{xx}\, x^2 + 2\tilde{Q}_{xt}\, xt - \tilde{Q}_{tt}\, t^2\right) \tag{2.13}$$

Dans l'équation ci-dessus, $\tilde{Q}_{xx}$ et $\tilde{Q}_{tt}$ renseignent sur les propriétés spatiales et temporelles sans notion de couplage, et les termes croisés $\tilde{Q}_{xt}$ et $\tilde{Q}_{tx}$ portent l'information de distorsion spatio-temporelle. La notation $\tilde{Q}$ permet donc d'établir une relation bijective entre le paramètre complexe Q et les propriétés physiques d'une impulsion dans le domaine spatio-temporel. Dans la littérature, Akturk [55] définit les nombres complexes $\tilde{Q}_{xx}$ et $\tilde{Q}_{tt}$ comme :

$$\tilde{Q}_{xx} = -i\frac{\pi}{\lambda_0 R} - \frac{1}{w^2} \qquad ; \qquad \tilde{Q}_{tt} = -i\beta + \frac{1}{(\alpha 2\tau)^2} \tag{2.14}$$

avec λ_0 la longueur d'onde centrale, R le rayon de courbure du front d'onde, $2w$ le diamètre spatial à $1/e^2$, β le chirp temporel, 2τ la largeur temporelle à mi-hauteur et $\alpha = 0,5\sqrt{2/ln(2)}$ le facteur de conversion entre pleine largeur à mi-hauteur et demie largeur à $1/e^2$ d'une gaussienne.

La relation de transfert ci-dessous, analogue à l'équation 2.6 mais sous format matriciel, détermine le paramètre complexe du faisceau après propagation à travers un système optique.

$$Q_{sortie} = \frac{\begin{bmatrix} A & 0 \\ G & 1 \end{bmatrix} Q_{entrée} + \begin{bmatrix} B & E/\lambda_0 \\ H & I/\lambda_0 \end{bmatrix}}{\begin{bmatrix} C & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} Q_{entrée} + \begin{bmatrix} D & F/\lambda_0 \\ 0 & 1/\lambda_0 \end{bmatrix}} \tag{2.15}$$

Pour éviter toute confusion suite à une erreur constatée dans la littérature (équation $n^o 5$ de la référence [55]), on précisera que la modélisation sera réalisée avec l'expression suivante de Q en fonction de $\tilde{Q}$, obtenue par inversion de l'équation 2.12 :

$$Q = \left(i\frac{\lambda_0}{\pi}\begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} & \tilde{Q}_{xt} \\ -\tilde{Q}_{xt} & \tilde{Q}_{tt} \end{bmatrix}\right)^{-1} = -i\frac{\pi}{\lambda_0}\begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} & \tilde{Q}_{xt} \\ -\tilde{Q}_{xt} & \tilde{Q}_{tt} \end{bmatrix}^{-1} \tag{2.16}$$

2.1.2 Validation du code

A partir du formalisme décrit dans les paragraphes précédents, une modélisation numérique a été programmée en langage Python. Ce code a été validé dans un premier temps sur une propagation en espace libre puis dans un compresseur à réseaux. Dans chaque cas, l'impulsion incidente a été initialisée avec un diamètre $2w = 1\ mm$ à $1/e^2$, un front d'onde plan (soit $1/R = 0$), une longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800\ nm$, une durée d'impulsion $2\tau = 50\ fs$ à mi-hauteur sans dispersion temporelle (soit $\beta = 0$), une inclinaison de front d'onde nulle (soit $\tilde{Q}_{xt} = 0$) et un facteur de qualité $M^2 = 1$.

Dans un premier temps, considérons un système optique constitué d'une couche d'air de longueur L et d'indice $n = 1$, défini par la matrice de Kostenbauder suivante :

$$K_{air} = \begin{bmatrix} 1 & L & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{2.17}$$

A partir de $Q_{entrée}$ et K_{air}, l'équation 2.15 fournit directement la valeur de Q_{sortie} après propagation dans le système optique. Le diamètre du faisceau peut ensuite être caractérisé de deux manières : soit par sa dimension locale (profil d'intensité pour $\nu = \nu_0$) soit par sa dimension globale (intensité intégrée sur tout le spectre) définies respectivement par :

$$w_{local}(\nu = \nu_0) = \frac{1}{\sqrt{|R^R_{xx}|}} \qquad ; \qquad w_{global} = \sqrt{\left|\frac{\tilde{Q}^R_{tt}}{(\tilde{Q}^R_{xt})^2 + \tilde{Q}^R_{xx}\,\tilde{Q}^R_{tt}}\right|} \tag{2.18}$$

avec $R_{xx} = \tilde{Q}_{xx} + \dfrac{\tilde{Q}^2_{xt}}{\tilde{Q}_{tt}}$ (cf annexe A) et $\mathcal{C}^R$ la partie réelle du nombre complexe $\mathcal{C}$.

En cas d'absence d'inclinaison de front d'impulsion ($\tilde{Q}_{xt} = 0$), les formules précédentes impliquent que les dimensions locales et globales sont rigoureusement identiques. La simulation retrouve avec succès cette égalité et la figure 2.1 montre la concordance parfaite entre la divergence du faisceau obtenue avec la modélisation Kostenbauder et celle calculée à partir de la formule analytique suivante :

$$w(z) = w_0\sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \qquad ; \qquad z_0 = \frac{\pi w_0^2}{M^2\lambda_0} \tag{2.19}$$

avec $2w_0$ le diamètre du faisceau à $1/e^2$ au waist, z la distance de propagation, λ_0 la longueur d'onde centrale et M^2 le facteur de qualité.

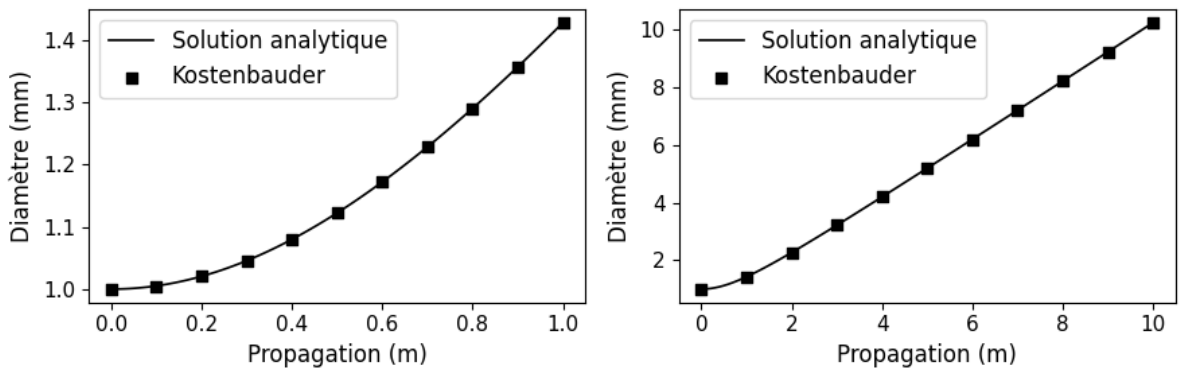


Figure 2.1 : Simulation de propagation d'un faisceau gaussien dans l'air en résolution analytique (lignes noires) et avec le formalisme de Kostenbauder (carrés noirs).

Considérons maintenant le même faisceau traversant un étireur à deux réseaux parallèles de densité $1/d = 1000\ traits/mm$ utilisés à l'ordre $m = -1$ à incidence $70°$ et séparés par une distance normale $L_\perp$. Pour un aller-retour dans l'étireur, la matrice du système optique s'exprime par :

$$K_{étireur} = K_{réseau1} \cdot K_{air} \cdot K_{réseau2} \cdot K_{miroir} \cdot K_{réseau2} \cdot K_{air} \cdot K_{réseau1} \tag{2.20}$$

avec :

$$K_{réseau} = \begin{bmatrix} -\dfrac{sin(\beta)}{sin(\alpha)} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\dfrac{sin(\alpha)}{sin(\beta)} & 0 & \dfrac{cos(\beta) - cos(\alpha)}{\nu_0\, sin(\beta)} \\ \dfrac{cos(\alpha) - cos(\beta)}{c\, sin(\alpha)} & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \ ;\ K_{miroir} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{2.21}$$

où α et β sont respectivement les angles incident et diffracté par le réseau et ν_0 la fréquence centrale de l'impulsion. Bien qu'incluse dans la modélisation, la matrice de propagation entre le second réseau et le miroir de renvoi est ici masquée pour alléger l'expression de $K_{étireur}$.

En optique matricielle, le plan de référence est toujours orthogonal à la direction de propagation du rayon de référence ($x = 0,\ \theta = 0,\ t = 0,\ \nu = 0$). Par conséquent, la matrice K_{air} ne réfère pas à la distance normale $L_\perp$ entre les réseaux mais à la distance réelle $L_\perp/cos(\beta)$ parcourue par le faisceau. De plus, l'angle β utilisé pour définir $K_{réseau}$ ne possède qu'une seule valeur calculée à partir du rayon de référence, les longueurs d'onde extrêmes du spectre sont donc moins bien modélisées que la longueur d'onde centrale. Cette limitation est illustrée sur la figure 2.2 par un tracé de rayons (obtenu à partir de l'équation 2.8) dans l'étireur à réseaux décrit précédemment. Pour une impulsion incidente de $20\ fs$ à $800\ nm$ ($\Delta\lambda \approx 47\ nm$), les rayons épousent la surface plane du second réseau (panneau *b*), alors que pour une impulsion de $3\ fs$ ($\delta\lambda \approx 300\ nm$) les longueurs d'onde extrêmes forment une courbure qui s'écarte progressivement de la surface réelle du réseau (panneau *d*). Pour notre application, à savoir

la modélisation d'une ligne d'imagerie $4f$ à faible dispersion traversée par des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes, cette erreur d'approximation sera considérée comme négligeable.

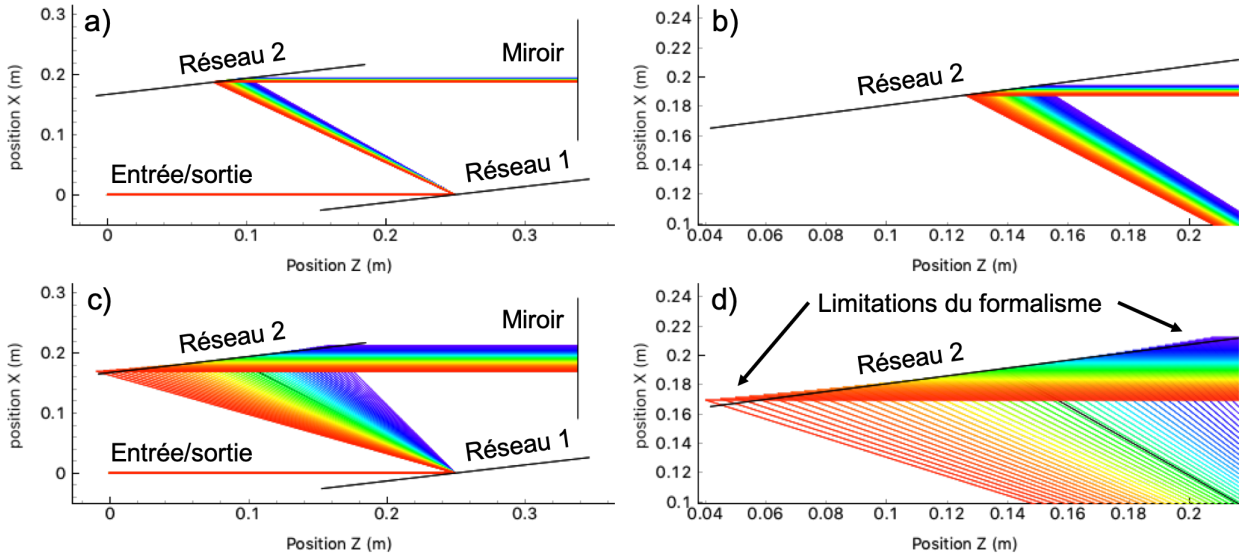


Figure 2.2 : Tracé de rayons avec le formalisme de Kostenbauder dans un étireur à réseaux, pour des impulsions incidentes de a) 20 fs et c) 3,0 fs. Les images b) et d) correspondent aux grossissements respectifs de a) et c) sur le second réseau.

A l'instar du diamètre spatial défini dans l'équation 2.18, la durée d'impulsion possède deux interprétations locale et globale, égales en l'absence d'inclinaison de front d'impulsion :

$$2\tau_{local}(x = x_0) = \frac{1}{\alpha}\frac{1}{\sqrt{\left|\tilde{Q}^R_{tt}\right|}} \quad ; \quad 2\tau_{global} = \frac{1}{\alpha}\sqrt{\left|\frac{\tilde{Q}^R_{xx}}{(\tilde{Q}^R_{xt})^2 + \tilde{Q}^R_{xx}\,\tilde{Q}^R_{tt}}\right|} \tag{2.22}$$

avec $\alpha = 0,5\sqrt{2/ln(2)}$ le facteur de conversion entre pleine largeur à mi-hauteur et demie largeur à $1/e^2$ d'une gaussienne.

Après un aller-retour dans l'étireur, la modélisation retourne comme attendu une durée d'impulsion étirée $\tau_{local} = \tau_{global}$ et la figure 2.3 confirme l'adéquation entre la dispersion simulée avec le formalisme de Kostenbauder et la solution analytique décrite par :

$$\phi^{(2)} = -\frac{m^2\,\lambda_0^3\,L_\perp}{\pi\,c^2\,d^2}\left[1 - \left(-\frac{m\,\lambda_0}{d} - sin(\alpha)\right)^2\right]^{-3/2} \tag{2.23}$$

$$\tau_{sortie} = \tau_{entrée}\sqrt{1 + \left(\frac{4\,ln(2)\,\phi^{(2)}}{\tau^2_{entrée}}\right)^2} \tag{2.24}$$

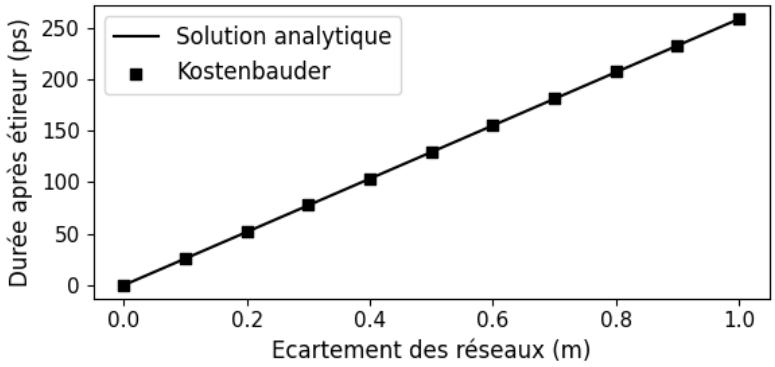


Figure 2.3 : Simulation d'étirement dans un compresseur à réseaux en résolution analytique (ligne noire) et avec le formalisme Kostenbauder (carrés noirs).

Ces résultats valident le fonctionnement du code pour la propagation spatio-temporelle d'une impulsion dans un système optique dispersif. On précisera que seule la phase quadratique est prise en compte par le modèle de Kostenbauder. La prochaine section sera dédiée à la modélisation de l'architecture $4f$ d'un FOPA.

2.1.3 Modélisation d'une ligne 4f

Expérimentalement, l'imagerie du FOPA a été réalisée avec des lentilles cylindriques pour permettre un pompage à une dizaine de millijoules. Le code de simulation intègre quand à lui des miroirs sphériques, ce qui ne représente pas un problème car la focalisation du faisceau dans le plan non dispersé n'a pas d'impact sur les propriétés temporelles du faisceau. Dans le formalisme de Kostenbauder, une optique convergente sphérique est définie par :

$$K_f = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ -1/f & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{2.25}$$

avec f la distance focale de l'optique.

En décomposant le FOPA en deux lignes $2f$ symétriques, le système optique se caractérise par les matrices de Kostenbauder suivantes :

$$\begin{cases} K_{FOPA} = K_2 \,.\, K_1 \\ K_1 = K_{air\ (f)} \,.\, K_f \,.\, K_{air\ (f)} \,.\, K_{réseau1} \\ K_2 = K_{réseau2} \,.\, K_{air\ (f)} \,.\, K_f \,.\, K_{air\ (f)} \end{cases} \tag{2.26}$$

Concrètement, la matrice K_1 permet de calculer la propagation d'une impulsion entre l'entrée et le plan de Fourier du FOPA. Si aucune opération n'est effectuée sur le faisceau dans le plan de Fourier, alors le système optique se comporte comme une ligne à dispersion nulle,

caractérisée par une matrice de Kostenbauder égale à la matrice identité :

$$K_{FOPA} = K_2 \,.\, K_1 = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{2.27}$$

La figure 2.4 illustre par un tracé de rayons le résultat de la modélisation du FOPA pour un spectre incident de $450\ nm$ à mi-hauteur centré à $1,8\ \mu m$. Les réseaux de $75\ traits/mm$ sont orientés à un angle de 5° et les miroirs sphériques de distances focales $f = 750\ mm$ sont placés en configuration $4f$. À partir du paramètre matriciel complexe Q, le code permet la reconstruction du champ électrique et la quantification des distorsions dans le domaine spatio-temporel (x, t). Les domaines fréquentiels (k, ν), (k, t) et (x, ν), utiles selon la distorsion spatio-temporelle étudiée, peuvent quant à eux s'obtenir par transformation de Fourier. Les formules de changement de domaine et la définition mathématique des propriétés spatio-temporelles basiques sont données dans l'annexe A.

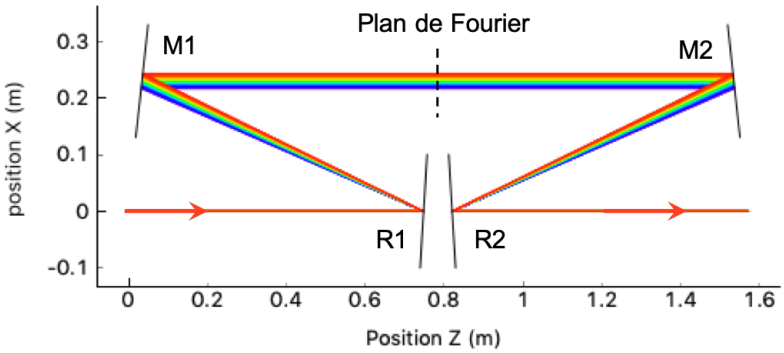


Figure 2.4 : Simulation de propagation d'une impulsion centrée à 1800 nm et de largeur spectrale 450 nm dans une ligne 4f, avec R1/R2 des réseaux 75 traits/mm et M1/M2 des miroirs sphériques de focales 750 mm.

Bien que cette fonctionnalité n'ait pas été implémentée dans le code, on mentionnera l'existence d'un modèle mathématique dédié au traitement matriciel de la propagation d'impulsions non gaussiennes [56]. Pour notre application, cette extension du formalisme de Kostenbauder pourrait s'avérer utile afin de quantifier des phénomènes tels que l'impact d'un profil de gain inhomogène (dans le plan de Fourier) sur le profil spatio-temporel des impulsions en sortie de FOPA.

2.2 Description de la source MIR

2.2.1 Vue d'ensemble

Généralement, les cristaux non centro-symétriques transparents dans l'infrarouge proche sont opaques au-delà de $3\ \mu m$ et les cristaux transparents dans l'infrarouge moyen absorbent en-dessous de $2\ \mu m$. La conversion en fréquence d'un laser infrarouge proche (par exemple Titane:saphir ou Ytterbium) vers l'infrarouge moyen (MIR) n'est donc pas réalisable de façon directe et nécessite l'utilisation d'au moins deux types de cristaux, avec une étape intermédiaire dans la plage de recouvrement des transparences aux alentours de $2\ \mu m$. Lors de la mise en série d'étages non linéaires, la perte d'énergie à chaque conversion de fréquences constitue une limitation majeure à l'efficacité de conversion globale et donc à l'obtention d'impulsions énergétiques dans l'infrarouge moyen. Cette problématique explique, entre autres, l'intérêt croissant des lasers à $2\ \mu m$ pour le pompage d'amplificateurs paramétriques optiques [15; 16; 17].

Depuis 2017, l'INRS développe une architecture optique originale qui tire profit de la conversion en deux étapes pour réaliser une mise en forme (en phase et en amplitude) des impulsions durant l'étape intermédiaire à $1,8\ \mu m$ à l'aide d'un amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA). Conçue pour piloter des processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) en milieu solide (cf sections 1.4 et 2.3), la source se distingue par une accordabilité très étendue dans une plage encore peu couverte de l'infrarouge moyen et un contrôle de la phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique (CEP). Afin de visualiser clairement la contribution de ce travail à l'état de l'art, la figure 2.5 regroupe, à notre connaissance, l'ensemble des réalisations de sources laser intenses au-delà de $4\ \mu m$ [15; 57; 58; 59; 60; 61; 62; 63; 64; 65; 66; 67].

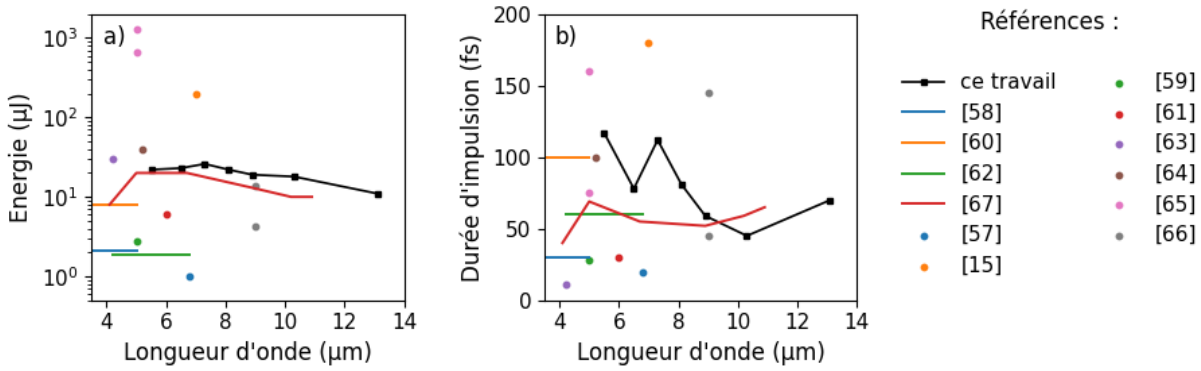


Figure 2.5 : Etat de l'art des sources lasers femtosecondes d'énergie supérieure à 1 microjoule dans l'infrarouge moyen. Les lignes font référence aux sources accordables.

La figure 2.6 présente l'architecture optique globale de la source MIR développée durant la thèse. Le pilote est une chaîne laser Titane:Saphir CPA (amplificateur à dérive de fréquences [14]) délivrant des impulsions de $45\ fs$ à un taux de répétition de $100\ Hz$, avec une émission centrée à $792\ nm$ pour une largeur spectrale de $\sim 20\ nm$ à mi-hauteur. Après étire-

ment et amplification, la majeure partie de l'énergie est compressée à une durée picoseconde avant d'être divisée en deux faisceaux de $15\ mJ$ destinés à pomper un FOPA. Le reste de l'énergie est compressé à $45\ fs$ avant d'être converti à $1800\ nm$ dans un OPA commercial (LightConversion, TOPAS) constitué d'un étage de génération de continuum et de trois étages d'OPA en série. Ce spectre est ensuite élargi à $\sim 400\ nm$ par auto-modulation de phase dans une fibre à cœur creux (HCF) [68] remplie avec $1,7\ bar$ de Krypton, avant d'être injecté dans un FOPA pour subir une mise en forme d'amplitude et de phase. En sortie, deux impulsions émergent du FOPA et sont couplées dans un cristal non linéaire pour générer une impulsion MIR par différence de fréquences (DFG).

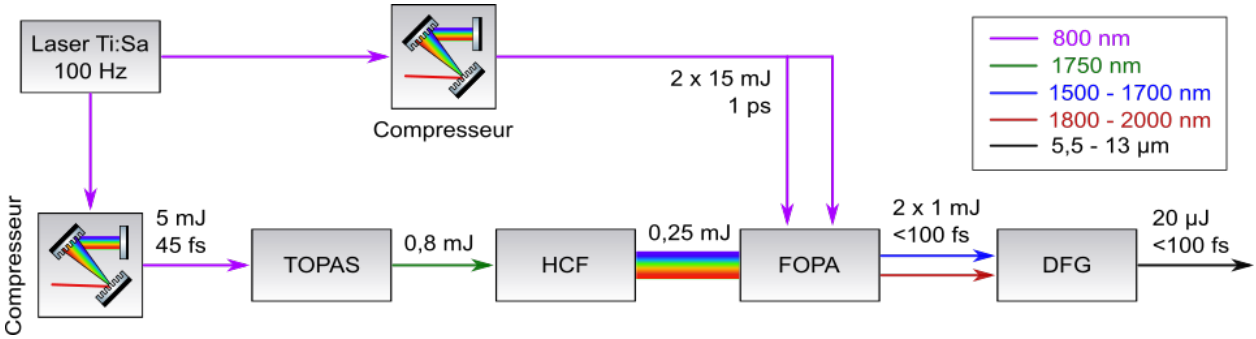


Figure 2.6 : Architecture de la source MIR avec un laser Titane:Saphir (Ti:Sa), un amplificateur paramétrique optique industriel TOPAS, une fibre à cœur creux (HCF), un amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) et un étage d'amplification paramétrique optique utilisé pour générer un idler par différence de fréquences (DFG).

2.2.2 Mise en forme du signal avant le FOPA

Dans cette architecture, la source laser Titane:Saphir produit à la fois la pompe et le signal du FOPA. On s'intéressera dans un premier temps à la mise en forme du faisceau signal, détaillée sur la figure 2.7. Tout d'abord, les impulsions de $5\ mJ$ à $800\ nm$ sont raccourcies à $45\ fs$ dans un compresseur à réseau pour maximiser l'intensité-crête avant les étages non linéaires. La longueur d'onde est ensuite convertie à $\sim 1,8\ \mu m$ par un TOPAS, à l'intérieur duquel le faisceau est divisé en quatre parties par division d'amplitude : la première génère un continuum dans un cristal de saphir et les trois autres servent de pompe pour trois étages d'amplification paramétrique optique. En sortie de TOPAS, le profil spatial du faisceau est filtré pour améliorer l'injection dans la fibre (efficacité, stabilité, répétabilité). Au détriment d'une perte d'énergie d'environ 20%, les défauts sont éliminés sous vide primaire par un trou circulaire situé au foyer d'un afocal convergent. Une fois filtré, le faisceau est finalement injecté dans une fibre à cœur creux (HCF), fabriquée par l'entreprise Few-Cycle, de diamètre interne $1\ mm$ et de longueur $2,7\ m$. Dans ce type de guide où le diamètre interne est très grand devant la longueur d'onde, la littérature montre qu'il existe des modes hybrides se propageant avec des efficacités de transmission supérieures à 50% [69; 70; 71]. L'injection est ici réalisée par deux miroirs sphériques de focales respectives $f1 = +2000\ mm$ et $f2 = -2000\ mm$ formant un télescope de focale globale $f = +3800\ mm$ [71].

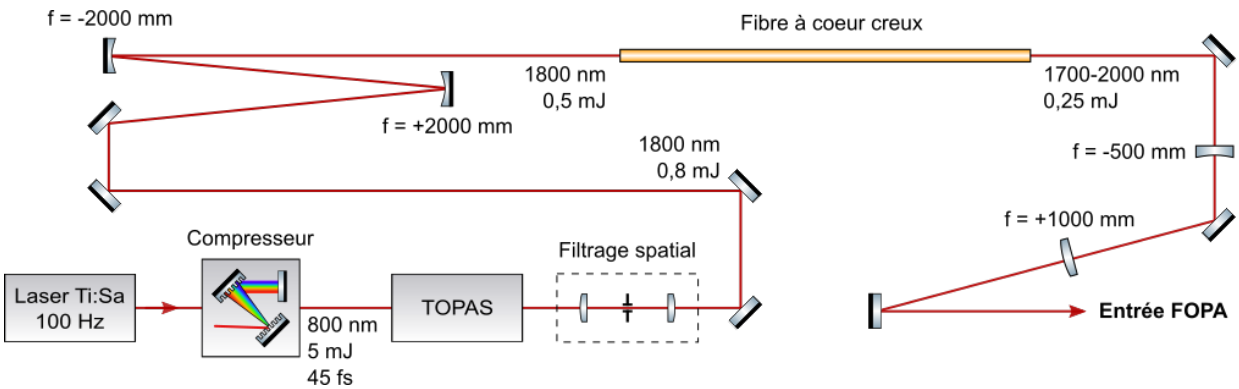


Figure 2.7 : Mise en forme du signal avant injection dans le FOPA. Le laser Ti:Sa est converti à 1,8 μm, filtré spatialement, élargi spectralement dans une fibre à cœur creux remplie au Krypton, puis collimaté à un diamètre de 7 mm.

La fibre à cœur creux est remplie avec $1,7\ bar$ de Krypton, sans circulation ni renouvellement du gaz. Le montage peut ainsi fonctionner en statique pendant 4 à 5 jours, durée à partir de laquelle la perte de gaz devient préjudiciable pour les performances optiques. Expérimentalement, une maintenance hebdomadaire du niveau de pression dans la fibre s'est avérée suffisante pour assurer un fonctionnement stable et répétable sur des périodes de 6 à 8 semaines (durée des campagnes expérimentales menées au laboratoire ALLS).

En se propageant à travers le gaz contenu dans la fibre à cœur creux, les impulsions subissent un élargissement spectral [70; 71] par automodulation de phase (SPM). Ce phénomène tire son origine de l'effet Kerr optique, décrit par l'équation de Schrödinger non linéaire :

$$\frac{\partial \mathcal{A}(z,t)}{\partial z} = -i\,\frac{k_o''}{2}\,\frac{\partial^2 \mathcal{A}(z,t)}{\partial t^2} + \frac{k_o'''}{6}\,\frac{\partial^3 \mathcal{A}(z,t)}{\partial t^3} + i\,\gamma\,|\mathcal{A}(z,t)|^2 \mathcal{A}(z,t) \tag{2.28}$$

avec $A(z,t)$ l'enveloppe du champ électrique, z la distance de propagation, t le temps, k_0'' la dispersion de vitesse de groupe, k_0''' la dispersion au troisième ordre et γ le coefficient de non linéarité Kerr.

Cette équation différentielle, qui décrit l'évolution du champ complexe au cours de la propagation, possède une composante linéaire liée à la dispersion (termes en k_0'' et k_0''') et une partie non linéaire qui résulte de l'effet Kerr optique (terme en γ). En considérant une dispersion négligeable, il est possible de montrer que l'enveloppe du champ électrique n'est pas modifiée lors de la propagation, soit $|\mathcal{A}(z,t)|^2 = |\mathcal{A}(0,t)|^2$. Dans ces conditions, l'équation de Schrödinger non-linéaire admet la solution analytique suivante :

$$\mathcal{A}(z,t) = \mathcal{A}(0,t)\,exp\left[i\,\gamma\,|\mathcal{A}(0,t)|^2\,z\right] \tag{2.29}$$

La phase temporelle du champ électrique est alors donnée par :

$$\phi(z,t) = k_0\,z - \omega_0\,t + \gamma\,|\mathcal{E}(0,t)|^2\,z = k_0\,z - \omega_0\,t + \phi_{NL}(z,t) \tag{2.30}$$

avec $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ le nombre d'onde, $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ la pulsation centrale et $\phi_{NL}(z,t)$ un terme de phase non-linéaire.

Il est d'usage de quantifier la phase non-linéaire accumulée au cours de la propagation par une quantité nommée intégrale $\mathcal{B}$ et définie par :

$$\mathcal{B}(L) = \int_0^L \gamma \, |\mathcal{E}(t_0)|^2 \, dz = \frac{2\,\pi}{\lambda_0} \, n_2 \, I(t_0) \, L \tag{2.31}$$

avec λ_0 la longueur d'onde centrale, t_0 l'instant où l'intensité de l'impulsion est maximale, n_2 l'indice non linéaire du matériau traversé et $I(t)$ l'intensité temporelle de l'impulsion.

La fréquence instantanée étant définie comme la dérivée de la phase temporelle (voir équation 2.32), l'introduction d'une phase non linéaire $\phi_{NL}(z,t)$ par effet Kerr a pour conséquence la création de nouvelles fréquences sur les fronts montant et descendant de l'impulsion laser. C'est ce phénomène qui est exploité dans la fibre à cœur creux pour élargir le spectre centré à $1,8\ \mu m$ au cours de la propagation dans le Krypton.

$$\Omega(t) = -\frac{\partial\,\phi(t)}{\partial\,t} = -\frac{\partial\,\left[-\omega_0\,t + \phi_{NL}(t)\right]}{\partial\,t} = \omega_0 - \frac{\partial\,\phi_{NL}(t)}{\partial\,t} \tag{2.32}$$

La figure 2.8 montre les spectres expérimentaux collectés en entrée et en sortie de fibre à cœur creux (panneau *b*), avec l'obtention d'une largeur spectrale d'environ $400\ nm$ à mi-hauteur dans les conditions expérimentales décrites précédemment. Le spectre du laser Ti:Sa à $800\ nm$ est quand à lui visible sur le panneau *a*.

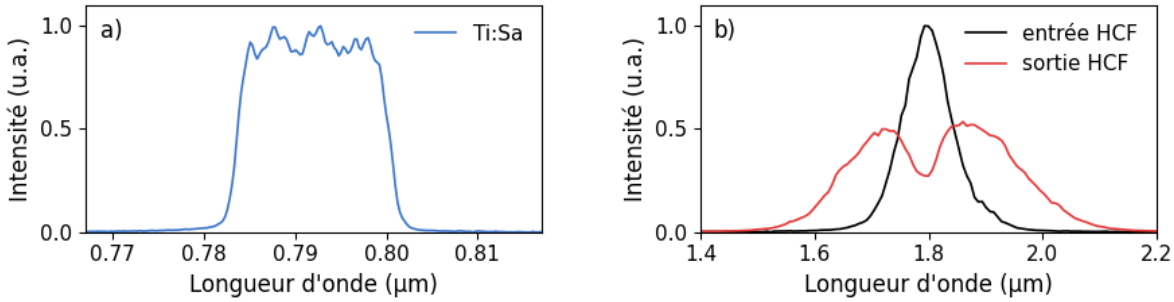


Figure 2.8 : a) Spectre de la source Titane:Saphir avant conversion dans le TOPAS et b) élargissement spectral dans la fibre à cœur creux remplie avec 1,7 bar de Krypton.

Pour confronter ces résultats expérimentaux aux attentes théoriques, une simulation de propagation Kerr a été réalisée. Contrairement au cas décrit précédemment, la dispersion induite par propagation sur plusieurs mètres dans du Krypton à pression quasi-atmosphérique n'est pas négligeable devant l'effet Kerr optique, la résolution de l'équation différentielle 2.28 devient alors plus complexe en l'absence de solution analytique. Pour ramener le problème à une résolution analytique, une méthode de pas fractionné a été implémentée pour diviser la propagation en sections suffisamment courtes pour que la dispersion y soit négligeable devant l'effet Kerr. La contribution de ces deux paramètres a ainsi pu être calculée individuellement pour chaque section élémentaire.

Le calcul de la phase non linéaire ayant déjà été traité plus haut, on s'intéressera ici au résultat d'une dispersion d'ordre 2 ($k_0''' << k_0''$) en l'absence de non linéarité. Dans ces conditions,

l'équation de Schrödinger non linéaire 2.28 se simplifie par :

$$\frac{\partial \mathcal{A}(z,t)}{\partial z} = -\frac{k_o''}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{A}(z,t)}{\partial t^2} \tag{2.33}$$

La résolution de cette équation montre que la dispersion d'ordre 2 correspond à l'ajout d'une phase spectrale quadratique sur l'impulsion laser :

$$\varphi(\omega) = -\frac{k_0''\, z}{2}\,\omega^2 \tag{2.34}$$

Avec la méthode du pas fractionné, les équations 2.30 et 2.34 permettent de simuler la propagation Kerr optique en milieu dispersif. La modélisation nécessite cependant la connaissance de l'indice non linéaire n_2 et de la dispersion de vitesse de groupe k_0'' dans le Krypton, deux paramètres qui dépendent à la fois de la pression du gaz et de la longueur d'onde du laser. À notre connaissance, l'indice non-linéaire du Krypton à $1800\ nm$ n'est pas référencé dans la littérature et sera donc estimé à partir des données connues à d'autres longueurs d'onde et dans d'autres gaz. À $800\ nm$ et à pression atmosphérique, la référence [70] donne une valeur d'indice non-linéaire $n_2 = 2,78 \times 10^{-23}\ m^2/W$ pour le Krypton. Pour déterminer cet indice à $1800\ nm$, on considèrera le même rapport que dans l'Argon [72], soit $n_{2\ (1800\ nm)}/n_{2\ (800\ nm)} = 0,59$. L'indice non-linéaire augmentant linéairement avec la pression [73; 74], il est finalement possible d'établir l'expression suivante pour l'indice non-linéaire du Krypton dans nos conditions expérimentales :

$$n_{2\ (1800\,nm\,,\,p)} = 0,59\,\frac{p}{p_0}\,n_{2\ (800\,nm\,,\,p_0)} = 2,76 \times 10^{-23}\ m^2/W \tag{2.35}$$

avec $p = 1,7\ bar$ la pression de Krypton dans la fibre à cœur creux et $p_0 = 1,01325\ bar$ la pression atmosphérique.

La dispersion de vitesse de groupe est quant à elle donnée par la dérivée seconde de l'indice de réfraction par rapport à la fréquence optique :

$$k_0''(\omega_0) = \left.\frac{\partial^2\, k(\omega)}{\partial\, \omega^2}\right|_{\omega_0} = \frac{1}{c}\left.\frac{\partial^2\,[n(\omega)\,\omega]}{\partial\, \omega^2}\right|_{\omega_0} \tag{2.36}$$

avec $k(\omega)$ le nombre d'onde, $n(\omega)$ l'indice de réfraction, ω la fréquence angulaire, ω_0 la fréquence centrale et $c = 3 \times 10^8\ m.s^{-1}$ la vitesse de la lumière dans le vide.

A ce jour, plusieurs travaux proposent des formules pour calculer l'indice de réfraction du Krypton [75; 76; 77]. Dans notre cas, on retiendra la description la plus récente [77], validée expérimentalement entre $400\ nm$ et $1000\ nm$. À notre connaissance, il n'existe pas de formule validée à plus haute longueur d'onde.

$$n = \sqrt{1 + \frac{p}{p_0}\,\frac{T_0}{T}\left(\frac{26102,88 \times 10^{-8}\,\lambda^2}{\lambda^2 - 2,01 \times 10^{-6}} + \frac{56946,82 \times 10^{-8}\,\lambda^2}{\lambda^2 - 10,043 \times 10^{-3}}\right)} = 1.00065030 \tag{2.37}$$

pour $\lambda = 1800\ nm$, $p = 1,7\ bar$, $p_0 = 1,01325\ bar$, $T = 293\ K$ et $T_0 = 273\ K$.

A partir de cette valeur d'indice de réfraction, la dérivée seconde de $k(\omega)$ par l'équation 2.36 donne une dispersion de vitesse de groupe $k''_{0\,(1800\ nm)} = 0,02661 \times 10^{-27}\ s/m$.

Le résultat de simulation de propagation Kerr optique dans la fibre à cœur creux remplie au Krypton est présenté sur la figure 2.9. L'impulsion incidente a été construite à partir d'un spectre expérimental (en noir) mesuré en entrée de fibre auquel une dispersion négative de $200\ fs^2$ a été ajoutée pour tenir compte de la propagation dans les optiques du TOPAS. En sortie de fibre, le spectre simulé (en rouge) reproduit fidèlement le résultat expérimental (en bleu), avec un faible élargissement de la durée d'impulsion par dispersion dans le Krypton.

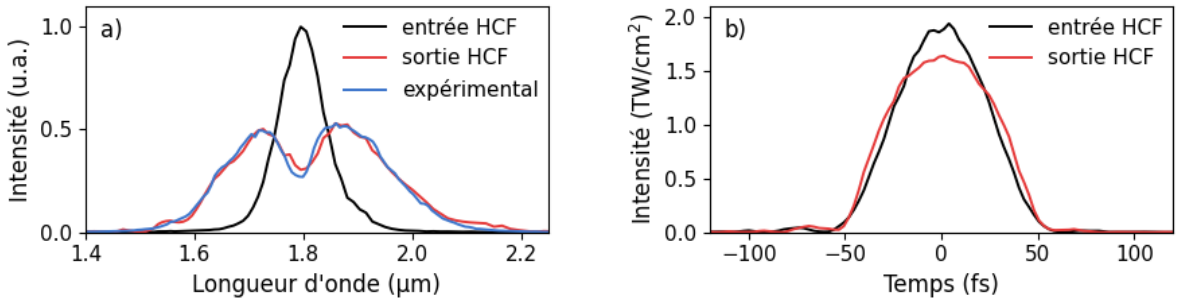


Figure 2.9 : Simulation de propagation Kerr optique dans une fibre à cœur creux remplie au Krypton dans le domaine a) spectral et b) temporel.

Paramètre	Valeur	Unité
indice non linéaire (Krypton)	$2,76 \times 10^{-23}$	m^2/W
dispersion de vitesse de groupe (Krypton)	$0,02661 \times 10^{-27}$	s/m
Longueur de la fibre	$2,7$	m
Diamètre du faisceau	$0,75$	mm
Energie par impulsion	$0,5$	mJ
Dispersion initiale	-200	fs^2

Tableau 2.1 : Valeurs des paramètres utilisés pour la simulation de la figure 2.9 dans du Krypton à 1,7 bar.

Le tableau 2.1 fournit la liste des paramètres utilisés dans la simulation de la figure 2.9. Le diamètre du faisceau a été fixé en fonction de la dimension théorique de l'imagerie d'injection [71] et l'évolution du mode spatial n'a pas été implémentée dans le code. Les pertes d'injection et de propagation ne sont pas non plus considérées, laissant supposer une sous-estimation de l'indice non linéaire du Krypton. Au vu des résultats, la simulation semble toutefois suffisamment fiable pour reproduire les résultats expérimentaux.

Dans la pratique, le point de fonctionnement de la fibre à cœur creux n'est pas parfaitement stable. Typiquement, la fluctuation d'énergie des impulsions à $1,8\ \mu m$ en entrée de fibre a été mesurée à $1,5\ \%$ RMS (écart quadratique moyen) et la pression de Krypton dans la fibre varie de $1,7\ bar$ à $1,6\ bar$ entre chaque maintenance hebdomadaire. La figure 2.10 quantifie la robustesse de l'étage non linéaire pour une variation d'énergie du laser de $\pm 10\ \%$ (panneau *a*) et une variation de $\pm 0,1\ bar$ sur la pression du gaz (panneau *b*). Ces résultats permettent de

considérer que le spectre injecté dans le FOPA à $1,8\ \mu m$ est plutôt stable dans nos conditions expérimentales, aussi bien à l'échelle tir à tir qu'à long terme.

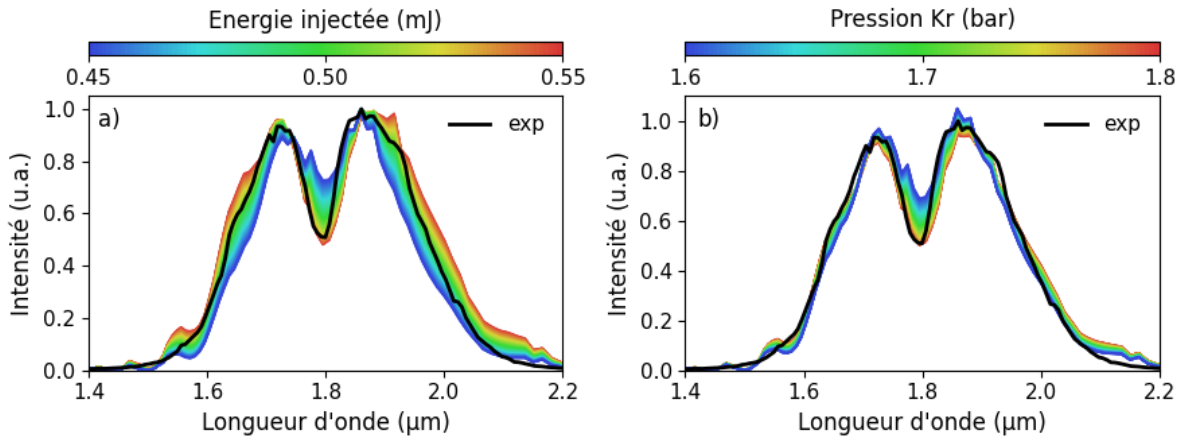
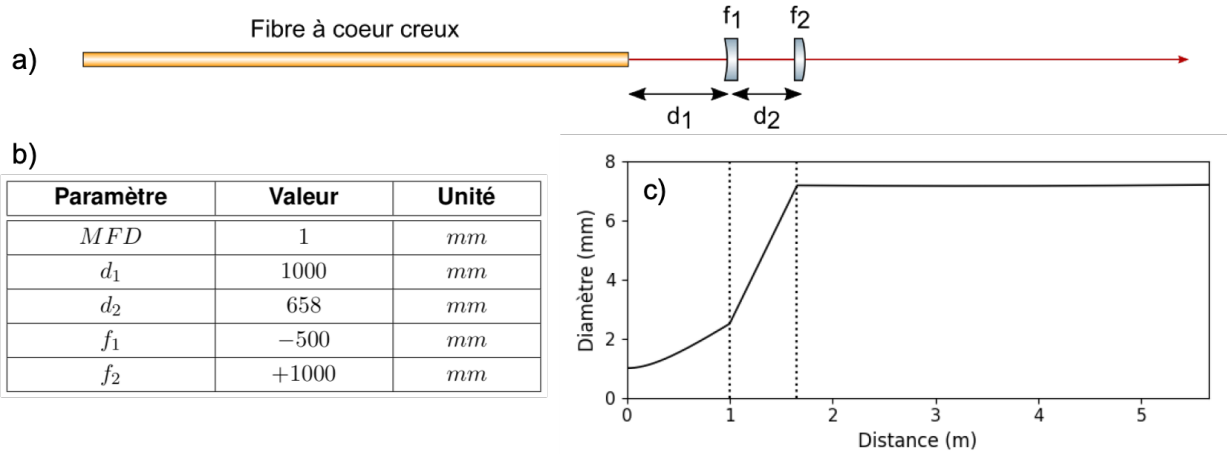


Figure 2.10 : Simulation de propagation Kerr optique dans la fibre à cœur creux avec une variation a) de l'énergie injectée et b) de la pression de Krypton dans la fibre. Le spectre expérimental est indiqué en noir.

En sortie de fibre à cœur creux, le profil spatial est mis en forme par deux lentilles sphériques de focales $f = -500\ mm$ et $f = +1000\ mm$ afin d'obtenir un faisceau collimaté à un diamètre théorique de $7\ mm$. La figure 2.11 montre un schéma du montage (panneau *a*) avec une simulation de la propagation (panneau *c*), obtenue à partir du modèle Kostenbauder développé dans la section 2.1. Les valeurs des différents paramètres sont donnés dans le tableau du panneau *b* de la figure. En l'absence de simulation de guidage dans la fibre à cœur creux, le diamètre modal (MFD) a été considéré comme égal au diamètre de la fibre, soit $1\ mm$.



Paramètre	Valeur	Unité
MFD	1	mm
d_1	1000	mm
d_2	658	mm
f_1	-500	mm
f_2	$+1000$	mm

Figure 2.11 : a) Schéma de collimation du faisceau en sortie de fibre à cœur creux, b) dimensionnement des paramètres et c) simulation de propagation jusqu'à l'entrée du FOPA.

2.2.3 Mise en forme du signal à l'intérieur du FOPA

Après un élargissement spectral dans la fibre à cœur creux et une collimation à un diamètre de $7\ mm$, le signal est injecté dans un FOPA dont l'architecture optique est illustrée sur la figure 2.12. La ligne d'imagerie est composée de deux couples "réseau-lentille" symétriques de densité $75\ traits/mm$ et de focale $750\ mm$ positionnés en configuration $4f$ (cf section 1.3). Les lentilles sont cylindriques, de sorte que le faisceau n'est focalisé que dans l'axe de dispersion des réseaux. Dans le plan de Fourier, une amplification paramétrique optique est réalisée dans deux cristaux de bêta-borate de baryum (BBO) d'épaisseur $5\ mm$ placés côte à côte. Les fréquences optiques étant dispersées linéairement dans le plan de Fourier, chaque cristal reçoit une moitié du spectre incident. Pour simplifier l'écriture, on nommera S^+ la portion de spectre contenant les hautes longueurs d'onde et S^- les basses longueurs d'onde. Juste après les cristaux, une rotation de polarisation de 90° est appliquée sur le spectre S^- par une lame demi-onde. La traversée de cette dernière engendre aussi un délai de groupe de l'ordre de quelques picosecondes, compensé sur le spectre S^+ par une paire de fenêtres en silice orientées à 44° d'incidence.

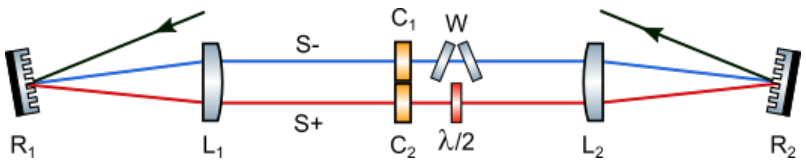


Figure 2.12 : Architecture optique de l'amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) avec R_1 et R_2 les réseaux d'entrée et sortie, L_1 et L_2 des lentilles cylindriques, S+ et S- les moitiés hautes et basses longueurs d'onde du spectre incident, C_1 et C_2 des cristaux non linéaires en BBO, W une paire de fenêtres en silice et $\lambda/2$ une lame demi-onde.

L'une des deux fenêtres étant montée sur une platine de rotation, un réglage fin est autorisé sur le délai de groupe de l'impulsion formée par le spectre S^+. Ce degré de liberté permet d'une part de superposer temporellement les impulsions S^+ et S^- à la sortie du FOPA pour optimiser la DFG et, d'autre part, contrôler la phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique de l'idler (cf section 2.2.6). La seconde fenêtre permet de corriger le décalage du faisceau par réfraction dans la première lame, comme illustré sur la figure 2.13. Bien que cette perturbation puisse sembler négligeable devant la dimension globale du faisceau au plan de Fourier, elle occasionne une dispersion angulaire potentiellement délétère à la sortie du FOPA.

Entre l'entrée du FOPA et le plan de Fourier, l'impulsion incidente subit une forte distorsion spatio-temporelle. Tout d'abord, la surface du faisceau est étendue de $7\ mm$ à $39\ mm$ dans l'axe de dispersion des composantes spectrales (on ne tiendra pas compte de l'axe non dispersé pour lequel l'imagerie est neutre). Toutes longueurs d'onde confondues, le faisceau est collimaté par l'imagerie $2f$ mais chaque longueur d'onde est individuellement focalisée dans le plan de Fourier à une taille de $250\ \mu m$. La combinaison entre dispersion et focalisation engendre un rétrécissement du spectre local à $2,5\ nm$ dans le plan de Fourier et donc un allongement de la durée à $1,9\ ps$.

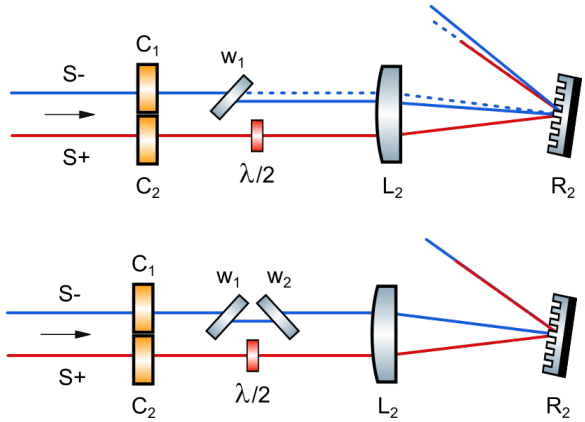


Figure 2.13 : En haut, dispersion angulaire induite par une fenêtre W_1 à incidence non nulle dans le plan de Fourier. En bas, compensation du défaut avec une deuxième fenêtre W_2 d'orientation opposée.

Contrairement aux architectures d'OPCPA [38], le faisceau signal n'est ici pas dispersé temporellement dans le plan de Fourier, mais l'allongement temporel est uniquement lié à la séparation des composantes spectrales. En cumulant le grossissement spatial et l'allongement de la durée d'impulsion, il est possible de réduire fortement l'intensité-crête dans le plan de Fourier d'un FOPA (ici d'un facteur ~ 200), rendant l'architecture très adaptée au pompage par des impulsions picosecondes énergétiques (ici $15\ mJ$) et/ou l'utilisation de cristaux non-linéaires à $\chi^{(2)}$ élevé (seuil de dommage faible). Le tableau 2.2 résume les propriétés spatio-temporelles du signal à l'entrée du FOPA et dans le plan de Fourier, dans nos conditions expérimentales. Les diamètres spatiaux sont définis à $1/e^2$ alors que la durée et le spectre sont définis à mi-hauteur.

Paramètre	**Valeur**				**Unité**
	Entrée FOPA		Plan de Fourier		
	Globale	Locale	Globale	Locale	
$2w_x$	$7,01$	$7,01$	$38,9$	$0,25$	mm
$2w_y$	$7,01$	$7,01$	$7,04$	$7,04$	mm
$\Delta\lambda$	400	400	400	$2,57$	nm
2τ	N/A	N/A	$1,86$	$1,86$	ps

Tableau 2.2 : Propriétés théoriques du signal en entrée de FOPA et dans le plan de Fourier, avec $2w_x$ le diamètre du faisceau sur l'axe non dispersé, $2w_y$ le diamètre sur l'axe dispersé, $\Delta\lambda$ la largeur spectrale et 2τ la durée d'impulsion.

Une fois le signal mis en forme, deux bandes spectrales sont amplifiées dans le plan de Fourier en vue de générer des impulsions MIR par DFG après le FOPA. En posant un objectif de $100\ fs$ pour la durée des impulsions MIR et en supposant une conservation de la durée d'impulsion lors de la DFG, l'équation 2.38 impose l'amplification de bandes d'au moins $50\ nm$ à mi-hauteur dans le FOPA.

$$2\tau \,.\, \Delta\nu = 2\tau \, \frac{\Delta\lambda \,.\, c}{(\lambda_0)^2} = tbp \tag{2.38}$$

avec $tbp = 2ln(2)/\pi$ le produit temps-fréquence d'une distribution d'intensité gaussienne, 2τ la durée d'impulsion à mi-hauteur, $\Delta\nu$ la largeur fréquentielle à mi-hauteur, $\lambda_0 = 1,8\ \mu m$ la longueur d'onde centrale et $\Delta\lambda$ la largeur spectrale à mi-hauteur.

En tenant compte des contraintes expérimentales telles que la présence de phase résiduelle sur le signal du FOPA, la tolérance d'accord de phase de la DFG ou encore la qualité spatio-temporelle de la pompe, le dimensionnement du FOPA visera plutôt l'amplification de bandes spectrales de $70\ nm$, soit une zone de largeur $4,0\ mm$ dans le plan de Fourier. En considérant une distribution gaussienne pour la pompe, une largeur à mi-hauteur de $4,0\ mm$ correspond à un diamètre de $6,8\ mm$ à $1/e^2$. Le signal n'étant pas focalisé dans l'axe non dispersé, le faisceau utile à amplifier dans le plan de Fourier est donc une ellipse de dimension théorique $6,8 \times 7\ mm$ à $1/e^2$, assimilable à un profil rond de diamètre $7\ mm$.

2.2.4 Mise en forme de la pompe

Pour être efficace, l'étage d'amplification paramétrique optique dans le FOPA nécessite un recouvrement temporel entre la pompe et le signal tout au long de la propagation dans les cristaux non linéaires. En régime picoseconde, la dispersion de vitesse de groupe entre la pompe et le signal est négligeable dans $5\ mm$ de BBO, les impulsions doivent donc simplement être synchronisées et posséder des durées équivalentes. Les deux faisceaux étant issus de la même source Ti:Sa, la synchronisation est obtenue par égalisation du chemin optique grâce à des lignes à délai sur le trajet de la pompe. Concernant la durée d'impulsion, le signal est compressé à $45\ fs$ puis étendu à $1,9\ ps$ par l'imagerie du FOPA (voir section précédente 2.2.2). La durée de la pompe est ajustée à une valeur similaire en conservant une part de phase temporelle quadratique lors de l'étape de compression. La figure 2.14 détaille la mise en forme de la pompe avant son arrivée dans le FOPA. Après compression, le faisceau traverse une ligne à retard fixe d'une dizaine de mètres suivie d'une seconde ligne à retard réglable qui permet d'ajuster finement le délai entre le signal et la pompe. Le faisceau est ensuite rétréci dans un afocal avant d'être séparé en deux parties distinctes par division d'amplitude avec une lame séparatrice $50/50$. Sur l'un des deux bras, une nouvelle ligne à retard réglable est insérée afin de contrôler le délai entre les deux faisceaux de pompe. La lame séparatrice étant sensible à la polarisation, une lame demi-onde est placée en amont pour équilibrer la répartition d'énergie entre les deux pompes. Enfin, deux autres lames demi-onde contrôlent la polarisation des faisceaux avant leur injection dans les cristaux non linéaires du FOPA.

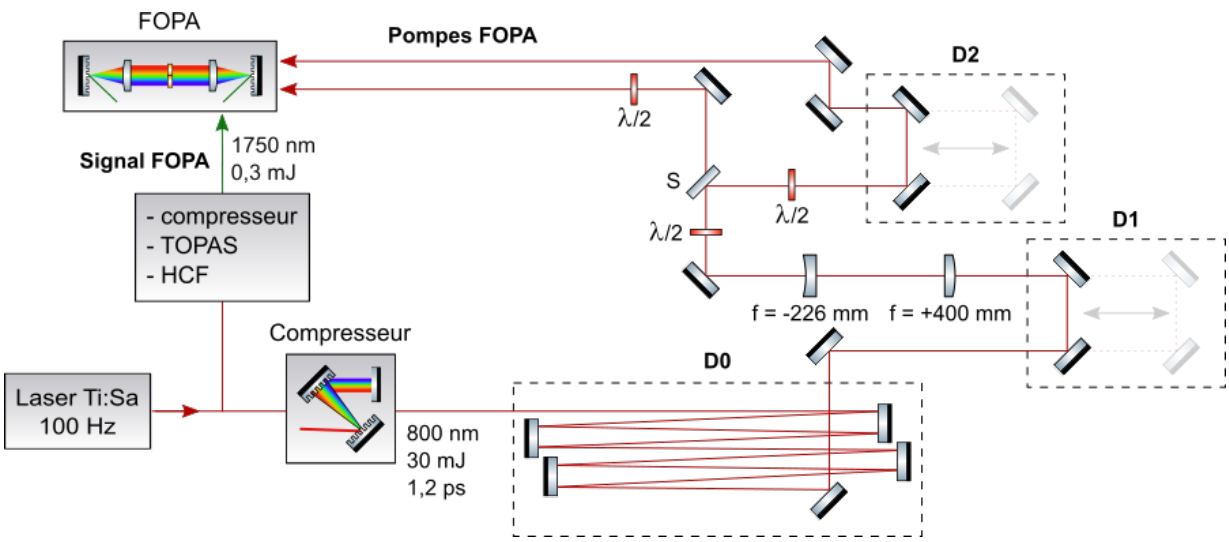


Figure 2.14 : Mise en forme de la pompe du FOPA avec Ti:Sa le laser source, $D0$ une ligne à retard fixe, $D1$ et $D2$ des lignes à retard réglables, $\lambda/2$ des lames de phase demi-onde, et S une lame séparatrice 50/50.

D'après les résultats de la section précédente, la surface de signal à amplifier dans le plan de Fourier mesure $7\ mm$ de diamètre. Pour limiter le rétrécissement par le gain lié aux distributions d'intensité non gaussiennes, la pompe est mise en forme pour obtenir un faisceau de $8\ mm$, soit légèrement plus large que la zone à amplifier. La figure 2.15 montre une simulation de propagation de la pompe entre le compresseur et le plan de Fourier du FOPA. La réduction de diamètre est réalisée par un afocal constitué de deux lentilles de focales $+400\ mm$ et $-226\ mm$. Pour les tailles de faisceau utilisées, cette simulation assure que la divergence à $800\ nm$ est suffisamment faible pour conserver la collimation du faisceau sur toute la distance du montage.

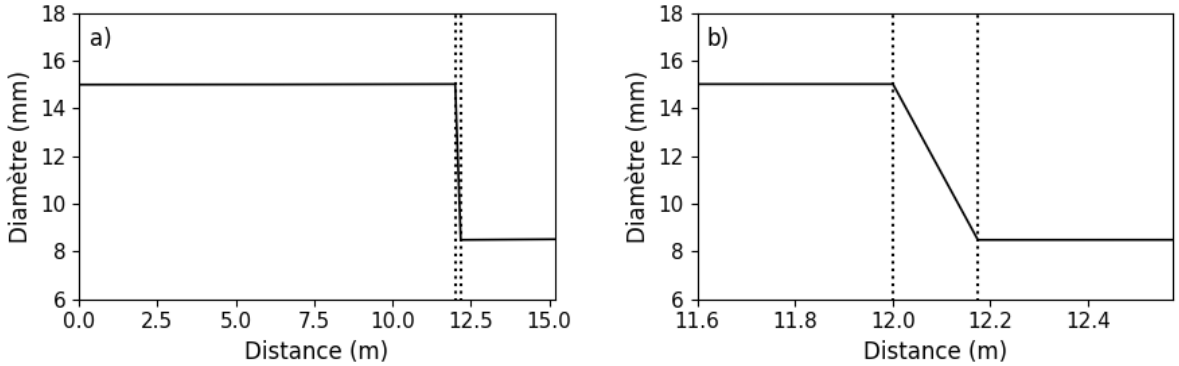


Figure 2.15 : a) Simulation de propagation du faisceau de pompe à 800 nm entre la sortie du compresseur et le plan de Fourier du FOPA et b) gros plan au niveau de l'afocal +400/-226 mm.

2.2.5 Amplification dans le FOPA

Dans le plan de Fourier du FOPA, une amplification paramétrique optique est réalisée avec un accord de phase type-I dans deux cristaux BBO d'épaisseur $5\ mm$ et d'ouverture $20\times10\ mm$. Comme illustré sur la figure 2.16 le signal, dispersé spatialement sur $\sim 40\ mm$ (cf tableau 2.2 dans la section précédente), est réparti équitablement entre les deux cristaux : l'un reçoit la partie "rouge" du spectre (S^+) et l'autre la partie "bleue" (S^-). Dans chaque cristal, un faisceau de pompe de diamètre $8\ mm$ à $800\ nm$ est envoyé avec un angle de 2° par rapport au signal. Sur l'axe dispersé, le recouvrement entre la pompe et le signal est partiel, si bien que seules deux bandes spectrales de S^+ et S^- sont amplifiées. Sur l'axe non dispersé, le recouvrement du signal de $7\ mm$ par la pompe est total.

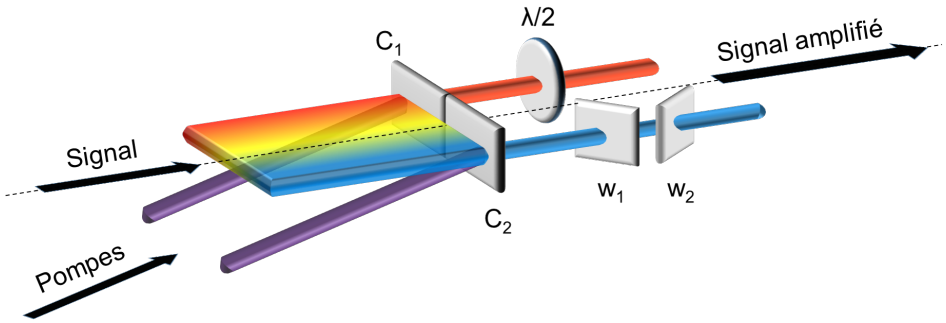


Figure 2.16 : Mise en forme des deux pompes (en violet) et du signal (dégradé rouge vers bleu) dans le plan de Fourier du FOPA pour l'amplification paramétrique optique de deux bandes spectrales (en rouge et en bleu), avec $C1/C2$ des cristaux BBO, $W1/W2$ des fenêtres en silice et $\lambda/2$ une lame de phase demi-onde.

L'acceptance spectrale d'un accord de phase de type-I dans le BBO à $1800\ nm$ est d'environ $25\ THz$, soit $250\ nm$. Dans nos conditions expérimentales qui visent l'amplification de bandes spectrales de $70\ nm$, le gain paramétrique sera considéré comme invariant avec la longueur d'onde. En chaque point du plan de Fourier, le gain paramétrique est alors assimilable au produit des intensités du signal et de la pompe. Le profil spatial de la pompe étant d'allure gaussienne, le gain paramétrique sur les bords du faisceau est plus faible qu'au centre. Dans l'axe de dispersion du FOPA, cette distribution inhomogène du gain paramétrique conditionne directement la forme et la largeur des spectres S^+ et S^- amplifiés dans les cristaux non linéaires. La figure 2.2.5 montre l'amplification théorique du spectre incident expérimental (en noir) par des pompes gaussiennes de diamètre $8\ mm$ à $1/e^2$ (en violet) centrées sur les positions des longueurs d'onde $1650\ nm$ et $1950\ nm$. D'après ces résultats, une largeur de $74\ nm$ à mi-hauteur est attendue pour les spectres S^- et S^+ en sortie de FOPA, confirmant les premières estimations. Selon la position des pompes dans le plan de Fourier, la simulation prévoit l'amplification de bandes spectrales de $70\ nm$ à $80\ nm$ de largeur à mi-hauteur.

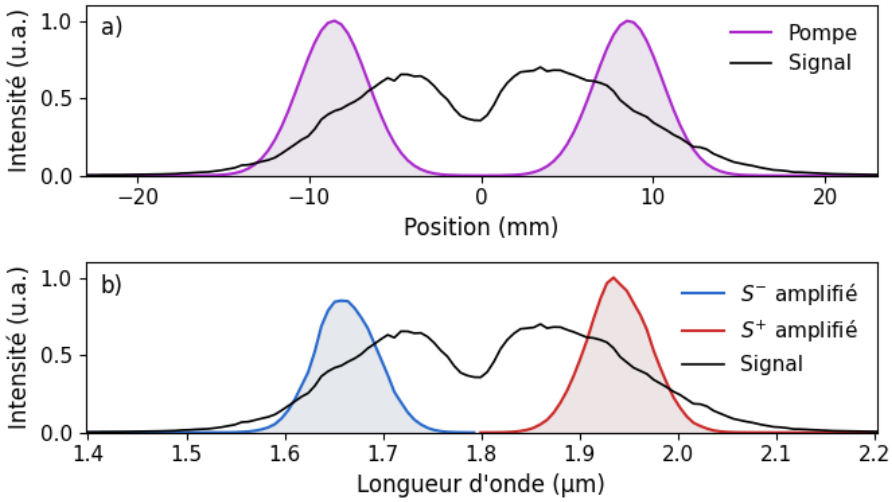


Figure 2.17 : Simulation de gain paramétrique en régime petit signal dans le FOPA avec a) la répartition d'intensité spatiale du signal (noir) et des deux pompes (violet) et b) le spectre du signal incident (noir) et le spectre amplifié (rouge et bleu).

En raison d'une panne de motorisation dans le TOPAS, la suite des travaux a été réalisée avec un spectre signal centré à $1750\ nm$ au lieu de $1800\ nm$. Expérimentalement, aucune différence significative n'a été observée sur le comportement et les performances de la source MIR. Seul l'axe optique du FOPA a dû être réaligné pour s'adapter au changement de longueur d'onde centrale.

La figure 2.18 montre les spectres expérimentaux obtenus en sortie de FOPA pour deux pompes d'énergie $1\ mJ$ centrées à différentes positions dans le plan de Fourier (dans l'axe de dispersion). Pour chaque configuration présentée, l'orientation des cristaux BBO a été ré-ajustée pour optimiser l'accord de phase. La largeur des bandes spectrales amplifiées est ici comprise entre $50\ nm$ et $81\ nm$ pour une valeur moyenne de $63\ nm$, soit des résultats globalement cohérents avec les attentes théoriques. On mentionnera que, dans cette expérience, le profil spatial de la pompe était légèrement modulé, endommageant progressivement certaines optiques (dont les cristaux BBO) par des surintensités locales. Ces dégradations expliqueraient en partie l'écart-type important observé sur l'amplification selon la position des pompes dans les cristaux.

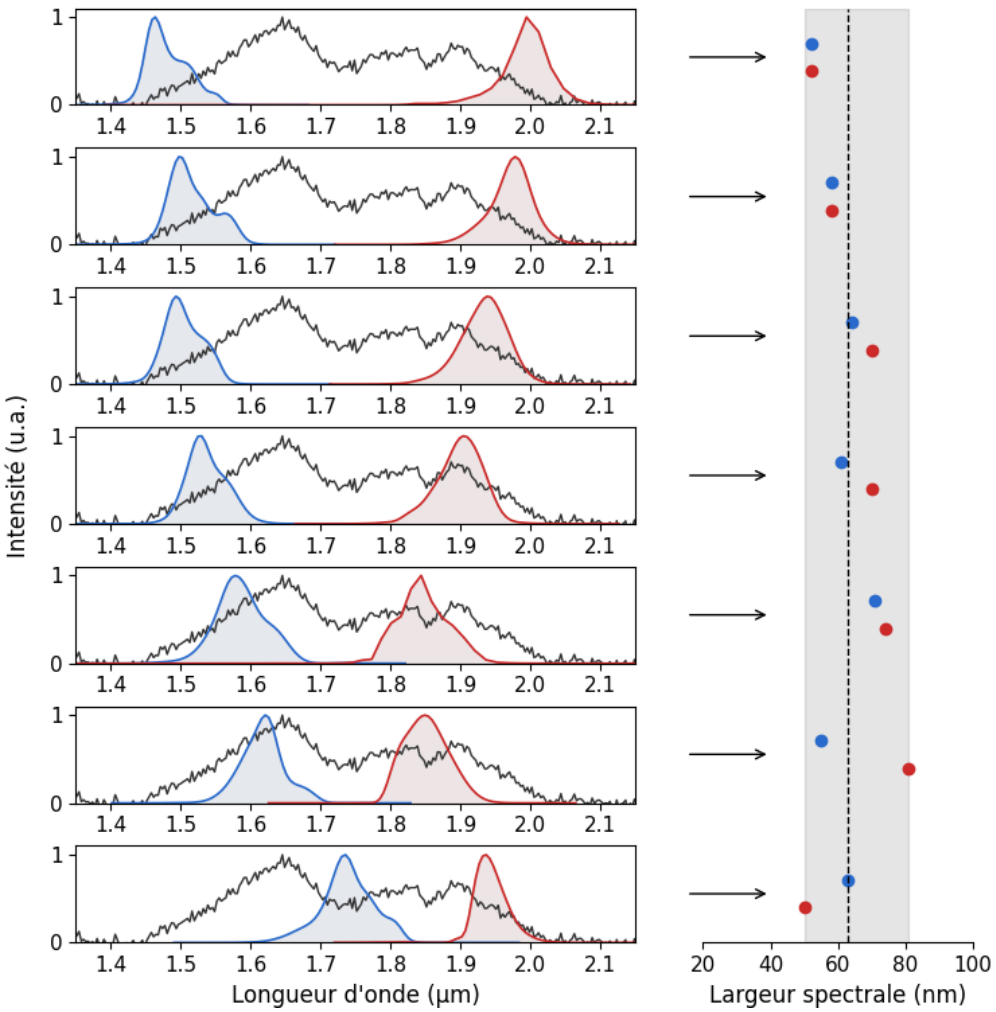


Figure 2.18 : A gauche, spectres incidents (en noir) et amplifiés (en bleu et rouge) dans le FOPA pour différentes positions des faisceaux de pompe. À droite, largeur à mi-hauteur des bandes spectrales amplifiées.

Sur l'axe non dispersé, l'amplification paramétrique optique de faisceaux gaussiens n'impacte pas le spectre mais engendre un rétrécissement spatial par le gain. La figure 2.19 montre le profil attendu en sortie de FOPA sur l'axe non dispersé pour un signal incident de diamètre $7\ mm$ et une pompe de diamètre $8\ mm$. Comme précédemment, l'estimation est calculée à partir du produit des intensités du signal et de la pompe, conduisant à une taille théorique de $5,2\ mm$ à $1/e^2$ pour chacun des deux faisceaux amplifiés dans le FOPA. On mentionnera que la mise en forme de la pompe du FOPA avec une distribution spatiale uniforme permettrait d'améliorer significativement les performances du FOPA en limitant le rétrécissement du spectre (sur l'axe dispersé) et du profil spatial (sur l'axe non dispersé) lors de l'amplification paramétrique optique. Il est également possible d'imaginer une architecture optique plus élaborée où une mise en forme arbitraire du profil de pompe sur l'axe dispersé offrirait un contrôle précis du spectre de sortie pour optimiser la durée des impulsions MIR produites par DFG après le FOPA.

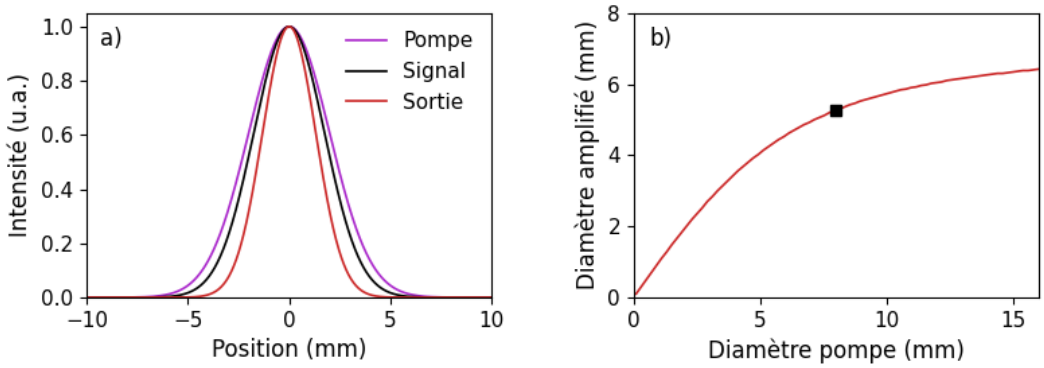


Figure 2.19 : a) Profils de pompe (violet), signal (noir) et signal amplifié (rouge) théoriques dans le plan de Fourier sur l'axe non dispersé du FOPA et b) dimension du faisceau amplifié en fonction de la taille de la pompe pour un signal de 7 mm de diamètre. Le point de fonctionnement théorique (carré noir) correspond à une pompe de 8 mm.

Outre le profil spatial de la pompe, sa distribution temporelle joue également un rôle déterminant dans l'amplification du FOPA. Comme dans tout amplificateur paramétrique, le processus de conversion nécessite le recouvrement temporel du signal et de la pompe pour être efficace. Pour rappel, la durée de la pompe à $800\ nm$ est ajustée par compensation incomplète de la phase quadratique en sortie de chaîne CPA [14] pour obtenir une durée de l'ordre de la picoseconde à partir d'un spectre d'environ $20\ nm$ (dispersé négativement). Le panneau *(d)* de la figure 2.20 montre la relation expérimentale entre la durée d'impulsion de la pompe et l'efficacité de conversion pour l'amplification d'une bande spectrale centrée à $1900\ nm$. Les valeurs de durée présentées dans ces résultats s'appuient sur des caractérisations antérieures de la source Ti:Sa par les équipes du laboratoire ALLS.

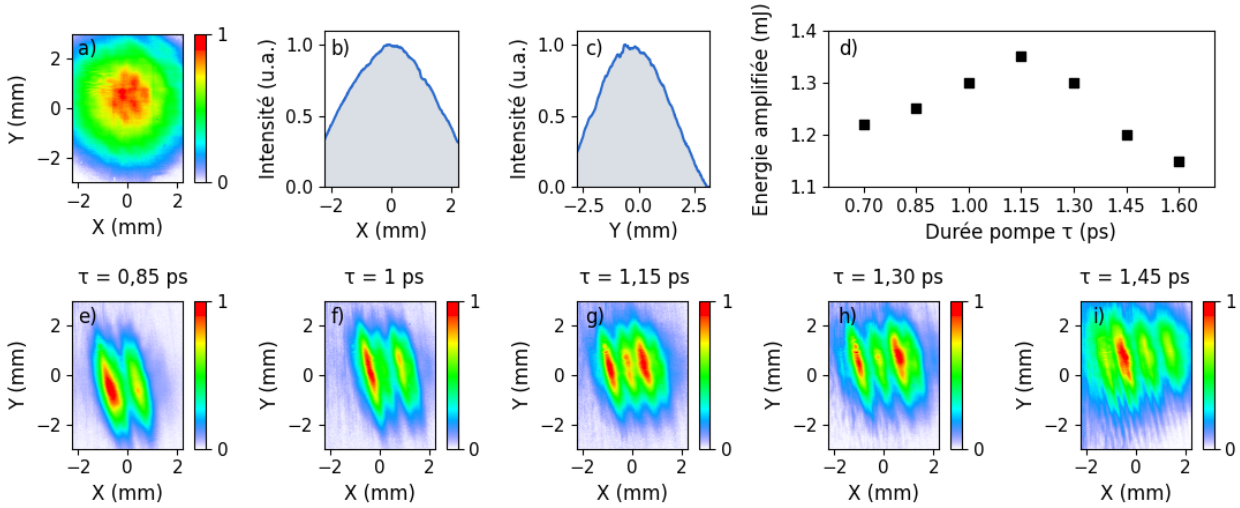


Figure 2.20 : a) Mode transverse d'un signal non amplifié en sortie de FOPA et intégration du profil sur b) l'axe dispersé et c) l'axe non dispersé. d) Amplification d'un signal centré à 1900 nm en fonction de la durée d'impulsion de la pompe et e-i) profil spatial du signal amplifié en sortie de FOPA en fonction de la durée de la pompe.

Sur la figure 2.20 sont également donnés les profils spatiaux du signal non amplifié (panneaux *a-c*) puis amplifié pour différentes durées de pompe (panneaux *e-i*). Ces acquisitions

ont été réalisées dans le plan du réseau de sortie du FOPA avec une caméra CCD commerciale (Point Grey, FLEA-FL2-14S3M) dans un régime d'absorption à 2 photons. L'absorption non linéaire du capteur a été corrigée en appliquant un facteur racine carrée sur l'intensité de chaque image collectée. Malgré la dimension limitée du détecteur, l'extrapolation du profil non amplifié laisse supposer un diamètre de l'ordre de $6\ mm$ contre les $7\ mm$ théoriques (cf tableau 2.2), soit une durée de $1,6\ ps$ dans le plan de Fourier au lieu de $1,88\ ps$. En considérant la nature non uniforme des profils temporels du signal et de la pompe, l'optimum d'efficacité de conversion obtenu à une durée de pompe de $1,15\ ps$ reste cohérent avec la durée théorique du signal.

Les modulations observées sur le profil spatial du signal lors de l'amplification font intervenir la notion de rotation temporelle ultrabrève du front d'onde, un phénomène propre aux systèmes optiques combinant dispersion et focalisation [55]. À l'origine de ce phénomène dans le FOPA, la diffraction du signal par le réseau d'entrée crée une inclinaison du front de l'impulsion (PFT, *Pulse Front Tilt*) qui déforme la distribution spatio-temporelle de l'énergie. Formulé autrement, l'inégalité entre les angles d'entrée et de sortie du réseau introduit une différence de chemin optique dans l'axe de dispersion. La figure 2.21 illustre qualitativement le phénomène de PFT avec une vision quasi-monochromatique (panneaux *a* et *b*) puis polychromatique (panneau *c*).

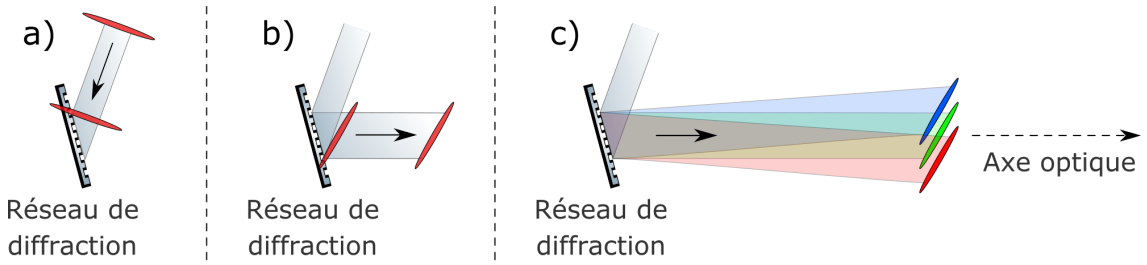


Figure 2.21 : Inclinaison du front d'impulsion par un réseau avec a) un faisceau incident (gris) à front d'impulsion non incliné (rouge) et l'inclinaison du front d'impulsion en considération b) quasi-monochromatique et c) polychromatique.

Bien que la notion d'impulsion ne s'applique pas à un faisceau purement monochromatique, des expressions comme longueurs d'onde "isolées" ou "uniques" seront employées par la suite. Cet abus de langage permettra d'alléger les formulations en désignant des bandes spectrales étroites et cohérentes associées à des durées de quelques picosecondes.

Après création d'un PFT par le réseau d'entrée du FOPA, la focalisation du faisceau engendre une rotation temporelle du front d'onde, illustrée sur la figure 2.22. Le front de l'impulsion (sous-figure 1), associé à une extrémité spatiale du faisceau, est excentré dans la lentille. D'après les règles de l'optique géométrique cette portion du faisceau est transmise dans une direction non colinéaire à l'axe optique. À l'inverse le centre temporel de l'impulsion (sous-figure 2), centré dans la lentille, se propage le long de l'axe optique. La queue de l'impulsion (sous-figure 3) est quant à elle déviée avec un angle symétrique au front montant par rapport à l'axe optique. En résumé, la direction de propagation de l'onde effectue un balayage angulaire à une échelle picoseconde. On parle alors de rotation temporelle ultrabrève du front d'onde.

Dans la suite du manuscrit, cette distorsion spatio-temporelle sera désignée par l'acronyme anglophone TVA (*Time Versus Angle*).

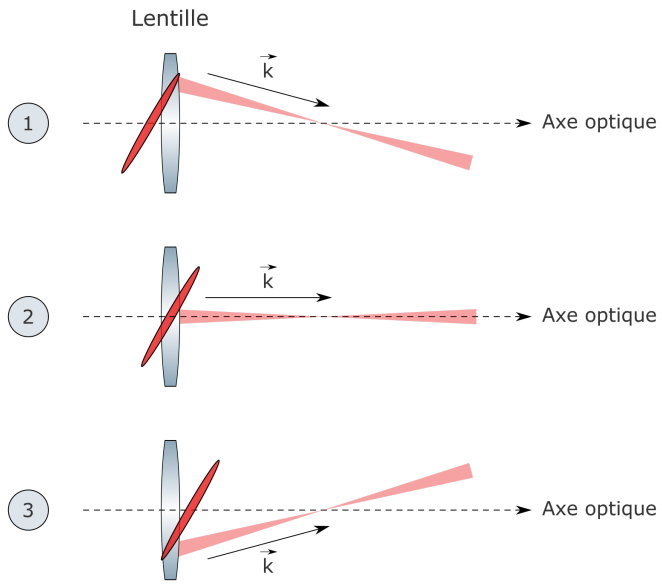


Figure 2.22 : Illustration du phénomène de rotation de front d'onde lors de la focalisation d'un faisceau à front d'impulsion incliné.

Dans un FOPA, l'imagerie est conçue pour isoler les composantes spectrales côte à côte dans le plan de Fourier, le concept de la figure 2.22 se duplique alors pour chaque longueur d'onde du faisceau. Pour comprendre le TVA dans un FOPA, il est important d'identifier les différents régimes de PFT. La figure 2.23 montre une simulation du niveau de PFT sur la première lentille du FOPA pour différentes largeurs spectrales incidentes. Le champ est reconstruit dans le domaine spatio-temporel à partir de l'équation 2.13.

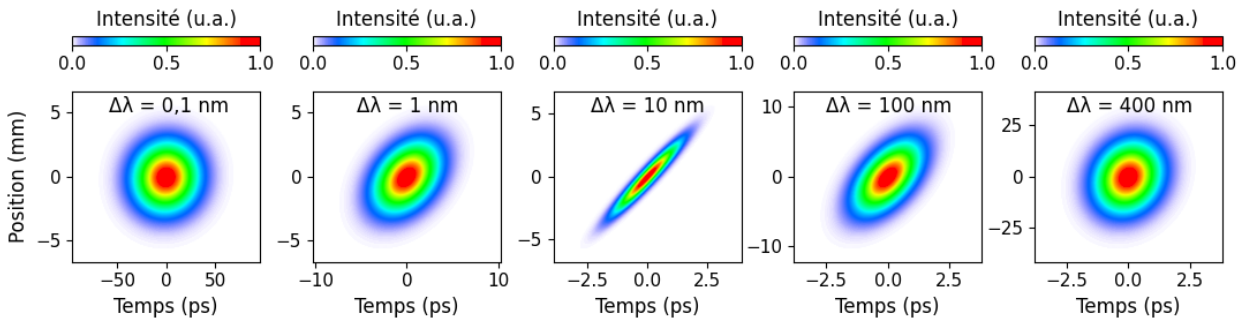


Figure 2.23 : Simulation de distorsion spatiotemporelle après diffraction par un réseau 75 traits/mm et propagation sur une distance 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm.

Pour un spectre incident étroit (cf $\Delta\lambda = 0,1\ nm$ et $\Delta\lambda = 1\ nm$ sur la figure 2.22), l'allongement temporel lié à la dispersion est négligeable devant la durée d'impulsion, il y a très peu de PFT et la durée d'impulsion est définie essentiellement par la largeur spectrale. Pour un spectre plus large (cf $\Delta\lambda = 10\ nm$), la séparation des longueurs d'onde allonge la durée d'impulsion et le PFT apparaît nettement. Dans ce régime, la durée globale de l'impulsion n'est plus déterminée par son spectre mais par l'imagerie du FOPA.

Dans notre configuration expérimentale ($\Delta\lambda = 400\ nm$), la durée est également définie par l'imagerie du FOPA mais le spectre est tellement large que le profil spatio-temporel de l'impulsion est arrondi par la dispersion. Bien que le front de l'impulsion ne semble pas incliné au niveau de la lentille, chaque longueur d'onde est en réalité affectée par un PFT qui sera converti en TVA lors de la focalisation dans le plan de Fourier. La figure 2.24 illustre ce phénomène dans l'imagerie d'entrée du FOPA. Au niveau de la lentille, le PFT de chaque longueur d'onde est représenté en code couleur. À cause de la dispersion, le cumul des contributions individuelles de chaque longueur d'onde forme une distribution spatiale de l'énergie équivalente au profil d'intensité du cas $\Delta\lambda = 400\ nm$ sur la figure 2.23. Après la lentille, chaque longueur d'onde se propage sur un axe colinéaire à l'axe optique et la focalisation provoque l'isolement des composantes spectrales dans le plan de Fourier. Localement, chaque portion spectrale subit alors une rotation de front d'onde à l'échelle picoseconde dans le plan de Fourier.

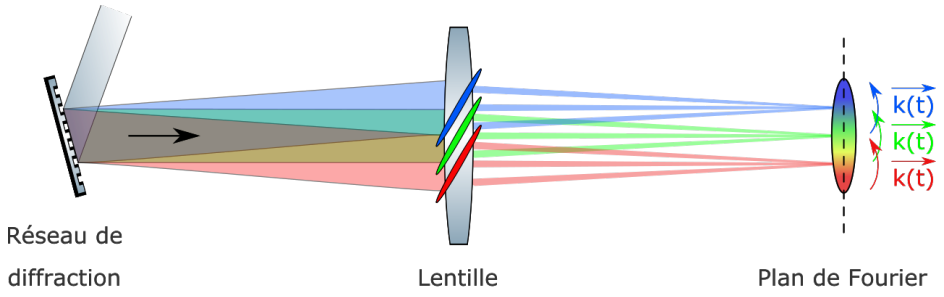


Figure 2.24 : Rotation de front d'onde d'une impulsion brève dans le plan de Fourier d'un FOPA. Les ellipses colorées symbolisent les fronts d'impulsion.

Dans l'approximation paraxiale, toutes les longueurs d'onde arrivent en même temps dans le plan de Fourier. En d'autres termes, le PFT s'annule dans le plan de Fourier et la rotation du front d'onde de chaque longueur d'onde est théoriquement synchrone. La figure 2.25 confirme l'absence de PFT à travers une simulation du profil d'intensité spatio-temporel dans le plan de Fourier pour les différents spectres étudiés précédemment.

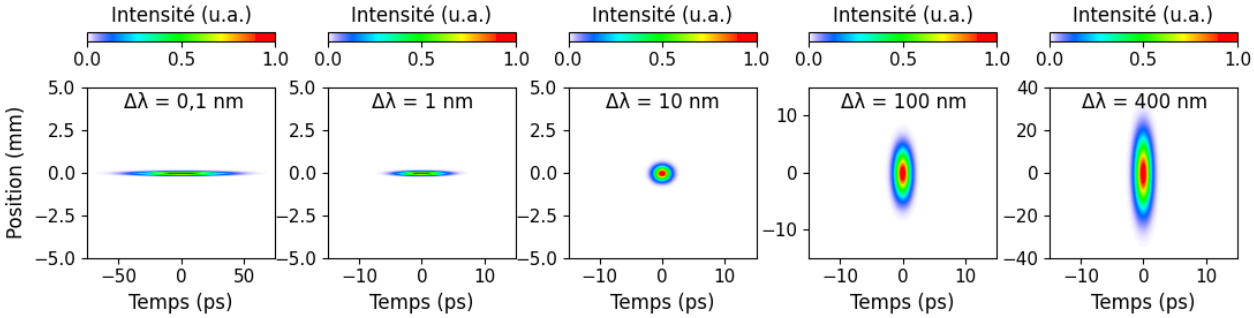


Figure 2.25 : Simulation du front d'impulsion dans le plan de Fourier d'un FOPA constitué d'un réseau de densité 75 traits/mm et d'une lentille de focale 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm.

Cette représentation ne montre toutefois pas l'information de phase spatio-temporelle. Pour faire ressortir le TVA, la figure 2.26 présente la même simulation mais en représentation $(k\,,\,t)$ (fréquence spatiale, temps). Quelle que soit la largeur spectrale de l'impulsion incidente, les composantes fréquentielles (spatiales) sont identiques car elles dépendent uniquement de la

dimension du faisceau, de la longueur d'onde centrale et de la distance focale de la lentille. En revanche, la distorsion TVA est d'autant plus marquée que le spectre incident est large. Dans nos conditions expérimentales, la figure 2.26 démontre une distribution d'intensité linéaire dans le domaine $(k\,,\,t)$. Autrement dit, l'imagerie d'un FOPA crée une distorsion linéaire entre le profil temporel et les fréquences spatiales du signal dans le plan de Fourier, à l'origine de la rotation temporelle du front d'onde à l'échelle picoseconde. Lors de l'amplification paramétrique, le profil temporel de la pompe influence donc les propriétés spatiales du signal amplifié.

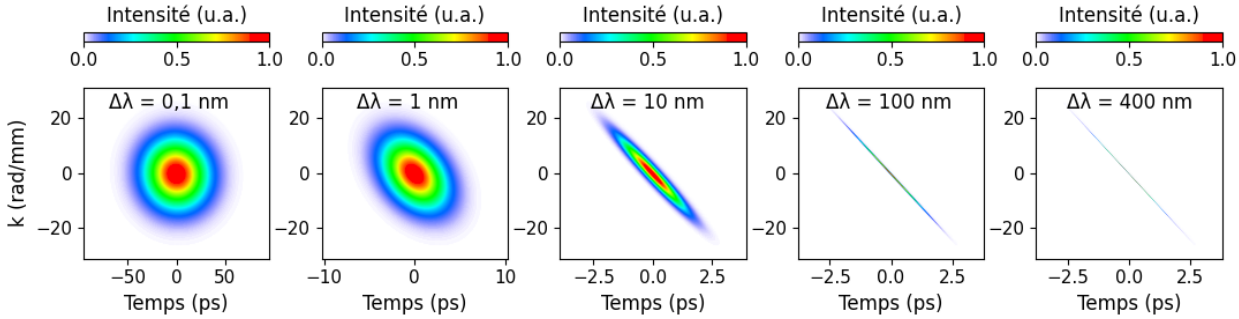


Figure 2.26 : Simulation de rotation temporelle de front d'onde dans le plan de Fourier d'un FOPA constitué d'un réseau de densité 75 traits/mm et d'une lentille de focale 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm.

A partir des discussions précédentes sur les distorsions spatio-temporelles, il est désormais possible d'apporter des hypothèses aux déformations observées sur le signal amplifié par le FOPA (cf figure 2.20). En raison de la rotation de front d'onde dans le plan de Fourier, les vecteurs de propagation extrêmes du signal sont rognés par les fronts montant et descendant du profil temporel de la pompe, se traduisant par un rétrécissement du mode spatial dans l'axe de dispersion du FOPA. Ainsi, plus la durée de pompage augmente, plus le profil spatial amplifié est large en sortie de FOPA. Ce phénomène n'est pas présent sur l'axe non dispersé, d'où une variation de l'ellipticité en fonction de la durée de la pompe.

L'origine des modulations spatiales est quant à elle moins certaine. La figure 2.27 montre le mode transverse en sortie du FOPA après amplification d'une bande à $1900\ nm$ par une pompe de durée $1,15\ ps$.

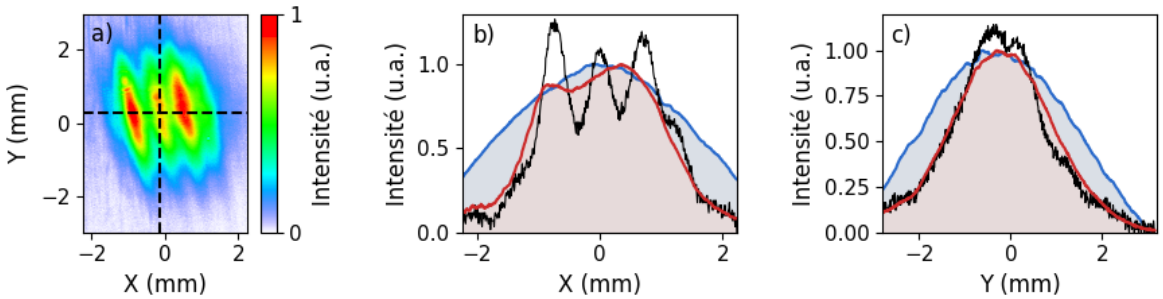


Figure 2.27 : a) Mode transverse en sortie de FOPA d'une bande spectrale centrée à 1900 nm amplifiée par une pompe de durée 1,15 picoseconde. b) Projection sur l'axe de dispersion (X) avec le profil non amplifié (bleu), le profil amplifié au centre du faisceau (noir) et le profil amplifié intégré (rouge). c) Projection sur l'axe non dispersé (Y) avec le même code couleur.

Sur la figure 2.27, la coupe du profil spatial dans l'axe de dispersion (panneau *b)* révèle une déformation importante avec une profondeur de modulation de l'ordre de 50% (courbe noire). L'absence de modulation sur l'axe non dispersé laisse supposer l'intervention d'un couplage spatio-temporel entre la pompe et le signal lors de l'amplification. On précisera que l'observation du faisceau par carte de visualisation fluorescente a confirmé que l'inclinaison des franges était réelle.

Les modulations d'amplitude le long de l'axe dispersé pourraient s'expliquer par l'existence de modulations sur la durée d'impulsion de la pompe. Même si l'absence de caractérisation temporelle de la pompe interdit toute conclusion formelle à ce sujet, la figure 2.28 témoigne d'une propagation non linéaire de la pompe lors de sa propagation dans l'air, avec des modulations spectrales plus ou moins profondes selon la durée d'impulsion. Il est possible que le profil temporel soit également affecté, ce qui se traduirait par une déformation du profil spatial du signal à travers le couplage spatio-temporel dans le plan de Fourier. La distribution globalement gaussienne du profil spatial de la pompe implique également une inhomogénéité spatiale de ces non linéarités, qui pourraient être à l'origine des franges observées sur le signal amplifié. Des interférences par réflexion interne dans les lames demi-onde ou encore la lame séparatrice seraient elles aussi susceptibles de nuire à l'homogénéité temporelle de la pompe à l'échelle sub-picoseconde.

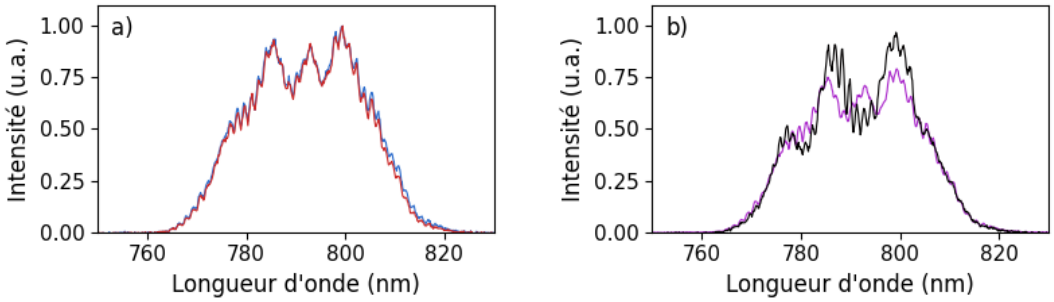


Figure 2.28 : a) Spectres des deux faisceaux de pompe de durée 2 ps dans le plan de Fourier et b) spectre d'une pompe de 2 ps (violet) et 1,15 ps (noir).

Pour la suite de ce chapitre, on considèrera une durée d'impulsion de $1,15\,ps$ pour la pompe. En sortie de FOPA, le faisceau signal, caractérisé à $6\ mm$ de diamètre (cf figure 2.20), subit un rétrécissement spatial lors de l'amplification pour former un faisceau elliptique de dimension $4,0\ mm$ sur l'axe dispersé et $4,5\ mm$ sur l'axe non dispersé, soit un facteur de rétrécissement de respectivement $0,67$ et $0,75$. Sur l'axe non dispersé, on retrouve exactement le rétrécissement théorique $0,74$ calculé à partir d'une taille de $7\ mm$ (cf figure 2.19). Sur l'axe dispersé, le rétrécissement théorique n'a pas été calculé mais le facteur de rétrécissement $0,67$ semble cohérent avec le rapport entre la durée de la pompe $1,15\,ps$ et celle du signal $1,6\,ps$.

Après le FOPA, les modulations spatiales du signal amplifié ont été filtrées par diffraction en champ lointain, au détriment d'une perte d'énergie de $\sim 20\%$ (mesurée dans une ouverture délimitée par un diaphragme de $8\ mm$). La figure 2.29 montre le mode transverse mesuré après 5 mètres de propagation. Dans ce plan, destiné à accueillir le cristal de DFG, le faisceau est toujours elliptique mais les modulations ont disparu. La superposition des deux bandes

spectrales S^- et S^+ (panneaux *g-i*) aboutit à un faisceau de $4,2\ mm \times\ 4,6\ mm$ pour une énergie de $2\ mJ$ répartie équitablement entre les deux impulsions.

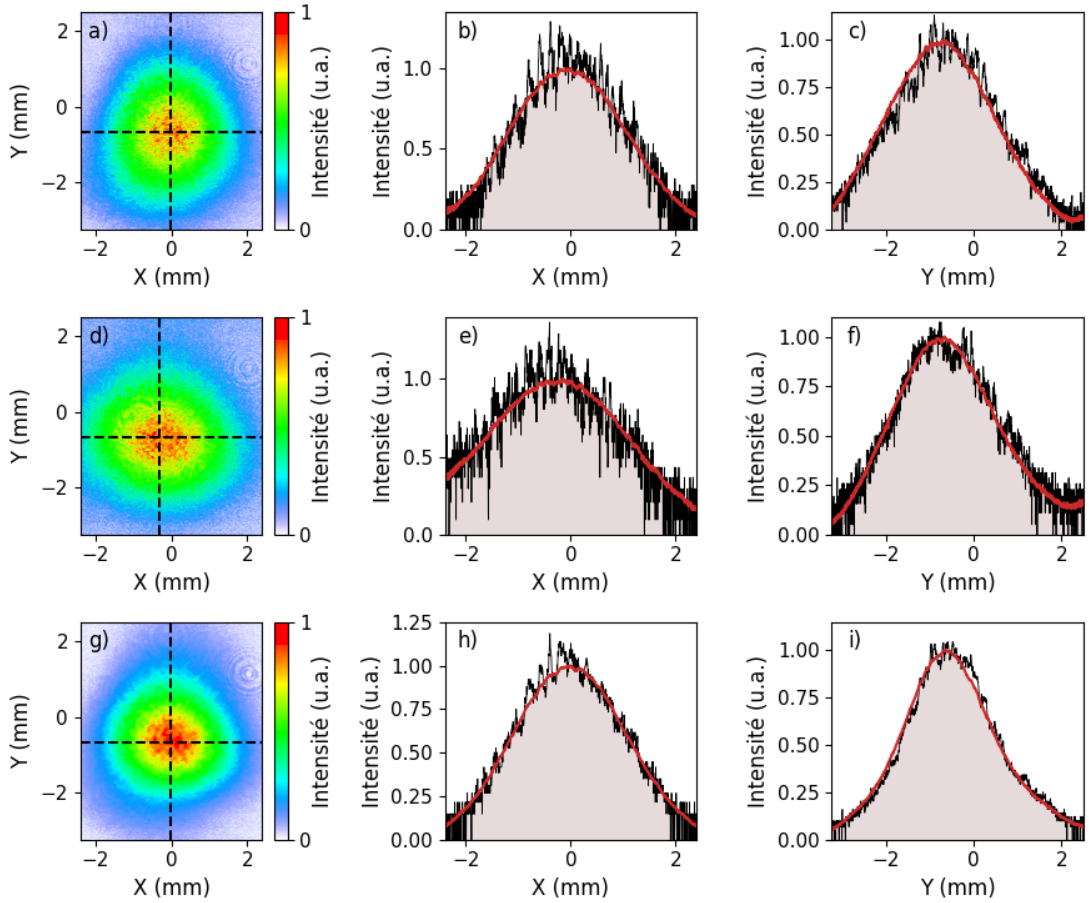


Figure 2.29 : a-c) Mode transverse en champ lointain du FOPA d'une bande amplifiée à 1900 nm, d-f) d'une bande amplifiée à 1700 nm et g-i) des deux bandes superposées, avec X l'axe de dispersion du FOPA et Y l'axe non dispersé.

La durée des impulsions en sortie de FOPA a été caractérisée par SHG-FROG. La figure 2.30 montre les durées mesurées en fonction de la longueur d'onde amplifiée pour deux campagnes expérimentales menées au laboratoire ALLS en Février 2020 (panneau *a*) en Octobre 2020 (panneau b). Lors de la première, des impulsions de $1\ mJ$ ont été produites avec une durée moyenne de $\sim 60\ fs$ pour la bande spectrale S^- et $\sim\ 140 fs$ pour la bande S^+. La phase résiduelle, principalement quadratique, a été compensée dans une fenêtre de $25\ mm$ en silice pour atteindre respectivement $\sim\ 40\ fs$ et $\sim\ 70\ fs$. Lors de la seconde campagne expérimentale, la présence de phase résiduelle cubique sur la source Ti:Sa a limité la durée des impulsions à des valeurs comprises entre $60\ fs$ et $120\ fs$ sur l'ensemble de la bande spectrale, sans possibilité de compression. Dans les deux cas, des impulsions de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen ont pu être générées par différence de fréquences (DFG).

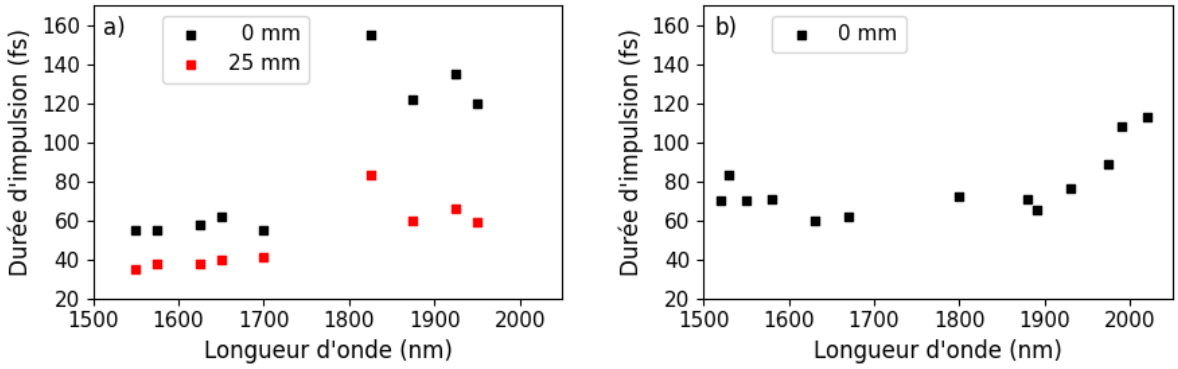


Figure 2.30 : Durée des impulsions en sortie de FOPA (noir) et après compression dans une fenêtre en silice d'épaisseur 25 mm (rouge). Les fenêtres a) et b) correspondent à deux expériences menées sur le même montage expérimental mais avec une phase résiduelle différente sur la source Ti:Sa.

Malgré des spectres MIR légèrement plus larges lors de la première expérience (et donc des durées MIR potentiellement plus courtes), les travaux présentés dans la suite de ce chapitre se baseront sur les résultats de la seconde campagne expérimentale pendant laquelle les impulsions MIR on pu être caractérisées temporellement et utilisées dans une application de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG).

Pour synthétiser les résultats obtenus jusqu'ici, des impulsions de $45\ fs$ à $800\ nm$ ont été converties en couples d'impulsions d'une centaine de femtosecondes à des longueurs d'onde continûment accordables entre $1,5\mu m$ et $2,0\ \mu m$ à travers un OPA commercial (Light Conversion, TOPAS), une fibre à cœur creux remplie au Krypton et un amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA). Ces couples, destinés à générer des impulsions courtes dans l'infrarouge moyen par amplification paramétrique optique colinéaire (voir prochaine section 2.2.6), ont été mis en forme dans le plan de Fourier du FOPA pour obtenir des polarisations croisées et un délai relatif ajustable en préparation de l'étage de DFG. Dans nos conditions expérimentales (pompe du FOPA réalisée à partir d'un spectre large étiré temporellement), des modulations ont été observées sur le profil spatial amplifié par le FOPA en raison des couplages spatio-temporels dans le plan de Fourier, un problème qui pourrait être limité en propageant la pompe dans un espace sous vide primaire ou encore en remplaçant la pompe par un laser picoseconde à spectre étroit (par exemple en transposant le concept à la technologie Ytterbium). Les modulations spatiales ont été filtrées par diffraction en laissant le faisceau se propager sur quelques mètres, au détriment d'une perte de $\sim 20\%$ sur l'énergie. L'efficacité de conversion entre la sortie du laser Ti:Sa et l'entrée de l'étage de DFG s'élève à environ 5%, à laquelle il conviendra de rajouter l'efficacité de conversion vers l'infrarouge moyen (de l'ordre de 1%). Même si l'efficacité pourrait être améliorée avec l'implémentation de distributions spatiales en échelon, ces chiffres illustrent parfaitement les limitations actuelles de la génération d'impulsions intenses dans l'infrarouge moyen à partir de sources Titane:Saphir et soulignent l'intérêt des lasers à $2\ \mu m$ pour cette application.

2.2.6 Synthèse d'impulsions MIR par différence de fréquences

Après le FOPA, les deux impulsions centrées de part et d'autre de $1750\ nm$ sont envoyées dans un cristal de Séléniure de Gallium (GaSe) pour générer des impulsions dans l'infrarouge moyen par différence de fréquences (DFG, cf 1.2). Le GaSe est un cristal biréfringent uniaxe coupé perpendiculairement à son axe optique. En configuration d'accord de phase *type-II*, le coefficient d'efficacité non linéaire vaut $D_{eff} = 54\ pm/V$ et l'angle interne théorique $12^o < \theta_i < 16^o$ [78] pour notre gamme de longueurs d'onde. La figure 2.31 montre la configuration d'accord de phase réalisée pour l'expérience, la polarisation de la pompe est parallèle à l'axe de dispersion du FOPA et le signal est réglé en polarisation croisée grâce à la lame demi-onde située dans le plan de Fourier du FOPA. En considérant un indice de réfraction $n_{GaSe\,(1800\ nm)} = 2,75$ [79], la relation de Descartes ci-dessous indique un angle d'incidence théorique $\theta_i = 42^o$ sur le GaSe. Expérimentalement, la rotation du cristal a été effectuée autour de l'axe de polarisation du signal.

$$\theta_i = sin^{-1}\left(\frac{n_{GaSe}}{n_{air}}\ sin(\theta_{interne})\right) \tag{2.39}$$

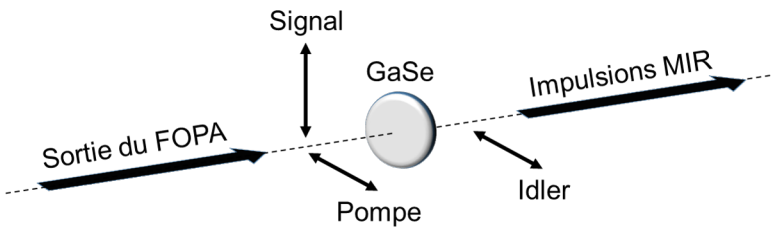


Figure 2.31 : Accord de phase de type-II dans un cristal de Séléniure de Gallium (GaSe) pour la génération d'idler par différence de fréquences (DFG). Les flèches doubles représentent les polarisations du signal, de la pompe et de l'idler dont la propagation est colinéaire à l'axe optique (en pointillés).

A $2\ \mu m$, le seuil d'apparition de l'absorption multi-photons dans le GaSe est de l'ordre d'une centaine de GW/cm^2 [80]. Les travaux menés avec des sources femtosecondes à $800\ nm$ et des sources nanosecondes à $2\ \mu m$ laissent supposer un seuil de dommage de l'ordre de quelques centaines de GW/cm^2, essentiellement dû à l'absorption multi-photons [81; 82; 83; 84; 85]. En tenant compte de l'inclinaison du cristal dans nos conditions expérimentales, le mode spatial de dimension $4,2 \times 4,6\ mm$ est étendu par projection à $5,9\ mm \times 4,6\ mm$, soit une surface éclairée de $0,85\ cm^2$. D'après la caractérisation SHG-FROG du signal et de la pompe, donnée sur la figure 2.32, la puissance-crête des deux impulsions synchronisées en entrée de GaSe est de l'ordre de $15\ GW$. Rapporté à la surface du cristal éclairée, ce chiffre permet d'estimer l'intensité-crête à $\sim 20\ GW/cm^2$, soit un ordre de grandeur en dessous du seuil de dommage attendu pour le GaSe.

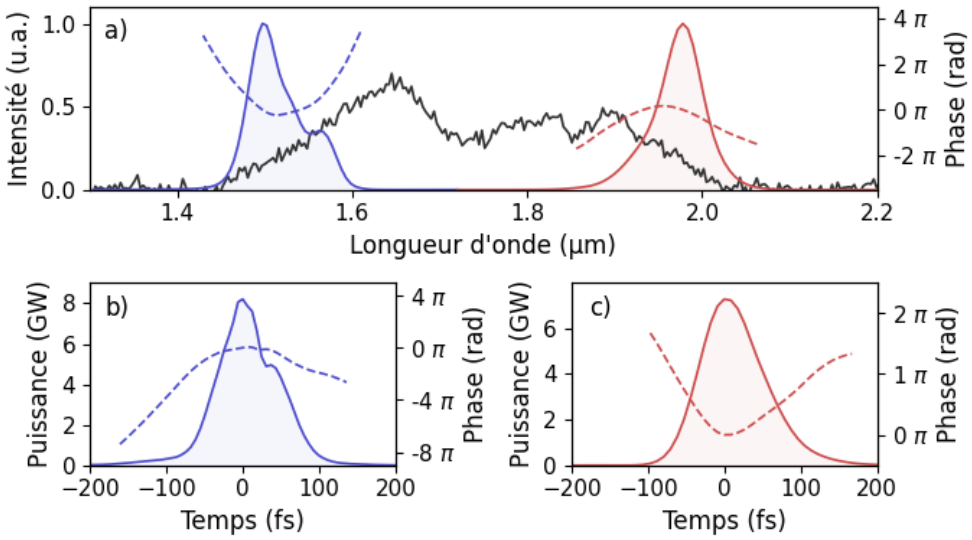


Figure 2.32 : a) Spectre signal non amplifié (en noir) et amplifié (en bleu et rouge) dans le FOPA. b-c) Caractérisation temporelle SHG-FROG des impulsions amplifiées avec la phase en pointillés.

L'une des principales limitations de l'amplification paramétrique en régime femtoseconde est la dispersion de vitesse de groupe, qui sépare temporellement les impulsions au cours de la propagation. Dans un matériau d'indice de réfraction $n(\lambda)$, la vitesse de groupe d'une impulsion est reliée à la variation de l'indice du matériau à travers la relation suivante :

$$v_g = \frac{c}{n_g} = \frac{c}{n_0 - \lambda_0 \frac{\partial\, n}{\partial\, \lambda}} \tag{2.40}$$

avec c la vitesse de la lumière dans le vide, n_g l'indice de groupe, λ_0 la longueur d'onde centrale, et n_0 l'indice de réfraction à la longueur d'onde centrale.

Ici, l'indice du GaSe sera calculé à partir du calcul donné dans la référence [79] :

$$n = \sqrt{10,6409 + \frac{0,3788}{\lambda^2 - 0,1232} + \frac{7090,7}{\lambda^2 - 2216,3}} \tag{2.41}$$

A cause de la dispersion de vitesse de groupe, le recouvrement temporel entre pompe, signal et idler ne peut être assuré que sur une distance de propagation limitée. La figure 2.33 montre la variation de l'indice de réfraction (panneau *a*) et de la vitesse de groupe (panneau *b*) dans l'infrarouge moyen. Pour faciliter la lecture de la figure, les plages d'accordabilité de la pompe, du signal et de l'idler ont été hachurées respectivement en bleu, vert et rouge. Le panneau *c* de la figure 2.33 renseigne sur le retard de groupe accumulé par $0,75\ mm$ de propagation dans GaSe, les croix noires indiquant les différentes combinaisons de longueurs d'onde pompe/signal/idler réalisées expérimentalement. Ces résultats montrent un retard de groupe du même ordre de grandeur que la durée des impulsions, soit une influence non négligeable de la dispersion de vitesse de groupe dans notre étage de DFG. On mentionnera que la génération d'idler à haute longueur d'onde ($> 10\ \mu m$) semble moins pénalisée par la dispersion de vitesse de groupe que celle ciblée vers la production d'idler à basses longueurs d'onde.

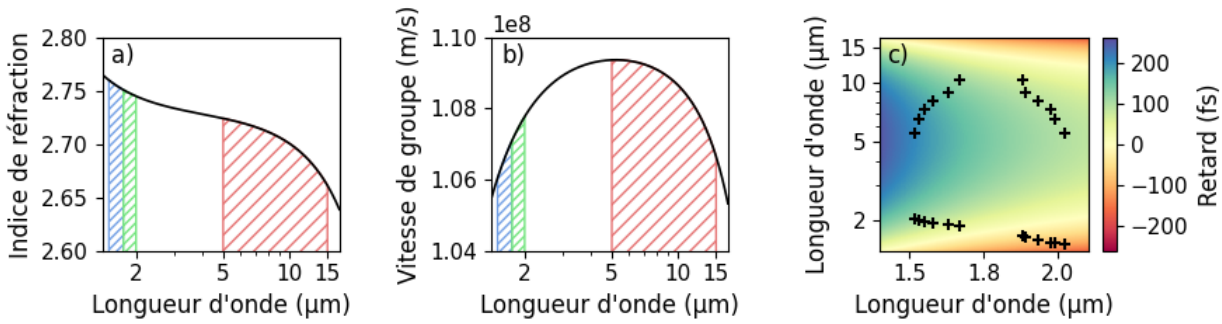


Figure 2.33 : a) Indice de réfraction et b) vitesse de groupe dans un cristal GaSe. Les hachures bleues, vertes et rouges réfèrent respectivement aux longueurs d'onde de la pompe, du signal et de l'idler. c) Retard de groupe introduit par 0,75 mm de propagation, avec les longueurs d'onde pompe/signal/idler expérimentales repérées en croix noires.

La tolérance spectrale de l'accord de phase représente également une contrainte pour la génération d'impulsions femtosecondes MIR. L'accord de phase ne pouvant pas être obtenu pour toutes les longueurs d'onde à la fois, l'amplification paramétrique sur de trop longues distances engendre un phénomène de rétrécissement spectral et donc un allongement de la durée d'impulsion. Expérimentalement, plusieurs épaisseurs de GaSe ont été testées pour identifier le meilleur compromis entre l'efficacité de conversion et la largeur spectrale de l'idler. La figure 2.34 présente les impulsions idler obtenues dans des cristaux d'épaisseurs $0,75\ mm$, $1\ mm$ et $1,5\ mm$ pour un même couple d'impulsions pompe et signal centrées à respectivement $1625\ nm$ et $1850\ nm$. Conformément aux attentes, la largeur spectrale de l'idler diminue avec l'épaisseur du cristal. Parmi les cristaux testés, seul celui de $0,75\ mm$ permet de conserver la bande-passante du signal et de la pompe. La longueur optimale de propagation pour l'efficacité de conversion semble quant à elle se situer quelque part entre $0,75\ mm$ et $1,0\ mm$, avec des énergies équivalentes sur l'idler dans ces deux configurations. Au vu de ces résultats, l'épaisseur de $0,75\ mm$ a été conservée pour la suite des travaux.

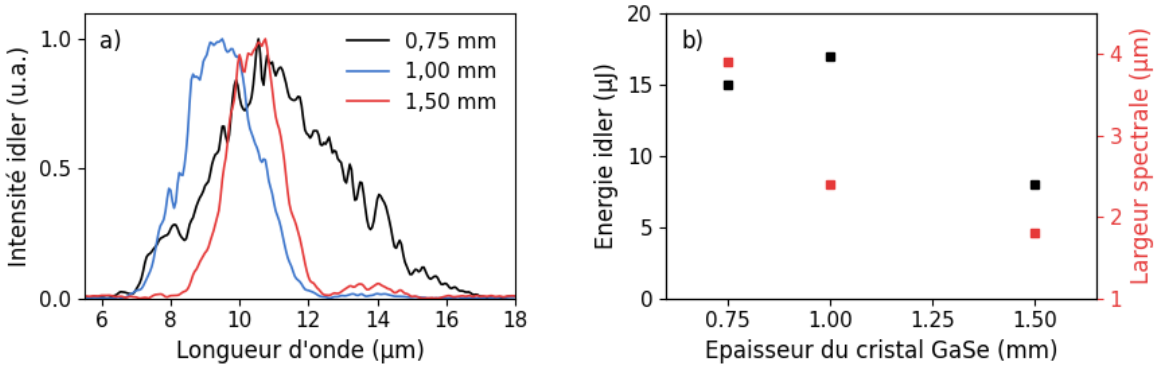


Figure 2.34 : a) Spectre idler généré par deux impulsions centrées à 1625 nm et 1850 nm pour différentes épaisseurs de GaSe. b) Energie (en noir) et largeur spectrale (en rouge) de l'idler en fonction de l'épaisseur du cristal.

L'un des avantages de cette source laser MIR réside dans son accordabilité en longueur d'onde. En approximation quasi-monochromatique, cette longueur d'onde est imposée lors de la DFG par la conservation de l'énergie entre les photons de pompe consommés et les photons

signal et idler générés, à travers la relation suivante :

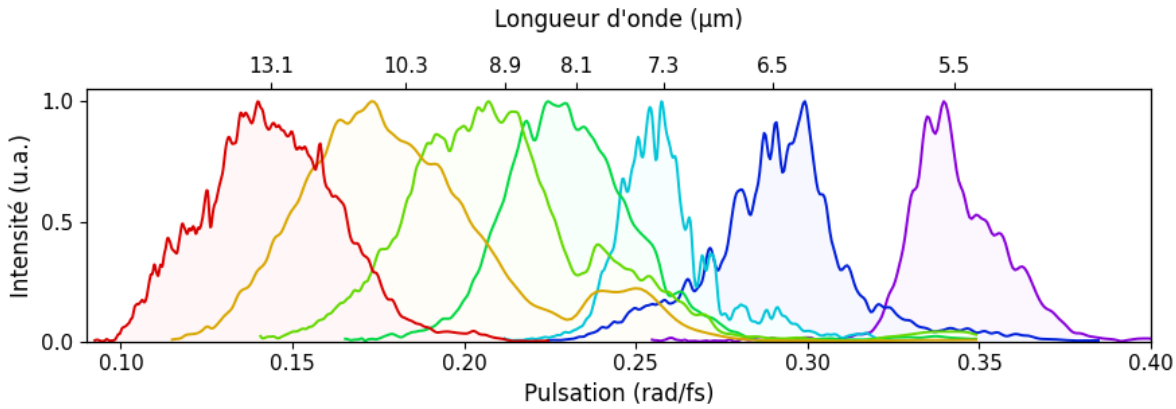
$$E_{idler} = E_{pompe} - E_{signal} \tag{2.42}$$

avec $E_{idler/pompe/signal}$ l'énergie d'un photon idler/pompe/signal.

L'énergie d'un photon étant définie comme $E = h\,\omega/2\pi$ (avec h la constante de Planck et ω la pulsation), l'équation 2.42 impose une fréquence de l'idler telle que :

$$\omega_{idler} = \omega_{pompe} - \omega_{signal} \tag{2.43}$$

L'équation 2.43 indique un lien de causalité direct entre la longueur d'onde de l'idler et celles du signal et de la pompe. Or dans notre architecture FOPA, il s'avère que ces dernières sont accordables entre $1,5\ \mu m$ et $2\ \mu m$ selon la position des deux faisceaux de pompe à $800\ nm$ dans le plan de Fourier. Grâce à ce degré de liberté, l'idler est donc continûment accordable sur une vaste plage de l'infrarouge moyen. Expérimentalement, des impulsions idler d'énergie $\sim 20\ \mu J$ ont pu être générées entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$. La figure 2.35 montre les résultats de DFG obtenus pour différentes configurations des pompes dans le FOPA. L'ensemble des conditions expérimentales ayant conduit à ces résultats sont regroupées dans un tableau récapitulatif. On précisera que le signal et la pompe ont été caractérisés temporellement par SHG-FROG et l'idler par FROSt (cf annexe C).



POMPE			SIGNAL			IDLER				
λ_0 (nm)	$\Delta\tau$ (fs - cycles)	E (mJ)	λ_0 (nm)	$\Delta\tau$ (fs - cycles)	E (mJ)	λ_0 (nm)	E (µJ)	$\Delta\tau$ (fs - cycles)	$\Delta\nu$ (THz)	$P_{crête}$ (GW)
1520	70 – 13,8	0,7	2020	113 – 16,8	0,6	**5,5**	22	117 – 6,4	3,2	0,17
1530	83 – 16,3	0,75	1990	108 – 16,3	0,75	**6,5**	23	78 – 3,6	4,4	0,22
1550	70 – 13,5	0,9	1975	89 – 13,5	1,0	**7,3**	26	112 – 4,6	3,3	0,19
1580	71 – 13,5	0,85	1930	76 – 11,8	0,95	**8,1**	22	81 – 3,0	6,1	0,26
1630	60 – 11,0	1,0	1890	65 – 10,3	1,1	**8,9**	19	59 – 2,0	7,1	0,30
1670	62 – 11,1	0,95	1880	71 – 11,3	1,05	**10,3**	18	45 – 1,3	8,3	0,34
1800	72 – 12,0	1,0	1970	113 – 17,2	0,9	**13,1**	11	70 – 1,6	6,7	0,26

Figure 2.35 : Accordabilité de la source dans l'infrarouge moyen avec (en haut) le spectre idler généré par DFG pour différentes configurations du FOPA et (en bas) les propriétés de la pompe, du signal et de l'idler associées à chacun des résultats.

Au vu des seuls résultats ci-dessus, la conservation d'énergie pourrait sembler mal respectée pour les hautes longueurs d'onde idler. À travers une collaboration avec l'institut ELI (Extreme Light Infrastructure) en Hongrie, une simulation de DFG a été conduite pour appuyer les observations expérimentales. Pour chacun des 7 spectres idler présentés ci-dessus, les caractérisations SHG-FROG du signal et de la pompe ont été injectées dans le code de simulation. Le mode spatial a quant à lui été considéré comme identique pour tous les faisceaux incidents (cf panneau *g* de la figure 2.29). La figure 2.36 montre les spectres idler retrouvés par la simulation (en rouge), avec une excellente correspondance entre les longueurs d'onde centrales simulées et expérimentales (en noir). Lors de l'analyse des résultats, la transmission d'un doublet de filtres interférentiels, utilisés pour séparer l'idler de la pompe et du signal, ainsi que la réponse du monochromateur, se sont avérées non constantes au-delà de $12\ \mu m$. Afin de comparer la simulation de DFG avec le spectre idler expérimental réel, les résultats à hautes longueurs d'onde (cf panneaux *f* et *g*) ont donc été corrigés par la transmission des filtres et la réponse du monochromateur (cf annexe B). Les pertes induites par ces filtres expliquent par ailleurs le manque d'énergie observé à $13\ \mu m$ (cf figure 2.35). En effet, comme présenté dans l'annexe B, l'énergie réelle de l'idler à $13\ \mu m$ en sortie de DFG n'est pas de $11\ \mu J$ mais de $20\ \mu J$, soit l'équivalent des autres longueurs d'onde.

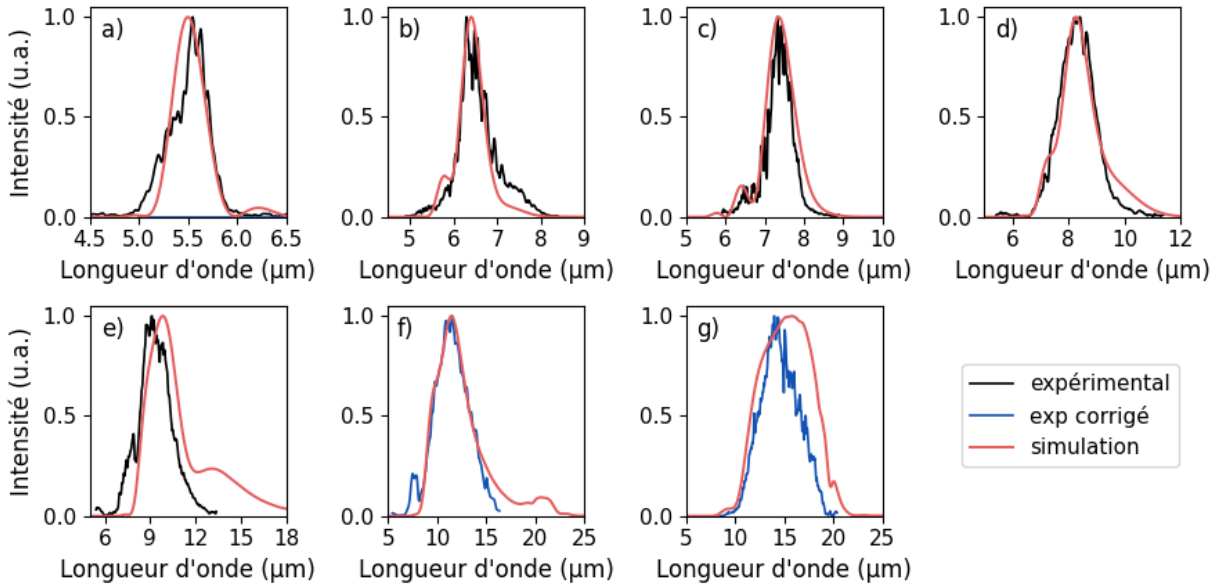


Figure 2.36 : Spectres idler expérimentaux (en noir) et simulés (en rouge) pour différentes longueurs d'onde d'émission de la source MIR. Les spectres f) et g) à hautes longueurs d'onde (en bleu) ont été corrigés par la transmission des filtres et la sensibilité du monochromateur (cf annexe B).

L'efficacité de conversion retrouvée par la simulation est d'environ 2%, un chiffre en accord avec l'état de l'art dans le GaSe [86; 87]. La simulation indique également un fort taux de rétro-conversion de l'idler vers le signal et la pompe, entraînant une saturation de l'efficacité de conversion en bout de cristal. Ce résultat confirme les observations expérimentales où deux cristaux GaSe d'épaisseurs $0,75\ mm$ et $1,0\ mm$ produisaient un idler d'énergie similaire (cf figure 2.34). Dans nos conditions expérimentales, l'efficacité obtenue est plutôt de 1%, une valeur qui pourrait s'expliquer en partie par l'usure du cristal GaSe mais aussi par l'incertitude

sur la qualité spatiale du signal et de la pompe (homogénéité de l'intensité, phase spatiale et recouvrement des deux faisceaux). De façon générale, la simulation semble indiquer des performances satisfaisantes pour l'étage de DFG.

Pour des raisons de tolérance spectrale, la caractérisation temporelle d'impulsions courtes sur une vaste gamme de longueurs d'onde (ici de $5\ \mu m$ à $13\ \mu m$) peut s'avérer difficile en utilisant des méthodes basées sur une interaction non linéaire en $\chi^{(2)}$ ou en $\chi^{(3)}$ (SHG, THG, réseau transitoire, rotation de polarisation). Basée sur le phénomène d'absorption transitoire, la technique FROSt [88] (cf annexe C) permet de s'affranchir des contraintes liées à la tolérance spectrale à travers une mesure d'absorption linéaire du signal. La figure 2.37 montre le montage FROSt réalisé pour mesurer la durée des impulsions MIR. Après l'étage de DFG, les impulsions idler sont séparées des résidus de signal et de pompe grâce à un filtre interférentiel passe-haut à partir de $2500\ nm$ (Spectrogon, LP 2500). Le signal, réfléchi par le filtre, traverse une ligne à retard avant d'être doublé à $\sim 1\ \mu m$ dans un cristal de BBO. Après filtrage du résidu non converti à $2\ \mu m$ par deux miroirs haute réflexion $920 - 1150\ nm$, les impulsions d'environ $100\ \mu J$ à $1\ \mu m$ sont finalement focalisées dans le cristal du FROSt par une lentille de focale $f = +200\ mm$ afin de provoquer une absorption transitoire. Sur l'autre bras du montage, les impulsions MIR sont focalisées dans le cristal par une parabole de focale $RFL = 50\ mm$ et le spectre de sortie est collecté dans un monochromateur (cf annexe B). La mesure du spectre pour différents délais entre l'idler et l'impulsion à $1\ \mu m$ fournit un spectrogramme contenant les propriétés temporelles de l'impulsion. On précisera que, pour respecter la plage de transparence des cristaux, du Silicium a été utilisé pour $\lambda_{idler} < 10\ \mu m$ et du Germanium pour $\lambda_{idler} > 10\ \mu m$.

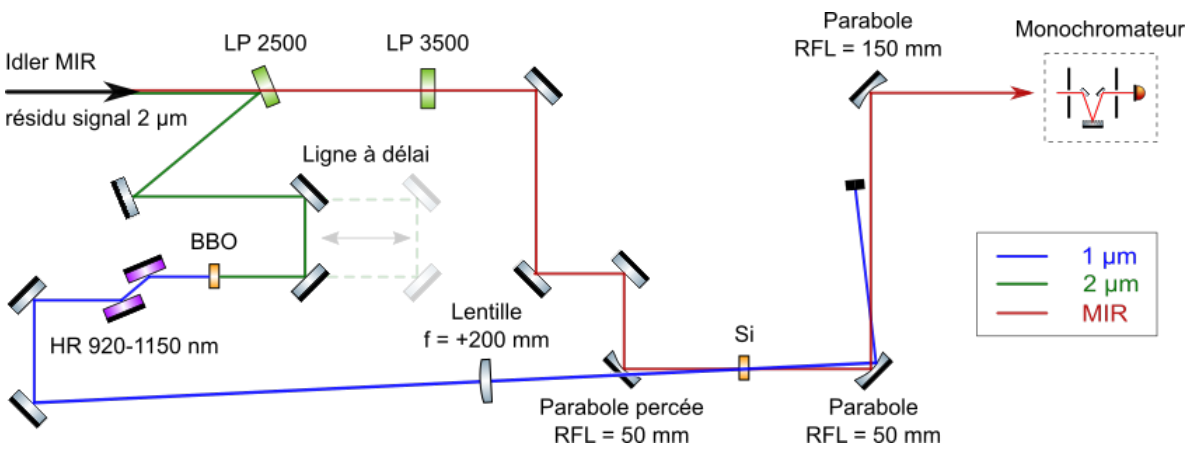


Figure 2.37 : Montage expérimental de caractérisation FROSt, avec LP 2500/3500 des filtres interférentiels passe-haut 2500/3500 nm, HR 920-1150 des optiques réflectives entre 920 nm et 1150 nm et Si un cristal de Silicium.

La figure 2.38 montre les traces FROSt expérimentales des différents spectres idler présentés plus tôt dans cette section, ainsi que leurs reconstructions temporelles respectives obtenues par un algorithme de ptychographie [88]. Les résultats rapportent des durées comprises entre $45\ fs$ à $117\ fs$, soit $1,3$ à $6,4$ cycles optiques (cf tableau de la figure 2.35 pour le détail des valeurs numériques).

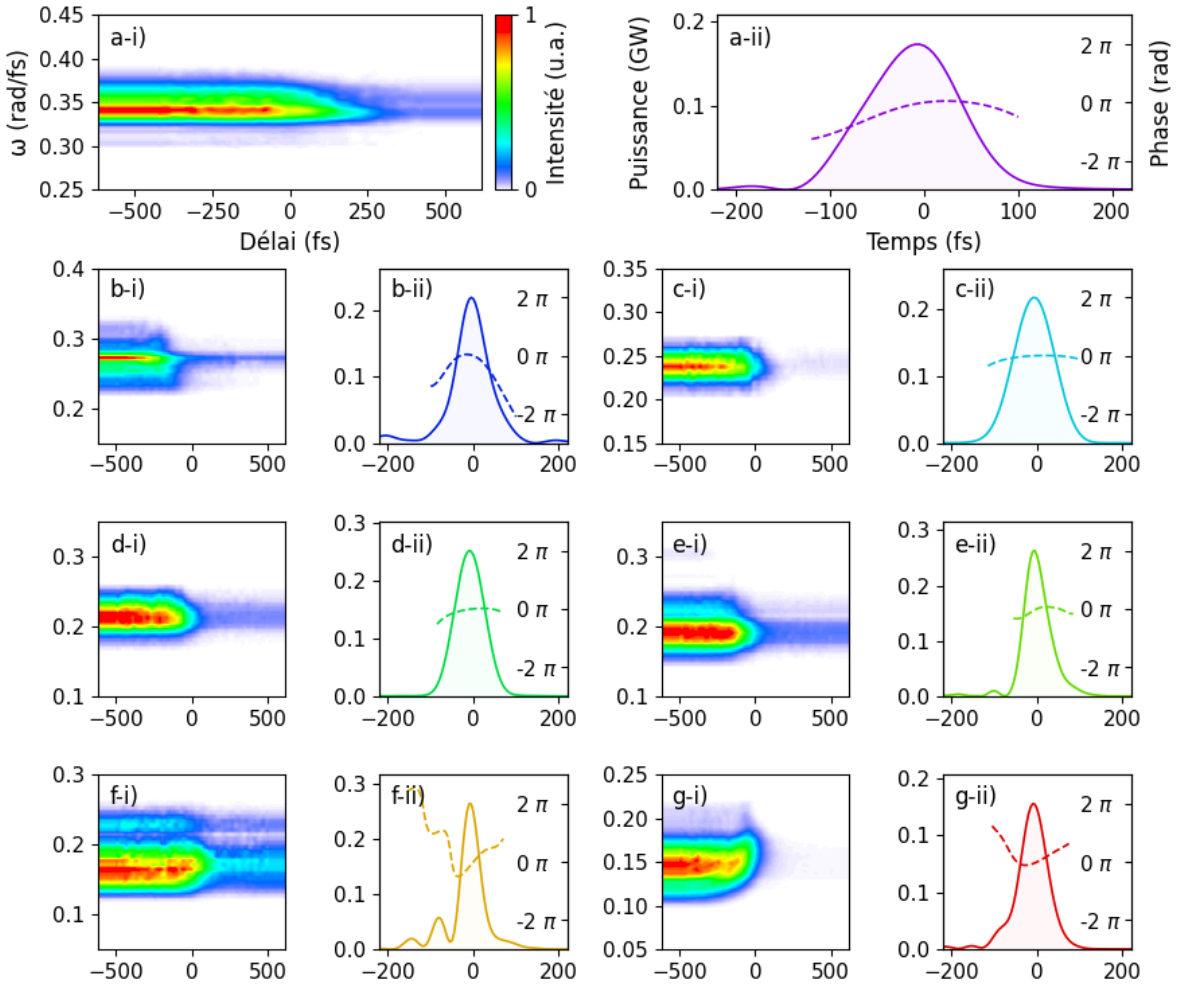


Figure 2.38 : i) Traces FROSt expérimentales et ii) reconstructions temporelles pour a-g) différentes longueurs d'onde d'émission de la source MIR. La phase temporelle est tracée en pointillés et le code couleur fait référence à celui de la figure 2.35.

Dans ce régime de fonctionnement, la porteuse du champ électrique varie rapidement par rapport à l'enveloppe temporelle de l'impulsion. La phase entre l'enveloppe et la porteuse (CEP) a donc une influence non négligeable sur l'allure du champ électrique et sur la puissance-crête, deux paramètres déterminants pour l'interaction du laser avec la matière. Lors du processus d'amplification paramétrique optique et pour un accord de phase parfait, la phase de l'idler s'exprime en fonction des phases du signal et de la pompe par la relation [89] :

$$\varphi_{idler} = \varphi_{pompe} - \varphi_{signal} - \pi/2 \tag{2.44}$$

Dans nos conditions expérimentales, la source Titane:Saphir n'est pas stabilisée en CEP et subit en permanence des fluctuations de phase aléatoires. À l'intérieur du TOPAS, le signal vers $1450\ nm$ (issu d'une génération de continuum) et la pompe à $800\ nm$ sont toutefois identiquement affectés par ce déphasage. En injectant la fluctuation de phase dans l'équation 2.44, il apparait dans l'équation 2.45 que la phase de l'idler à $1,75\ \mu m$ est théoriquement constante.

$$\varphi_{idler}(t) = \left[\varphi^{(0)}_{pompe} + \Delta\varphi_{CEP}(t)\right] - \left[\varphi^{(0)}_{signal} + \Delta\varphi_{CEP}(t)\right] + \pi/2 = \varphi^{(0)}_{idler} \tag{2.45}$$

avec $\varphi^{(0)}_{pompe}$, $\varphi^{(0)}_{signal}$ et $\varphi^{(0)}_{idler}$ la phase à l'ordre 0 de la pompe, du signal et de l'idler, et $\Delta\varphi_{CEP}(t)$ la fluctuation de phase de l'oscillateur Ti:Sa.

Un phénomène identique est produit dans l'étage de DFG en sortie du FOPA. Ainsi, même dans l'hypothèse d'une source non stabilisée en CEP en entrée de fibre à cœur creux (par exemple en utilisant le signal amplifié du TOPAS plutôt que l'idler), la CEP de l'impulsion MIR serait passivement stabilisée par compensation des fluctuations de phase du signal et de la pompe. Cette propriété démontre une fois de plus l'intérêt de cette architecture optique pour les sources picosecondes de forte énergie (Ytterbium, Holmium) non stabilisées en CEP.

Outre la stabilisation passive de la CEP, l'architecture de la source apporte aussi un réglage fin et reproductible de la CEP grâce à la rotation de la lame à faces parallèles située dans le plan de Fourier du FOPA. La phase de l'idler devient alors :

$$\varphi_{idler} = \varphi^{(0)}_{pompe} + \varphi^{(0)}(\theta) \tag{2.46}$$

avec (θ) l'angle de la fenêtre transparente dans le plan de Fourier du FOPA.

Dans la pratique, la phase de l'idler est entachée d'un bruit lié aux perturbations de l'environnement (flux d'air, vibrations, etc). Actuellement, l'interférométrie f-$2f$ [90] est la méthode la plus répandue pour quantifier les fluctuations de CEP tir à tir. Pour s'affranchir des contraintes liées à l'accord de phase lors du doublage de fréquence, une méthode alternative basée sur le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) en milieu solide a été développée par l'INRS en 2020 [91]. La HHG étant fortement dépendante de la CEP en régime d'impulsions de quelques cycles optiques, le principe de la mesure consiste dans un premier temps à mesurer par moyennage une référence de spectre HHG en fonction de la CEP puis à comparer les spectres HHG tir à tir à cette référence afin de retrouver la fluctuation de CEP.

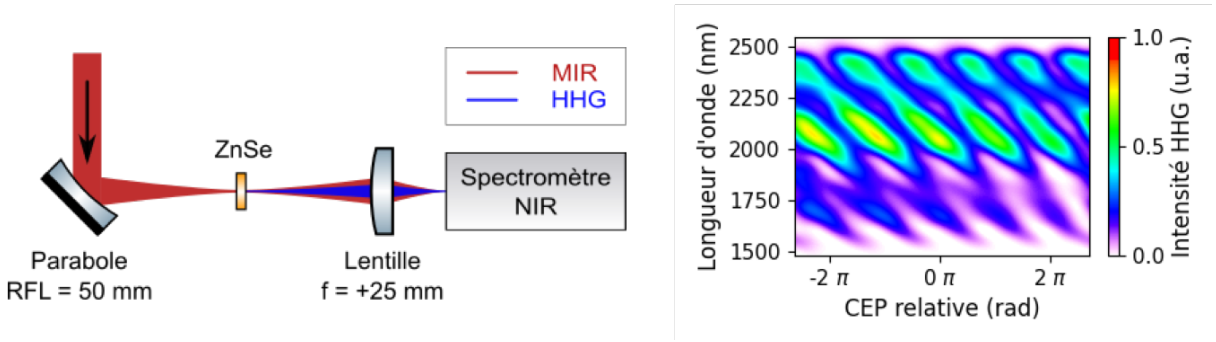


Figure 2.39 : A gauche, montage expérimental de caractérisation de la CEP d'impulsions MIR par mesure du spectre HHG dans un polycristal de ZnSe d'épaisseur 0,5 mm. À droite, spectre HHG (moyenné 100 fois) en fonction de la CEP d'impulsions MIR centrées à 10 μm.

La figure 2.39 montre le montage expérimental réalisé pour la caractérisation en CEP de la source MIR accordable. Les impulsions MIR sont d'abord focalisées dans un échantillon polycristallin de Séléniure de Zinc (ZnSe) d'épaisseur $500\ \mu m$ pour générer des harmoniques

dans l'infrarouge proche. Ces harmoniques sont ensuite focalisées par une lentille de focale $f = +25\ mm$ dans la fente d'entrée d'un spectromètre commercial (Ocean Optics, NIR256-2.5). En raison de la différence de longueur d'onde, la divergence des harmoniques est différente de celle des impulsions MIR, si bien que l'utilisation d'une lentille de courte focale suffit à filtrer une grande partie des composantes spectrales MIR à l'entrée du spectromètre.

Sous sa forme polycristalline, le ZnSe est isotrope à l'échelle macroscopique. Par conséquent, le processus de HHG est identique pour deux champs électriques en opposition de phase, soit une périodicité de π radians sur le spectre HHG généré. Pour des impulsions de l'ordre de 2 cycles optiques, le spectre HHG dans ZnSe se présente sous la forme de pics harmoniques dont la longueur d'onde défile distinctement avec la CEP (cf figure 2.39). Dans ce régime de fonctionnement, la corrélation d'un spectre monocoup avec la référence moyennée est particulièrement efficace, ce qui permit en 2020 de valider le fonctionnement de la méthode dans un cas favorable [91]. Lors de ces travaux, la fluctuation en CEP des impulsions MIR à $9,5\ \mu m$ avait été quantifiée à $\sim 370\ mrad\ RMS$, avec un résultat indépendant du niveau de CEP moyen (réglé par l'orientation de la fenêtre dans le plan de Fourier).

La figure 2.40 montre une caractérisation réalisée dans des conditions moins favorables, aux longueurs d'onde extrêmes d'émission de la source MIR accordable. Vers $6\ \mu m$, la durée d'impulsion atteint 5 à 6 cycles optiques et le centrage des pics harmoniques devient moins sensible à la CEP (panneau *a*). Bien que très faibles, les modulations s'avèrent suffisantes pour retrouver la CEP tir à tir par minimisation de l'erreur quadratique moyenne entre le spectre monocoup et la référence moyennée (panneau *b*). L'histogramme sur 8000 tirs (panneau *c*) montre une fluctuation de la CEP de $364\ mrad\ RMS$, soit un résultat très similaire à la première expérience réalisée à $9,5\ \mu m$.

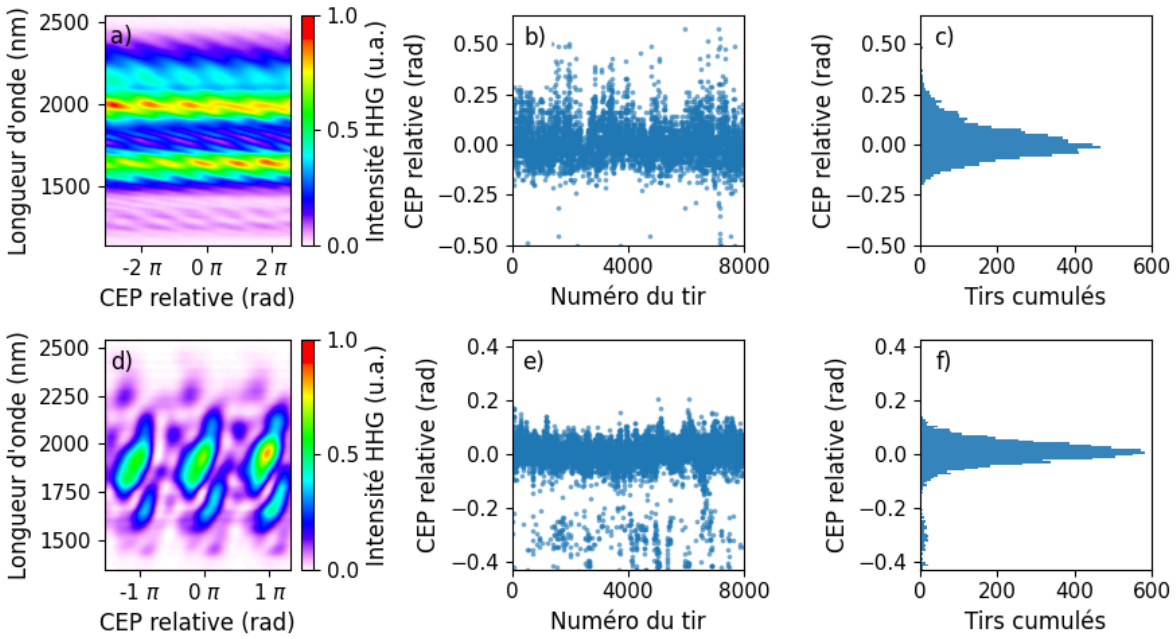


Figure 2.40 : Caractérisation de la CEP à $6\ \mu m$ (en haut) et $13\ \mu m$ (en bas) avec de gauche à droite le spectre HHG moyenné 100 fois en fonction de la CEP en valeur relative, la valeur de CEP tir à tir et l'histogramme de la CEP.

Pour une émission à $13\ \mu m$, la durée d'impulsion est proche du cycle optique et l'influence de la CEP se traduit davantage par une variation d'intensité que par un défilement des pics harmoniques (panneau *d*), il devient alors impossible de décorréler les contributions respectives de la CEP et de l'énergie. En d'autres termes, la correction de l'instabilité en énergie du laser par normalisation des spectres lors du calcul de corrélation détruit une partie de l'information liée à la fluctuation de la CEP. Dans ces conditions, l'algorithme retourne une stabilité en CEP de $80\ mrad\ RMS$, un chiffre qui semble grandement sous-estimé au regard des résultats obtenus sur la même source à $6\ \mu m$ et à $9,5\ \mu m$. Cette impression est confortée par l'état de l'art de la DFG intra-impulsion, avec notamment les travaux de Ishii en 2019 [92] qui rapportent une stabilité en CEP de $\sim 100\ mrad\ RMS$ sur des impulsions à $\sim 3\ \mu m$, déjà jugée comme excellente. En l'état, la méthode de caractérisation par HHG permet donc de quantifier facilement et avec une bonne répétabilité les fluctuations de CEP d'impulsions de quelques cycles optiques, avec une limite d'utilisation estimée aux alentours de $1,5$ cycle optique. Il serait toutefois envisageable de repousser ce seuil en couplant l'acquisition spectrale à une mesure d'énergie tir à tir afin d'isoler plus efficacement la contribution de la CEP.

2.2.7 Discussions sur la source MIR accordable

Pour résumer les résultats de ce chapitre, une source laser intense de quelques cycles optiques, accordable entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$, a été développée à partir d'une architecture innovante d'amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences. Les impulsions de $\sim 20\ \mu J$ ont été caractérisées temporellement par une technique développée à l'INRS en 2019, baptisée FROSt, qui permet l'obtention d'un spectrogramme par une interaction linéaire et sans accord de phase. La puissance-crête du laser, de l'ordre de $0,2\ GW$, permet d'atteindre après focalisation des intensités supérieures à $10^{11}\ W/cm^2$, soit suffisamment pour piloter des processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) dans les semi-conducteurs. La phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique (CEP) est passivement stabilisée par le processus de DFG intra-impulsion et sa valeur est ajustable par le contrôle du délai relatif entre signal et pompe (de la DFG) dans le plan de Fourier du FOPA. Les fluctuations de CEP ont été quantifiées à $\sim 370\ mrad\ RMS$ par une méthode de caractérisation inédite basée sur la mesure du spectre HHG en milieu solide. Bien que la méthode de caractérisation par HHG se soit révélée inadaptée aux impulsions très courtes (de l'ordre de 1 cycle optique), la stabilité en CEP de la source semble globalement indépendante du réglage de CEP et de la longueur d'onde d'émission.

Dans ces travaux, la source MIR a été réalisée à partir d'un laser Titane:Saphir délivrant des impulsions de $45\ fs$ à $800\ nm$. Le signal étant élargi à une durée picoseconde dans le plan de Fourier du FOPA par l'imagerie $4f$, l'architecture FOPA se montrerait tout à fait adaptée à l'utilisation d'un laser de pompe picoseconde Ytterbium à $1\ \mu m$, voire Holmium à $2\ \mu m$. Le savoir-faire de l'INRS sur la post-compression d'impulsions de plusieurs millijoules dans des fibres à cœur creux permettrait également de réaliser le signal du FOPA à partir de ces mêmes sources et donc de bénéficier de la stabilisation passive de la CEP par DFG intra-impulsion.

2.3 Expérience de génération d'harmoniques d'ordres élevés

2.3.1 Objectif de l'expérience

Le processus d'émission lié à la génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) se produit dans un intervalle de temps inférieur au cycle optique et peut se répéter tous les demi-cycles optiques si l'intensité du champ électrique est suffisante (cf section 1.4). Les propriétés des photons générés par HHG dépendent directement du champ électrique du laser, défini comme :

$$\mathcal{E}(t) \propto \frac{1}{2}\sqrt{I(t)}\, exp\left[i\omega_0 t + \phi(t)\right] \tag{2.47}$$

avec $I(t)$ le profil d'intensité temporel, $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ la pulsation, λ_0 la longueur d'onde centrale de l'impulsion et $\phi(t)$ la phase temporelle.

Pour une durée d'impulsion donnée, la longueur d'onde influence fortement l'allure du champ électrique et sa sensibilité au paramètre de phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique (CEP). La figure 2.41 illustre la différence de champ électrique entre deux impulsions centrées à $5\ \mu m$ et $15\ \mu m$ pour une durée d'impulsion de $50\ fs$ à mi-hauteur. À $5\ \mu m$, l'allure du champ électrique et l'amplitude des oscillations sont peu affectées par la CEP. À l'inverse, l'impulsion centrée à $15\ \mu m$ est fortement modifiée par la CEP.

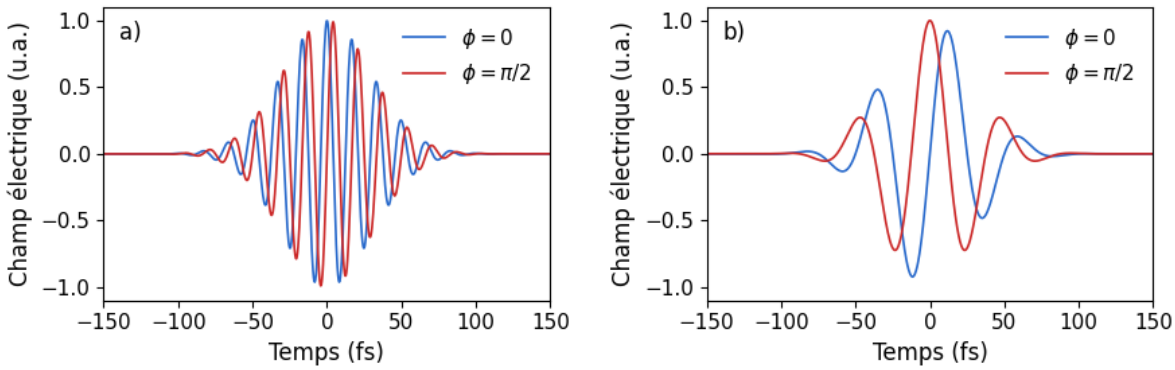


Figure 2.41 : Champ électrique de deux impulsions de 50 fs centrées à a) $5\ \mu m$ et b) $15\ \mu m$ pour des valeurs de CEP de 0 radians (bleu) et $\pi/2$ radians (rouge).

Pour une impulsion longue en termes de cycles optiques, la HHG se manifeste comme une émission périodique d'impulsions courtes et cohérentes tous les demi-cycles optiques. À partir d'une source laser de fréquence fondamentale ν_0, l'interférence entre les impulsions issues de la HHG conduit à un spectre périodique, dont la période $2\nu_0$ est imposée par les propriétés mathématiques de la transformation de Fourier.

Pour une impulsion fondamentale de quelques cycles optiques, le champ électrique du laser ne peut plus être considéré comme périodique et le spectre harmonique devient alors sensible à la phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique (CEP). À notre connaissance, la dépendance du processus de HHG avec la CEP a déjà été étudiée pour des impulsions de quelques cycles optiques [48], mais pas la transition entre le régime multi-cycles et mono-cycle.

L'objectif de cette section consiste à utiliser la source MIR intense développée dans ce chapitre afin de piloter des processus de HHG en milieu solide par des impulsions de différentes durées (en termes de cycles optiques) et d'observer cette transition.

2.3.2 Résultats et discussions

A partir du montage expérimental de la figure 2.39, une expérience de HHG a été conduite dans un échantillon de ZnSe polycristallin d'épaisseur $0,5\ mm$ avec des longueurs d'onde fondamentales centrées à $6\ \mu m$, $9\ \mu m$, $12\ \mu m$ et $13,5\ \mu m$, soit des durées d'impulsion comprises entre environ 6 et $1,5$ cycles optiques d'après la caractérisation de la figure 2.35. Pour chacune de ces configurations, un balayage de CEP a été effectué par déphasage de la pompe dans le plan de Fourier du FOPA (cf section 2.2.6) afin d'observer l'influence de la CEP sur le spectre harmonique. La figure 2.42 montre les spectres HHG récoltés entre $1000\ nm$ et $2500\ nm$ avec un spectromètre Ocean Optics NIR256-2.5.

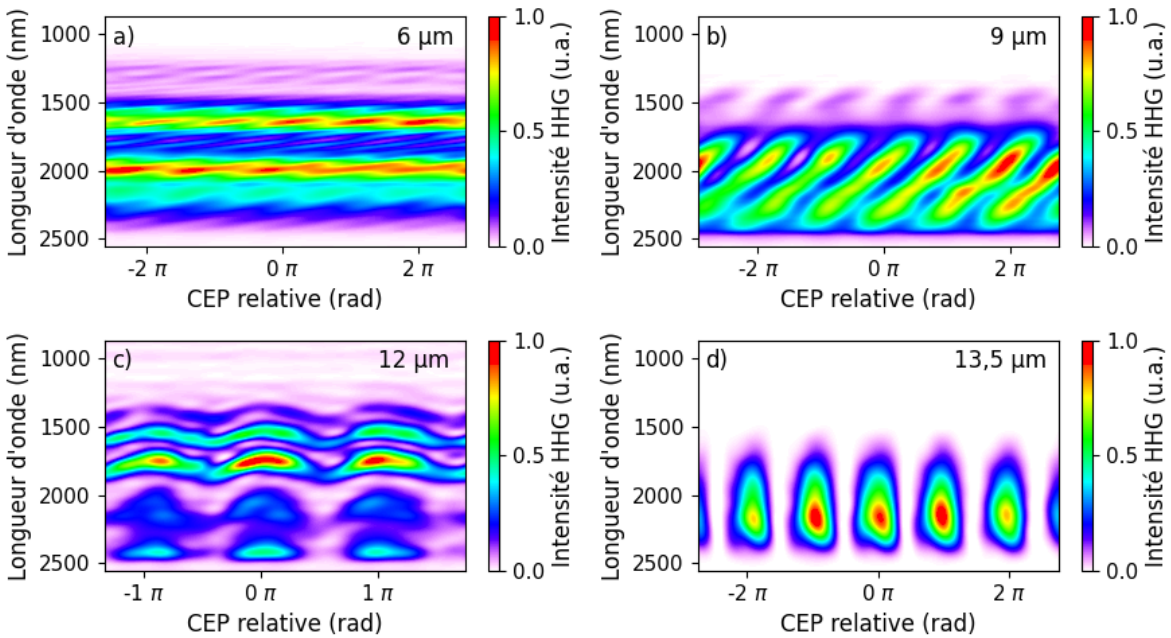


Figure 2.42 : Evolution du spectre HHG en fonction de la CEP dans un polycristal de ZnSe d'épaisseur $0,5\ mm$ pour des longueurs d'onde fondamentales centrées à a) $6\ \mu m$, b) $9\ \mu m$, c) $12\ \mu m$ et d) $13,5\ \mu m$.

Comme attendu, le spectre HHG est peu affecté par la CEP pour une impulsion longue (panneau *a*) car le champ électrique lui-même reste globalement identique (cf figure 2.41). Pour des impulsions plus courtes (panneaux *b*), peu d'oscillations du champ électrique contribuent à l'émission HHG et l'intensité-crète de chaque oscillation du champ varie beaucoup avec la CEP. Dans la plage de détection du spectromètre, l'énergie totale du train d'impulsions HHG reste globalement constante mais l'interférence entre les émissions successives donne lieu à une dérive des pics harmoniques en fonction de la CEP du laser. En régime proche du cycle optique (panneaux *c* et *d*), la dérive des harmoniques disparait progressivement pour laisser

place à un régime binaire où la CEP ne modifie plus le spectre HHG mais détermine l'énergie totale du train d'impulsions.

Dans cette étude, réalisée à partir d'une source Ti:Sa cadencée à $100\ Hz$, le signal harmonique en-dessous de $1000\ nm$ était trop faible pour être détecté par un spectromètre CCD visible. Au-delà de $2500\ nm$, la durée d'acquisition des spectres par le monochromateur était quant à elle trop longue pour permettre une mesure systématique des traces HHG lors des campagnes expérimentales menées au laboratoire ALLS. La figure 2.43 montre l'unique mesure réalisée entre $1,5\ \mu m$ et $6\ \mu m$ (panneau *c*) pour différentes valeurs de CEP d'une impulsion fondamentale centrée à $12\ \mu m$, avec un comportement des harmoniques similaire à celui observé à plus basses longueurs d'onde (cf panneau *c* de la figure 2.42). Malgré la prédominance des harmoniques impaires à $4\ \mu m$, $2,4\ \mu m$ et $1,7\ \mu m$, on mentionnera la présence de signal sur les harmoniques paires à $6\ \mu m$ (peu visible car en limite de la plage de détection), $3\ \mu m$ et $2\ \mu m$.

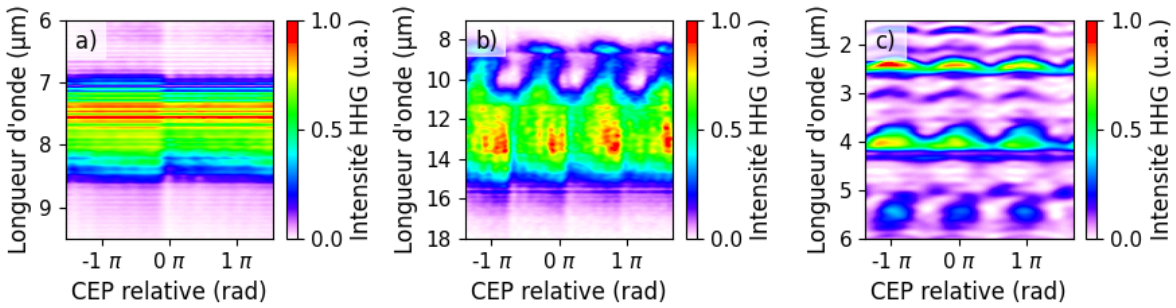


Figure 2.43 : Spectre fondamental à a) $7\ \mu m$ et b) $12\ \mu m$ en fonction de la CEP et c) spectre HHG en fonction de la CEP d'une impulsion fondamentale à $12\ \mu m$.

A $12\ \mu m$, en régime d'impulsion très courte en termes de cycles optiques, le spectre fondamental semble légèrement affecté par le réglage de CEP (panneau *b*). L'absence de ce phénomène à plus basse longueur d'onde vers $7\ \mu m$ (panneau *a*) ou encore $9,5\ \mu m$ (cf figure 1 de la référence [91]) permet toutefois d'affirmer que la dérive des harmoniques est liée à la CEP plutôt qu'à la fluctuation du spectre fondamental.

Pour finaliser cette étude sur la transition entre la HHG en régime multi-cycles et monocycle, des simulations de HHG ciblées sur nos conditions expérimentales seraient nécessaires afin de confirmer les observations expérimentales et d'apporter des éclaircissements sur les phénomènes à l'oeuvre, notamment sur la contribution respective des processus inter-bande et intra-bande ou encore la présence d'harmoniques paires dans les spectres HHG mesurés.

3 SYNTHÈSE D'IMPULSIONS INTENSES DANS L'INFRAROUGE MOYEN PAR DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES DANS L'ESPACE DES FRÉQUENCES

3.1 Contexte

Proposé en 2014 par les équipes de l'INRS, le concept d'amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) [40] permet l'amplification de larges bandes spectrales pour la génération d'impulsions très courtes de l'ordre de quelques cycles optiques. Dans le chapitre 2, une source laser intense accordable entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$ a été développée à partir d'une architecture FOPA et d'un étage d'amplification paramétrique optique (OPA) colinéaire utilisé pour générer un idler par différence de fréquences (DFG). Ces impulsions de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen ont permis de piloter des processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) dans des semi-conducteurs, dans un régime dominé par le processus d'interaction intra-bande [44; 93].

L'objectif de ce chapitre consiste à fabriquer une source intense à plus basse longueur d'onde, vers $3\ \mu m$, là où les harmoniques sont majoritairement inter-bande [44]. Avec un cycle optique de $10\ fs$ à $3\ \mu m$, les sources microjoules de quelques cycles sont à notre connaissance peu nombreuses dans cette gamme spectrale [94; 58; 95; 96; 97]. Ce chapitre met en avant une variante de l'architecture FOPA dans laquelle le processus de DFG est effectué dans le plan de Fourier (FDFG). Grâce à une mise en forme spatio-temporelle de la pompe et du signal par des imageries $2f$, ce concept réduit significativement la limitation de tolérance spectrale liée à l'accord de phase et permet théoriquement la génération d'impulsions MIR de quelques dizaines de femtosecondes. À notre connaissance, il n'existe à ce jour qu'une seule démonstration expérimentale de ce concept en 2016 avec la génération d'impulsions de $53\ fs$ à $3,5\ \mu m$, soit environ 5 cycles optiques [98]. On mentionnera l'existence d'une seconde étude théorique de 2017, basée sur une architecture optique similaire [99].

Ici, une approche originale de FDFG sera proposée avec une optimisation inédite de l'accord de phase d'un cristal de Niobate de Lithium ($LiNbO_3$) à polarisation périodique constante. Un dimensionnement sera présenté sur la base d'une source Titane:Saphir, accompagné des premiers résultats expérimentaux concernant la mise en forme spectrale du signal. L'expérience n'ayant pas pu être achevée durant la thèse, cette étude se conclura par une estimation de l'idler attendu en sortie de FDFG.

3.2 Description de la source MIR

3.2.1 Vue d'ensemble

L'architecture optique est conçue pour fonctionner avec un laser Titane:Saphir (Ti:Sa) délivrant un spectre de largeur $30\ nm$ à mi-hauteur centré à $800\ nm$ avec une énergie de $6\ mJ$ par impulsion. La figure 3.1 montre le schéma global de la source, basée sur une DFG dans l'espace des fréquences (FDFG, cf section 3.2.4). En sortie de chaîne amplificatrice, le faisceau du laser Ti:Sa est d'abord compressé à $45\ fs$ dans un compresseur à réseaux avant d'être réparti sur deux voies par division d'amplitude. Une fraction de $4\ mJ$ à $800\ nm$ est injectée dans une fibre à cœur creux remplie avec du protoxyde d'azote (N_2O) pour produire des impulsions de $0,4\ mJ$ centrées vers $1,1\ \mu m$. Le reste de l'énergie à $800\ nm$ est quant à lui réservé pour le pompage du FDFG.

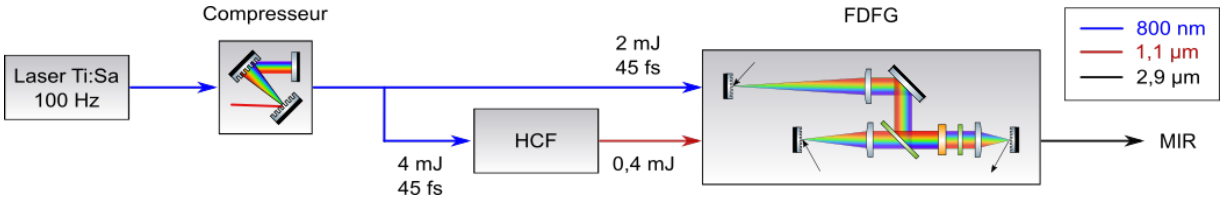


Figure 3.1 : Architecture globale de la source MIR avec HCF une fibre à cœur creux remplie au protoxyde d'azote et FDFG un étage de DFG dans l'espace des fréquences.

Après la conversion de fréquence dans le plan de Fourier du FDFG, la pompe et le signal non convertis sont extraits par un filtre interférentiel passe-haut $1500\ nm$ et les composantes spectrales de l'idler sont recombinées par une imagerie $2f$ pour obtenir des impulsions de quelques cycles optiques vers $3\ \mu m$.

3.2.2 Accord de phase

Au centre du FDFG, l'amplification paramétrique optique est réalisée par quasi-accord de phase [100] dans un cristal de Niobate de Lithium polarisé périodiquement (PPLN) d'ouverture $10,9 \times 1,0\ mm$ et d'épaisseur $0,5\ mm$. Grâce à un coefficient de non linéarité relativement élevé $D_{eff} \sim 15\ pm/V$ [101] et une plage de transparence entre $0,4\ \mu m$ et $5,5\ \mu m$, ce matériau s'adapte parfaitement à la génération d'impulsions courtes vers $3\ \mu m$ par DFG à partir d'une source Ti:Sa à $800\ nm$.

La figure 3.2 montre la courbe d'accord de phase d'un PPLN de période $21,2\ \mu m$ et d'épaisseur $0,5\ mm$, calculée à partir du logiciel libre *SPDCalc.org*. Pour une longueur d'onde de pompe donnée, l'épaisseur de la courbe traduit le fait que la tolérance spectrale de l'accord de phase est limitée. Dans les architectures d'OPA classiques, l'exploitation des points d'inflexion de la courbe d'accord de phase permet de maximiser la largeur spectrale convertie lors de l'am-

plification paramétrique. Le concept de DC-OPA [39] (*Dual-Chirped OPA*) offre une approche plus large-bande grâce à une dispersion temporelle du signal et de la pompe, dimensionnée pour maintenir un accord de phase optimal à chaque instant. Le FDFG repose sur un fonctionnement analogue mais avec une dispersion des composantes spectrales dans le domaine spatial. On précisera que, dans un FDFG, la durée d'impulsion est élargie à une valeur de l'ordre de la picoseconde par distorsion spatio-temporelle dans les imageries $2f$, réduisant la puissance-crête tout en limitant les problèmes liés à la dispersion de vitesse de groupe. Dans les références [98] et [99], un PPLN à gradient de période (ou type "éventail") est utilisé pour décaler la courbe d'accord de phase le long du plan de Fourier d'un FDFG. Ici, une architecture originale est proposée à partir d'un PPLN de période constante, où les composantes spectrales de la pompe et du signal sont dispersées pour épouser la courbe d'accord de phase en chaque point du plan de Fourier.

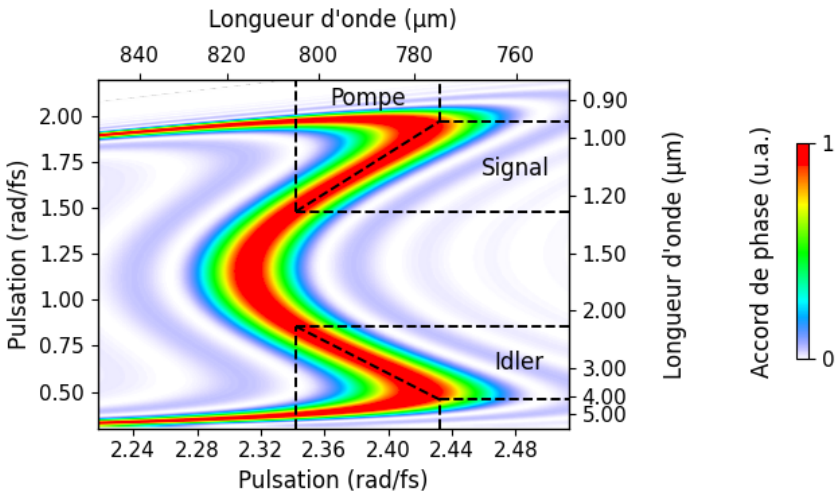


Figure 3.2 : Accord de phase dans un PPLN de période $21,2\ \mu m$ et d'épaisseur $0,5\ mm$ à température ambiante. Les données sont tirées du logiciel libre "SPDCalc.org".

Grâce à cette technique, il est possible de dépasser la limite de tolérance spectrale d'accord de phase du matériau sans avoir recours à un cristal inhomogène dans le plan transverse à la propagation. En disposant d'une pompe de largeur spectrale $50\ nm$ à mi-hauteur, l'accord de phase du PPLN permettrait théoriquement la génération de longueurs d'onde idler entre $1,5\ \mu m$ et $4,5\ \mu m$. Dans la pratique, en considérant le spectre expérimental mesuré sur la pompe Ti:Sa du laboratoire ALLS (cf figure 2.28), l'idler attendu pour ces travaux est plutôt compris entre $2,2\ \mu m$ et $4,1\ \mu m$ et requiert un spectre signal entre $0,95\ \mu m$ et $1,27\ \mu m$ (cf figure 3.2).

3.2.3 Mise en forme spectrale du signal

Après compression à une durée de $45\ fs$, le faisceau issu de la source Ti:Sa à $800\ nm$ est injecté dans une fibre à cœur creux de diamètre $0,5\ mm$ et de longueur $2\ m$ remplie avec $1\ bar$ de protoxyde d'azote (N_2O) afin d'y générer de nouvelles composantes spectrales par propagation non linéaire. Les basses longueurs d'onde, inutiles à la DFG, sont retirées par

un filtre interférentiel passe-haut $950\ nm$. La figure 3.3 montre le spectre mesuré après la propagation dans la fibre et le filtrage spectral, avec une énergie par impulsion de $0,4\ mJ$.

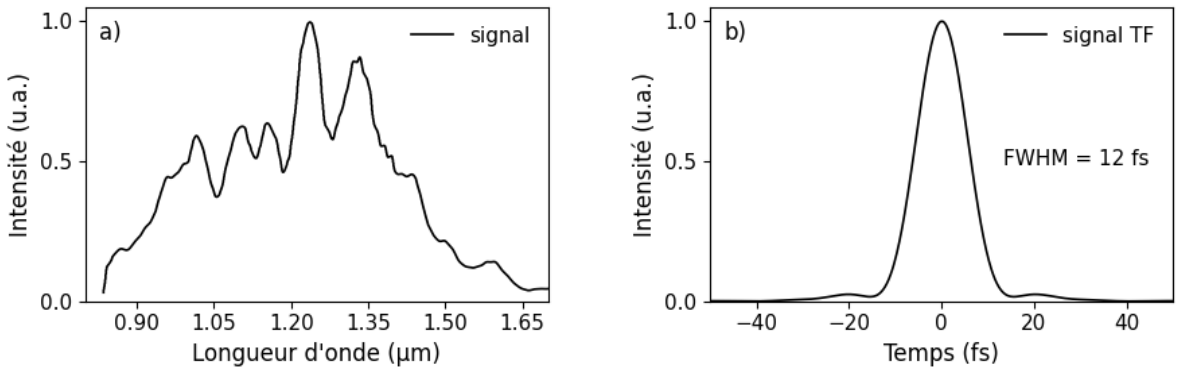


Figure 3.3 : a) Spectre signal après propagation dans la fibre à cœur creux remplie et filtrage des basses longueurs d'onde par un filtre interférentiel passe-haut 950 nm, b) durée d'impulsion en limite de Fourier.

Pour compenser la dispersion liée à la propagation dans la fibre à cœur creux, les impulsions sont comprimées dans une fenêtre de CaF_2 d'épaisseur $1\ mm$ après le filtre interférentiel. Dans ces conditions, la caractérisation temporelle par SHG-FROG rapporte une durée d'impulsion de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes, soit l'équivalent de la limite de Fourier.

3.2.4 Architecture de DFG dans l'espace des fréquences

Le principe de la DFG dans l'espace des fréquences consiste à disperser spatialement une pompe et un signal dans un même plan de Fourier pour y générer un spectre idler par DFG. La figure 3.4 montre un schéma de l'architecture du FDFG, constituée de trois lignes d'imagerie $2f$ indépendantes dédiées à la mise en forme spatio-temporelle de la pompe, du signal et de l'idler.

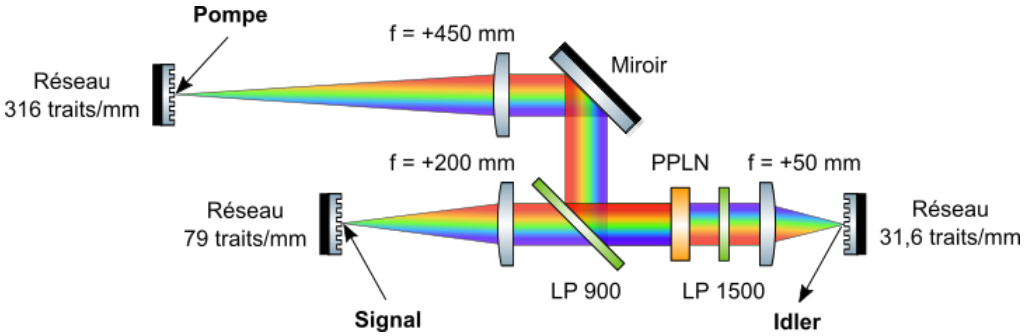


Figure 3.4 : Architecture de DFG dans un plan de Fourier avec PPLN un cristal de Niobate de Lithium polarisé périodiquement et LP 900/1500 des filtres interférentiels passe-haut à respectivement 900 nm et 1500 nm.

Chaque ligne $2f$ est composée d'un réseau de diffraction et d'une lentille sphérique convergente, et les trois plans de Fourier sont confondus dans le plan du PPLN d'épaisseur $0,5\ mm$ et de période $21,2\ \mu m$. En amont du plan de Fourier, les faisceaux de pompe et de signal sont

combinés à l'aide d'un filtre passe-haut $900\ nm$. En aval, après la DFG, l'idler est séparé de la pompe et du signal non convertis par un filtre passe-haut $1500\ nm$.

La principale difficulté de cette architecture réside dans le dimensionnement de la dispersion des impulsions pour assurer à la fois l'accord de phase en chaque point du plan de Fourier, le recouvrement spatio-temporel des faisceaux et une recombinaison efficace des composantes spectrales de l'idler.

3.2.5 Dispersion et recombinaison des composantes spectrales

En approximation matricielle (cf section 2.1), la dispersion des composantes spectrales par une imagerie $2f$ engendre une distribution linéaire des fréquences optiques dans le plan de Fourier, soit :

$$\nu(x) = \nu_0 + \beta \tag{3.1}$$

avec $\nu = c/\lambda$ la fréquence, ν_0 la fréquence centrale, x la position relative dans l'axe de dispersion et β le coefficient de dispersion linéaire.

En admettant une DFG régie par la loi de conservation d'énergie (cf équation 2.43), la distribution des spectres de pompe, signal et idler dans le plan de Fourier s'exprime par :

$$\begin{cases} \nu_{pompe}(x) = \nu_{0\,pompe} + \beta_{pompe} \\ \nu_{signal}(x) = \nu_{0\,signal} + \beta_{signal} \\ \nu_{idler}(x) = \nu_{0\,idler} + \beta_{idler} \\ \nu_{idler}(x) = \nu_{pompe}(x) - \nu_{signal}(x) \end{cases} \tag{3.2}$$

Soit :

$$\nu_{idler}(x) = [\nu_{0\,pompe} + \beta_{pompe}] - [\nu_{0\,signal} + \beta_{signal}] = \nu_{0\,idler} + \beta_{idler} \tag{3.3}$$

Et, par association :

$$\beta_{idler} = \beta_{pompe} - \beta_{signal} \tag{3.4}$$

D'après l'équation 3.4, une dispersion spatiale linéaire des fréquences optiques de la pompe et du signal dans le PPLN engendre intrinsèquement une distribution linéaire des fréquences de l'idler à travers le processus de DFG. En d'autres termes, les composantes spectrales de l'idler peuvent être recombinées par une imagerie $2f$.

En considérant le dimensionnement présenté précédemment dans la figure 3.4, le tableau 3.1 fournit les propriétés spatio-temporelles attendues de la pompe, du signal et de l'idler. Ces résultats sont calculés à partir d'une modélisation Kostenbauder (cf section 2.1) dans l'approximation de distributions d'intensité gaussiennes. Les spectres et les diamètres incidents (ϕ_{ext}) sont définis respectivement à mi-hauteur et à $1/e^2$. Pour l'idler, le diamètre de sortie (ϕ_{ext}) a été fixé en tant que paramètre d'entrée de la simulation pour obtenir un diamètre dans le plan de Fourier ($2\,w_y$) équivalent à celui du signal.

	Pompe	**Signal**	**Idler**
Spectre	$775 - 805\ nm$	$950 - 1270\ nm$	$2200 - 4200\ nm$
Période réseau	$316\ traits/mm$	$79\ traits/mm$	$31,6\ traits/mm$
Angle réseau	$+\ 25,5\ ^o$	$-\ 35\ ^o$	$+\ 24\ ^o$
Focale lentille	$+\ 450\ mm$	$+\ 200\ mm$	$+\ 75\ mm$
ϕ_{ext}	$8,0\ mm$	$7,0\ mm$	$7,5\ mm$
$2\,w_x$	$9,89\ mm$	$9,87\ mm$	$9,88\ mm$
$2\,w_y$	$57\ \mu m$	$40\ \mu m$	$40\ \mu m$
$2\,\tau$	$4,3\ ps$	$1,47\ ps$	$1,61\ ps$

Tableau 3.1 : Dimensionnement du FDFG avec ϕ_{ext} le diamètre en entrée/sortie, $2\,w_x$ et $2\,w_y$ l'étalement spatial à $1/e^2$ dans le plan de Fourier le long des axes respectivement dispersé et non dispersé et $2\,\tau$ la durée d'impulsion au centre du plan de Fourier.

La différence de longueur d'onde entre le signal, la pompe et l'idler implique une forte asymétrie entre les couples réseau-lentille de chaque ligne d'imagerie $2f$. Le dimensionnement étant à la fois contraint par la valeur de dispersion et par la superposition spatio-temporelle des impulsions, il est impossible de faire coïncider parfaitement le profil spatial et la durée des trois impulsions. Dans notre cas, les propriétés spatio-temporelles du signal et de l'idler ont été égalisées autant que possible, et la pompe a été dimensionnée avec une taille et une durée légèrement supérieures à celles des autres impulsions afin de tenir compte du rétrécissement par le gain lié à la nature non uniforme des distributions d'intensité expérimentales.

3.2.6 Estimation du spectre idler

Dans nos conditions expérimentales, l'intensité de la pompe est limitée par le seuil de dommage du Niobate de Lithium, de l'ordre de $470\ mJ/cm^2$ en régime picoseconde [102]. En considérant une extension spatiale elliptique de $9,89\ mm \times 0,057\ mm$ dans le plan de Fourier, l'énergie de la pompe est donc limitée à environ $2\ mJ$. Bien que l'intensité du signal ne soit qu'un ordre de grandeur en-dessous de celle de la pompe, l'estimation du spectre idler généré par DFG sera réalisée dans l'approximation du gain paramétrique à petit signal, où l'intensité du signal amplifié est proportionnelle au produit des spectres de pompe et de signal. Un photon idler étant généré pour chaque photon signal amplifié, l'intensité de l'idler en chaque point du plan de Fourier est alors donnée par :

$$\begin{cases} I_{idler}(x) \propto I_{pompe}(x) \times I_{signal}(x) \\ \omega_{idler}(x) = \omega_{pompe}(x) - \omega_{signal}(x) \end{cases} \tag{3.5}$$

avec x la position le long de l'axe dispersé dans le plan de Fourier et $\omega = 2\pi c/\lambda$ la pulsation.

A partir de ce système d'équations, la figure 3.5 montre une estimation de l'idler (en noir) généré par DFG dans le PPLN. L'intensité de l'idler dans le plan de Fourier (panneau *a*) est

calculée via la première équation du système 3.5 à partir des spectres expérimentaux de pompe (en bleu) et de signal (en rouge), dispersés dans le plan du PPLN par leurs imageries $2f$ respectives (panneau *b*). Le spectre idler (panneau *c*) est quant à lui reconstruit par conversion de l'axe spatial en axe fréquentiel grâce à la seconde équation du système 3.5. En supposant une recombinaison parfaite des composantes spectrales en sortie de FDFG et une compensation de la dispersion induite par la propagation dans le PPLN ($-200\ fs^2$ pour $0,5\ mm$ de $LiNbO_3$ [103]), la limite de Fourier (panneau *d*) indique une durée théorique de $23\ fs$ à mi-hauteur, soit $2,5$ cycles optiques pour un idler centré vers $2,7\ \mu m$.

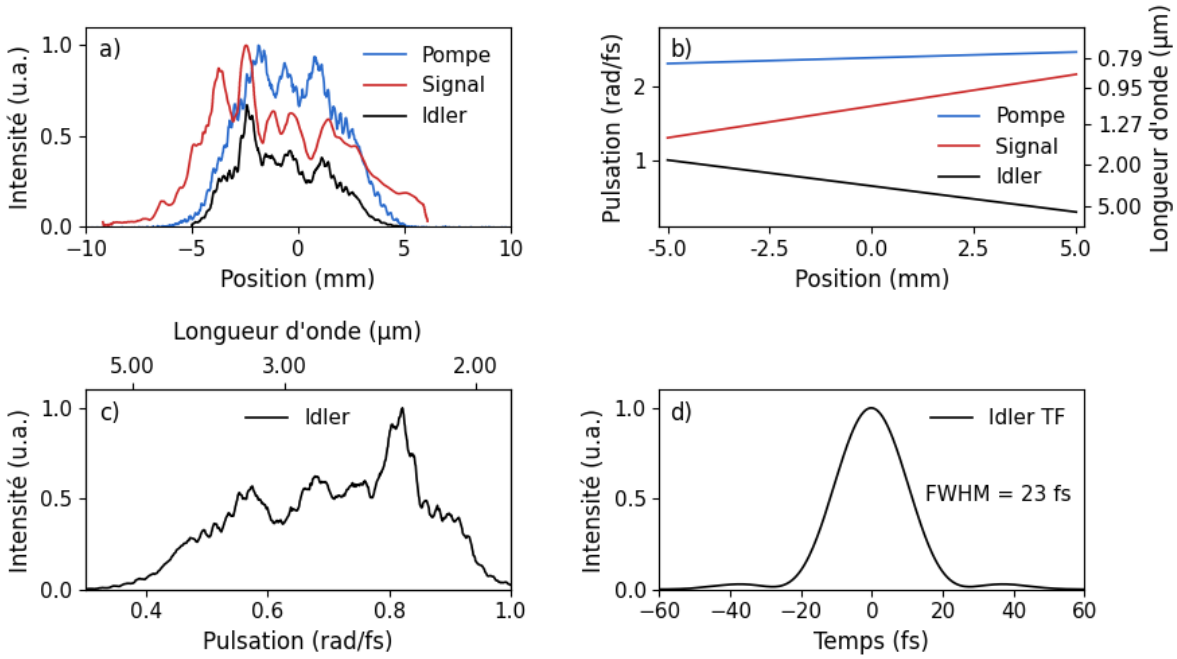


Figure 3.5 : Simulation de DFG dans l'espace des fréquences avec a-b) la distribution des spectres de pompe (bleu), signal (rouge) et idler (noir) dans le PPLN, c) le spectre de l'idler et d) la durée d'impulsion de l'idler en limite de Fourier.

Dans cette estimation, l'accord de phase est considéré constant pour toutes les longueurs d'onde. On précisera toutefois que, d'après la courbe d'accord de phase du PPLN (cf figure 3.2), une chute de l'efficacité de conversion est attendue expérimentalement pour les longueurs d'onde au-delà de $4\ \mu m$, avec potentiellement une réduction du spectre idler dans les basses fréquences. Malgré cette considération, l'étude démontre pleinement le potentiel des architectures optiques FDFG pour la génération d'impulsions de quelques cycles optiques vers $3\ \mu m$ à partir d'un PPLN de période constante.

3.3 Discussions

Dans ce chapitre, une architecture optique de DFG dans l'espace des fréquences (FDFG) a été présentée pour générer des impulsions intenses à $2,7\ \mu m$. Ces travaux montrent la possibilité de dépasser la limitation spectrale d'accord de phase d'un PPLN à période fixe en dispersant spatialement les composantes spectrales de la pompe et du signal impliquées

dans le processus de DFG, à l'instar du fonctionnement d'un DC-OPA [39] dans le domaine temporel. La linéarité de la dispersion spatiale de l'idler a été démontrée, justifiant la possibilité d'une recombinaison de l'impulsion par une imagerie $2f$.

A partir d'une source Titane:Saphir à $800\ nm$, les premiers résultats expérimentaux concernant la production des impulsions de pompe et de signal ont permis de dimensionner un montage de FDFG et de formuler une prévision théorique de $23\ fs$ pour la durée d'impulsion de l'idler, soit $2,5$ cycles optiques. Bien que l'expérience n'ait pas pu être menée à terme avant la fin de la thèse, l'étude montre la possibilité de générer sur un seul étage d'amplification paramétrique des impulsions très courtes, sans ajout d'un module non linéaire de post-compression. Ici limitée par la largeur spectrale de la pompe ($30\ nm$), la conversion dans le Niobate de Lithium pourrait supporter une pompe $50\ nm$ et produire un spectre idler presque deux fois plus large.

Contrairement aux travaux réalisés sur le FOPA dans le chapitre 2, la focalisation du faisceau dans le plan de Fourier du FDFG permet d'atteindre des intensités élevées avec seulement quelques centaines de microjoules. Un fonctionnement à très haute énergie avec des faisceaux non focalisés sur l'axe non dispersé n'est cependant pas envisageable en raison des contraintes liées à la fabrication des PPLN. Comme pour le FOPA, l'élargissement temporel à l'échelle picoseconde dans le plan de Fourier par distorsion spatio-temporelle soulève la question de la compatibilité du FDFG avec les technologies Ytterbium ou Erbium. Pour un PPLN à période constante, la courbe d'accord de phase n'est pas favorable à l'utilisation d'une architecture FDFG avec ce type de lasers. En revanche, un PPLN à pas variable apporterait suffisamment de flexibilité pour implémenter un FDFG avec des pompes Ytterbium ou Erbium et générer des impulsions idler de quelques cycles optiques vers $3\ \mu m$ [98; 99].

4 DÉVELOPPEMENT DE MILIEUX AMPLIFICATEURS À BASE DE CÉRAMIQUES DOPÉES AUX IONS HOLMIUM

4.1 Contexte

Depuis une vingtaine d'année, les sources laser à $2\ \mu m$ suscitent un intérêt croissant dans de nombreux domaines tels que la télédétection par laser, le contrôle à distance de la qualité de l'air, la chirurgie, ou encore la conversion de fréquences pour la génération d'impulsions intenses dans l'infrarouge moyen [104; 105; 106; 107] qui constitue la thématique principale de cette thèse. À travers un projet nommé MISTRAL, l'université de Bordeaux s'est engagée à développer les connaissances, les composants et les technologies nécessaires à la fabrication d'une source laser de puissance-crête supérieure à $1\ TW$ à $2\ \mu m$. L'une des composantes de ce projet concerne le développement de céramiques dopées à l'Holmium pour une utilisation en tant que milieu amplificateur laser.

L'attractivité des céramiques pour les lasers provient essentiellement de leur méthode de fabrication, plus rapide et moins coûteuse que la croissance monocristalline [108; 109; 110], un avantage d'autant plus significatif que la dimension du milieu amplificateur est grande. Des travaux sur des compositions chimiques Yb:YAG ont également montré que l'efficacité des céramiques pouvaient surpasser celles des monocristaux à dopage très élevé [111], révélant un avantage potentiel pour les géométries de type *Thin-Disk* [112; 113].

Longtemps limitées par la diffusion liée à leur structure désordonnée, les céramiques atteignent aujourd'hui des performances similaires aux monocristaux, avec des premières réalisations de lasers efficaces dans l'infrarouge proche au cours des années 2000 [114; 115; 116] puis dans l'infrarouge moyen à partir de 2010 [117; 118]. Au lancement du projet MISTRAL en 2017, peu de travaux rapportaient la fabrication de céramiques transparentes dopées à l'Holmium [117; 118; 119; 120; 121; 122]. Dans ce contexte, une collaboration a été ouverte avec l'Institut de Recherche sur les Céramiques (IRCer) de l'Université de Limoges pour développer un savoir-faire en France sur la production de ces nouveaux milieux amplificateurs. Pour le projet, la fabrication des céramiques dopées à l'Holmium a été confiée à l'IRCer, tandis que leur caractérisation et leur implémentation dans des lasers à $2\ \mu m$ a été prise en charge par les laboratoires CELIA (Centre Lasers Intenses et Applications), LP2N (Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences) et ICMCB (Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux) de l'Université de Bordeaux.

Ce chapitre sera dédié dans un premier temps à la réalisation de sources lasers accordables dédiées au pompage et à la mesure du gain dans des matériaux dopés à l'Holmium puis, dans un second temps, à la caractérisation optique des céramiques fabriquées par l'IRCer.

4.2 Réalisation de sources accordables continues dans les plages d'absorption et d'émission de l'Holmium

4.2.1 Spectroscopie de l'ion Holmium

L'ion Holmium possède une importante levée de dégénérescence par effet Stark de son niveau fondamental I_8 entre $0\ cm^{-1}$ et $535\ cm^{-1}$ et une séparation plus modeste de son niveau excité I_7 entre $5228\ cm^{-1}$ et $5455\ cm^{-1}$ [123]. En considérant un niveau I_7 unique et en décomposant le niveau I_8 en deux sous-niveaux ($0\ cm^{-1}$ et $\sim 500\ cm^{-1}$), le cycle d'émission de l'Holmium est assimilable à un système quasi-3 niveaux, comme représenté sur la figure 4.1. Sur ce schéma, l'émission de l'Holmium vers $2,1\ \mu m$ (en rouge) est issue de la transition radiative entre I_7 et le sous-niveau de I_8 à $500\ cm^{-1}$. Le pompage (en bleu) du sous-niveau fondamental de I_8 vers I_7 peut quand à lui s'effectuer de différentes façons. Les diodes AlGaIn et AsSb permettent par exemple un pompage optique sur une bande étroite centrée entre $1,9\ \mu m$ et $2,3\ \mu m$ selon le modèle de la diode [124]. Le manque de maturité de cette technologie limite cependant son utilisation avec un prix d'achat très élevé pour une durée de vie courte ($< 1000/h$). Une autre méthode, aujourd'hui la plus répandue, consiste à utiliser un laser Thulium dont la longueur d'onde d'émission coïncide avec l'absorption de l'Holmium. D'abord expérimenté avec des lasers en espace libre Tm:YAG [125] ou encore Tm:YLF [126], le pompage monomode (spatial) de l'Holmium s'est ensuite généralisé aux sources Thulium fibrées [127] dont la maturité permet aujourd'hui de produire industriellement des faisceaux de plusieurs centaines de Watts en régime continu avec un profil spatial limité par la diffraction (TEM_{00}).

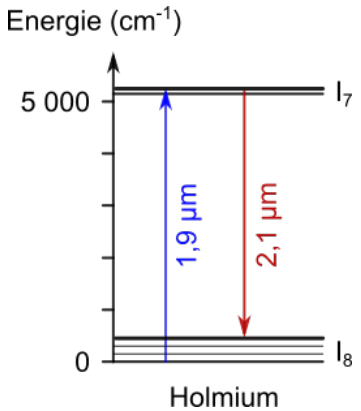


Figure 4.1 : Niveaux d'énergie de l'ion Holmium avec en bleu et en rouge les transitions radiatives respectivement de pompage et d'émission. Les valeurs numériques sont issues de la référence [128].

Le développement de nouveaux milieux amplificateurs repose en grande partie sur la capacité à caractériser efficacement leurs propriétés optiques. Ce projet de recherche n'étant pas ciblé sur une composition chimique unique, le protocole de caractérisation requiert une certaine flexibilité en longueur d'onde pour s'adapter à la spectroscopie unique de chaque matériau. Comme le montre la figure 4.2, l'Holmium possède plusieurs bandes d'absorption entre $1850\ nm$ et $2000\ nm$ et d'émission entre $2000\ nm$ et $2150\ nm$, dont le centrage peut varier selon la matrice contenant les ions actifs [129; 122]. Afin de pouvoir mesurer les propriétés optiques de l'Holmium quelle que soit la composition chimique, deux sources accordables ont été dé-

veloppées dans les bandes d'absorption ($\sim 1,9 - 2,0\ \mu m$) et d'émission ($\sim 2,0 - 2,1\ \mu m$) de l'Holmium. Le choix s'est porté sur les technologies fibrées en raison de leur qualité spatiale élevée et de la tolérance spectrale sur la longueur d'onde d'émission.

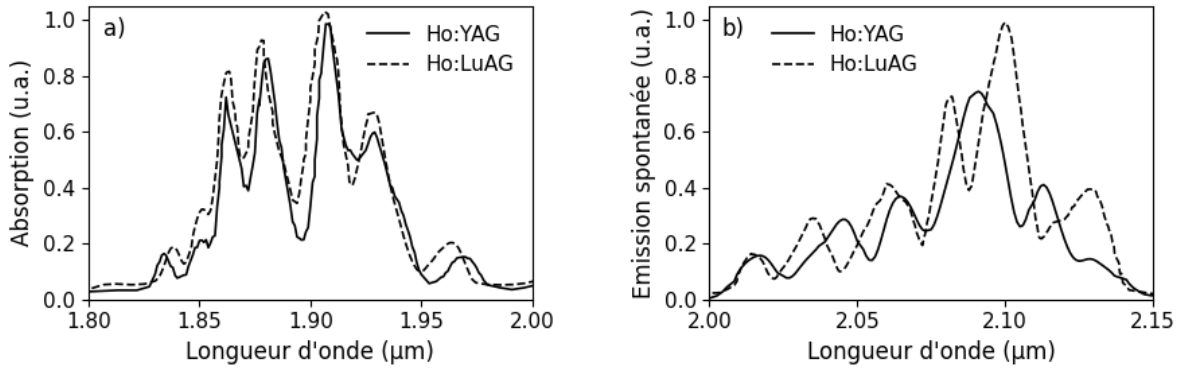


Figure 4.2 : a) Absorption et b) émission spontanée de l'ion Holmium dans des matrices YAG (lignes continues) et LuAG (lignes discontinues). Les données sont extraites de la référence [122].

A notre connaissance, il n'existait au lancement du projet (et encore aujourd'hui) aucune solution commerciale capable de générer du rayonnement continu largement accordable vers $2\ \mu m$ et seules quelques travaux rapportaient des réalisations à haute puissance dans ce domaine [130; 131; 132; 133]. Pour satisfaire les besoins du projet, deux sources lasers accordables ont donc été développées au sein des laboratoires CELIA et LP2N à Bordeaux.

4.2.2 Laser de pompe à fibres dopées Thulium

Cette section contient une description complète du laser à fibres développé pour le pompage des céramiques dopées à l'Holmium. L'architecture optique, présentée dans une version simplifiée sur la figure 4.3, se compose d'une cavité accordable suivie de 2 étages linéaires d'amplification. Les milieux amplificateurs sont des fibres à double gaine dont le cœur est dopé au Thulium. À l'intérieur de ces fibres, le signal et la pompe sont guidés respectivement dans le cœur et la gaine interne. L'oscillateur et le premier étage amplificateur sont construits à partir de fibres de diamètre cœur/gaine $10/130\ \mu m$ et le dernier étage contient une fibre amplificatrice $25/400\ \mu m$. Un isolateur optique centré à $1950\ nm$ protège le début de la chaîne laser des retours d'émission spontanée amplifiée (ASE) [134; 135] en provenance de l'étage haute-puissance.

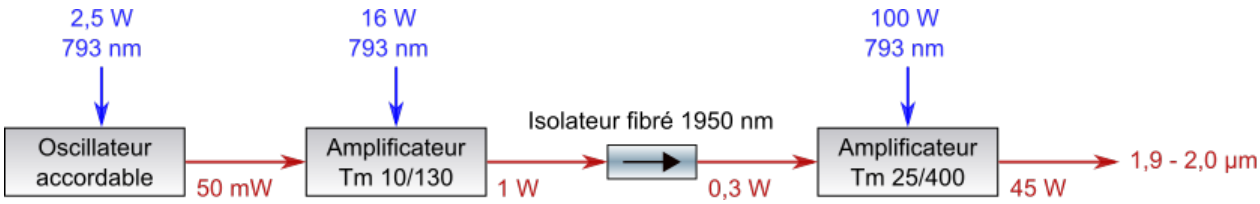


Figure 4.3 : Architecture du laser accordable à base de fibres dopées au Thulium.

Après une brève introduction sur la spectroscopie de l'ion Thulium, les prochaines sections décriront successivement chaque étage de la chaîne laser.

4.2.2.1 Spectroscopie de l'ion Thulium

Le Thulium est un ion capable d'émettre des photons à des longueurs d'onde légèrement inférieures à $2\ \mu m$, souvent utilisé dans des fibres optiques en silice. Comme indiqué sur le diagramme d'énergie de la figure 4.4, l'émission provient de la transition radiative (en rouge) entre les niveaux F_4 et H_6. Sans ajout de co-dopant, l'inversion de population du Thulium peut être réalisée de deux manières. La première consiste à réaliser un pompage optique de la transition $H_6 \rightarrow F_4$ avec un laser Erbium centré vers $\sim 1,6\ \mu m$, une méthode qui permet entre autres de confiner la pompe dans le cœur des fibres amplificatrices pour travailler à haute intensité et ainsi générer efficacement des spectres à basses longueurs d'onde [136]. La seconde se déroule en deux temps avec le pompage optique de la transition $H_6 \rightarrow H_4$ par des diodes à $790\ nm$ (en bleu) suivi de la relaxation croisée [137; 138] $H_4 + H_6 \rightarrow 2\ F_4$ (RC, en pointillés noir) entre un ion excité dans le niveau d'énergie H_4 et un ion dans le niveau fondamental H_6. En tenant compte de la possibilité de coupler plusieurs modules de pompe commerciaux d'une centaine de Watts dans la gaine interne d'une fibre à double gaine, cette méthode se montre particulièrement adaptée à la réalisation de sources laser à très haute puissance vers $1,95\ \mu m$ [139; 140; 141]. Le graphe à droite de la figure 4.4 montre un exemple de spectre d'émission spontanée amplifiée (ASE) mesuré en sortie d'une fibre commerciale Nufern PM-TDF-10P/130-HE pompée par une diode à $793\ nm$.

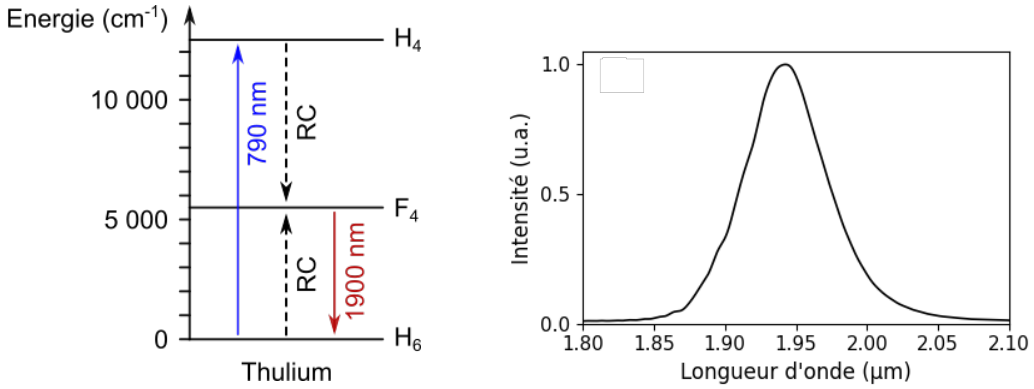


Figure 4.4 : A gauche, diagramme d'énergie de l'ion Thulium avec la transition de pompage (en bleu), la relaxation croisée RC (en pointillés noirs) et la transition d'émission vers 1900 nm (en rouge). À droite, spectre d'émission spontanée amplifiée mesuré sur une fibre Nufern PM-TDF-10P/130-HE pompée à 793 nm.

Lors du processus de relaxation croisée, deux ions Thulium sont excités dans le niveau F_4 à partir d'un seul photon de pompe. Ainsi, l'efficacité théorique d'un laser Thulium pompé à $790\ nm$ varie entre environ 40% et 80% selon la contribution de la relaxation croisée [141]. On notera que la probabilité d'occurence de la relaxation croisée influe directement sur la quantité de chaleur générée dans le matériau par les autres voies de désexcitation (non radiatives) et que cet équilibre dépend en grande partie de la composition chimique du milieu amplificateur.

Dans les fibres dopées au Thulium, le temps de vie du niveau H_4 varie, par exemple, de $350\ \mu s$ pour $0,5\%$ de dopage (peu de relaxation croisée) à $35\ \mu s$ pour 2% de dopage (relaxation croisée importante) [142] et la maturité technologique de ces fibres permet aujourd'hui d'atteindre des efficacités proche de la limite théorique avec des références commerciales. Au vu de ces informations, le pompage par diodes à $793\ nm$ s'est avéré mieux adapté que le pompage à $1,6\ \mu m$ pour l'objectif du projet consistant à fabriquer une source accordable de plusieurs dizaines de Watts vers $1,9\ \mu m$.

4.2.2.2 Développement d'un filtre accordable

Les fibres dopées au Thulium présentent un spectre de fluorescence très large, jusqu'à plusieurs centaines de nanomètres. Pour réaliser un oscillateur accordable quasi-continu (spectre étroit mais pas monomode longitudinal), le spectre de gain de la fibre amplificatrice doit être convolué par un élément de filtrage à l'intérieur de la cavité. À notre connaissance, il n'existe aucun dispositif commercial capable de filtrer un spectre de quelques centaines de picomètres avec une accordabilité supérieure à $100\ nm$ dans l'infrarouge moyen. La figure 4.5 présente la solution technique développée durant la thèse pour réaliser un composant répondant à ces critères. Il s'agit d'un montage linéaire en espace libre composé d'un réseau de diffraction de densité $900\ traits/mm$ orienté à l'angle de Littrow et d'une lentille asphérique de focale $f = 11\ mm$ assurant le couplage entre la partie fibrée et l'espace libre. La fibre est une PM2000, donnée pour un diamètre de mode (MFD) de $8\ \mu m$ à $1950\ nm$.

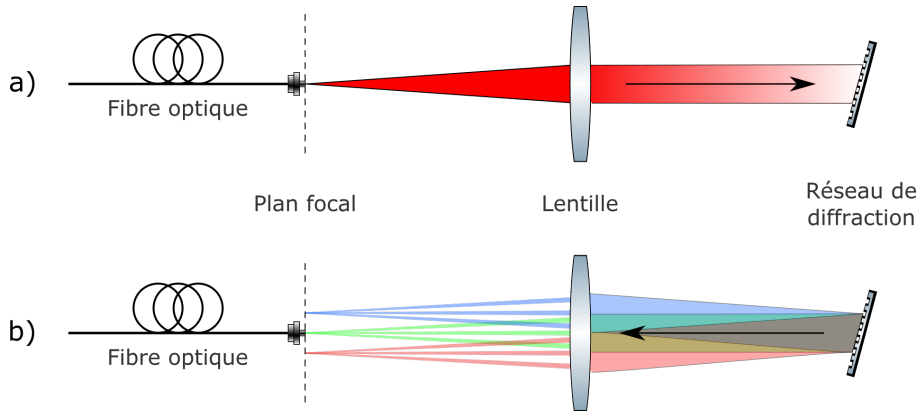


Figure 4.5 : Fonctionnement du filtre accordable a) à l'aller avec une propagation colinéaire pour chaque longueur d'onde et b) au retour avec une dispersion angulaire des composantes spectrales suite à la diffraction par le réseau.

Pour rappel, l'angle de Littrow correspond à l'orientation du réseau pour laquelle l'angle diffracté est égal à l'angle d'incidence. La loi de diffraction des réseaux permet alors d'établir :

$$\theta_L = sin^{-1}\left(\frac{m\ \lambda_0}{2\ d}\right) \tag{4.1}$$

avec m l'ordre de diffraction, λ_0 la longueur d'onde incidente et d le pas du réseau.

D'après cette relation, pour un réseau donné l'angle de Littrow dépend uniquement de la longueur d'onde incidente. En d'autres termes, dans le montage expérimental présenté précédemment, la condition de Littrow ne peut être remplie que par une seule longueur d'onde parmi toutes les composantes spectrales colinéaires issues de la fibre optique. Lors du retour vers la fibre, un filtrage spatial s'effectue grâce à la dispersion angulaire induite par le réseau, si bien que seule la composante spectrale à Littrow se retrouve couplée dans le guide. Expérimentalement, la rotation du réseau permet de modifier l'angle θ_L et donc de contrôler la longueur d'onde centrale du filtre, avec une tolérance qui dépend de l'imagerie optique (densité du réseau, MFD de la fibre et distance focale de la lentille). La figure 4.6 montre l'angle de Littrow (panneau *a*) calculé entre $1850\ nm$ et $2050\ nm$ pour un réseau de $900\ traits/mm$, avec une dépendance presque linéaire entre l'angle du réseau et la longueur d'onde sur l'ensemble de la plage. Les panneaux *b* (plan large) et *c* (zoom) informent quant à eux sur la tolérance spectrale du filtre via une simulation Kostenbauder (cf section 2.1) de la dispersion des composantes spectrales au foyer de la lentille, où se trouve la terminaison de la fibre. À cet emplacement de l'imagerie, les résultats montrent que le MFD ($8\ \mu m$) contient une bande spectrale de largeur $\Delta\lambda = 0,4\ nm$, laissant supposer une bande passante de l'ordre de quelques centaines de picomètres pour un aller-retour dans le filtre (la fonction de transfert exacte sera calculée un peu plus loin dans cette section). On précisera que, pour des soucis de lisibilité, le spectre incident a été volontairement limité à une bande de $11\ nm$ dans la simulation. Le résultat est cependant rigoureusement identique pour un spectre plus large.

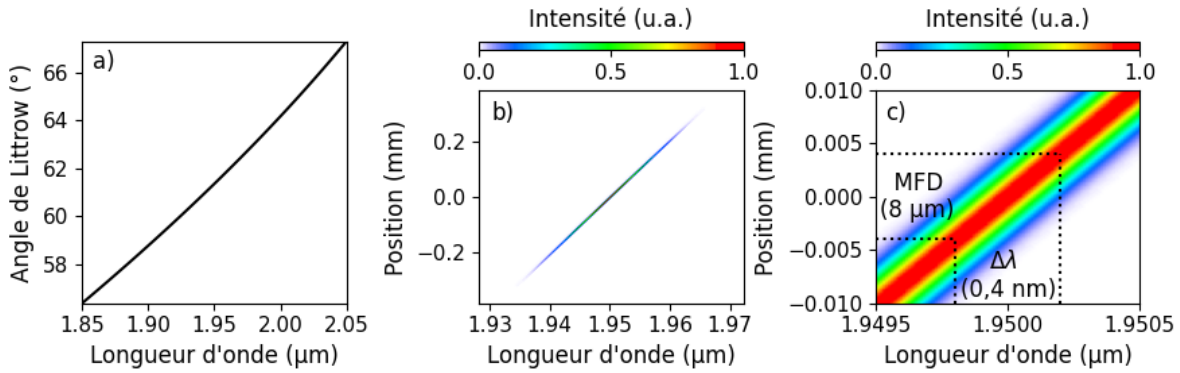


Figure 4.6 : a) Angle de Littrow en fonction de la longueur d'onde incidente pour un réseau de 900 traits/mm, b) simulation de dispersion spatiale dans le plan focal de la lentille pour un faisceau incident de largeur 11 nm à mi-hauteur centré à 1950 nm et c) agrandissement de la figure précédente autour de la longueur d'onde centrale à 1950 nm.

La collimation a été réalisée à l'aide d'un module commercial (Thorlabs, PAF2P-11D) d'ouverture $4,4\ mm$, soit un diamètre légèrement étroit par rapport au diamètre du faisceau. En approximation gaussienne, ce dernier est estimé à $3,4\ mm$ en considérant un MFD de $8\ \mu m$ et une propagation sur $11\ mm$ (la distance entre la fibre et la lentille). La diffraction du faisceau par l'ouverture de la lentille dégrade potentiellement la qualité de la tache focale lors de la réinjection dans la fibre. La figure 4.7 montre une simulation FFT-BPM (*Fast Fourier Transform Beam propagation Method* [143], cf annexe D) de la propagation après un aller-retour dans le filtre en tenant compte de la diffraction. La distance entre la lentille et le réseau a été fixée à $10\ cm$ pour correspondre aux conditions expérimentales. Dans le plan de la lentille, la simu-

lation prédit une perte d'énergie de $1,3\%$ après un aller-retour dans le diaphragme, avec une légère modulation du profil spatial au cours de la propagation (en rouge sur le panneau *b*). Malgré ces modulations, dans le plan focal (panneau *a*) la focalisation au retour (rouge) est cependant proche d'un profil gaussien de diamètre $9,1\ mm$ à $1/e^2$, soit 14% plus large que le faisceau initial (bleu).

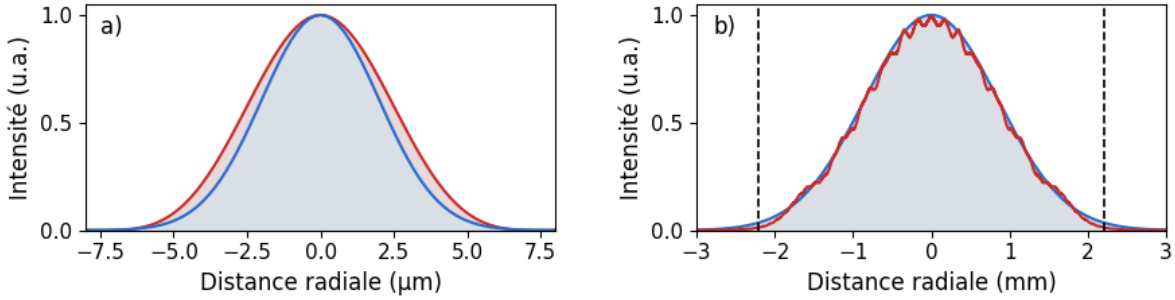


Figure 4.7 : Mode spatial aller (bleu) et retour (rouge) dans le filtre accordable a) en extrémité de fibre optique et b) dans le plan de la lentille. L'ouverture de la lentille est indiquée en pointillés noirs.

La fonction de transfert du filtre peut être déterminée à partir de la valeur de dispersion spatiale et du MFD. En considérant des profils gaussiens et en négligeant la différence d'angle d'incidence entre les différentes longueurs d'onde, l'efficacité de couplage dans une fibre monomode à gradient d'indice est donnée par :

$$\eta = \frac{4\ w_1^2\ w_2^2}{(w_1^2 + w_2^2)^2}\ exp\left(-\frac{2\ (\Delta x)^2}{w_1^2 + w_2^2}\right) \tag{4.2}$$

avec w_1 la moitié du MFD, w_2 la moitié du diamètre du faisceau injecté et Δx le décalage radial du faisceau par rapport à l'axe optique.

Expérimentalement, la fibre est clivée avec un angle de 8° mais ce paramètre, commun à toutes les longueurs d'onde, sera ignoré dans le calcul de la réponse chromatique du filtre. En s'appuyant sur l'équation 4.2, la figure 4.8 compare le couplage d'un faisceau parfait (diamètre égal au MFD) avec celui du faisceau dégradé par diffraction (diamètre $9,1\ \mu m$). L'efficacité de l'injection ne semble pas très affectée par l'élargissement du mode spatial (panneau *a*), avec un taux de couplage $\eta = 98\%$ pour un faisceau de diamètre $9,1\ \mu m$ à la longueur d'onde centrale $1950\ nm$. En revanche, la sélectivité radiale du couplage est légèrement dégradée par les défauts du faisceau (panneau *b*). En considérant une dispersion spatiale de $50\ nm/mm$ (cf figure 4.6), la conversion de l'axe radial en longueur d'onde (panneau *c*) aboutit à une sélectivité spectrale de $0,32\ nm$ à mi-hauteur pour le faisceau parfait et $0,36\ nm$ pour le faisceau attendu expérimentalement, une valeur tout à fait compatible avec notre application de pompage de milieux ampilficateurs dopés à l'Holmium.

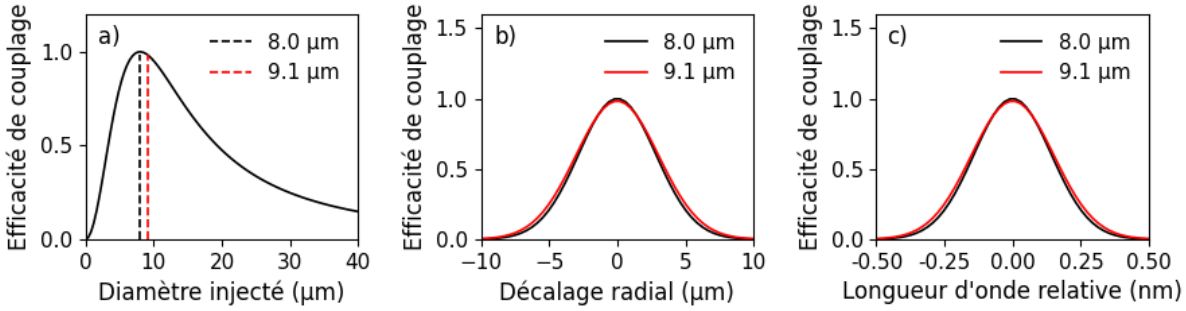


Figure 4.8 : Efficacité de réinjection dans la fibre de sortie du filtre accordable en fonction a) du diamètre du faisceau, b) du décalage radial du faisceau et c) de la longueur d'onde en valeur relative par rapport à 1950 nm.

Le filtre spectral présenté dans cette section a ensuite été implémenté dans des cavités laser pour fabriquer des sources accordables vers $2\ \mu m$.

4.2.2.3 Réalisation d'un oscillateur accordable Thulium

Le premier étage du laser de pompe pour le banc de test des céramiques Holmium est un oscillateur Thulium continu accordable basé sur une cavité linéaire (un milieu amplificateur encadré par deux éléments réflectifs). La figure 4.9 présente l'architecture optique de la source. Le miroir fond de cavité est un filtre accordable utilisé en réflexion (cf section précédente) et le coupleur de sortie est réalisé par association d'un coupleur fibré $30\%/70\%$ et d'un rétro-réflecteur large bande fibré. Les voies principales du coupleur sont reliées à l'axe de la cavité et les deux voies secondaires constituent chacune une sortie laser. Dans la pratique, une seule des deux sorties a été exploitée. La fibre amplificatrice est un modèle à double gaine avec un cœur dopé au Thulium (Nufern PM-TDF-10P/130-HE), de longueur $1\ m$. Le signal vers $1,95\ \mu m$ est guidé en propagation monomode avec maintien de polarisation dans le cœur de diamètre $10\ \mu m$ et la pompe à $793\ nm$ est quant à elle guidée de façon multimode dans la première gaine de diamètre $130\ \mu m$. Le pompage est réalisé par une diode laser de $2,5\ W$ centrée à $793\ nm$, couplée dans une fibre multimode à simple gaine de diamètre $105\ \mu m$. Le signal et la pompe sont injectés dans une fibre à double gaine de même géométrie que la fibre amplificatrice à l'aide d'un coupleur $2+1 \rightarrow 1$. La pompe non absorbée est extraite après la fibre amplificatrice par dénudage de la seconde gaine et application d'un polymère à indice élevé (Norland, NOA 61).

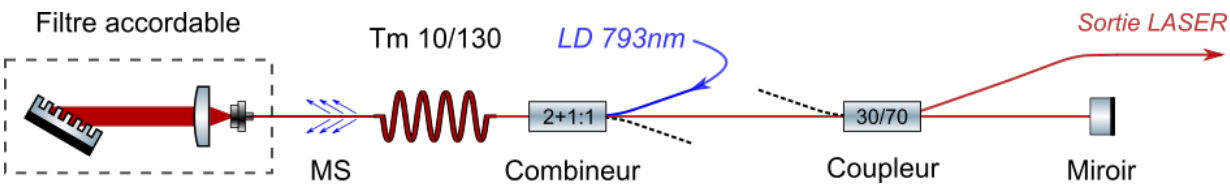


Figure 4.9 : Architecture optique de l'oscillateur accordable avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 10/130 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD une diode de pompe à 793 nm.

Les performances de cet oscillateur sont regroupées sur la figure 4.10. Le système délivre une puissance de quelques dizaines de milliwatts en régime continu (panneau *a*) avec un contraste $> 50\ dB$ de $1880\ nm$ à $2020\ nm$ (panneau *c*) et un maximum de $65\ dB$ au point de fonctionnement optimal vers $1950\ nm$ (panneau *b*). L'utilisation du laser a été limitée à cette gamme spectrale pour éviter les risques d'endommagement liés l'émission spontanée amplifiée (ASE) dans les deux étages d'amplification. Le contraste est quant à lui défini comme le rapport entre la densité spectrale du pic d'émission laser et le bruit de fond lié à l'ASE.

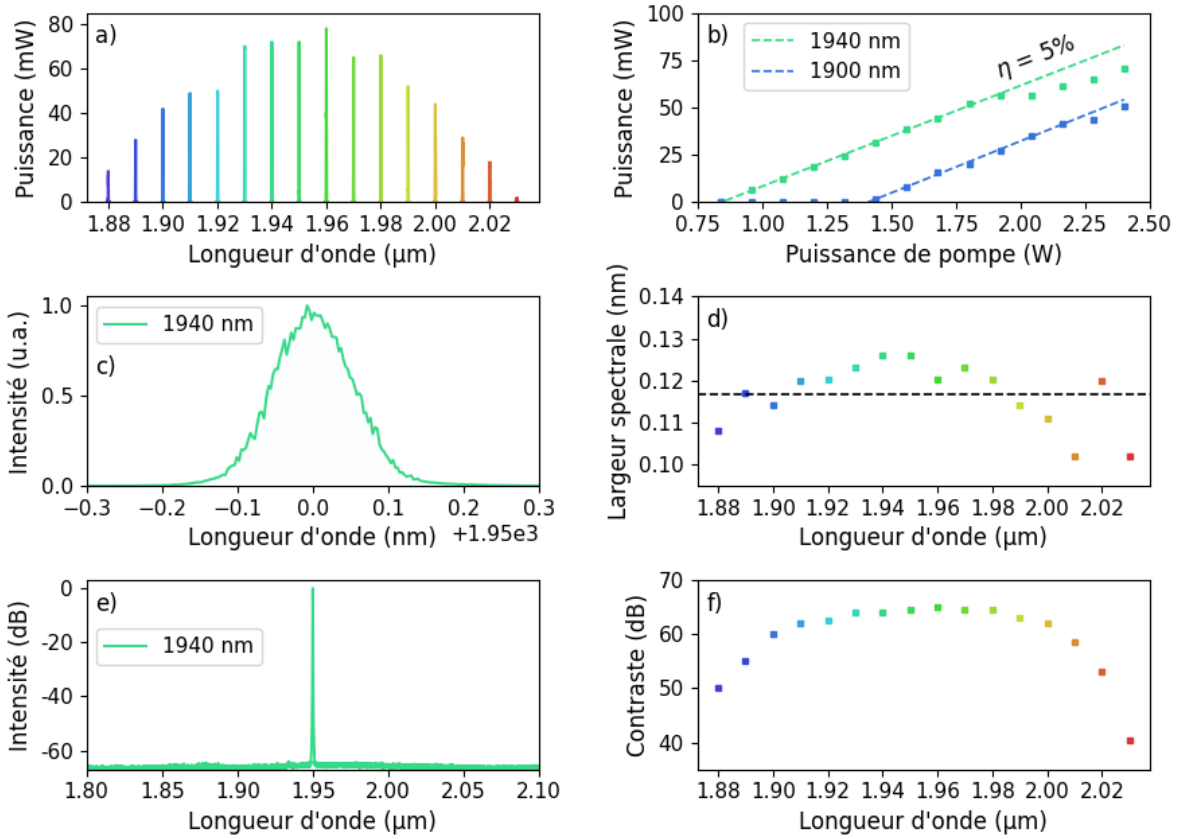


Figure 4.10 : Caractérisation de l'oscillateur Thulium avec a) l'accordabilité spectrale, b) l'efficacité laser à 1900 nm (bleu) et 1940 nm (vert), c) le spectre à 1950 nm, d) la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de la longueur d'onde d'émission, e) le contraste à 1950 nm et f) le contraste en fonction de la longueur d'onde d'émission.

Bien que les puissances en jeu soient très différentes, la finesse de l'oscillateur s'avère légèrement meilleure et à priori plus stable que la réalisation de Yin [133] avec une largeur spectrale à mi-hauteur de $0,10 - 0,13\ nm$ (panneau *d*) contre $0,2 - 0,3\ nm$ [133]. Des essais, réalisés avec un filtre deux fois moins sélectif, ont révélé une plus grande sensibilité du laser aux fluctuations thermiques avec des dérives et des sauts de longueur d'onde d'émission sur des échelles de temps de l'ordre de la seconde. Dans notre cas, ces instabilités ont pu être corrigées par l'utilisation d'un filtre à bande-passante étroite ($0,36\ nm$ contre $3\ nm$ dans l'expérience de Yin). L'efficacité optique de l'oscillateur est quant à elle plutôt faible (cf. panneau *b* de la figure 4.10) avec un rapport de $\sim 3\ \%$ entre la pompe injectée et la puissance délivrée en sortie de cavité (panneau *d*). Ce résultat s'explique en partie par la perte introduite par le coupleur $30/70\ \%$ lors du retour dans la cavité, après réflexion sur le miroir large bande. Bien

qu'elle permettrait de doubler l'efficacité du laser, la combinaison des deux sorties $30\ \%$ du coupleur n'a pas été implémentée pour éviter tout risque de battement de modes. L'oscillateur étant destiné à être amplifié à plusieurs dizaines de Watts, les efforts ont plutôt été concentrés sur l'accordabilité ainsi que la stabilité spectrale de la source.

4.2.2.4 Fabrication d'amplificateurs linéaires à fibres dopées au Thulium

En sortie d'oscillateur, le faisceau de quelques dizaines de milliwatts est amplifié successivement dans deux amplificateurs linéaires à fibres dopées au Thulium. La figure 4.11 montre le schéma du premier étage amplificateur avec une architecture de pompage contra-propagative. La fibre amplificatrice, identique à celle de l'oscillateur (Nufern PM-TDF-10P/130-HE), mesure $2\ m$ de longueur et son pompage est assuré par une diode de $16\ W$ centrée à $793\ nm$, couplée dans une fibre multimode de diamètre $105\ \mu m$. Le couplage et l'extraction de la pompe dans la fibre amplificatrice sont réalisés de la même façon que pour l'oscillateur à travers un combineur $2 + 1 \rightarrow 1$ et un dénudage de la gaine en sortie de fibre amplificatrice.

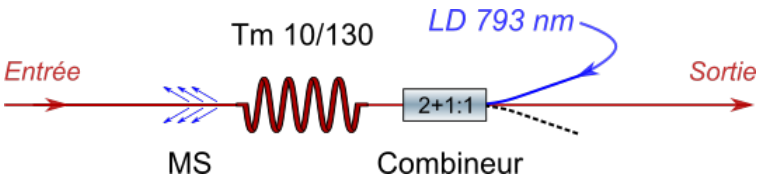


Figure 4.11 : Architecture du premier étage amplificateur avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 10/130 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD une diode de pompe fibrée à 793 nm.

L'expérience n'ayant pas montré de sensibilité particulière de l'oscillateur à l'égard des retours d'ASE de l'amplificateur, l'isolateur optique initialement présent entre ces deux étages a été retiré. Il est probable que le filtrage introduit par le réseau dans l'oscillateur protège suffisamment ce dernier des perturbations liées à l'ASE, malgré un passage dans la fibre amplificatrice (cf figure 4.9). On notera d'ailleurs qu'il serait théoriquement possible d'isoler totalement l'oscillateur de l'ASE en déplaçant le coupleur entre le filtre accordable et la fibre amplificatrice et en orientant les retours directement vers le réseau. Cette configuration n'a pas été testée expérimentalement mais ne présenterait que des avantages pour l'oscillateur.

En conservant la même démarche que dans la section précédente, la figure 4.12 récapitule les performances du premier étage amplificateur. Tout d'abord, ces résultats montrent une conservation plutôt fidèle de la largeur de la plage d'accordabilité, avec un décalage de seulement $10\ nm$ vers les hautes longueurs d'onde après une amplification d'environ $13\ dB$. Une nouvelle fois, l'efficacité laser semble inférieure aux attentes, avec $\sim 10\ \%$ de puissance amplifiée par rapport à la puissance totale de pompage. Le faisceau de pompe étant extrait de la fibre par dénudage de la seconde gaine et application d'un polymère d'indice élevé, la puissance de pompe absorbée et donc l'efficacité optique ne sont pas connues. Le spectre amplifié est légèrement élargi par rapport à l'oscillateur avec une valeur moyenne de $0,19\ nm$ à mi-hauteur, un chiffre qui reste parfaitement adapté à l'application de pompage de céramiques

dopées à l'Holmium. Le niveau d'ASE reste quant à lui satisfaisant après ce premier étage d'amplification avec un contraste $> 40\ dB$ entre $1900\ nm$ et $2040\ nm$.

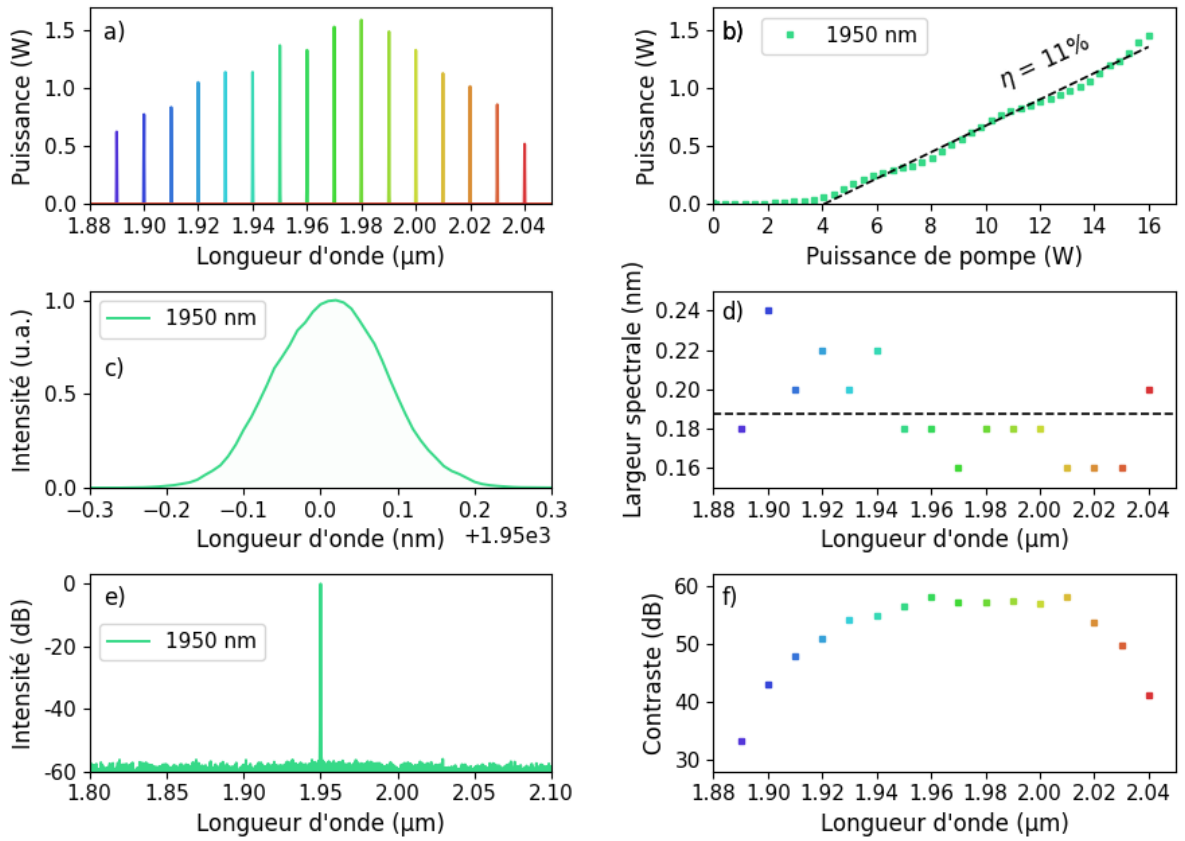


Figure 4.12 : Caractérisation du premier étage d'amplification Thulium avec a) l'accordabilité spectrale, b) l'efficacité laser 1950 nm, c) le spectre à 1950 nm, d) la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de la longueur d'onde amplifiée, e) le contraste à 1950 nm et f) le contraste en fonction de la longueur d'onde amplifiée

Le second étage amplificateur, présenté sur la figure 4.13 repose sur une fibre double gaine à grande surface modale dopée au Thulium (Nufern PLMA-TDF-25P/400-HE) de longueur $5\ m$. Un pompage co-propagatif est réalisé par deux diodes délivrant chacune $50\ W$ à $793\ nm$, couplées dans des fibres multimodes de diamètre $105\ \mu m$. Les deux faisceaux de pompe sont injectés dans l'amplificateur par un combineur commercial (DK Photonics, PMPSC-21-F) qui assure également l'adaptation modale du signal à $1,95\ \mu m$ entre la fibre incidente de géométrie $10/130\ \mu m$ et la fibre de sortie $25/400\ \mu m$. Pour limiter les retours de faisceau en sortie de fibre amplificatrice, cette dernière est clivée à un angle de 6°. Après amplification, le faisceau est collimaté à l'aide de deux lentilles sphériques en CaF_2 de focales $f = +50\ mm$ et la pompe est séparée du signal à l'aide d'un miroir dichroïque haute réflexion à $2\ \mu m$ et haute transmission à $793\ nm$. En entrée d'amplificateur, un isolateur optique commercial (Advanced Fiber Ressources, HPMI-1950) protège les étages situés en amont d'éventuels retours de faisceau (émission spontanée amplifiée contra-propagative, réflexions parasites) avec une isolation spécifiée par le constructeur à $35\ dB$ pour une longueur d'onde $1950 \pm 50\ nm$.

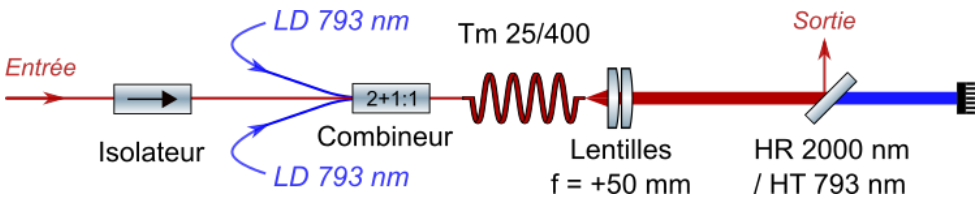


Figure 4.13 : Architecture optique du troisième étage amplificateur avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 25/400 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD des diodes de pompe à 793 nm.

Les performances de ce second étage amplificateur sont rassemblées sur la figure 4.14. Malgré une spécification de l'isolateur optique à $1950\ nm$, on notera que l'efficacité du composant semble plutôt centrée vers $2000\ nm$ avec une transmission extrêmement faible en-dessous de $1900\ nm$, ce qui n'est pas idéal pour notre application (panneau *a*). Malgré cet inconvénient, une puissance de $44\ W$ à $49\ W$ a pu être obtenue sur une gamme de longueur d'onde allant de $1920\ nm$ à $2010\ nm$ (panneau *b*) avec une largeur spectrale à mi-hauteur de $\sim 0,2\ nm$ et un contraste $> 30\ dB$ (le contraste n'a pas pu être déterminé avec précision à cause d'un manque de dynamique sur la mesure).

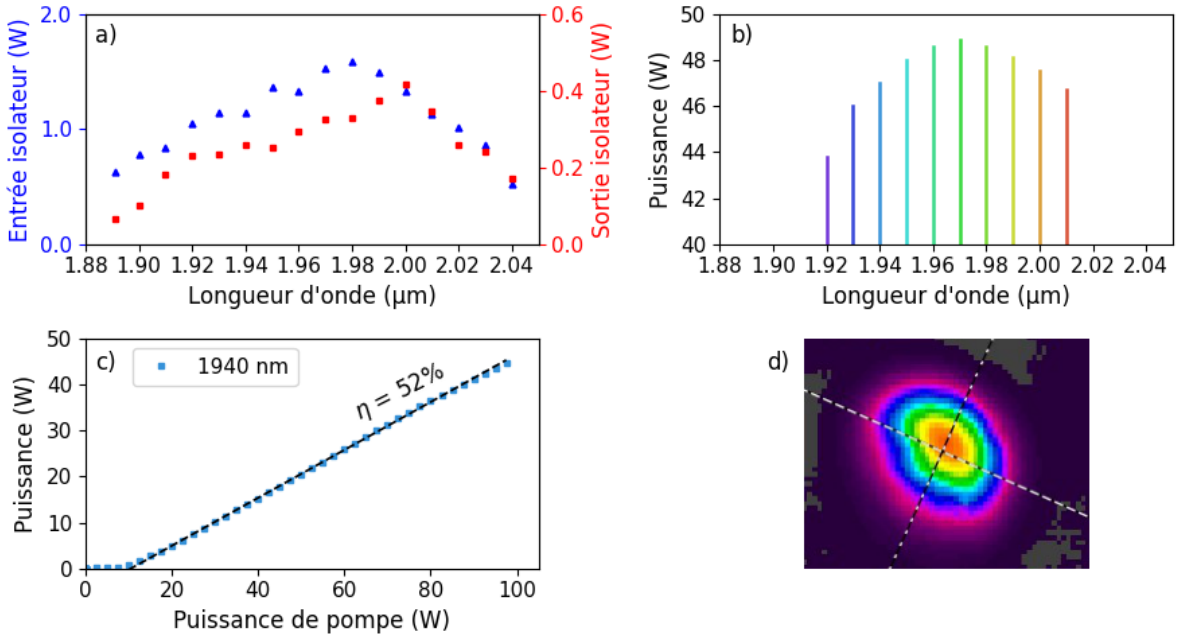


Figure 4.14 : Performances du deuxième étage amplificateur avec a) la transmission de l'isolateur, b) l'accordabilité spectrale, c) l'efficacité à 1940 nm et d) le mode spatial mesuré à 1,5 mètre de la sortie laser à la longueur d'onde 1932,5 nm.

Contrairement à ce que laisserait suggérer la courbe d'accordabilité, l'ASE croît très rapidement hors de la plage de fonctionnement présentée et des pics d'émission laser commencent à apparaître à des longueurs d'onde indésirables. À titre d'exemple, un début d'oscillation laser parasite a été observé dès $1910\ nm$ et $2020\ nm$, avec des endommagements constatés sur le combineur de pompe. L'extension de la plage d'accordabilité jusqu'à $1900\ nm$, utile pour sonder le pic d'absorption de l'Holmium vers $1908\ nm$, s'est toutefois montrée possible en pompant l'amplificateur à la moitié de sa puissance nominale ($50\ W$ de pompe pour $\sim 20\ W$ amplifiés en

sortie de fibre). Actuellement, le mode spatial du laser (panneau *d*) n'a pas encore été optimisé pour des raisons de priorité. Malgré une ellipticité imparfaite, le faisceau de $2,4\ mm \times 2,1\ mm$ en champ proche s'est révélé efficace pour pomper des céramiques dopées à l'Holmium et réaliser des cavités laser. À terme, une reprise du clivage et le remplacement de l'imagerie de collimation sont prévus pour améliorer la qualité spatiale du faisceau.

À l'inverse des premiers étages basés sur des fibres $10/130\ \mu m$, l'efficacité d'amplification dans la fibre $25/400\ \mu m$ est ici très satisfaisante avec une conversion de $\sim 50\%$ de la puissance de pompe en signal (panneau *c* de la figure ci-dessus). Malgré une intensité de pompe équivalente et une puissance d'utilisation 10 fois supérieure, le modèle de fibre à large mode s'est révélé beaucoup moins sensible aux effets thermiques que celui utilisé dans l'oscillateur et le premier étage amplificateur, même avant l'installation du dispositif de dissipation thermique. À titre informatif, la température de la fibre de l'étage haute puissance a été régulée avec des feuilles de graphite autocollantes d'épaisseur $70\ \mu m$ (Panasonic $1000\ W/m.K$) fixées sur une plaque refroidie par eau à 18^oC.

En résumé, un laser continu d'environ $45\ W$ accordable entre $1920\ nm$ et $2010\ nm$ a été fabriqué pour pomper des matériaux dopés à l'Holmium. Une extension de la plage d'émission du laser dans les basses longueurs d'onde est prévue pour accéder à un important pic d'absorption de l'Holmium vers $1908\ nm$. Plusieurs solutions sont dores et déjà envisagées pour atteindre cet objectif. Tout d'abord, la méthode de dissipation thermique de la fibre $25/400\ \mu m$ sera dupliquée sur les fibres de l'oscillateur et du premier étage amplificateur pour augmenter la puissance de pompage tout en limitant l'impact des effets thermiques nuisibles au gain et à la stabilité. L'augmentation de l'inversion de population dans le premier étage amplificateur permettra alors de décaler le spectre de gain vers les basses longueurs d'onde tout en augmentant la saturation dans le second étage amplificateur. Un raccourcissement de la fibre $25/400\ \mu m$ est également prévu pour augmenter l'inversion de population moyenne et améliorer le gain à $1,9\ \mu m$. Grâce à ces quelques modifications, l'augmentation de la puissance injectée dans le dernier étage amplificateur devrait permettre de repousser le seuil d'apparition des effets laser parasites et d'étendre la plage d'accordabilité. Le remplacement de l'isolateur par un composant plus efficace et optimisé à plus basse longueur d'onde serait également bénéfique.

4.2.3 Laser d'injection à fibres co-dopées Thulium-Holmium

La mesure du gain dans un milieu amplificateur dopé à l'Holmium nécessite un laser d'injection accordable dans la plage d'émission de l'ion Holmium entre $2,0\ \mu m$ et $2,1\ \mu m$. Dans une matrice cristalline (monocristal ou céramique), les pics d'émission sont étroits et leurs longueurs d'onde centrales peuvent varier d'un matériau à l'autre, avec par exemple une émission à $2,050\ \mu m$ pour l'Ho:YLF et $2,09\ \mu m$ pour l'Ho:YAG. À notre connaissance, la limite d'émission des lasers accordables à fibres dopées au Thulium se situe aux alentours de $2,070 - 2,090\ \mu m$ [144; 145], soit une valeur un peu basse pour envisager l'utilisation de cette technologie pour notre application de mesure de gain dans l'Holmium.

Basée sur un phénomène de transfert d'énergie entre les ions Thulium et Holmium, la technologie des fibres en silice co-dopées Thulium-Holmium offre une solution simple et efficace pour émettre à la longueur d'onde de l'Holmium tout en bénéficiant des avantages du pompage de l'ion Thulium. Concernant la méthode de pompage, la littérature sur les sources Tm-Ho accordables atteste de l'efficacité aussi bien du pompage par diodes [146; 147; 148] que par laser Erbium [149]. Dans notre cas, le pompage par diode a été privilégié pour capitaliser les techniques le savoir-faire et le matériel acquis lors du développement du laser Thulium.

La figure 4.15 montre le diagramme d'énergie d'un matériau co-dopé Thulium-Holmium, avec une émission de l'Holmium vers $2,1\ \mu m$ (en rouge) et un pompage du Thulium à $790\ nm$ (en bleu). Le processus de pompage du Thulium est identique à celui présenté dans la section précédente, avec la promotion de deux ions Thulium vers le niveau F_4 à partir d'un seul photon de pompe par absorption $H_6 \rightarrow H_4$ et relaxation croisée $H_4 + H_6 \rightarrow 2\ F_4$. Dans une fibre co-dopée Thulium-Holmium, la composition chimique est optimisée pour privilégier le transfert d'énergie résonant $F_4(Tm) \rightarrow I_7(Ho)$ devant la transition radiative $F_4(Tm) \rightarrow H_6(Tm)$, ce qui permet de réaliser une inversion de population efficace de l'Holmium. Une fois le niveau I_7 de l'Holmium peuplé, l'émission vers $2,1\ \mu m$ est finalement générée par la transition radiative $I_7 \rightarrow I_8$.

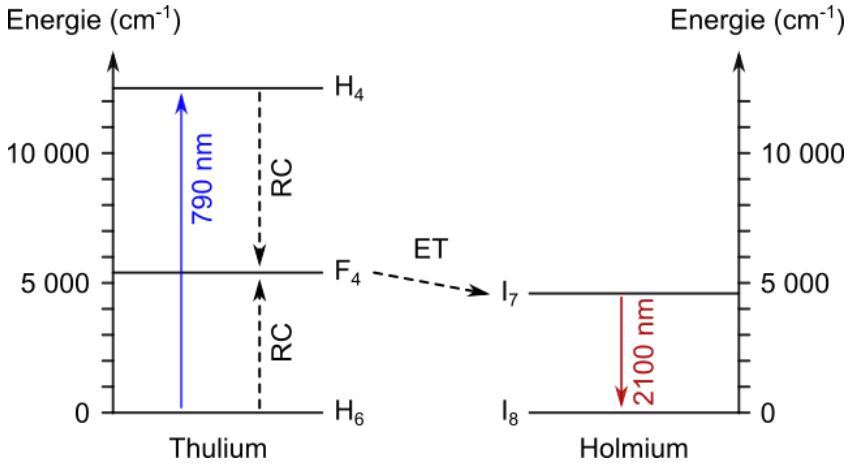


Figure 4.15 : Diagramme d'énergie d'un milieu amplificateur co-dopé Thulium-Holmium avec la transition de pompage (bleu), la relaxation croisée du Thulium (RC, pointillés noirs), le transfert d'énergie résonant Thulium-Holmium (ET, pointillés noirs) et l'émission radiative vers 2100 nm (rouge).

La profonde similitude entre les technologies Thulium et Thulium-Holmium (même processus de pompage et longueurs d'onde d'émission proches) permet de développer des sources lasers avec des architectures optiques quasiment identiques pour ces deux matériaux. En remplaçant le milieu amplificateur de l'oscillateur accordable Thulium présenté dans la section 4.2.2.3 par une fibre co-dopée Thulium-Holmium, la cavité a pu être reproduite pour fabriquer un oscillateur accordable dans la bande d'émission de l'Holmium. La figure 4.16 présente le schéma de cet oscillateur constitué d'une fibre à double gaine de géométrie $6/130\ \mu m$ (iXblue Photonics, IXF-2CF-TmHo-PM-6-130-0.021), pompée par une diode laser de $6\ W$ à $793\ nm$ couplée dans une fibre multimode de diamètre $105\ \mu m$.

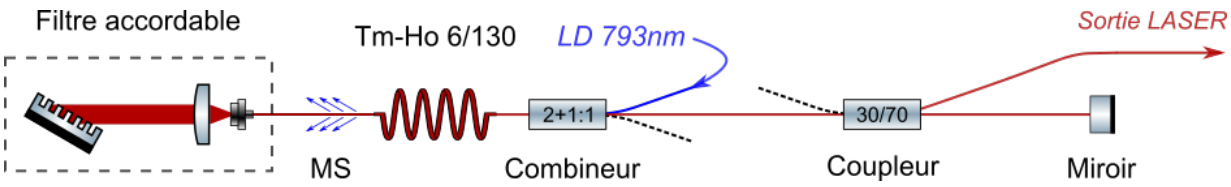


Figure 4.16 : Architecture optique de l'oscillateur TmHo avec MS un extracteur des modes de gaine, TmHo 6/130 une fibre co-dopée Thulium-Holmium à double gaine et LD une diode de pompe à 793 nm.

Malgré une première réalisation plutôt ancienne en 1994 [146], les démonstrations de sources accordables Tm-Ho sont, à notre connaissance, peu nombreuses dans la littérature. Certains travaux rapportent une difficulté à stabiliser le régime continu sur une large bande spectrale [147; 150], potentiellement problématique pour ce type d'application. Nous verrons dans cette section que l'augmentation de l'inversion de population du Thulium, en jouant sur l'intensité du pompage ou encore la longueur de la fibre amplificatrice, permet de réduire l'influence de ce phénomène mais impose indirectement un compromis majeur sur la plage d'accordabilité.

En considérant un modèle laser simpliste formé d'un niveau fondamental N_1 et un niveau excité N_2, il apparait que le gain G dépend non seulement des sections efficaces d'absorption σ_a et d'émission σ_e mais aussi de l'inversion de population $\Delta N = N_2 - N_1$ par la relation de proportionnalité suivante :

$$G(\lambda) \propto \; N_2\, \sigma_e(\lambda) - N_1\, \sigma_a(\lambda) \tag{4.3}$$

Dans le cas d'un milieu co-dopé Thulium-Holmium, le degré de complexité du problème augmente mais le principe reste comparable. La figure 4.17 montre le décalage du spectre d'ASE observé sur une fibre Tm-Ho lors de l'augmentation de la puissance de pompage et donc de l'inversion de population. Ces mesures ont été effectuées en sortie d'une fibre de longueur $5\ m$ dont la seconde extrémité a été connectée à un miroir large bande pour renvoyer la totalité de l'ASE dans le milieu à gain. Le pompage est orienté dans la direction de l'instrument de mesure et la pompe non absorbée est extraite juste avant la sortie de la fibre par dénudage de la gaine externe et application d'un polymère d'indice élevé (Norland, NOA 61).

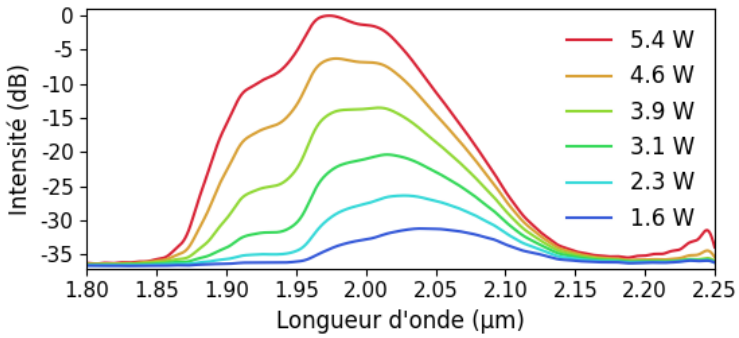


Figure 4.17 : Emission spontanée amplifiée d'une fibre Tm-Ho 6/130 de 5 mètres en fonction de la puissance de pompage à 793 nm.

Ces résultats témoignent de la tendance du gain à dériver vers les basses longueurs d'onde à mesure que l'inversion de population augmente. Pour émettre en bord de bande d'ASE à $2,1\ \mu m$ et ainsi pouvoir sonder la plage de gain d'une céramique dopée à l'Holmium, le dimensionnement de l'oscillateur doit donc favoriser une inversion de population basse, par exemple en travaillant à faible intensité de pompage ou en utilisant une grande longueur de milieu amplificateur. Ce constat entre cependant en contradiction avec la problématique d'instabilité décrite par Hemming [147] qui préconise une haute valeur d'inversion de population. La fabrication d'un oscillateur Tm-Ho accordable à $2,1\ \mu m$ n'est donc pas aussi simple que celle d'un laser Thulium et nécessite une attention particulière sur l'optimisation de l'inversion de population pour assurer une émission continue et stable dans la plage de fonctionnement souhaitée.

La figure 4.18 présente les performances de l'oscillateur pour différentes longueurs de fibre amplificatrice. À la vue de ces seules données, la longueur de $3\ m$ pourrait sembler idéale : l'objectif d'accordabilité est rempli (panneau *a*) et l'efficacité laser à $2050\ nm$ est optimale (panneau *b*). Au-delà de cette longueur l'augmentation du seuil laser témoigne d'une réabsorption trop importante du signal par le Thulium et l'Holmium. En dessous, le gain s'effondre car la fibre est trop courte. Malheureusement, pour une fibre amplificatrice de $3\ m$ l'émission de la cavité n'est pas continue et se présente sous la forme d'impulsions de durée $\sim 1\ \mu s$ à un taux de répétition $\sim 100\ kHz$, un comportement très similaire aux observations de Hemming [150; 147] sur sa source Tm-Ho pompée par un laser Erbium.

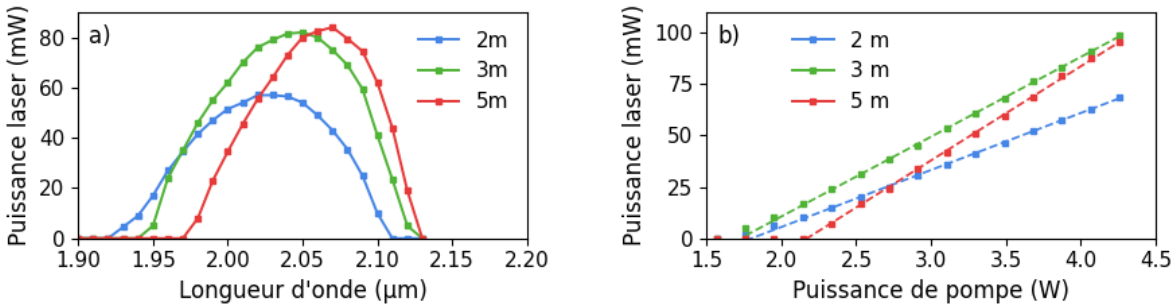


Figure 4.18 : a) Accordabilité de l'oscillateur Tm-Ho pour un pompage à 3,9 Watts et b) efficacité à 2050 nm pour différentes longueurs de fibre amplificatrice.

Expérimentalement, le compromis entre régime continu et accordabilité a toutefois pu être atteint en raccourcissant la fibre amplificatrice à 2 mètres et en augmentant la puissance de pompe à $5,5\ W$. La figure 4.19 montre les résultats obtenus dans cette configuration, avec un fonctionnement continu et stable entre $1950\ nm$ et $2100\ nm$ pour un contraste compris entre $40\ dB$ et $50\ dB$ sur l'ensemble de cette plage.

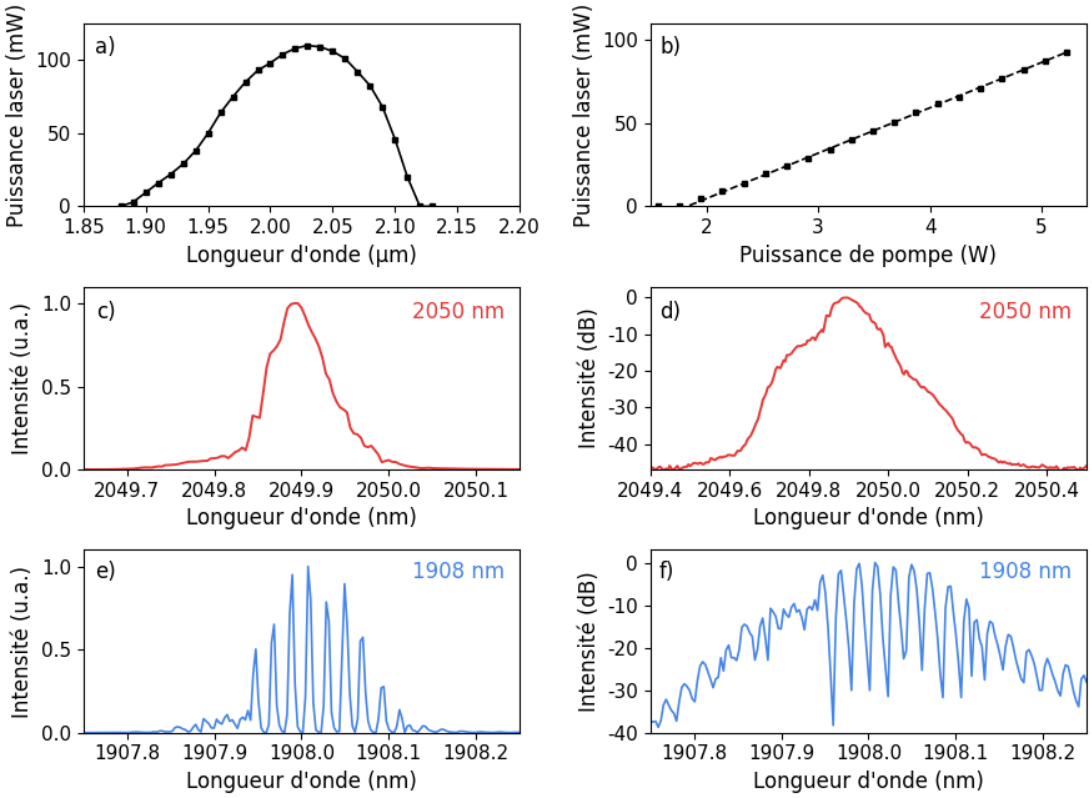


Figure 4.19 : Caractérisation de l'oscillateur Tm-Ho avec a) l'accordabilité, b) l'efficacité à 2050 nm, c-d) le spectre à 2050 nm et e-f) le spectre à 1908 nm.

Le régime continu n'a pas pu être obtenu pour les longueurs d'onde inférieures à $1950\ nm$, un seuil qui semble correspondre à la rupture de pente sur la courbe d'accordabilité (panneau *a* de la figure 4.19). Malgré un spectre fortement modulé (panneaux *c* à *f*) dans ce régime, le contraste reste supérieur à $40\ dB$ et la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe spectrale est conservée. La puissance moyenne est également stable avec une variation $< 1\%\ RMS$ mesurée sur une durée de $60\ s$. Bien que l'origine de ce processus n'ait pas fait l'objet de recherches approfondies durant la thèse, on relèvera toutefois une forte sensibilité du phénomène aux fluctuations thermiques du milieu amplificateur, qui se manifeste par un lent défilement des modulations sur une échelle de temps de l'ordre de plusieurs secondes. On précisera aussi que les mesures spectrales ont été limitées à une fenêtre étroite et soumises à un balayage rapide de l'analyseur de spectre pour conserver une résolution maximale $(0,1\ nm)$ sans risque de moyennage des fluctuations.

En résumé, un laser continu accordable fibré de puissance $> 50\ mW$ entre $1950\ nm$ et $2100\ nm$ a pu être développé pour sonder la plage d'émission dans des matériaux dopés à l'Holmium. Ces travaux ont mis en évidence la relation complexe entre les ions Thulium et Holmium dans les fibres co-dopées, avec la manifestation d'un régime stable mais impulsionnel dans certaines conditions de gain et d'inversion de population. À notre connaissance, aucune description complète de ce phénomène n'est proposée dans la littérature, motivant potentiellement des études plus approfondies sur le sujet.

4.3 Etude de céramiques dopées aux ions Holmium

4.3.1 Etat de l'art

Contrairement aux monocristaux, les céramiques se présentent à l'échelle microscopique sous la forme d'un agglomérat désordonné d'une multitude de structures élémentaires appelées *grains*. Ces grains, de géométrie et d'orientation variables, se forment par cristallisation rapide de la phase liquide lors du processus de fabrication. L'une des principales difficultés pour produire ces matériaux consiste à contrôler cette cristallisation pour réaliser un assemblage compact et homogène, à l'instar de celui présenté sur la figure 4.20, tirée de la référence [121]. Il s'agit d'une céramique Holmium:YAG, en tout point représentative de l'état de l'art dans le domaine des céramiques dopées à l'Holmium. L'observation de la structure au microscope à balayage électronique révèle une distribution relativement homogène de la taille des grains, une épaisseur régulière pour les joints et une absence totale d'inclusion ou de défaut de cristallisation.

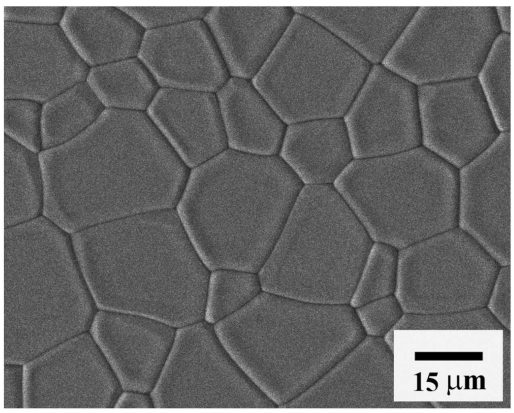


Figure 4.20 : Tirée de la référence [121] : Structure d'une céramique Ho:YAG imagée par un microscope à balayage électronique.

La nature irrégulière des céramiques à échelle microscopique provoque intrinsèquement un phénomène de diffusion pour les longueurs d'onde de même ordre de grandeur que la dimension des grains, se traduisant par une réduction de la transparence du matériau. Afin d'établir un point de comparaison pour les travaux qui seront présentés dans ce chapitre, notons que Wang [121] rapporte une transmission de 82% pour ses échantillons de céramiques d'épaisseur $2\ mm$, valeur à laquelle nous prendrons soin de retirer les réflexions de Fresnel des interfaces d'entrée et de sortie, données par les relations 4.4, 4.5 et 4.6.

$$r_{\parallel} = \frac{n_i cos(\theta_t) - n_t cos(\theta_i)}{n_i cos(\theta_t) + n_t cos(\theta_i)} \tag{4.4}$$

$$r_{\perp} = \frac{n_i cos(\theta_i) - n_t cos(\theta_t)}{n_i cos(\theta_i) + n_t cos(\theta_t)} \tag{4.5}$$

$$r_{total} = \frac{1}{2}\left(r_{\parallel} + r_{\perp}\right) \tag{4.6}$$

avec $r_{\parallel}$ et $r_{\perp}$ la réflectivité des polarisations respectivement parallèle (*p*) et perpendiculaire (*s*), n_i et n_t les indices de réfraction respectifs vu par les faisceaux incident et transmis, θ_i l'angle d'incidence et θ_t l'angle du faisceau transmis.

En assimilant l'indice de réfraction à celui du YAG pur ($1,80$ à $2\ \mu m$ [151]), chaque face engendre, à incidence normale, une réflexion de $8,16\%$, soit une transmission théorique idéale de $84,3\%$ pour un échantillon totalement transparent. Ce chiffre permet d'estimer les pertes internes des céramiques présentées par Wang [121] à $2,3\%$. En considérant ces pertes comme linéaires, le coefficient d'atténuation est alors donné par l'équation suivante :

$$\alpha = \frac{ln(T)}{L} \tag{4.7}$$

avec T la transmission interne de l'échantillon et L son épaisseur.

L'application du calcul ci-dessus aux échantillons de Wang aboutit à un excellent coefficient d'atténuation $\alpha \sim 0,05\ cm^{-1}$. Au lancement du projet de thèse en 2018, peu de travaux rapportaient des performances similaires pour des céramiques dopées à l'Holmium [117; 118; 119; 152; 122; 153]. Afin de développer ce savoir-faire en France, l'institut de Recherche sur les Céramiques (IRCer) de l'Université de Limoges s'est engagé avec l'Université de Bordeaux dans le développement de céramiques Holmium de qualité laser à travers le projet MISTRAL. La suite de ce chapitre sera dédiée à l'implémentation de ces matériaux dans des amplificateurs et des cavités laser, ainsi qu'à la caractérisation de propriétés optiques comme le gain, les pertes, les durées de vie radiatives, ou encore les sections efficaces d'émission et d'absorption, nécessaires au développement de modélisations numériques d'amplification.

4.3.2 Caractérisation optique de céramiques dopées à l'Holmium

La quantification de la transparence et l'identification des éventuelles sources d'opacité sont des tâches indispensables au développement de nouveaux matériaux laser. La suite de ce chapitre sera dédiée à la caractérisation des céramiques fabriquées par l'IRCer dans le cadre du projet MISTRAL. Le processus de fabrication ne sera pas abordé dans ce manuscrit mais les détails sont cependant disponibles dans la thèse de Lucas Viers [154].

4.3.2.1 Transparence des céramiques Holmium

Comme mentionné dans l'introduction de ce chapitre (cf 4.1), les pertes par diffusion constituent l'inconvénient majeur des céramiques par rapport aux monocristaux pour les applications laser. Le phénomène tire son origine de la structure microscopique de la céramique, à savoir une agglomération désordonnée de micro-cristaux (nommés *grains*). La figure 4.21, tirée de la référence [155], illustre la diffusion de Mie induite par réfractions successives à chaque interface entre deux grains. Dans une céramique Ho:YAG, la dimension des grains étant du

même ordre de grandeur que la longueur d'onde d'utilisation ($2\ \mu m$), la diffusion n'est pas un paramètre négligeable.

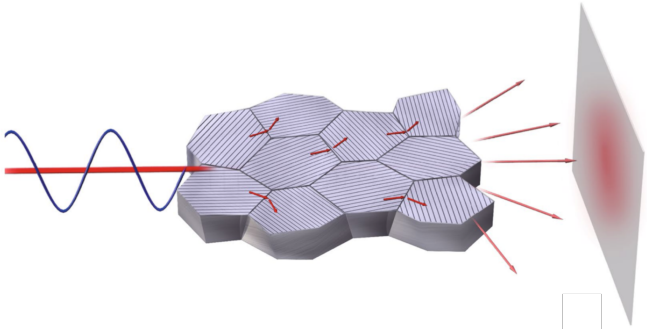


Figure 4.21 : Tirée de la référence [155]. Illustration de la diffusion de Mie dans une céramique dont la dimension des grains est comparable à la longueur d'onde.

Bien qu'elle ne soit pas parfaitement représentative du comportement réel à $2\ \mu m$, l'observation d'une céramique en lumière visible offre un aperçu qualitatif de la diffusion. La figure 4.22 montre deux photographies réalisées sur une céramique Ho:YAG dopée à 1% fabriquée par l'IRCer en 2019. L'échantillon est éclairé par un laser HeNe (Thorlabs, HNL210) délivrant une puissance continue de $20\ mW$ à $632,8\ nm$ dans un diamètre d'environ $1\ mm$. Sur l'image de gauche, la diffusion émise dans une direction transverse à la propagation est collectée sur un flanc de l'échantillon. À droite, le mode transverse du laser est imagé sur un écran blanc après propagation dans la céramique. Pour éviter la saturation du détecteur, l'énergie au centre du faisceau est filtrée par un trou circulaire dans l'écran.

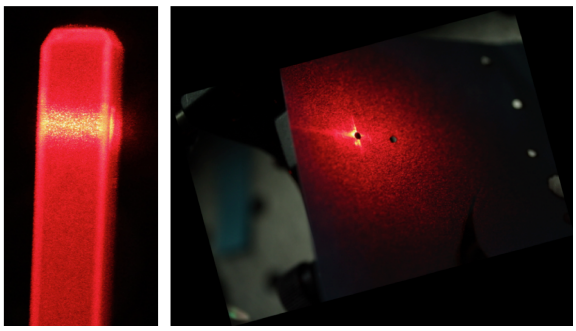


Figure 4.22 : Diffusion transverse (à gauche) et dans l'axe de propagation (à droite) d'un faisceau laser HeNe à 632,8 nm dans une céramique Ho:YAG.

A titre comparatif, la diffusion d'un monocristal commercial de même composition chimique s'est révélée trop faible pour être détectée par le capteur. Cette première observation trahit la présence d'une diffusion importante dans les céramiques de l'IRCer. L'un des enjeux de ce chapitre sera donc de quantifier la diffusion puis, grâce à des mesures de gain, de définir le seuil de diffusion à atteindre pour obtenir un milieu amplificateur efficace.

La caractérisation de la diffusion d'une optique n'est cependant pas triviale, même à faible intensité (sans pertes non linéaires). Quand un faisceau laser traverse une optique, il subit des pertes linéaires par réflexion aux interfaces, puis par diffusion et absorption dans le volume.

Après propagation dans le matériau, la puissance de sortie s'exprime par la relation suivante :

$$P_{sortie} = P_{entrée}\ (1 - R_1)(1 - R_2)\ e^{-(\mu_d + \mu_a)L} \tag{4.8}$$

avec $P_{entrée}$ la puissance incidente, P_{sortie} la puissance de sortie, R_1 et R_2 les coefficients de réflexion sur les faces d'entrée et de sortie, μ_d le coefficient de diffusion, μ_a le coefficient d'absorption et L l'épaisseur du milieu.

Dans notre cas où les échantillons sont de géométrie parallélépipédique, la caractérisation de la diffusion par intégration du rayonnement tout autour du matériau n'a pas été retenue à cause du biais de mesure introduit par les faces non polies et les arêtes des céramiques. Dans l'équation ci-dessus, les paramètres de diffusion et d'absorption ne peuvent toutefois pas être décorrélés par une simple mesure de transmission. La caractérisation de céramiques non dopées pourrait aider en ce sens mais ne serait pas représentative d'un milieu amplificateur car le dopage joue un rôle non négligeable dans la diffusion d'un polycristal (modification de l'indice de réfraction, influence sur la formation de défauts). Les pertes par réflexions peuvent toutefois être écartées du problème par application d'un traitement optique haute transmission sur les faces actives des céramiques, ramenant l'équation 4.8 à une forme simplifiée :

$$P_{sortie} = P_{entrée}\ e^{-(\mu_d + \mu_a)L} \tag{4.9}$$

Des mesures d'absorption réalisées par l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB) ont montré que le rapport de forme de la courbe d'absorption des céramiques Ho:YAG entre $1830\ nm$ et $1950\ nm$ était indépendant du taux de dopage (cf figure 4.24 dans la prochaine section 4.3.2.2). En supposant la continuité de cette tendance au-delà de $2\ \mu m$, une méthode a été développée par le LP2N pour caractériser la diffusion en mesurant la transmission à deux longueurs d'onde différentes $\lambda_1 = 2050\ nm$ et $\lambda_2 = 2090\ nm$ reliés par un coefficient de proportionnalité constant $\beta = \mu_a(\lambda_1)/\mu_a(\lambda_2)$. Pour une valeur de β donnée, le problème se traduit alors par un système de 3 équations à 3 inconnues μ_d, $\mu_a(\lambda_1)$ et $\mu_a(\lambda_2)$:

$$\begin{cases} P_{sortie}(\lambda_1) & = P_{entrée}(\lambda_1)\ e^{-[\mu_d + \mu_a(\lambda_1)]L} \\ P_{sortie}(\lambda_2) & = P_{entrée}(\lambda_2)\ e^{-[\mu_d + \mu_a(\lambda_2)]L} \\ \beta & = \dfrac{\mu_a(\lambda_1)}{\mu_a(\lambda_2)} \end{cases} \tag{4.10}$$

En isolant μ_d dans la seconde équation et en le substituant dans la première équation par cette valeur, le système présente alors la solution analytique suivante :

$$\begin{cases} \mu_a(\lambda_2) & = \dfrac{ln(P_{sortie}/P_{entrée})_{\lambda_2} - ln(P_{sortie}/P_{entrée})_{\lambda_1}}{L(\beta - 1)} \\ \mu_d & = -\mu_a(\lambda_2) - ln(P_{sortie}/P_{entrée})_{\lambda_2}/L \\ \beta & = \dfrac{\mu_a(\lambda_1)}{\mu_a(\lambda_2)} \end{cases} \tag{4.11}$$

En fixant le coefficient β à sa valeur théorique $0,34$ [122], la méthode permet de quantifier l'absorption et la diffusion d'un matériau par une simple mesure de transmission répétée à deux longueurs d'onde différentes. La figure 4.23 montre les résultats obtenus sur des céramiques Ho:YAG dopées à 1%, 2%, 4%, 6% et 10% (fabriquées par l'IRCer) ainsi qu'un monocristal Ho:YAG dopé à 1% (produit commercial). L'épaisseur de chaque milieu amplificateur est rigoureusement identique ($2,5\ mm$) et les réflexions aux interfaces ont été supprimées par un traitement optique haute transmission entre $1,9\ \mu m$ et $2,1\ \mu m$. La source accordable Thulium-Holmium développée dans la section 4.2.3 a été mise à contribution pour générer des faisceaux centrés à $2050\ nm$ et $2090\ nm$. La barre d'erreur noire sur la figure correspond à la résolution analytique du système d'équations en tenant compte d'une incertitude de $\pm 2,5\%$ sur les valeurs de transmission, représentative des conditions expérimentales. Les points rouges et bleus ont quant à eux été obtenus par une méthode alternative dans laquelle le coefficient β n'est plus fixe mais où les paramètres μ_d, $\mu_a(2050nm)$ et $\mu_a(2090nm)$ sont ajustés pour minimiser une fonction d'erreur définie comme le rapport entre la transmission décrite par l'équation 4.9 et la transmission mesurée expérimentalement. Cette seconde méthode semble en accord avec les résultats de la première : les points ne sortent pas des barres d'erreur et le coefficient β varie entre $0,33$ et $0,36$ selon l'échantillon analysé.

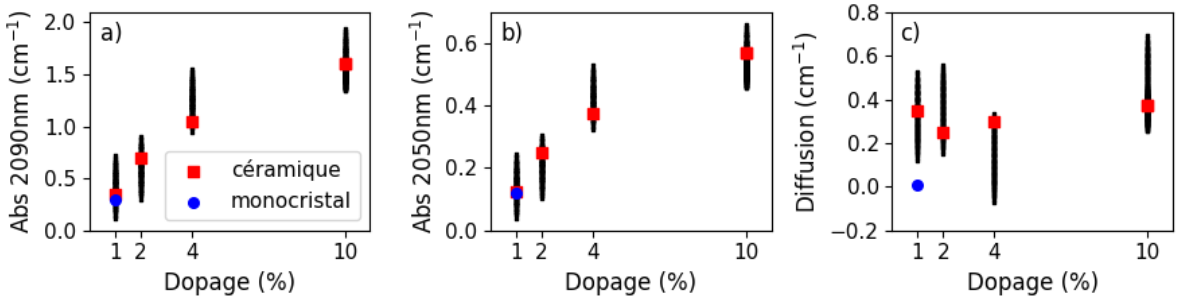


Figure 4.23 : a-b) Coefficient d'absorption à 2090 nm et 2050 nm dans des matériaux Ho:YAG à différents niveaux de dopage. La plage de confiance (barre noire) est calculée pour une incertitude de $\pm 2,5\%$ sur les mesures de transmission.

Malgré un manque de précision imputable au protocole expérimental, la méthode de caractérisation semble fonctionner au regard de la diffusion nulle mesurée dans le monocristal et de la similitude entre l'absorption du monocristal et de la céramique de même dopage. Comme le laissaient supposer les premières observations en lumière visible, ces nouveaux résultats confirment la présence d'une diffusion importante dans les céramiques avec une valeur moyenne de l'ordre de $0,3\ cm^{-1}$, soit presque un ordre de grandeur de plus que l'état de l'art. Pour conserver une échelle lisible sur les graphes, les résultats de l'échantillon dopé à 6% ont été retirés de la figure. Bien qu'inexploitables en l'état, les valeurs numériques sont tout de même données à titre indicatif avec $\mu_d = 1,0\ cm^{-1}$, $\mu_a(2050nm) = 1,05\ cm^{-1}$ et $\mu_a(2090nm) = 3,1\ cm^{-1}$. Une réflexion parasite liée à un défaut sur le traitement optique pourrait expliquer cette surestimation des pertes linéaires.

On notera que l'absorption des céramiques ne semble plus augmenter linéairement avec le dopage quand la concentration d'ions Holmium dépasse 2%. S'il est avéré, ce constat pourrait

signifier un début de ségrégation des dopants lors du processus de fabrication, un phénomène déjà observé dans les céramiques dopées à l'Ytterbium avec des conséquences néfastes sur les performances optiques [156; 157].

Concernant le protocole expérimental, la caractérisation d'une absorption faible dans des optiques fines pose un problème de niveau de bruit. Dans nos conditions expérimentales, la propagation est trop courte et les pertes mesurées sur les échantillons faiblement dopés sont seulement 5 à 10 fois supérieures aux fluctuations de puissance de la source. La caractérisation d'échantillons plus épais (typiquement $1\ cm$) et la mise en place d'une mesure de puissance différentielle sont prévues pour améliorer la précision de la mesure de transmission à l'avenir. À terme, il serait également possible d'automatiser le processus avec un balayage spectral motorisé de la source laser et un traitement numérique plus élaboré des résultats pour mettre à profit la redondance des informations et ainsi accroître encore la précision de la mesure.

En l'état, ces premières données apportent déjà des informations précieuses sur les céramiques fabriquées par l'IRCer. Tout d'abord, après extraction du paramètre de diffusion la céramique dopée à 1% présente une absorption similaire à celle du monocristal de même dopage. Ensuite, les performances optiques semblent se dégrader au-delà d'un certain seuil de dopage qu'il sera nécessaire d'établir. Enfin, la quantification de la diffusion permet d'identifier immédiatement ce paramètre comme un axe d'amélioration prioritaire. D'ici la fin de l'année 2022, l'IRCer devrait être en mesure de produire des céramiques de diffusion similaire à l'état de l'art.

4.3.2.2 Spectroscopie des céramiques Holmium

Dans le cadre du projet MISTRAL, l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB) a pris en charge la caractérisation des propriétés spectroscopiques des céramiques, à savoir l'absorption, l'émission et le temps de fluorescence. Dans un contexte incluant le développement de compositions chimiques innovantes comme les sesquioxydes dopées à l'Holmium, ces travaux forment un pallier préliminaire indispensable pour identifier avec précision les longueurs d'onde optimales pour le pompage et l'émission laser. La quantification de paramètres tels que les sections efficaces d'absorption et d'émission, ou encore le temps de fluorescence de la transition $I_7 \rightarrow I_8$ de l'Holmium, présente également un intérêt pour le dimensionnement de cavités et d'amplificateurs laser en permettant la réalisation de modèles numériques de gain.

Les céramiques Ho:YAG présentées dans la section précédente sont actuellement en cours de caractérisation par l'ICMCB, ainsi que des échantillons Ho:Lu_2O_3 dopés à 1%. Par conséquent, cette étude sera bornée à l'analyse des premiers échantillons Ho:YAG fabriqués par l'IRCer, dopés à 1%, 2%, 4% et 10% et d'épaisseurs respectives $1\ mm$, $0,75\ mm$, $0,3\ mm$ et $0,35\ mm$. La figure 4.24 montre l'absorption de ces matériaux entre $1830\ nm$ et $1950\ nm$. Les données brutes, acquises avec un spectrophotomètre commercial (Agilent, VARIAN CARY 500), ont été rapportées à l'épaisseur des échantillons pour obtenir des données comparables. Contrairement aux estimations précédentes, l'évolution de l'absorption avec la concentration

d'ions Holmium semble ici linéaire entre 1% à 4% de dopage. En raison d'une suspicion d'erreur de calibration du niveau de bruit pour la céramique dopée à 10%, cette dernière ne sera pas considérée dans l'analyse. Le centrage des pics d'absorption semble quant à lui invariant avec le dopage.

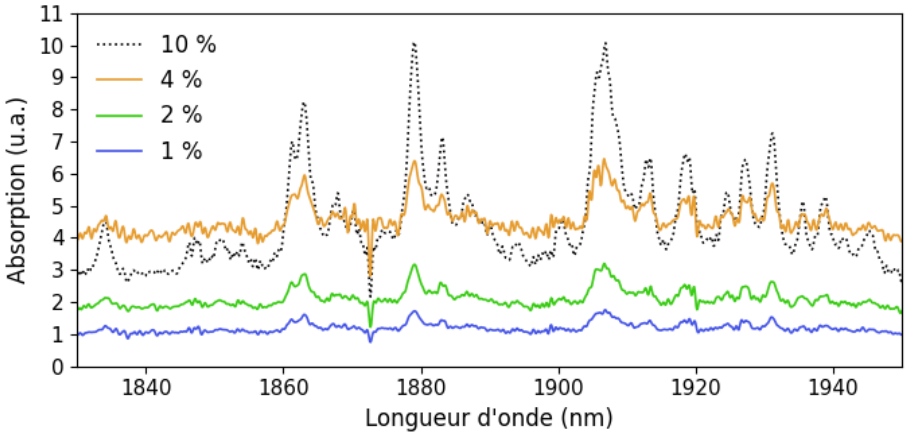


Figure 4.24 : Absorption de céramiques YAG dopées à 1%, 2%, 4% et 10% d'ions Holmium.

Les mesures en cours à l'ICMCB, sur des céramiques de géométries identiques et aux faces traitées contre les réflexions, offriront une quantification plus rigoureuse de l'absorption avec un meilleur échantillonnage en termes de dopage ainsi qu'une référence monocristalline. Le coefficient d'absorption de chaque matériau sera ensuite utilisé pour calculer la section efficace d'absorption à partir de l'équation suivante :

$$\sigma_a(\lambda) = \frac{ln(10)\ \alpha(\lambda)}{\mathcal{N}_{HO}} \tag{4.12}$$

avec λ la longueur d'onde, α le coefficient d'absorption et $\mathcal{N}_{HO}$ le nombre d'ions Holmium par unité de volume.

Pour la caractérisation de l'émission, les céramiques ont été excitées à un haut niveau d'énergie par une lampe au Xénon de puissance $450\ W$ et la fluorescence entre $1700\ nm$ et $2300\ nm$ a été collectée dans un spectromètre commercial (Horiba Jobin-Yvon, Fluorolog3). À partir de l'intensité d'émission spontanée, la section efficace d'émission σ_e a ensuite été calculée par l'équation de Füchtbauer-Ladenburg [158] :

$$\sigma_e(\lambda) = \frac{\lambda^4}{8\,\pi\,c\,n^2}\,\frac{I(\lambda)}{\int I(\lambda)\,d\lambda} \tag{4.13}$$

avec λ la longueur d'onde, c la vitesse de la lumière dans le vide, $n \sim 1,8$ l'indice de réfraction et I l'intensité d'émission spontanée.

Les résultats de ce protocole sont présentés sur la figure 4.25. Dans les conditions expérimentales de l'époque, la résolution spectrale du montage était insuffisante pour résoudre les pics d'émission de l'Holmium, expliquant l'allure très lisse de la courbe. Les valeurs numériques étaient également surprenantes avec une surface efficace d'émission de $2 \times 10^{-19}\ cm^{-1}$

à $2090\ nm$ pour la céramique dopée à 1%, soit environ dix fois plus que les données référencées dans la littérature pour les céramiques Ho:YAG [159; 121]. En raison de la suspicion d'une erreur de calibration lors de la mesure, le graphique est donc présenté en valeurs relatives plutôt qu'absolues. Avec cette méthode basée sur l'hypothèse de la proportionnalité entre l'émission spontanée et la section efficace d'émission stimulée, il est intéressant de constater que la section efficace ne semble pas augmenter linéairement avec le dopage mais a plutôt tendance à saturer à partir de $\sim 4\%$ de concentration d'ions actifs, un seuil qui s'accorderait avec la dégradation du gain observée sur les céramiques par le laboratoire LP2N (cf prochaine section 4.3.2.3).

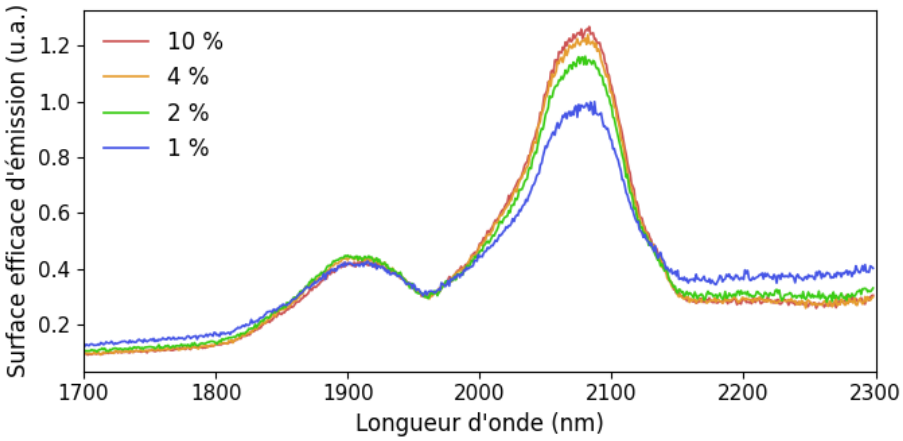


Figure 4.25 : Surface efficace d'émission de céramiques YAG dopées à 1%, 2%, 4% et 10% d'ions Holmium, obtenues à partir de la distribution d'émission spontanée par l'équation de Füchtbauer-Ladenburg.

Dans la littérature, le temps de vie d'une céramique Ho:YAG dopée à 1% est donné pour $8,17\ ms$ à $2088\ nm$ [121]. À notre connaissance, il n'existe pas d'analyse approfondie du temps de vie lié à la transition $I_7 \rightarrow I_8$ en fonction de la concentration d'ions Holmium dans des céramiques. Même pour les monocristaux, ce sujet semble encore à l'étude avec une contribution très récente en 2021 sur des monocristaux Ho:YAG dopés de $0,34\%$ à $1,98\%$ [160]. Pour cette raison, il est prévu d'inclure la caractérisation du temps de vie dans des céramiques Ho:YAG et Ho:Lu_2O_3 à différentes concentrations d'ions actifs dans la suite du projet avec l'ICMCB.

4.3.2.3 Caractérisation du gain des céramiques Holmium

Dans un laser, le rôle d'une céramique dopée à l'Holmium se résume à générer du gain par émission stimulée sans nuire à la qualité du faisceau. La thermique constitue l'une des premières sources de dégradation des performances optiques avec l'apparition d'effets indésirables (lentille thermique, dépolarisation induite, réduction de l'intensité de fluorescence, baisse de conductivité thermique [156]). Des travaux menés sur des céramiques Yb:YAG montrent même une corrélation entre le pourcentage de dopage et la conductivité thermique [156], avec une perte de $\sim 20\%$ entre une matrice YAG pure ou dopée à 4%. La thermique, intrinsèque au défaut quantique, est donc un paramètre à ne pas négliger lors du développement de nouveaux matériaux.

Pour l'ion Holmium, la chaleur est produite d'une part par relaxation non radiative entre les sous-niveaux Stark des niveaux I_7 et I_8 mais aussi par de nombreuses relaxations non radiatives depuis des niveaux d'énergie élevés. La figure 4.26 montre le diagramme d'énergie de l'Holmium avec les cascades successives conduisant à la fluorescence rouge caractéristique de l'Holmium, photographiée sur l'image de gauche.

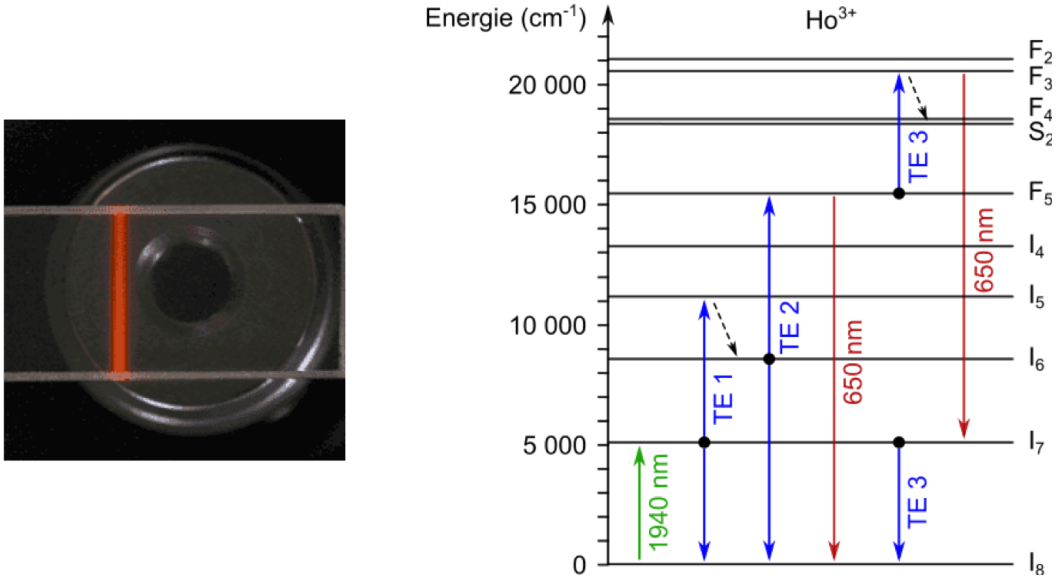


Figure 4.26 : A gauche, fluorescence rouge d'une céramique Ho:YAG pompée à 1940 nm. À droite, diagramme d'énergie de l'Holmium tiré de la référence [161] avec la transition de pompage (vert), les transferts d'énergie croisés (TE, bleu), les transitions non radiatives (noir) et les transitions radiatives vers 650 nm (rouge).

D'après le diagramme d'énergie de la figure 4.26, la fluorescence rouge observée lors du pompage à $1940\ nm$ traduit le fait qu'une fraction de la population du niveau I_7 se retrouve impliquée de multiples transferts d'énergie croisés (*TE1*, *TE2* et *Te3* sur la figure). Au cours de ces cycles, les transferts non radiatifs $I_5 \rightarrow I_6$ et $F_3 \rightarrow F_4$ contribuent à la production de chaleur dans le matériau. Comme dans le cas de la relaxation croisée du Thulium, les rapports de branchement entre les différentes transitions de l'Holmium dépendent en partie de la proximité des ions. En d'autres termes, la charge thermique dans une céramique Holmium est susceptible d'augmenter de façon non linéaire avec la concentration d'ions actifs.

Outre la dégradation des performances optiques, l'accumulation de chaleur dans les milieux amplificateurs présente aussi un risque de dommage à cause de la dilatation locale du matériau au niveau de la zone de pompage. La figure 4.27 montre une fissure apparue dans une céramique Ho:YAG dopée à 8% non refroidie et pompée à une puissance de $38\ W$ à $1940\ nm$. Pour ce même échantillon, des effets de lentille thermique importants ont été observés à partir de $2\ W$ de puissance de pompe, soulignant l'importance de la régulation thermique dans ces matériaux.

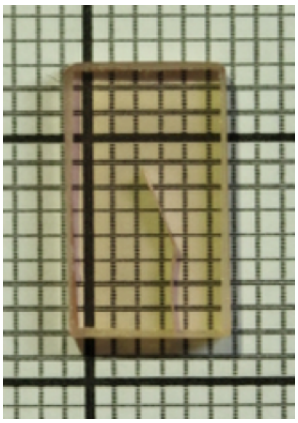


Figure 4.27 : Apparition d'une fracture dans une céramique Ho:YAG dopée à 8% pour un pompage à 38 Watts à 1940 nm.

Les travaux de cette section portent sur la caractérisation du gain de céramiques Ho:YAG dopées à 1%, 2%, 4% et 6%, d'ouverture carrée $5\ mm \times 5\ mm$ et d'épaisseur $2,5\ mm$. Deux monocristaux commerciaux Ho:YAG dopés à 1% d'ouverture circulaire $\phi\ 5\ mm$ et d'épaisseurs $2,5\ mm$ et $5\ mm$ ont également été intégrés à l'étude en guise de référence. Pour assurer une dissipation thermique efficace, les échantillons ont été montés dans des boîtes à eau en cuivre fabriquées sur mesure et refroidies par une eau à 18^oC. Le contact thermique entre les céramiques et les montures a été réalisé par une interface en graphite d'épaisseur $100\ \mu m$, comprimée à 25% par tolérancement mécanique. La figure 4.28 présente le montage utilisé pour la caractérisation du gain en simple passage.

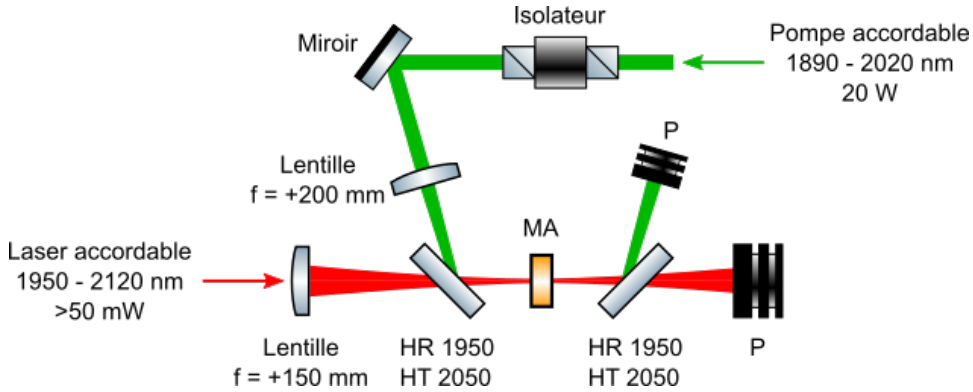


Figure 4.28 : Montage de caractérisation du gain en simple passage dans des matériaux dopés à l'Holmium, avec MA le milieu amplificateur, P des diagnostics de puissance, et HR/HT les optiques de couplage de la pompe et du signal.

La sortie fibrée du laser d'injection (cf section 4.2.3) est collimatée à une taille théorique de $2,1\ mm$ par une lentille asphérique de distance focale effective $EFL = +11\ mm$ puis focalisée à $0,2\ mm$ dans le plan des céramiques Holmium par une lentille sphérique de focale $f = +150\ mm$. Le laser de pompe (cf section 4.2.2) est quant à lui focalisé à $0,25\ mm$ avec une lentille sphérique de focale $f = +200\ mm$. Au niveau du cristal amplificateur, la pompe et le signal sont couplés puis séparés par des polariseurs à couches minces totalement réflectifs pour la pompe en-dessous de $2\ \mu m$ (indépendamment de l'état de polarisation) et

transmissifs pour la polarisation "p" du signal au-delà de $2\ \mu m$. On précisera que le laser de pompe est ici bridé à $20\ W$ pour ne pas dépasser le seuil de dommage de l'isolateur optique.

Dans un premier temps, la céramique Ho:YAG dopée à 1% a été comparée à un monocristal de même composition chimique. Pour ces deux matériaux, la figure 4.29 montre l'absorption de la pompe à $1934,4\ nm$ et le gain brut à $2090\ nm$. La notion de gain brut, qui englobe l'ensemble des phénomènes d'amplification et de pertes, sera notée *Gain* dans la suite de cette étude et définie comme le rapport entre les puissances d'entrée et de sortie.

$$Gain = \frac{P_{sortie}}{P_{entrée}} \tag{4.14}$$

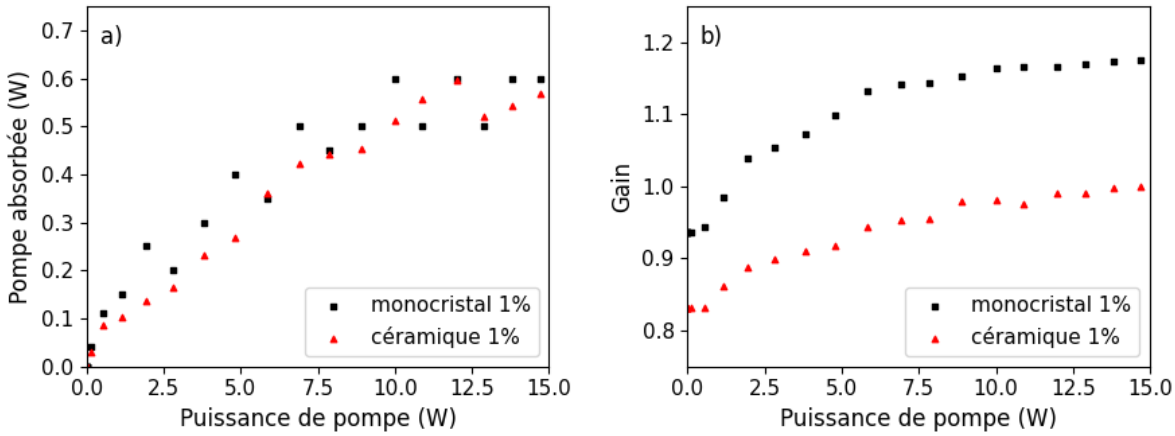


Figure 4.29 : a) Pompe absorbée à 1939,4 nm et b) gain brut à 2090 nm dans un monocristal (noir) et une céramique (rouge) Ho:YAG dopés à 1%.

Pour tenir compte de la diffusion importante dans la céramique (cf section 4.3.2.1), la valeur de pompe absorbée a été corrigée par le coefficient de diffusion caractérisé précédemment (cf figure 4.23). Malgré un manque de précision imputable à la faible épaisseur des cristaux, l'absorption des deux matériaux s'avère très similaire avec peut-être une légère supériorité du monocristal à faible puissance de pompage. À cause de la diffusion, le gain de la céramique est en revanche très inférieur à celui du monocristal, à tel point que l'amplification suffit à peine à compenser les pertes à la puissance de pompe maximale.

Lorsque la diffusion est très différente d'un échantillon à l'autre, la mesure du gain brut ne permet pas à elle-seule de comparer l'efficacité d'amplification des différentes compositions chimiques. Un protocole a donc été développé pour isoler la contribution de l'émission stimulée en s'appuyant sur la caractérisation préalable de la diffusion (cf section 4.3.2.1).

Dans un régime de fonctionnement où le signal est très faible devant la puissance de la pompe, le gain adopte une expression exponentielle. Pour une inversion de population donnée, l'introduction d'un coefficient G_{es} représentatif du gain par émission stimulée dans l'équation 4.9 aboutit à l'expression 4.15 pour la transmission.

$$P_{sortie} = P_{entrée}\, e^{-[(\mu_d+\mu_a)-G_{es}]L} \tag{4.15}$$

avec μ_d le coefficient de diffusion, μ_a le coefficient d'absorption à $2090\ nm$ et L l'épaisseur de la céramique.

L'intérêt étant ici porté sur la quantification relative du gain entre céramique et monocristal plutôt que sur une valeur absolue, le problème sera simplifié en considérant l'absorption à $2090\ nm$ indépendante du niveau d'inversion de population. Dans ces conditions, le terme μ_a de l'équation ci-dessus ne dépend plus du pompage et le coefficient d'émission stimulée devient alors :

$$G_{es} = \frac{ln(P_{entrée}/P_{sortie})}{L} + \mu_d + \mu_a \tag{4.16}$$

La figure 4.30 montre le coefficient d'émission stimulée obtenu en fixant μ_d et μ_a par les valeurs caractérisées précédemment sur la figure 4.23 ($\mu_d = 0\ cm^{-1}$, $\mu_a = 0,3\ cm^{-1}$ pour le monocristal et $\mu_d = 0,35\ cm^{-1}$, $\mu_a = 0,35\ cm^{-1}$ pour la céramique).

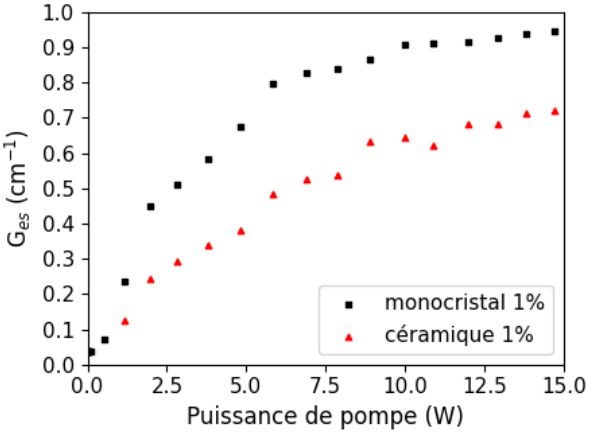


Figure 4.30 : Coefficient d'émission stimulée dans un monocristal (en rouge) et une céramique (en noir) Ho:YAG dopés à 1%.

Malgré une absorption équivalente des photons de pompe pour les deux matériaux, la céramique génère moins d'émission stimulée que le monocristal. En d'autres termes, pour un taux de pompage $I_8 \rightarrow I_7$ similaire, le rapport de branchement de la transition radiative $I_7 \rightarrow I_8$ est plus faible dans la céramique que dans le monocristal, se traduisant par une réduction du gain de $0,25\ cm^{-1}$ à $15\ W$. Une distribution inhomogène des dopants dans la céramique pourrait être à l'origine de ce phénomène, notamment au niveau des interfaces entre les grains, favorisant les transitions croisées par des sur-concentrations locales d'ions Holmium.

En résumé, bien que la diffusion soit actuellement la limitation majeure des céramiques de l'IRCer, il ne s'agit pas du seul axe d'amélioration. À terme, l'optimisation de l'homogénéité lors de la cristallisation sera un paramètre à considérer pour produire des matériaux de qualité comparable à des monocristaux.

En reprenant le même protocole expérimental, une seconde étude a été menée pour étudier cette fois-ci l'impact du dopage sur le gain de céramiques dopées à 1%, 2%, 4% et 6%. La

figure 4.31 montre l'absorption de la pompe à $1939,4\ nm$ et le gain à $2090\ nm$ obtenus pour chacune de ces céramiques ainsi que pour le monocristal dopé à 1%. Les coefficients de diffusion des céramiques $1/2/4/6\%$ ont été fixés respectivement à $0,35/0,25/0,35/1,0\ cm^{-1}$ d'après les résultats de la figure 4.23. Malgré une absorption croissante de la pompe avec le dopage des céramiques, ces résultats montrent une dégradation du gain à 4% de dopage et une absence totale de gain sur la céramique dopée à 6%. Cette dernière ayant montré des résultats numériques aberrants à la fois sur les pertes et le gain, elle ne sera pas prise en compte dans la suite de l'analyse. Il est probable qu'un problème soit survenu au cours de la fabrication de cet échantillon.

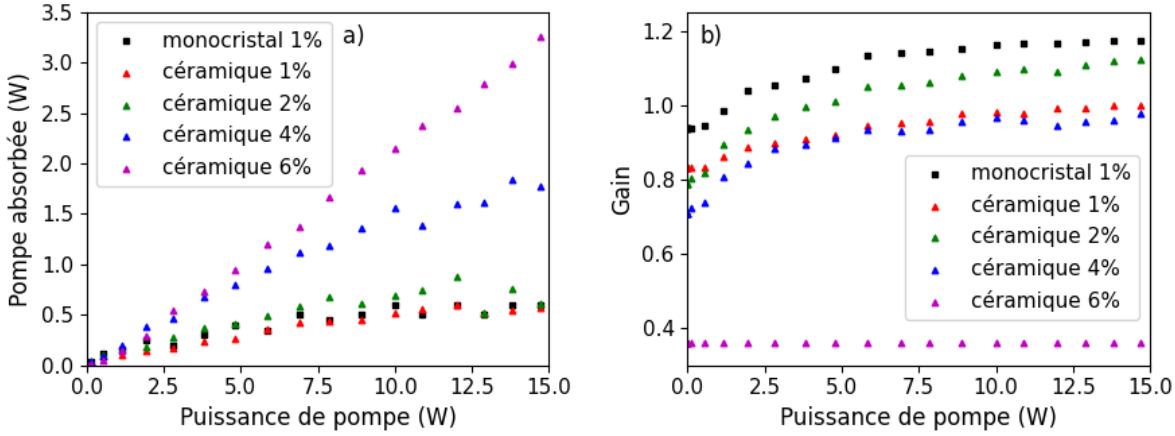


Figure 4.31 : a) Pompe absorbée à 1939,4 nm et b) gain à 2090 nm dans des céramiques Ho:YAG dopées à différentes concentrations d'ions actifs.

Comme précédemment, la contribution de l'émission stimulée a été isolée en posant dans l'équation 4.16 une absorption $0,35/0,7/1,0\ cm^{-1}$ pour les céramiques dopées à $1/2/4\%$ d'après les résultats de la figure 4.23. La comparaison du coefficient d'émission stimulée sur la figure 4.32 témoigne d'une évolution linéaire de l'émission stimulée avec le dopage jusqu'à une concentration de 2% d'ions Holmium. Au-delà de cette valeur, le processus d'émission stimulée semble perdre rapidement en efficacité, avec des performances moins bonnes à 4% qu'à 2% de dopage. Il serait intéressant de reproduire cette mesure sur des monocristaux fortement dopés pour vérifier si le comportement est similaire ou non.

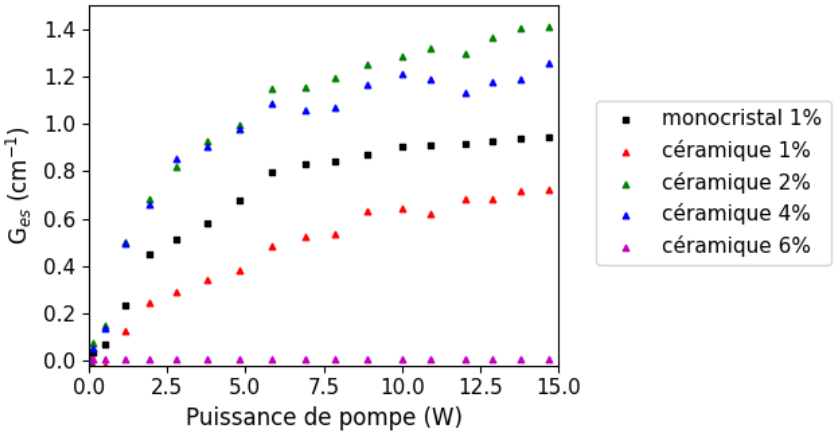


Figure 4.32 : Coefficient d'émission stimulée dans des céramiques Ho:YAG dopées avec différentes concentrations d'ions actifs.

Pour identifier le taux de dopage optimal d'une céramique Ho:YAG, il est nécessaire de tenir compte de la réabsorption du signal, qui varie selon la concentration d'ions actifs. La figure 4.33 reprend les résultats précédents à la puissance de pompe maximale (panneau a) en y réintégrant le coefficient d'absorption à $2090\ nm$ (panneau *b*).

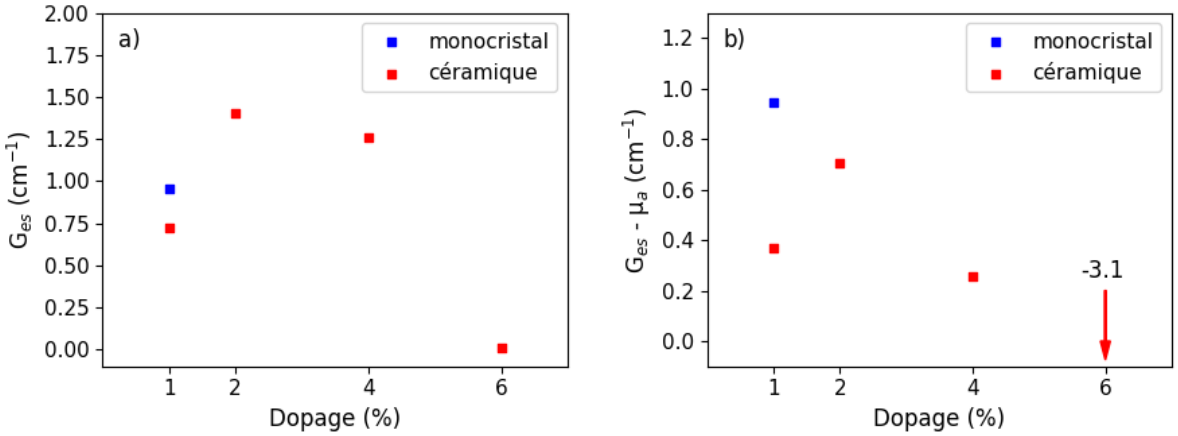


Figure 4.33 : a) Coefficient d'émission stimulée et b) gain net attendu en l'absence de diffusion à 2090 nm dans des céramiques Ho:YAG dopées avec différentes concentrations d'ions actifs.

Ces données, isolées de l'influence de la diffusion, permettent d'estimer la concentration idéale d'ions Holmium à une valeur égale ou légèrement supérieure à 2%. En négligeant la dispersion, les performances de la céramique dopée à 2% atteignent presque celles du monocristal dopé à 1%, laissant envisager la possibilité pour l'IRCer de développer des milieux amplificateurs céramiques aussi efficaces que les monocristaux dans un avenir proche.

En conclusion de cette étude, un protocole expérimental complet a été élaboré afin de caractériser le gain de milieux amplificateurs dopés à l'Holmium et ouvrir la voie au développement de céramiques basées sur de nouvelles compositions chimiques. Le manque de précision sur les premières mesures, réalisées sur des cristaux d'épaisseur $2,5\ mm$, a mis en évidence le besoin d'utiliser des échantillons plus longs et/ou de modifier la méthode de

mesure de la transmission (mesure différentielle, intégration, détecteur mieux résolu). Les céramiques Ho:YAG fabriquées par l'IRCer ont montré une capacité satisfaisante à absorber les photons de pompe et à générer du gain par émission stimulée, avec un optimum d'efficacité pour un dopage aux alentours de 2%. Une prochaine série de mesures permettra d'affiner ce résultat avec un échantillonnage plus fin du dopage entre 2% et 4%. La diffusion élevée, de l'ordre de $0,35\ cm^{-1}$, représente aujourd'hui la principale limitation aux céramiques produites par l'IRCer. Nous verrons malgré tout dans la prochaine section que la céramique dopée à 2% possède déjà suffisamment de gain pour générer un effet laser dans une cavité. La fabrication de nouveaux échantillons avec une diffusion plus proche de l'état de l'art devrait permettre d'atteindre des performances comparables à des monocristaux avec les céramiques de l'IRCer.

4.3.2.4 Performances des céramiques Holmium en cavité laser

La caractérisation des céramiques Ho:YAG dans la section précédente a montré la présence d'un gain supérieur à 1 pour l'échantillon dopé à 2%. Ce dernier a donc été implémenté dans une cavité laser pour tester ses performances et les comparer à celles d'un monocristal Ho:YAG dopé à 1%. La figure 4.34 présente le schéma du montage expérimental avec une cavité linéaire continue réalisée entre deux miroirs sphériques de rayon de courbure $R = 300\ mm$ séparés d'une distance $L = 595\ mm$. Le couplage de la pompe et du signal est réalisé avec des polariseurs, comme expliqué dans la section précédente. La sortie laser est quant à elle délivrée par la réflexion de l'un des deux polariseurs, avec un rapport de couplage ajustable par l'orientation d'une lame de phase quart d'onde ($\lambda/4$).

Concernant le protocole expérimental, la cavité a été pré-alignée en deux étapes. Tout d'abord, un laser HeNe de $20\ mW$ à $632,8\ nm$ a été aligné sur l'axe de la cavité, matérialisé par deux diaphragmes de part et d'autre de la cavité. Un troisième iris a été ajouté à l'emplacement du milieu amplificateur pour apporter un point de repère supplémentaire. Les deux miroirs sphériques (partiellement réflectifs à $632,8\ nm$) ont ensuite été mis en place et alignés dans l'axe de cavité en centrant les réflexions successives du laser HeNe dans les diaphragmes. Dans un second temps, après extinction du laser HeNe et installation des polariseurs, le faisceau de pompe a été aligné à son tour sur l'axe de la cavité. Les longueurs d'onde inférieures à $2,0\ \mu m$ étant totalement réfléchies par le second polariseur, l'émission du laser de pompe a été décalée à $2020\ nm$ lors de cette étape et sa polarisation tournée de 90° par une lame demi-onde entre les deux polariseurs afin d'obtenir une transmission du faisceau dans la cavité. Une fois le pré-alignement terminé, la lame demi-onde a été retirée puis le milieu amplificateur et la lame quart d'onde ont été mis en place dans la cavité. Ce protocole s'est révélé efficace pour obtenir un effet laser de façon rapide et reproductible avec les deux monocristaux commerciaux Ho:YAG dopés à 1%, de longueurs $2,5\ mm$ et $5\ mm$. En revanche, l'implémentation des céramiques a mis en évidence un défaut de parallélisme qui n'avait pas été détecté jusqu'ici.

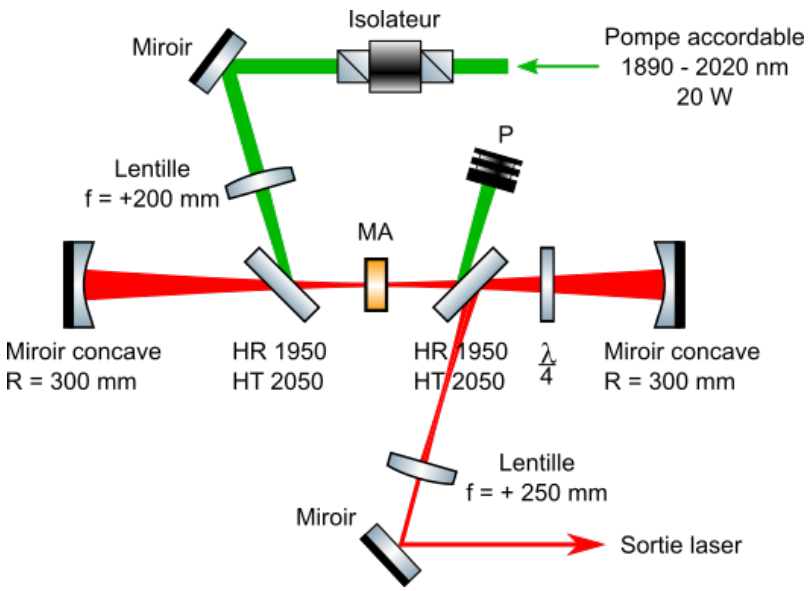


Figure 4.34 : Cavité laser bi-concave avec MA le milieu amplificateur, P des diagnostics de puissance, $\lambda/4$ une lame de phase quart d'onde et HR/HT les optiques de couplage de la pompe et du signal.

L'utilisation d'une céramique à faces non parallèles provoque une déviation du faisceau laser et désaligne ainsi l'axe de la cavité. Expérimentalement, ce défaut s'est montré trop important pour pouvoir être compensé par les miroirs de la cavité. La figure 4.35 montre le montage expérimental réalisé pour quantifier le parallélisme des céramiques. À incidence normale sur la face avant, la déviation angulaire de la réflexion sur la face arrière a été mesurée avec un laser HeNe à $632,8\ nm$.

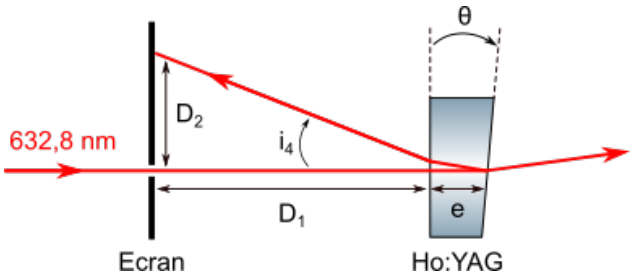


Figure 4.35 : Mesure du défaut de parallélisme d'une céramique Ho:YAG à partir de la réflexion d'un laser HeNe à 632,8 nm.

A incidence normale, le faisceau n'est pas réfracté par la première interface et arrive donc sur la face arrière de l'échantillon avec un angle d'incidence $i_1 = -\theta$. L'angle réfléchi par la seconde face vaut $i_2 = -i_1 = \theta$. Au retour, l'angle d'incidence sur la première face est égal à $i_3 = i_2 - i_1 = 2\theta$ et l'angle réfracté i_4 s'écrit alors :

$$i_4 = sin^{-1}\left[n\ sin(2\theta)\right] \tag{4.17}$$

avec $n = 1,8295$ l'indice de réfraction de la céramique à $632,8\ nm$, ici approximé à l'indice d'un monocristal YAG non dopé [151].

A l'extérieur de la céramique, le faisceau se propage dans l'air, l'angle i_4 est alors relié aux distances D_1 et D_2 par la relation :

$$i_4 = tan^{-1}\left(\frac{D_2 - \delta}{D_1}\right) \tag{4.18}$$

avec $\delta = e\ tan(2\theta)$ le décalage du faisceau entre l'aller et le retour dans le plan de la face avant.

Expérimentalement, le même défaut de parallélisme a été observé sur chaque céramique, avec un décalage $D_2 \sim 10\ mm$ mesuré à une distance $D_1 = 200\ mm$. La figure 4.36 montre une résolution graphique sur la plage angulaire $\theta \in [-45^o; 45^o]$ du système formé par les équations 4.17 et 4.18. L'intersection unique des deux courbes révèle un angle de $0,8^o$ entre les faces avant et arrière de la céramique, soit presque 300 fois plus que le parallélisme standard des optiques commerciales ($\pm 0,003^o$). Ces résultats expliquent la difficulté rencontrée sur l'alignement de la cavité avec les céramiques, sans toutefois s'avérer critique dans le processus de développement des céramiques par l'IRCer. À l'avenir, la sous-traitance de l'étape de surfaçage par un industriel devrait suffire à résoudre ce problème.

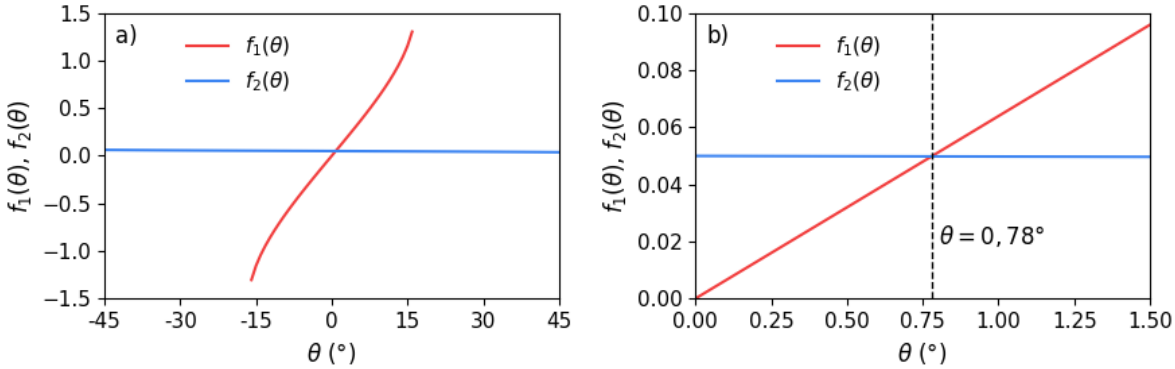


Figure 4.36 : Résolution graphique du système formé par les équations 4.17 et 4.18.

Pour compenser le défaut de parallélisme, le milieu amplificateur de la cavité a été réalisé avec une paire de céramiques orientées comme sur la figure 4.37. Le choix s'est porté sur les céramiques les plus efficaces en termes de gain, à savoir les échantillons dopés à 2% et 1%. Dans ces conditions un effet laser a pu être obtenu, permettant de comparer les performances des céramiques en cavité laser par rapport à des monocristaux commerciaux.

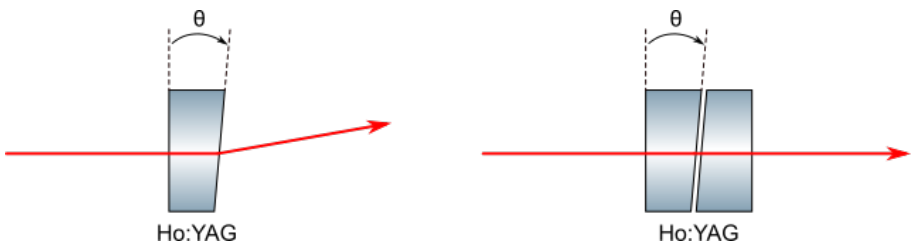


Figure 4.37 : A gauche, faisceau dévié par une céramique à faces non parallèles. À droite, compensation du défaut avec une deuxième céramique d'orientation opposée.

Pour préserver la longueur de cavité d'une configuration à l'autre, le milieu amplificateur céramique d'épaisseur $2 \times 2,5\ mm$ a été comparé à un monocristal Ho:YAG d'épaisseur $5\ mm$ dopé à 1%. La figure 4.38 montre le gain en simple passage de ces deux milieux pour un pompage à $1939,5\ nm$. Cet écart de performances, dont les causes ont été analysées dans la section précédente 4.3.2.3, laissent présager une très nette supériorité du monocristal par rapport au doublet de céramiques pour un fonctionnement en cavité laser.

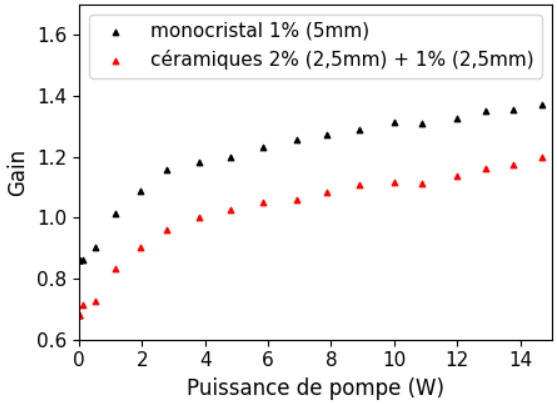


Figure 4.38 : Gain à 2090 nm dans un monocristal Ho:YAG dopé à 1% (noir) et un doublet de céramiques Ho:YAG dopées à 2% et 1% (rouge).

Les performances des deux milieux amplificateurs en cavité laser sont présentés dans la figure 4.39. La longueur de cavité optimale ($595\ mm$) est identique pour les deux matériaux et la lame quart d'onde est orientée à 8° pour le monocristal et 6° pour les céramiques, une différence qui s'explique par la différence d'efficacité entre les deux milieux amplificateurs. Conformément aux attentes, le monocristal se révèle environ 10 fois plus efficace que le doublet de céramiques (panneau *b*) malgré une absorption similaire de la pompe à $1939,5\ nm$ (panneau *a*).

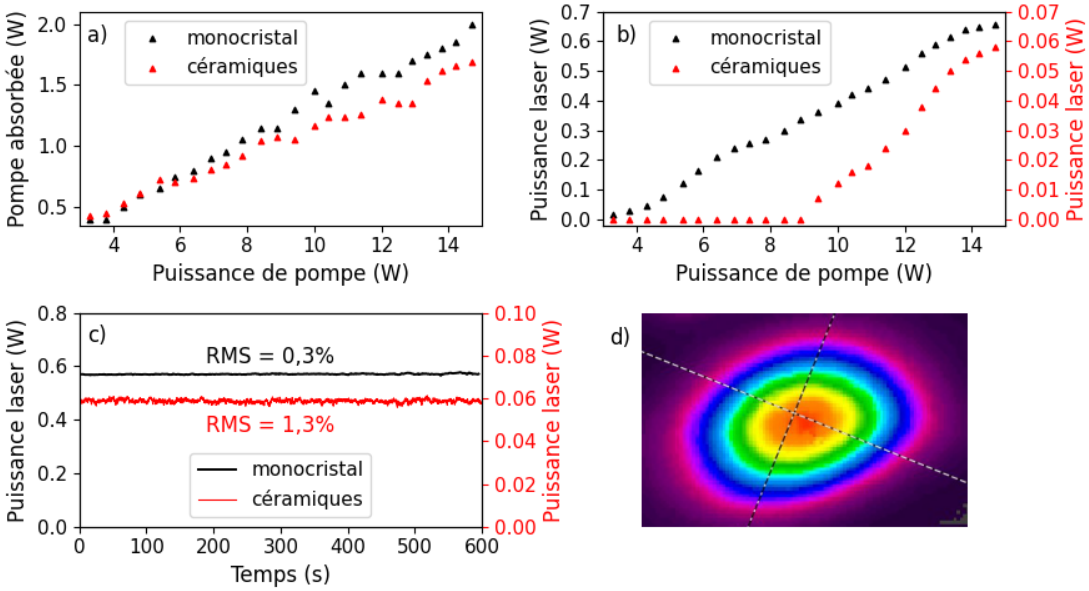


Figure 4.39 : a) Pompe absorbée, b) efficacité et c) stabilité d'une cavité laser pour un monocristal (en noir) et un doublet de céramiques dopées à l'Holmium (en rouge). d) Mode spatial à 40 cm du laser pour le doublet de céramiques.

Cette première réalisation avec les céramiques de l'IRCer livre toutefois un constat extrêmement satisfaisant concernant la qualité de faisceau (panneau *d*) et la stabilité à long terme, comparables à celles du monocristal. Avec un temps de stabilisation au démarrage d'une quinzaine de minutes et une excellente stabilité sur des durées de plusieurs heures, les céramiques de l'IRCer ont démontré leur robustesse par rapport aux effets thermiques. En l'état, le manque de saturation du gain avec les céramiques rend la cavité extrêmement sensible au désalignement, expliquant les fluctuations à court terme observées sur le panneau *c* de la figure.

Pour terminer cette étude, le spectre d'émission a été mesuré en sortie de cavité. La figure 4.40 (panneau *a*) témoigne d'une différence entre l'émission du monocristal et de la céramique. Lors d'un pompage à $1939,4\ nm$, le doublet de céramiques émet une bande spectrale de largeur $\sim 0,15\ nm$ centrée à $2091,0\ nm$, alors que l'émission du monocristal est constituée de deux bandes plus étroites de $\sim 0,1\ nm$ centrées à $2091,3\ nm$ et $2097,15\ nm$. Les deux matériaux ayant des efficacités très différentes, il est fort probable que le décalage du pic d'émission vers $2090\ nm$ soit lié à un écart de niveau d'inversion de population.

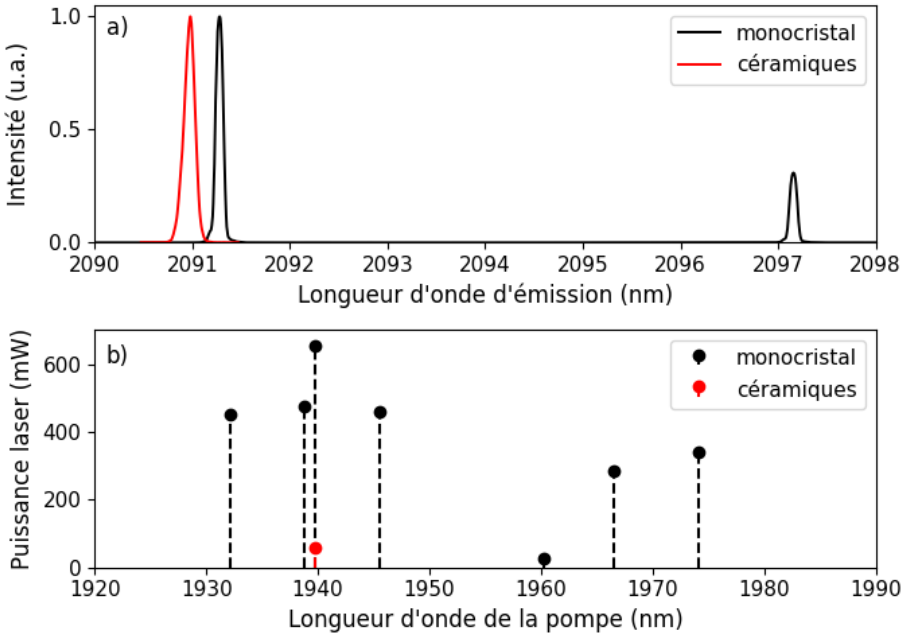


Figure 4.40 : a) Spectre d'émission d'un monocristal (noir) et d'un doublet de céramiques (rouge) dans une cavité laser pompée à 1939,4 nm. b) Puissance d'émission de la cavité selon la longueur d'onde de pompage.

La présence d'une seconde raie vers $2097\ nm$ est un phénomène déjà observé dans les milieux Ho:YAG [162], dont l'occurence dépend elle-aussi du niveau d'inversion de population. Le panneau *b* de la figure 4.40 fournit une liste non exhaustive des puissances obtenues en sortie de cavité pour différentes longueurs d'onde de pompage entre $1920\ nm$ et $1990\ nm$. Pour chacun des milieux amplificateurs, la longueur d'onde de pompage la plus efficace est $1939,4\ nm$. En résumé, il est possible d'affirmer que les propriétés spectroscopiques des céramiques de l'IRCer sont identiques à celles du monocristal.

En conclusion de ce chapitre, une première étape a pu être franchie au cours de la thèse avec la démonstration d'un effet laser à partir de céramiques Ho:YAG fabriquées par l'IRCer. Dans ces matériaux, les mesures ont mis en évidence une concentration optimale d'ions actifs aux alentours de 2%, seuil à partir duquel le taux d'émission stimulée n'augmente plus linéairement avec le dopage, entraînant un déclin rapide des performances d'amplification. Des mesures ultérieures permettront d'affiner ces résultats avec l'amélioration du protocole expérimental et la fabrication de matériaux à des dopages mieux échantillonnés entre 2% et 4%. La réduction de la diffusion dans les céramiques de l'IRCer devrait permettre à court terme de réduire l'écart de performances observé entre les céramiques et les monocristaux et de produire des résultats comparables à l'état de l'art. À plus long terme, la jugulation des transitions croisées par la maîtrise des sur-concentrations d'ions Holmium ou encore l'ajout de co-dopants pourrait constituer une avancée dans la réalisation de dopages plus élevés sans destruction du gain. Au final, le savoir-faire et les outils développés jusqu'à présent ont posé des bases sereines pour le développement de nouvelles compositions chimiques ou encore la fonctionnalisation des céramiques (gradients de dopages, co-dopages).

CONCLUSION

Historiquement, les applications de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) ont été développées à partir de lasers Titane:saphir (Ti:Sa) à $800\ nm$, capables de générer des impulsions à la fois ultra-courtes et énergétiques. L'énergie des photons générés par le processus de HHG étant régie par une loi d'échelle en $I\lambda^2$ (avec I l'intensité du laser et λ sa longueur d'onde), les scientifiques ont longtemps travaillé pour augmenter l'intensité des lasers Ti:Sa. Au fil des années, ces sources sont cependant devenues si intenses que les fronts montants des impulsions suffisent à ioniser très fortement les gaz. En l'absence d'atomes intacts à ioniser, la partie centrale de l'impulsion n'est alors plus en mesure de contribuer au processus de HHG, si bien qu'aujourd'hui l'augmentation de l'intensité des lasers Ti:Sa ne permet plus d'augmenter l'énergie des harmoniques. Pour surmonter cette limitation, la communauté attoseconde se tourne depuis quelques années vers le développement de lasers intenses à plus haute longueur d'onde, dans l'infrarouge moyen (MIR). Les avancées technologiques sur ces sources profitent également à d'autres domaines d'applications comme la spectroscopie moléculaire avec par exemple la détection de composés chimiques dans l'atmosphère et dans les tissus biologiques. Durant cette thèse, deux approches ont été étudiées pour générer du rayonnement intense dans l'infrarouge moyen. La première repose sur la conversion paramétrique d'une source Titane:saphir térawatt centrée vers $800\ nm$ et la seconde sur le développement de milieux amplificateurs dopés à l'Holmium pour le pompage d'amplificateurs paramétriques optiques (OPA) par des lasers à $2\ \mu m$.

Dans un premier temps, une source cohérente de $20\ \mu J$ pour une durée de quelques cycles optiques, stable en CEP (phase entre l'enveloppe et la porteuse du champ électrique) et accordable entre $5,5\ \mu m$ et $13\ \mu m$, a été développée à partir d'une architecture d'amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) et d'un étage de génération d'idler par différence de fréquences (DFG). Avec une longueur d'onde environ 10 fois supérieure à celle d'un laser Ti:Sa, la loi d'échelle en $I\lambda^2$ (dans les gaz) montre l'intérêt de ce type de source pour accélérer fortement des électrons même à faible intensité (et donc avec un taux d'ionisation raisonnable). Grâce à la modélisation de chaque étage de la chaîne laser (propagation linéaire, propagation Kerr, distorsions spatio-temporelles, amplification paramétrique optique), l'ensemble des résultats expérimentaux ont pu être confrontés à une analyse théorique afin d'assurer la compréhension et la maîtrise des différents phénomènes physiques à l'oeuvre dans cette architecture optique. À l'aide de la technique FROSt, la durée d'impulsion a pu être caractérisée sur l'intégralité de la plage d'accordabilité à partir d'un unique montage expérimental, démontrant d'une part l'intérêt de cette méthode de caractérisation et révélant d'autre part des durées de l'ordre de $1,3$ à $6,4$ cycles optiques pour la source MIR (selon la longueur d'onde d'émission). Pour quantifier la stabilité de la CEP, une méthode de caractérisations innovante, basée sur la HHG en milieu solide, a été élaborée puis testée à différentes longueurs d'onde fondamentales. Une fluctuation de CEP d'environ $360\ mrad$ a ainsi été mesurée à $6\ \mu m$ et $10\ \mu m$. La méthode s'est toutefois révélée inadaptée pour mesurer la CEP

à $13\ \mu m$ à cause de la nature des harmoniques générées par des impulsions très courtes (typiquement inférieures à 2 cycles optiques). Une expérience de HHG en régime de génération intra-bande a ensuite été menée dans un cristal de séléniure de zinc en faisant varier la longueur d'onde de la source MIR afin d'étudier la transition progressive entre le pilotage du processus de HHG par des impulsions fondamentales multi-cycles et mono-cycle. En guise de perspective, la poursuite de ces travaux par la caractérisation FROSt des spectres harmoniques serait intéressante pour évaluer le profil temporel des trains d'impulsions HHG en fonction, d'une part, de la CEP et, d'autre part, du nombre de cycles optiques de l'impulsion fondamentale. Typiquement, l'observation de la dérive du délai d'émission des impulsions HHG en fonction de la CEP de l'impulsion fondamentale, accompagnée d'une modélisation théorique de la HHG intra-bande, pourrait constituer la thématique de recherche d'une future thèse (ou d'un travail post-doctoral) à mi-chemin entre le développement de sources laser MIR intenses et les applications de génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les semi-conducteurs.

Dans un second temps, une architecture optique innovante de DFG dans l'espace des fréquences a été développée au cours de la thèse. Dans cette étude, un dimensionnement de DFG dans l'espace des fréquences (FDFG) a été proposé sur la base d'une source Ti:Sa et d'un cristal de niobate de lithium à polarisation périodique constante. La réalisation expérimentale n'a pas pu être achevée durant la thèse mais, à partir des premiers résultats expérimentaux concernant la mise en forme spectrale du signal dans une fibre à coeur creux, la théorie laisse espérer la production d'impulsions idler de $23\ fs$ centrées vers $2,7\ \mu m$, soit environ $2,5$ cycles optiques. Bien que le signal et la pompe soient issus de la même source, la stabilisation passive de la CEP pour les impulsions MIR n'est pas certaine dans cette architecture et des études complémentaires seront nécessaires pour évaluer la phase non-linéaire acquise par le signal dans la fibre à coeur creux. La finalisation de ces travaux expérimentaux, voire la transposition de l'architecture pour un laser de pompe Ytterbium ou Erbium, s'associerait parfaitement à la thématique du FOPA MIR (cf paragraphe précédent) pour un projet de recherche universitaire. Pour aller plus loin, la source à $2,7\ \mu m$ pourrait même être utilisée dans le cadre d'expériences de HHG en milieu solide.

Dans la dernière partie de cette thèse, une étude de développement de nouveaux matériaux a été menée sur des céramiques transparentes dopées à l'Holmium dédiées aux applications laser à $2\ \mu m$, comme par exemple le pompage d'OPA pour la génération d'impulsions MIR de plusieurs millijoules. Dans le cadre du développement d'un de ces lasers de pompe, un banc de mesure a été développé pour sonder entre $1,9\ \mu m$ et $2,1\ \mu m$ les propriétés optiques de matériaux dopés à l'Holmium. A ce titre, deux sources laser accordables ont été fabriquées, la première à base de fibres dopées au Thulium et la seconde avec une fibre co-dopée Thulium-Holmium. La diffusion, un paramètre crucial pour les performances des milieux amplificateurs mais difficile à quantifier dans des cristaux laser, a été caractérisée en élaborant une méthode originale basée sur des mesures de transmission. Après une caractérisation optique approfondie, des céramiques Ho:YAG, produites par le laboratoire IRCer (Université de Limoges), ont ensuite été implémentés dans des cavités laser pour aboutir à l'observation, à notre connaissance, du premier effet laser dans des céramiques Holmium de fabrication française. Malgré des performances inférieures aux céramiques réalisées par d'autres laboratoires à l'internatio-

nal, ces travaux ont toutefois permis de franchir un pas vers la fabrication de sources à $2\ \mu m$ à base de milieux amplificateurs céramiques. Non présenté dans ce manuscrit, un amplificateur linéaire constitué de deux barreaux Ho:YLF a été dimensionné puis fabriqué dans le but d'amplifier des impulsions picosecondes d'une dizaine de millijoules à un taux de répétition kilohertz. Dans la continuité de cette thèse, l'injection de cet amplificateur par un laser microjoule accordable vers $2\ \mu m$ (en cours de développement dans le cadre d'une autre thèse au laboratoire LP2N) pourrait faire l'objet d'un sujet de recherche post-doctoral visant le pompage d'OPA par des sources à $2\ \mu m$ afin de générer des impulsions intenses MIR. À titre d'exemple, une DFG pourrait être envisagée entre les impulsions femtosecondes issues d'un oscillateur Erbium à $1,55\ \mu m$ et des impulsions millijoules picosecondes à $2\ \mu m$ (obtenues par décalage solitonique de l'oscillateur Erbium puis amplification à dérive de fréquences dans des matériaux dopés à l'Holmium) pour produire des impulsions picosecondes de quelques microjoules centrées vers $6-7\ \mu m$. Une autre thématique consisterait à augmenter la puissance-crête de la pompe à $2\ \mu m$, soit par post-compression dans une cellule de Herriot, soit par élargissement de la bande de gain des milieux amplificateurs Holmium à travers le développement de céramiques sesquioxydes transparentes dopées à l'Holmium en collaboration avec l'IRCer.

En résumé, les travaux de cette thèse ont contribué, d'une part, à améliorer l'état de l'art des sources MIR intenses à travers deux architectures d'amplification paramétrique optique dans l'espace des fréquences et, d'autre part, à explorer de nouvelles méthodes de génération d'impulsions dans l'infrarouge moyen via le développement de sources laser à bases de céramiques dopées à l'Holmium, qui remplaceront peut-être un jour les traditionnels Titane:saphir pour le pompage d'OPA MIR. Les résultats obtenus ont ouvert la voie à de nombreuses thématiques de recherche, aussi bien dans le développement de sources laser intenses MIR que dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les solides.

A FORMULES DE CHANGEMENT DE DOMAINE ET EXPRESSION DES PROPRIÉTÉS SPATIO-TEMPORELLES DANS LE FORMALISME DE KOSTENBAUDER

A.1 Changement de domaine

Dans le formalisme de Kostenbauder, une impulsion gaussienne est pleinement définie par son paramètre complexe Q, le plus souvent initialisé dans le domaine spatio-temporel (x,t) par :

$$Q = -i\frac{\pi}{\lambda_0}\begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} & \tilde{Q}_{xt} \\ -\tilde{Q}_{xt} & \tilde{Q}_{tt} \end{bmatrix}^{-1} \quad ; \quad \tilde{Q}_{xx} = -i\frac{\pi}{\lambda_0 R} - \frac{1}{w^2} \quad ; \quad \tilde{Q}_{tt} = -i\beta + \frac{1}{(\alpha 2\tau)^2} \tag{A.1}$$

avec λ_0 la longueur d'onde centrale, R le rayon de courbure du front d'onde, $2w$ le diamètre spatial à $1/e^2$, β le chirp temporel, 2τ la largeur temporelle à mi-hauteur et $\alpha = 0,5\sqrt{2/ln(2)}$ le facteur de conversion entre pleine largeur à mi-hauteur et demie largeur à $1/e^2$ d'une gaussienne.

L'expression du paramètre complexe dans le domaine des fréquences spatiales et/ou des fréquences optiques est accessible par les formules de changement de domaine suivantes [55] :

$$R(x,\omega) = \begin{bmatrix} R_{xx} & R_{x\omega} \\ -R_{x\omega} & R_{\omega\omega} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{Q}_{xx} + \dfrac{\tilde{Q}_{xt}^2}{\tilde{Q}_{tt}} & -\dfrac{i}{2}\dfrac{\tilde{Q}_{xt}}{\tilde{Q}_{tt}} \\ \dfrac{i}{2}\dfrac{\tilde{Q}_{xt}}{\tilde{Q}_{tt}} & \dfrac{1}{4\tilde{Q}_{tt}} \end{bmatrix} \tag{A.2}$$

$$S(k,\omega) = \frac{1}{4}\left[\tilde{Q}^T\right]^{-1} \quad ; \quad P(k,t) = \frac{1}{4}\left[R^T\right]^{-1} \tag{A.3}$$

A.2 Expression des propriétés spatio-temporelles basiques

A partir du paramètre complexe, les équations ci-dessous permettent de remonter aux propriétés physiques de l'impulsion telles que la dimension spatiale (demie largeur à $1/e^2$),

$$w_{local}(\nu = \nu_0) = \frac{1}{\sqrt{|R_{xx}^R|}} \quad ; \quad w_{global} = \sqrt{\left|\frac{\tilde{Q}_{tt}^R}{(\tilde{Q}_{xt}^R)^2 + \tilde{Q}_{xx}^R\,\tilde{Q}_{tt}^R}\right|} \tag{A.4}$$

la durée d'impulsion (pleine largeur à mi-hauteur),

$$2\tau_{local}(x = x_0) = \frac{1}{\alpha}\frac{1}{\sqrt{\left|\tilde{Q}_{tt}^R\right|}} \quad ; \quad 2\tau_{global} = \frac{1}{\alpha}\sqrt{\left|\frac{\tilde{Q}_{xx}^R}{(\tilde{Q}_{xt}^R)^2 + \tilde{Q}_{xx}^R\,\tilde{Q}_{tt}^R}\right|} \tag{A.5}$$

ou encore la largeur spectrale (pleine largeur à mi-hauteur exprimée en fréquence),

$$\Delta\nu_{local}(x = x_0) = tbp.\alpha \frac{1}{\sqrt{|R^R_{\omega\omega}|}} \qquad ; \qquad \Delta\nu_{global} = tbp.\alpha \sqrt{\left| \frac{R^R_{xx}}{(R^R_{x\omega})^2 + R^R_{xx}\, R^R_{\omega\omega}} \right|} \tag{A.6}$$

avec $\alpha = 0,5\sqrt{2/ln(2)}$ le facteur de conversion entre pleine largeur à mi-hauteur et demie largeur à $1/e^2$ d'une gaussienne, $tpb = 2ln(2)/\pi$ le produit temps-fréquence d'une distribution gaussienne et $\mathcal{C}^R$ la partie réelle du nombre complexe $\mathcal{C}$.

B CORRECTION DES RÉSULTATS DE DFG EN FONCTION DE LA RÉPONSE DU MONOCHROMATEUR ET DE LA TRANSMISSION DES FILTRES

Cette annexe décrit le monochromateur utilisé pour mesurer les spectres MIR dans le chapitre 2 et détaille les opérations réalisées pour corriger les résultats expérimentaux de DFG dans les panneaux *f* et *g* de la figure 2.36.

B.1 Réponse du monochromateur

Le monochromateur MIR contient un détecteur en Tellurure de Mercure-Cadmium (HgCdTe) commercial (InfraRed Associates, FTIR-22) refroidi à l'azote liquide. Pour couvrir une gamme spectrale de $3\ \mu m$ à $20\ \mu m$, le monochromateur dispose de deux réseaux de diffraction au choix, chacun utilisé à l'ordre 1. Entre $5\ \mu m$ et $20\ \mu m$, la diffraction est réalisée par un réseau de $75\ traits/mm$ (Newport, 53-*-950R) et, entre $3\ \mu m$ et $5\ \mu m$, par un réseau de $300\ traits/mm$ (Newport, 53-*-736R). La figure B.1 montre la réponse du monochromateur entre $5\ \mu m$ et $20\ \mu m$. La caractérisation entre $3\ \mu m$ et $5\ \mu m$ n'a pas été possible car l'efficacité du second réseau est inconnue.

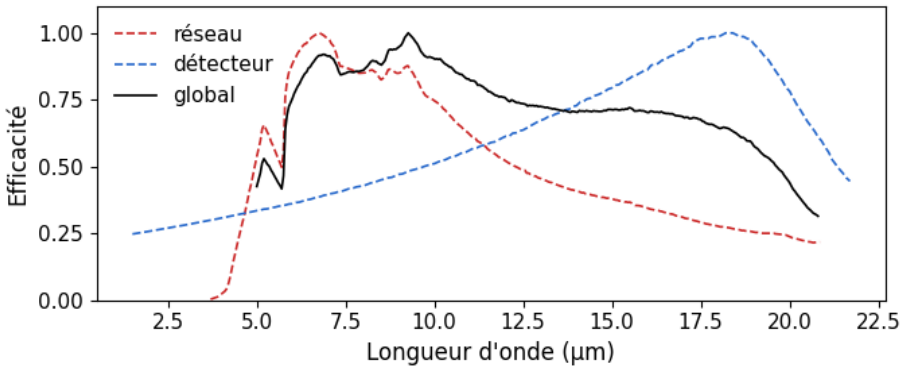


Figure B.1 : Réponse du monochromateur (en noir) entre $5\ \mu m$ et $20\ \mu m$ avec l'efficacité du réseau 75 traits/mm (en rouge) et du détecteur HgCdTe (en bleu).

Dans nos conditions expérimentales et avec un échantillonnage spectral de l'ordre de la dizaine de nanomètres, la largeur des fentes du monochromateur n'a pas montré d'impact sur les résultats des mesures.

B.2 Transmission des filtres LP2500 et LP3500 et correction des spectres MIR

Après l'amplification paramétrique optique dans le cristal GaSe, l'idler est séparé de la pompe et du signal par des filtres interférentiels passe-haut (Spectrogon, LP2500 et LP3500).

La figure B.2 montre la transmission de ces filtres (panneau *a*) et les spectres idler expérimentaux corrigés par la réponse du monochromateur et la transmission des filtres (panneaux *b* et *c*).

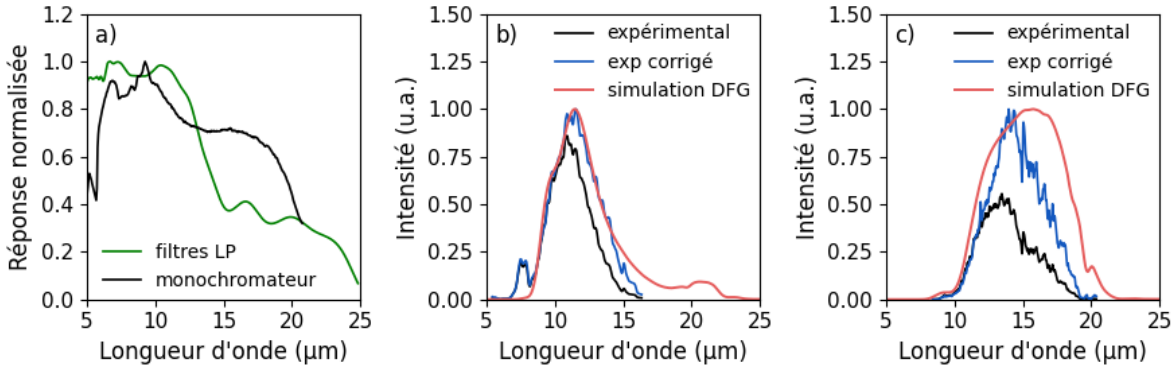


Figure B.2 : a) Transmission des filtres interférentiels (en vert) et sensibilité du monochromateur (en noir) et b-c) spectres idler expérimentaux (en noir), simulés (en rouge) et corrigés (en bleu) par la réponse du monochromateur et des filtres.

En se basant sur les 7 spectres de la figure 2.36 du chapitre 2, la figure B.3 montre la perte d'énergie subie par les impulsions MIR lors de la traversée des filtres interférentiels en fonction de la longueur d'onde idler générée. D'après ces résultats, l'énergie des impulsions idler est équivalente dans chacun des cas et le manque d'énergie mesuré expérimentalement à $13\ \mu m$ est directement imputable à la chute de transmission des filtres dans les hautes longueurs d'onde.

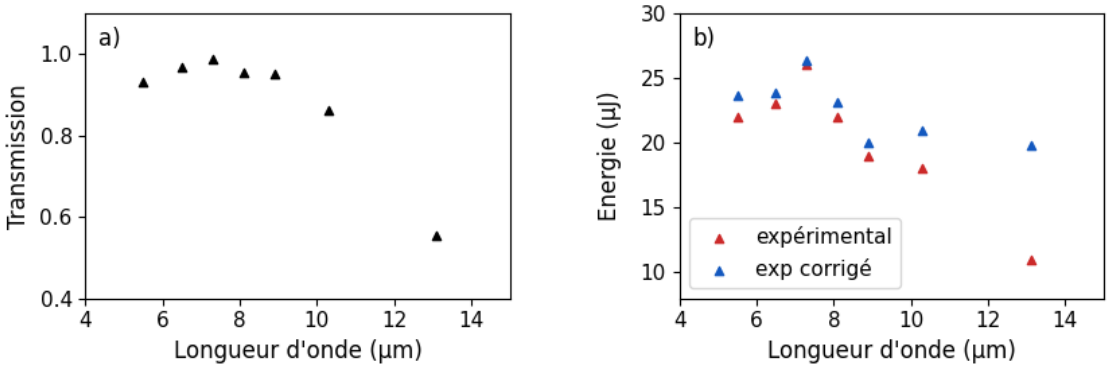


Figure B.3 : a) Transmission du doublet de filtres interférentiels LP2500 et LP3500 en fonction de la longueur d'onde centrale de l'idler et b) énergie de l'idler après (en rouge, mesurée) et avant (en bleu, calculée) les filtres.

C CARACTÉRISATION TEMPORELLE FROST

Le FROSt [88] est une technique pompe-sonde résolue en fréquence développée en 2019 pour la caractérisation temporelle d'impulsions femtosecondes. Comme présenté sur la figure C.1, la photo-excitation d'un semi-conducteur par une impulsion d'une centaine de femtosecondes engendre un phénomène d'absorption transitoire dans le matériau, avec un temps de montée caractéristique de quelques centaines de femtosecondes. En envoyant une impulsion sonde dans le matériau à différents délais τ par rapport à la pompe, il est possible de reconstruire une trace définie comme la convolution du spectre de la sonde par la transmission $S(t-\tau)$ du matériau.

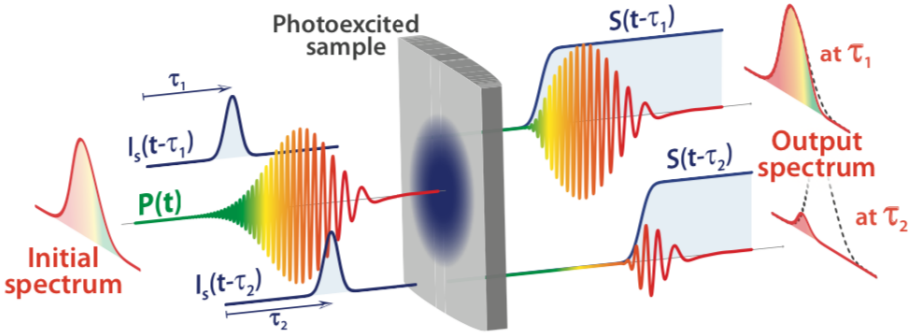


Figure C.1 : Tirée de la référence [88] : Principe de fonctionnement du FROSt avec Is la source de photoexcitation, P(t) l'impulsion sonde et S la réponse de transmission du matériau.

La déconvolution de la trace FROSt par un algorithme de ptychographie (cf annexe 6.6 de la référence [88]) permet de reconstruire aussi bien le profil temporel de l'impulsion (amplitude et phase) que la réponse d'absorption du matériau. L'intérêt principal de la technique FROSt réside dans le caractère linéaire de la mesure, s'affranchissant des contraintes de tolérance spectrale rencontrées habituellement dans les architectures de caractérisation (SHG, THG, réseau transitoire, etc). De plus, la méthode s'avère efficace même pour la caractérisation de faisceaux de faible énergie car seule la pompe nécessite une intensité élevée pour déclencher le processus d'absorption transitoire.

D SIMULATION DE PROPAGATION SPATIALE PAR FFT-BPM

Le modèle de FFT-BPM (*Fast Fourier Transform Beam Propagation Method*) [143] permet le traitement numérique de la propagation d'une onde monochromatique de distribution d'intensité spatiale arbitraire à travers un système optique linéaire. Pour simplifier les notations, la théorie sera ici décrite selon une seule dimension spatiale transverse mais le principe se transpose aisément à deux dimensions.

Considérons une onde se propageant le long d'un axe z et caractérisée le long d'un axe x par son champ électrique :

$$\mathcal{E}(x, z_0) = \sqrt{I(x)}\, e^{i\phi(x)} \tag{D.1}$$

avec z_0 la position d'origine sur l'axe z, $I(x)$ la distribution d'intensité et $\phi(x)$ la phase spatiale.

Le passage de l'onde dans un élément optique de transmission $T(x)$ (en intensité) et de distance focale f (pour une optique sphérique) modifie le champ selon l'équation suivante :

$$\mathcal{E}(x)_{sortie} = \mathcal{E}(x)_{entrée} \sqrt{T(x)}\, exp\left[i\left(\frac{k}{2f}\right)x^2\right] \tag{D.2}$$

avec $k = 2\pi/\lambda$ le nombre d'onde.

La propagation de l'onde sur une distance d s'obtient en convertissant le champ électrique dans l'espace des fréquences spatiales u par transformation de Fourier :

$$\tilde{\mathcal{E}}(u, z_0) = TF\left[\mathcal{E}(x, z_0)\right] \tag{D.3}$$

puis en lui appliquant un opérateur de translation $\tilde{\delta}$ défini par :

$$\tilde{\delta}(u, d) = exp\left[i\left(knd + \frac{2\pi^2 d}{kn}u^2\right)\right] \quad ; \quad \tilde{\mathcal{E}}(u, z_0 + d) = \tilde{\mathcal{E}}(u, z_0)\, \tilde{\delta}(u, d) \tag{D.4}$$

avec n l'indice du milieu.

L'itération successive des équations D.2 et D.4 permet de modéliser la propagation de l'onde dans chaque élément d'un système optique. Enfin, la distribution d'intensité s'obtient en repassant dans l'espace réel avec :

$$\mathcal{E}(t, z_0 + d) = TF^{-1}\left[\tilde{\mathcal{E}}(u, z_0 + d)\right] \quad ; \quad I(x, z_0 + d) = |\mathcal{E}(x, z_0 + d)|^2 \tag{D.5}$$

La courbure de front d'onde par des interfaces non sphériques ne sera pas abordée ici.

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Milieux amplificateurs utilisés pour générer des impulsions femtosecondes par émission stimulée dans l'infrarouge proche et l'infrarouge moyen. 1

Figure 1.2 : A gauche, amplification d'un signal et génération d'un idler par amplification paramétrique optique. À droite, diagramme d'énergie des photons de pompe, signal et idler. 3

Figure 1.3 : a) Imagerie 4f avec f la distance focale des optiques convergentes, b) évolution de la durée d'impulsion au cours de la propagation avec I l'intensité et t le temps. 4

Figure 1.4 : Modélisation du champ électrique (bleu) et du taux d'ionisation (rouge) produits par des impulsions de a) 300 fs et b,c) 30 fs centrées à $10\ \mu m$. 5

Figure 1.5 : a) Champ électrique, b) position et c) énergie cinétique de l'électron après ionisation par effet tunnel à différents déphasages par rapport au champ électrique. 6

Figure 2.1 : Simulation de propagation d'un faisceau gaussien dans l'air en résolution analytique (lignes noires) et avec le formalisme de Kostenbauder (carrés noirs). 14

Figure 2.2 : Tracé de rayons avec le formalisme de Kostenbauder dans un étireur à réseaux, pour des impulsions incidentes de a) 20 fs et c) 3,0 fs. Les images b) et d) correspondent aux grossissements respectifs de a) et c) sur le second réseau. 15

Figure 2.3 : Simulation d'étirement dans un compresseur à réseaux en résolution analytique (ligne noire) et avec le formalisme Kostenbauder (carrés noirs). 16

Figure 2.4 : Simulation de propagation d'une impulsion centrée à 1800 nm et de largeur spectrale 450 nm dans une ligne 4f, avec R1/R2 des réseaux 75 traits/mm et M1/M2 des miroirs sphériques de focales 750 mm. 17

Figure 2.5 : Etat de l'art des sources lasers femtosecondes d'énergie supérieure à 1 microjoule dans l'infrarouge moyen. Les lignes font référence aux sources accordables. 18

Figure 2.6 : Architecture de la source MIR avec un laser Titane:Saphir (Ti:Sa), un amplificateur paramétrique optique industriel TOPAS, une fibre à cœur creux (HCF), un amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) et un étage d'amplification paramétrique optique utilisé pour générer un idler par différence de fréquences (DFG). 19

Figure 2.7 : Mise en forme du signal avant injection dans le FOPA. Le laser Ti:Sa est converti à 1,8 μm, filtré spatialement, élargi spectralement dans une fibre à cœur creux remplie au Krypton, puis collimaté à un diamètre de 7 mm. 20

Figure 2.8 : a) Spectre de la source Titane:Saphir avant conversion dans le TOPAS et b) élargissement spectral dans la fibre à cœur creux remplie avec 1,7 bar de Krypton. 21

Figure 2.9 : Simulation de propagation Kerr optique dans une fibre à cœur creux remplie au Krypton dans le domaine a) spectral et b) temporel. 23

Figure 2.10 : Simulation de propagation Kerr optique dans la fibre à cœur creux avec une variation a) de l'énergie injectée et b) de la pression de Krypton dans la fibre. Le spectre expérimental est indiqué en noir. 24

Figure 2.11 : a) Schéma de collimation du faisceau en sortie de fibre à cœur creux, b) dimensionnement des paramètres et c) simulation de propagation jusqu'à l'entrée du FOPA. 24

Figure 2.12 : Architecture optique de l'amplificateur paramétrique optique dans l'espace des fréquences (FOPA) avec R_1 et R_2 les réseaux d'entrée et sortie, L_1 et L_2 des lentilles cylindriques, S+ et S- les moitiés hautes et basses longueurs d'onde du spectre incident, C_1 et C_2 des cristaux non linéaires en BBO, W une paire de fenêtres en silice et $\lambda/2$ une lame demi-onde. 25

Figure 2.13 : En haut, dispersion angulaire induite par une fenêtre W_1 à incidence non nulle dans le plan de Fourier. En bas, compensation du défaut avec une deuxième fenêtre W_2 d'orientation opposée. 26

Figure 2.14 : Mise en forme de la pompe du FOPA avec Ti:Sa le laser source, $D0$ une ligne à retard fixe, $D1$ et $D2$ des lignes à retard réglables, $\lambda/2$ des lames de phase demi-onde, et S une lame séparatrice 50/50. 28

Figure 2.15 : a) Simulation de propagation du faisceau de pompe à 800 nm entre la sortie du compresseur et le plan de Fourier du FOPA et b) gros plan au niveau de l'afocal +400/-226 mm. 28

Figure 2.16 : Mise en forme des deux pompes (en violet) et du signal (dégradé rouge vers bleu) dans le plan de Fourier du FOPA pour l'amplification paramétrique optique de deux bandes spectrales (en rouge et en bleu), avec $C1/C2$ des cristaux BBO, $W1/W2$ des fenêtres en silice et $\lambda/2$ une lame de phase demi-onde. 29

Figure 2.17 : Simulation de gain paramétrique en régime petit signal dans le FOPA avec a) la répartition d'intensité spatiale du signal (noir) et des deux pompes (violet) et b) le spectre du signal incident (noir) et le spectre amplifié (rouge et bleu). 30

Figure 2.18 : A gauche, spectres incidents (en noir) et amplifiés (en bleu et rouge) dans le FOPA pour différentes positions des faisceaux de pompe. À droite, largeur à mi-hauteur des bandes spectrales amplifiées. 31

Figure 2.19 : a) Profils de pompe (violet), signal (noir) et signal amplifié (rouge) théoriques dans le plan de Fourier sur l'axe non dispersé du FOPA et b) dimension du faisceau amplifié en fonction de la taille de la pompe pour un signal de 7 mm de diamètre. Le point de fonctionnement théorique (carré noir) correspond à une pompe de 8 mm. 32

Figure 2.20 : a) Mode transverse d'un signal non amplifié en sortie de FOPA et intégration du profil sur b) l'axe dispersé et c) l'axe non dispersé. d) Amplification d'un signal centré à 1900 nm en fonction de la durée d'impulsion de la pompe et e-i) profil spatial du signal amplifié en sortie de FOPA en fonction de la durée de la pompe. 32

Figure 2.21 : Inclinaison du front d'impulsion par un réseau avec a) un faisceau incident (gris) à front d'impulsion non incliné (rouge) et l'inclinaison du front d'impulsion en considération b) quasi-monochromatique et c) polychromatique. 33

Figure 2.22 : Illustration du phénomène de rotation de front d'onde lors de la focalisation d'un faisceau à front d'impulsion incliné. 34

Figure 2.23 : Simulation de distorsion spatiotemporelle après diffraction par un réseau 75 traits/mm et propagation sur une distance 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm. 34

Figure 2.24 : Rotation de front d'onde d'une impulsion brève dans le plan de Fourier d'un FOPA. Les ellipses colorées symbolisent les fronts d'impulsion. 35

Figure 2.25 : Simulation du front d'impulsion dans le plan de Fourier d'un FOPA constitué d'un réseau de densité 75 traits/mm et d'une lentille de focale 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm. 35

Figure 2.26 : Simulation de rotation temporelle de front d'onde dans le plan de Fourier d'un FOPA constitué d'un réseau de densité 75 traits/mm et d'une lentille de focale 750 mm. Les spectres sont centrés à 1800 nm. 36

Figure 2.27 : a) Mode transverse en sortie de FOPA d'une bande spectrale centrée à 1900 nm amplifiée par une pompe de durée 1,15 picoseconde. b) Projection sur l'axe de dispersion (X) avec le profil non amplifié (bleu), le profil amplifié au centre du faisceau (noir) et le profil amplifié intégré (rouge). c) Projection sur l'axe non dispersé (Y) avec le même code couleur. 36

Figure 2.28 : a) Spectres des deux faisceaux de pompe de durée 2 ps dans le plan de Fourier et b) spectre d'une pompe de 2 ps (violet) et 1,15 ps (noir). 37

Figure 2.29 : a-c) Mode transverse en champ lointain du FOPA d'une bande amplifiée à 1900 nm, d-f) d'une bande amplifiée à 1700 nm et g-i) des deux bandes superposées, avec X l'axe de dispersion du FOPA et Y l'axe non dispersé. 38

Figure 2.30 : Durée des impulsions en sortie de FOPA (noir) et après compression dans une fenêtre en silice d'épaisseur 25 mm (rouge). Les fenêtres a) et b) correspondent à deux expériences menées sur le même montage expérimental mais avec une phase résiduelle différente sur la source Ti:Sa. 39

Figure 2.31 : Accord de phase de type-II dans un cristal de Séléniure de Gallium (GaSe) pour la génération d'idler par différence de fréquences (DFG). Les flèches doubles représentent les polarisations du signal, de la pompe et de l'idler dont la propagation est colinéaire à l'axe optique (en pointillés). 40

Figure 2.32 : a) Spectre signal non amplifié (en noir) et amplifié (en bleu et rouge) dans le FOPA. b-c) Caractérisation temporelle SHG-FROG des impulsions amplifiées avec la phase en pointillés. 41

Figure 2.33 : a) Indice de réfraction et b) vitesse de groupe dans un cristal GaSe. Les hachures bleues, vertes et rouges réfèrent respectivement aux longueurs d'onde de la pompe, du signal et de l'idler. c) Retard de groupe introduit par 0,75 mm de propagation, avec les longueurs d'onde pompe/signal/idler expérimentales repérées en croix noires. 42

Figure 2.34 : a) Spectre idler généré par deux impulsions centrées à 1625 nm et 1850 nm pour différentes épaisseurs de GaSe. b) Energie (en noir) et largeur spectrale (en rouge) de l'idler en fonction de l'épaisseur du cristal. 42

Figure 2.35 : Accordabilité de la source dans l'infrarouge moyen avec (en haut) le spectre idler généré par DFG pour différentes configurations du FOPA et (en bas) les propriétés de la pompe, du signal et de l'idler associées à chacun des résultats. 43

Figure 2.36 : Spectres idler expérimentaux (en noir) et simulés (en rouge) pour différentes longueurs d'onde d'émission de la source MIR. Les spectres f) et g) à hautes longueurs d'onde (en bleu) ont été corrigés par la transmission des filtres et la sensibilité du monochromateur (cf annexe B). 44

Figure 2.37 : Montage expérimental de caractérisation FROSt, avec LP 2500/3500 des filtres interférentiels passe-haut 2500/3500 nm, HR 920-1150 des optiques réflectives entre 920 nm et 1150 nm et Si un cristal de Silicium. 45

Figure 2.38 : i) Traces FROSt expérimentales et ii) reconstructions temporelles pour a-g) différentes longueurs d'onde d'émission de la source MIR. La phase temporelle est tracée en pointillés et le code couleur fait référence à celui de la figure 2.35. 46

Figure 2.39 : A gauche, montage expérimental de caractérisation de la CEP d'impulsions MIR par mesure du spectre HHG dans un polycristal de ZnSe d'épaisseur 0,5 mm. À droite, spectre HHG (moyenné 100 fois) en fonction de la CEP d'impulsions MIR centrées à 10 μm. 47

Figure 2.40 : Caractérisation de la CEP à $6\ \mu m$ (en haut) et $13\ \mu m$ (en bas) avec de gauche à droite le spectre HHG moyenné 100 fois en fonction de la CEP en valeur relative, la valeur de CEP tir à tir et l'histogramme de la CEP. 48

Figure 2.41 : Champ électrique de deux impulsions de 50 fs centrées à a) $5\ \mu m$ et b) $15\ \mu m$ pour des valeurs de CEP de 0 radians (bleu) et $\pi/2$ radians (rouge). 50

Figure 2.42 : Evolution du spectre HHG en fonction de la CEP dans un polycristal de ZnSe d'épaisseur $0,5\ mm$ pour des longueurs d'onde fondamentales centrées à a) $6\ \mu m$, b) $9\ \mu m$, c) $12\ \mu m$ et d) $13,5\ \mu m$. 51

Figure 2.43 : Spectre fondamental à a) $7\ \mu m$ et b) $12\ \mu m$ en fonction de la CEP et c) spectre HHG en fonction de la CEP d'une impulsion fondamentale à $12\ \mu m$. 52

Figure 3.1 : Architecture globale de la source MIR avec HCF une fibre à cœur creux remplie au protoxyde d'azote et FDFG un étage de DFG dans l'espace des fréquences. 54

Figure 3.2 : Accord de phase dans un PPLN de période $21,2\ \mu m$ et d'épaisseur $0,5\ mm$ à température ambiante. Les données sont tirées du logiciel libre "SPDCalc.org". 55

Figure 3.3 : a) Spectre signal après propagation dans la fibre à cœur creux remplie et filtrage des basses longueurs d'onde par un filtre interférentiel passe-haut 950 nm, b) durée d'impulsion en limite de Fourier. 56

Figure 3.4 : Architecture de DFG dans un plan de Fourier avec PPLN un cristal de Niobate de Lithium polarisé périodiquement et LP 900/1500 des filtres interférentiels passe-haut à respectivement 900 nm et 1500 nm. 56

Figure 3.5 : Simulation de DFG dans l'espace des fréquences avec a-b) la distribution des spectres de pompe (bleu), signal (rouge) et idler (noir) dans le PPLN, c) le spectre de l'idler et d) la durée d'impulsion de l'idler en limite de Fourier. 59

Figure 4.1 : Niveaux d'énergie de l'ion Holmium avec en bleu et en rouge les transitions radiatives respectivement de pompage et d'émission. Les valeurs numériques sont issues de la référence [128]. 62

Figure 4.2 : a) Absorption et b) émission spontanée de l'ion Holmium dans des matrices YAG (lignes continues) et LuAG (lignes discontinues). Les données sont extraites de la référence [122]. 63

Figure 4.3 : Architecture du laser accordable à base de fibres dopées au Thulium. 63

Figure 4.4 : A gauche, diagramme d'énergie de l'ion Thulium avec la transition de pompage (en bleu), la relaxation croisée RC (en pointillés noirs) et la transition d'émission vers 1900 nm (en rouge). À droite, spectre d'émission spontanée amplifiée mesuré sur une fibre Nufern PM-TDF-10P/130-HE pompée à 793 nm. 64

Figure 4.5 : Fonctionnement du filtre accordable a) à l'aller avec une propagation colinéaire pour chaque longueur d'onde et b) au retour avec une dispersion angulaire des composantes spectrales suite à la diffraction par le réseau. 65

Figure 4.6 : a) Angle de Littrow en fonction de la longueur d'onde incidente pour un réseau de 900 traits/mm, b) simulation de dispersion spatiale dans le plan focal de la lentille pour un faisceau incident de largeur 11 nm à mi-hauteur centré à 1950 nm et c) agrandissement de la figure précédente autour de la longueur d'onde centrale à 1950 nm.. 66

Figure 4.7 : Mode spatial aller (bleu) et retour (rouge) dans le filtre accordable a) en extrémité de fibre optique et b) dans le plan de la lentille. L'ouverture de la lentille est indiquée en pointillés noirs. 67

Figure 4.8 : Efficacité de réinjection dans la fibre de sortie du filtre accordable en fonction a) du diamètre du faisceau, b) du décalage radial du faisceau et c) de la longueur d'onde en valeur relative par rapport à 1950 nm. 68

Figure 4.9 : Architecture optique de l'oscillateur accordable avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 10/130 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD une diode de pompe à 793 nm. 68

Figure 4.10 : Caractérisation de l'oscillateur Thulium avec a) l'accordabilité spectrale, b) l'efficacité laser à 1900 nm (bleu) et 1940 nm (vert), c) le spectre à 1950 nm, d) la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de la longueur d'onde d'émission, e) le contraste à 1950 nm et f) le contraste en fonction de la longueur d'onde d'émission. 69

Figure 4.11 : Architecture du premier étage amplificateur avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 10/130 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD une diode de pompe fibrée à 793 nm. 70

Figure 4.12 : Caractérisation du premier étage d'amplification Thulium avec a) l'accordabilité spectrale, b) l'efficacité laser 1950 nm, c) le spectre à 1950 nm, d) la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de la longueur d'onde amplifiée, e) le contraste à 1950 nm et f) le contraste en fonction de la longueur d'onde amplifiée 71

Figure 4.13 : Architecture optique du troisième étage amplificateur avec MS un extracteur des modes de gaine, TM 25/400 une fibre dopée au Thulium à double gaine et LD des diodes de pompe à 793 nm. 72

Figure 4.14 : Performances du deuxième étage amplificateur avec a) la transmission de l'isolateur, b) l'accordabilité spectrale, c) l'efficacité à 1940 nm et d) le mode spatial mesuré à 1,5 mètre de la sortie laser à la longueur d'onde 1932,5 nm. 72

Figure 4.15 : Diagramme d'énergie d'un milieu amplificateur co-dopé Thulium-Holmium avec la transition de pompage (bleu), la relaxation croisée du Thulium (RC, pointillés noirs), le transfert d'énergie résonant Thulium-Holmium (ET, pointillés noirs) et l'émission radiative vers 2100 nm (rouge). 74

Figure 4.16 : Architecture optique de l'oscillateur TmHo avec MS un extracteur des modes de gaine, TmHo 6/130 une fibre co-dopée Thulium-Holmium à double gaine et LD une diode de pompe à 793 nm. 75

Figure 4.17 : Emission spontanée amplifiée d'une fibre Tm-Ho 6/130 de 5 mètres en fonction de la puissance de pompage à 793 nm. 75

Figure 4.18 : a) Accordabilité de l'oscillateur Tm-Ho pour un pompage à 3,9 Watts et b) efficacité à 2050 nm pour différentes longueurs de fibre amplificatrice. 76

Figure 4.19 : Caractérisation de l'oscillateur Tm-Ho avec a) l'accordabilité, b) l'efficacité à 2050 nm, c-d) le spectre à 2050 nm et e-f) le spectre à 1908 nm. 77

Figure 4.20 : Tirée de la référence [121] : Structure d'une céramique Ho:YAG imagée par un microscope à balayage électronique. 78

Figure 4.21 : Tirée de la référence [155]. Illustration de la diffusion de Mie dans une céramique dont la dimension des grains est comparable à la longueur d'onde. 80

Figure 4.22 : Diffusion transverse (à gauche) et dans l'axe de propagation (à droite) d'un faisceau laser HeNe à 632,8 nm dans une céramique Ho:YAG. 80

Figure 4.23 : a-b) Coefficient d'absorption à 2090 nm et 2050 nm dans des matériaux Ho:YAG à différents niveaux de dopage. La plage de confiance (barre noire) est calculée pour une incertitude de $\pm 2,5\%$ sur les mesures de transmission. 82

Figure 4.24 : Absorption de céramiques YAG dopées à 1%, 2%, 4% et 10% d'ions Holmium. 84

Figure 4.25 : Surface efficace d'émission de céramiques YAG dopées à 1%, 2%, 4% et 10% d'ions Holmium, obtenues à partir de la distribution d'émission spontanée par l'équation de Füchtbauer-Ladenburg. 85

Figure 4.26 : A gauche, fluorescence rouge d'une céramique Ho:YAG pompée à 1940 nm. À droite, diagramme d'énergie de l'Holmium tiré de la référence [161] avec la transition de pompage (vert), les transferts d'énergie croisés (TE, bleu), les transitions non radiatives (noir) et les transitions radiatives vers 650 nm (rouge). 86

Figure 4.27 : Apparition d'une fracture dans une céramique Ho:YAG dopée à 8% pour un pompage à 38 Watts à 1940 nm. 87

Figure 4.28 : Montage de caractérisation du gain en simple passage dans des matériaux dopés à l'Holmium, avec MA le milieu amplificateur, P des diagnostics de puissance, et HR/HT les optiques de couplage de la pompe et du signal. 87

Figure 4.29 : a) Pompe absorbée à 1939,4 nm et b) gain brut à 2090 nm dans un monocristal (noir) et une céramique (rouge) Ho:YAG dopés à 1%. 88

Figure 4.30 : Coefficient d'émission stimulée dans un monocristal (en rouge) et une céramique (en noir) Ho:YAG dopés à 1%. 89

Figure 4.31 : a) Pompe absorbée à 1939,4 nm et b) gain à 2090 nm dans des céramiques Ho:YAG dopées à différentes concentrations d'ions actifs. 90

Figure 4.32 : Coefficient d'émission stimulée dans des céramiques Ho:YAG dopées avec différentes concentrations d'ions actifs. 91

Figure 4.33 : a) Coefficient d'émission stimulée et b) gain net attendu en l'absence de diffusion à 2090 nm dans des céramiques Ho:YAG dopées avec différentes concentrations d'ions actifs. 91

Figure 4.34 : Cavité laser bi-concave avec MA le milieu amplificateur, P des diagnostics de puissance, $\lambda/4$ une lame de phase quart d'onde et HR/HT les optiques de couplage de la pompe et du signal. 93

Figure 4.35 : Mesure du défaut de parallélisme d'une céramique Ho:YAG à partir de la réflexion d'un laser HeNe à 632,8 nm. 93

Figure 4.36 : Résolution graphique du système formé par les équations 4.17 et 4.18. 94

Figure 4.37 : A gauche, faisceau dévié par une céramique à faces non parallèles. À droite, compensation du défaut avec une deuxième céramique d'orientation opposée. 94

Figure 4.38 : Gain à 2090 nm dans un monocristal Ho:YAG dopé à 1% (noir) et un doublet de céramiques Ho:YAG dopées à 2% et 1% (rouge). 95

Figure 4.39 : a) Pompe absorbée, b) efficacité et c) stabilité d'une cavité laser pour un monocristal (en noir) et un doublet de céramiques dopées à l'Holmium (en rouge). d) Mode spatial à 40 cm du laser pour le doublet de céramiques. 95

Figure 4.40 : a) Spectre d'émission d'un monocristal (noir) et d'un doublet de céramiques (rouge) dans une cavité laser pompée à 1939,4 nm. b) Puissance d'émission de la cavité selon la longueur d'onde de pompage. 96

Figure B.1 : Réponse du monochromateur (en noir) entre $5\ \mu m$ et $20\ \mu m$ avec l'efficacité du réseau 75 traits/mm (en rouge) et du détecteur HgCdTe (en bleu). 105

Figure B.2 : a) Transmission des filtres interférentiels (en vert) et sensibilité du monochromateur (en noir) et b-c) spectres idler expérimentaux (en noir), simulés (en rouge) et corrigés (en bleu) par la réponse du monochromateur et des filtres. 106

Figure B.3 : a) Transmission du doublet de filtres interférentiels LP2500 et LP3500 en fonction de la longueur d'onde centrale de l'idler et b) énergie de l'idler après (en rouge, mesurée) et avant (en bleu, calculée) les filtres. 106

Figure C.1 : Tirée de la référence [88] : Principe de fonctionnement du FROSt avec Is la source de photoexcitation, P(t) l'impulsion sonde et S la réponse de transmission du matériau. 107

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 : Valeurs des paramètres utilisés pour la simulation de la figure 2.9 dans du Krypton à 1,7 bar. 23

Tableau 2.2 : Propriétés théoriques du signal en entrée de FOPA et dans le plan de Fourier, avec $2w_x$ le diamètre du faisceau sur l'axe non dispersé, $2w_y$ le diamètre sur l'axe dispersé, $\Delta\lambda$ la largeur spectrale et 2τ la durée d'impulsion. 26

Tableau 3.1 : Dimensionnement du FDFG avec ϕ_{ext} le diamètre en entrée/sortie, $2\,w_x$ et $2\,w_y$ l'étalement spatial à $1/e^2$ dans le plan de Fourier le long des axes respectivement dispersé et non dispersé et $2\,\tau$ la durée d'impulsion au centre du plan de Fourier. 58

BIBLIOGRAPHIE

[1] Colosimo P, Doumy G, Blaga C. I, Wheeler J, Hauri C, Catoire F, Tate J, Chirla R, March A. M, Paulus G. G, Muller H. G, Agostini P, & DiMauro L. F. « Scaling strong-field interactions towards the classical limit ». Nature Physics **4**, 386–389 (2008).

[2] Ghimire S, DiChiara A. D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L. F, & Reis D. A. « Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal ». Nature Physics **7**, 138–141 (2011).

[3] Herink G, Solli D. R, Gulde M, & Ropers C. « Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion ». Nature **483**, 190–193 (2012).

[4] Popmintchev T, Chen M.-C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiunas T, Mücke O. D, Pugzlys A, Baltuška A, Shim B, Schrauth S. E, Gaeta A, Hernández-García C, Plaja L, Becker A, Jaron-Becker A, Murnane M. M, & Kapteyn H. C. « Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers ». Science **336**, 1287–1291 (2012).

[5] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, Urbanek B, Lange C, Huttner U, Golde D, Meier T, Kira M, Koch S. W, & Huber R. « Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations ». Nature Photonics **8**, 119–123 (2014).

[6] Wolter B., Pullen M. G., Le A.-T., Baudisch M., Doblhoff-Dier K., Senftleben A., Hemmer M., Schröter C. D., Ullrich J., Pfeifer T., Moshammer R., Gräfe S., Vendrell O., Lin C. D., & Biegert J. « Ultrafast electron diffraction imaging of bond breaking in di-ionized acetylene ». Science **354**, 308–312 (2016).

[7] Li J, Ren X, Yin Y, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S, Wu Y, Chini M, & Chang Z. « 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge ». Nature Communications **8**, 186 (2017).

[8] Schliesser A, Picqué N, & Hänsch T. W. « Mid-infrared frequency combs ». Nature Photonics **6**, 440–449 (2012).

[9] Haas J & Mizaikoff B. « Advances in Mid-Infrared Spectroscopy for Chemical Analysis ». Annual Review of Analytical Chemistry **9**, 45–68 (2016).

[10] Kara O, Maidment L, Gardiner T, Schunemann P. G, & Reid D. T. « Dual-comb spectroscopy in the spectral fingerprint region using OPGaP optical parametric oscillators ». Opt. Express **25**, 32713–32721 (2017).

[11] Timmers H, Kowligy A, Lind A, Cruz F. C, Nader N, Silfies M, Ycas G, Allison T. K, Schunemann P. G, Papp S. B, & Diddams S. A. « Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs ». Optica **5**, 727 (2018).

[12] Lamb W. E. « Theory of an Optical Maser ». Physical Review **134**, A1429–A1450 (1964).

[13] H. A. Haus. « Mode-locking of lasers ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **6**, 1173–1185 (2000).

[14] Strickland D & Mourou G. « Compression of amplified chirped optical pulses ». Optics Communications **55**, 447–449 (1985).

[15] Sanchez D, Hemmer M, Baudisch M, Cousin S. L, Zawilski K, Schunemann P, Chalus O, Simon-Boisson C, & Biegert J. « 7 µm, ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 µm ». Optica **3**, 147 (2016).

[16] Krogen P, Liang H, Zawilski K, Schunemann P, Lang T, Morgner U, Moses J, Kärtner F. X, & Hong K.-H. (2016) *Octave-spanning 1.5-optical-cycle 6.5-µm OPA pumped by 2.1-µm OPCPA*. (Optica Publishing Group), p. STu3I.4.

[17] Wandel S, Lin M.-W, Yin Y, Xu G, & Jovanovic I. « Bandwidth control in 5 µm pulse generation by dual-chirped optical parametric amplification ». J. Opt. Soc. Am. B **33**, 1580–1587 (2016).

[18] Mirov S. B, Fedorov V. V, Martyshkin D, Moskalev I. S, Mirov M, & Vasilyev S. « Progress in Mid-IR Lasers Based on Cr and Fe-Doped II–VI Chalcogenides ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **21**, 292–310 (2015).

[19] Mirov S. B, Moskalev I. S, Vasilyev S, Smolski V, Fedorov V. V, Martyshkin D, Peppers J, Mirov M, Dergachev A, & Gapontsev V. « Frontiers of Mid-IR Lasers Based on Transition Metal Doped Chalcogenides ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **24**, 1–29 (2018).

[20] Slobodchikov E & Moulton P. (2011) *1-GW-peak-power, Cr:ZnSe laser*. pp. 1 – 2.

[21] Tolstik N, Sorokin E, & Sorokina I. T. « Graphene mode-locked Cr:ZnS laser with 41 fs pulse duration ». Optics Express **22**, 5564 (2014).

[22] Vampa G, Vasilyev S, Liu H, Mirov M, Bucksbaum P. H, & Reis D. A. « Characterization of high-harmonic emission from ZnO up to 11 eV pumped with a Cr:ZnS high-repetition-rate source ». Optics Letters **44**, 259 (2019).

[23] Vasilyev S, Moskalev I, Smolski V, Peppers J, Mirov M, Barnakov Y, Fedorov V, Martyshkin D, Mirov S, & Gapontsev V. « Kerr-lens mode-locked Cr:ZnS oscillator reaches the spectral span of an optical octave ». Optics Express **29**, 2458 (2021).

[24] Vasilyev S, Moskalev I, Mirov M, Mirov S, & Gapontsev V. « Three optical cycle mid-IR Kerr-lens mode-locked polycrystalline Cr^2+:ZnS laser ». Optics Letters **40**, 5054 (2015).

[25] Vasilyev S, Moskalev I, Mirov M, Smolski V, Mirov S, & Gapontsev V. « Ultrafast middle-IR lasers and amplifiers based on polycrystalline Cr:ZnS and Cr:ZnSe ». Optical Materials Express **7**, 2636 (2017).

[26] Pushkin A. V, Migal E. A, Tokita S, Korostelin Y. V, & Potemkin F. V. « Femtosecond graphene mode-locked Fe:ZnSe laser at 44 µm ». Optics Letters **45**, 738 (2020).

[27] Pollnau M, Ghisler C, Bunea G, Bunea M, Lüthy W, & Weber H. P. « 150 mW unsaturated output power at 3 µm from a single-mode-fiber erbium cascade laser ». Applied Physics Letters **66**, 3564–3566 (1995).

[28] Pollnan M & Jackson S. « Erbium 3 µm fiber lasers ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **7**, 30–40 (2001).

[29] Hudson D. D, Jackson S. D, & Eggleton B. J. (2012) *Novel laser sources in the mid-Infrared*. (IEEE, Pulau Pinang, Malaysia), pp. 381–385.

[30] Li J, Hudson D. D, Liu Y, & Jackson S. D. « Efficient 287 µm fiber laser passively switched using a semiconductor saturable absorber mirror ». Optics Letters **37**, 3747 (2012).

[31] Majewski M. R, Woodward R. I, & Jackson S. D. « Ultrafast mid-infrared fiber laser mode-locked using frequency-shifted feedback ». Optics Letters **44**, 1698 (2019).

[32] Vasilyev S, Moskalev I. S, Smolski V. O, Peppers J. M, Mirov M, Muraviev A. V, Zawilski K, Schunemann P. G, Mirov S. B, Vodopyanov K. L, & Gapontsev V. P. « Super-octave longwave mid-infrared coherent transients produced by optical rectification of few-cycle 25-µm pulses ». Optica **6**, 111 (2019).

[33] Kaindl R. A, Eickemeyer F, Woerner M, & Elsaesser T. « Broadband phase-matched difference frequency mixing of femtosecond pulses in GaSe: Experiment and theory ». Applied Physics Letters **75**, 1060–1062 (1999).

[34] Huber R, Brodschelm A, Tauser F, & Leitenstorfer A. « Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz ». Applied Physics Letters **76**, 3191–3193 (2000).

[35] Bonvalet A, Joffre M, Martin J. L, & Migus A. « Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate ». Applied Physics Letters **67**, 2907–2909 (1995).

[36] Armstrong J. A, Bloembergen N, Ducuing J, & Pershan P. S. « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric ». Physical Review **127**, 1918–1939 (1962).

[37] Boulanger B & Zyss J. « Chapter 1.7. Nonlinear optical properties ». International Tables for Crystallography pp. 181–222 (2013).

[38] Dubietis A, Jonušauskas G, & Piskarskas A. « Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal ». Optics Communications **88**, 437–440 (1992).

[39] Zhang Q, Takahashi E, Mücke O, & Lu P. « Dual-chirped optical parametric amplification for generating few hundred mJ infrared pulses ». Optics express **19**, 7190–212 (2011).

[40] Schmidt B. E, Thiré N, Boivin M, Laramée A, Poitras F, Lebrun G, Ozaki T, Ibrahim H, & Légaré F. « Frequency domain optical parametric amplification ». Nature Communications **5**, 3643 (2014).

[41] Gruson V, Ernotte G, Lassonde P, Laramée A, Bionta M. R, Chaker M, Mauro L. D, Corkum P. B, Ibrahim H, Schmidt B. E, & Legaré F. « 2.5 TW, two-cycle IR laser pulses via frequency domain optical parametric amplification ». Opt. Express **25**, 27706–27714 (2017).

[42] Corkum P. B. « Plasma perspective on strong field multiphoton ionization ». Phys. Rev. Lett. **71**, 1994–1997 (1993).

[43] Corkum P. B & Krausz F. « Attosecond science ». Nature Physics **3**, 381–387 (2007).

[44] Vampa G, McDonald C, Orlando G, Klug D, Corkum P, & Brabec T. « Theoretical Analysis of High-Harmonic Generation in Solids ». Physical Review Letters **113** (2014).

[45] Vampa G, Hammond T. J, Thiré N, Schmidt B. E, Légaré F, McDonald C. R, Brabec T, & Corkum P. B. « Linking high harmonics from gases and solids ». Nature **522**, 462–464 (2015).

[46] McDonald C. R, Vampa G, Orlando G, Corkum P. B, & Brabec T. « Theory of high-harmonic generation in solids ». Journal of Physics: Conference Series **594**, 012021 (2015).

[47] Hansen K. K, Bauer D, & Madsen L. B. « Finite-system effects on high-order harmonic generation: From atoms to solids ». Physical Review A **97**, 043424 (2018).

[48] Ghimire S & Reis D. A. « High-harmonic generation from solids ». Nature Physics **15**, 10–16 (2019).

[49] Martinez O. « Matrix formalism for pulse compressors ». IEEE Journal of Quantum Electronics **24**, 2530–2536 (1988).

[50] Martinez O. « Matrix formalism for dispersive laser cavities ». IEEE Journal of Quantum Electronics **25**, 296–300 (1989).

[51] Dijaili S, Dienes A, & Smith J. « ABCD matrices for dispersive pulse propagation ». IEEE Journal of Quantum Electronics **26**, 1158–1164 (1990).

[52] Lin Q, Wang S, Alda J, & Bernabeu E. « Spatial-temporal coupling in grating-pair pulse compression system analysed by matrix optics ». Optical and Quantum Electronics **27**, 679–692 (1995).

[53] Larotonda M & Hnilo A. « Short laser pulse parameters in a nonlinear medium: Different approximations of the ray-pulse matrix ». Optics Communications **183**, 207–213 (2000).

[54] A. G. Kostenbauder. « Ray-pulse matrices: a rational treatment for dispersive optical systems ». IEEE Journal of Quantum Electronics **26**, 1148–1157 (1990).

[55] Akturk S, Gu X, Gabolde P, & Trebino R. « The general theory of first-order spatio-temporal distortions of Gaussian pulses and beams ». Optics Express **13**, 8642–8661 (2005).

[56] Porras M. A, Alda J, & Bernabeu E. « Complex beam parameter and ABCD law for non-Gaussian and nonspherical light beams ». Applied Optics **31**, 6389 (1992).

[57] Stepanov E, Lanin A, Voronin A, Fedotov A, & Zheltikov A. « Solid-State Source of Subcycle Pulses in the Midinfrared ». Physical Review Letters **117** (2016).

[58] Brida D, Marangoni M, Manzoni C, Silvestri S. D, & Cerullo G. « Two-optical-cycle pulses in the mid-infrared from an optical parametric amplifier ». Optics Letters **33**, 2901 (2008).

[59] Ashihara S & Kawahara Y. « Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs ». Optics Letters **34**, 3839 (2009).

[60] Bradler M, Homann C, & Riedle E. « Mid-IR femtosecond pulse generation on the micro-joule level up to 5 µm at high repetition rates ». Optics Letters **36**, 4212 (2011).

[61] Andriukaitis G, Ališauskas S, Pugžlys A, Baltuška A, Tan L, Lim H, Boon P, Balskus K, & Michailovas A. (2012) *Micro-Joule Octave Spanning Pulses at 6 µm from a Hybrid Femtosecond OPA*. (OSA, San Diego, California), p. AM1A.6.

[62] Lanin A. A, Voronin A. A, Stepanov E. A, Fedotov A. B, & Zheltikov A. M. « Frequency-tunable sub-two-cycle 60-MW-peak-power free-space waveforms in the mid-infrared ». Optics Letters **39**, 6430 (2014).

[63] Liang H, Krogen P, Wang Z, Park H, Kroh T, Zawilski K, Schunemann P, Moses J, DiMauro L. F, Kärtner F. X, & Hong K.-H. « High-energy mid-infrared sub-cycle pulse synthesis from a parametric amplifier ». Nature Communications **8** (2017).

[64] Kanai T, Malevich P, Kangaparambil S. S, Ishida K, Mizui M, Yamanouchi K, Hoogland H, Holzwarth R, Pugzlys A, & Baltuska A. « Parametric amplification of 100 fs mid-infrared pulses in ZnGeP2 driven by a Ho:YAG chirped-pulse amplifier ». Opt. Lett. **42**, 683–686 (2017).

[65] von Grafenstein L, Bock M, Ueberschaer D, Zawilski K, Schunemann P, Griebner U, & Elsaesser T. « 5 µm few-cycle pulses with multi-gigawatt peak power at a 1 kHz repetition rate ». Optics Letters **42**, 3796 (2017).

[66] Qu S, Zou X, Liu K, Li W, Luen S. H, Wang Q. J, Zhang Y, & Liang H. (2019) *Micro-joule, 10 kHz, sub-two-cycle, long wavelength mid-infrared laser source based on the 9 µm OPCPA*. (OSA, Vienna), p. AM2A.6.

[67] Budriūnas R, Jurkus K, Vengris M, & Varanavičius A. « Long seed, short pump: converting Yb-doped laser radiation to multi-µJ few-cycle pulses tunable through 2.5–15 µm ». Opt. Express **30**, 13009–13023 (2022).

[68] Schmidt B. E, Shiner A. D, Giguère M, Lassonde P, Trallero-Herrero C. A, Kieffer J.-C, Corkum P. B, Villeneuve D. M, & Légaré F. « High harmonic generation with long-wavelength few-cycle laser pulses ». Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **45**, 074008 (2012).

[69] Marcatili E. A. J & Schmeltzer R. A. « Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers ». Bell System Technical Journal **43**, 1783–1809 (1964).

[70] Nisoli M, De Silvestri S, & Svelto O. « Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique ». Applied Physics Letters **68**, 2793–2795 (1996).

[71] Cardin V, Thiré N, Beaulieu S, Wanie V, Légaré F, & Schmidt B. E. « 0.42 TW 2-cycle pulses at 1.8 µm via hollow-core fiber compression ». Applied Physics Letters **107**, 181101 (2015).

[72] Béjot P, Schmidt B. E, Kasparian J, Wolf J.-P, & Legaré F. « Mechanism of hollow-core-fiber infrared-supercontinuum compression with bulk material ». Physical Review A **81** (2010).

[73] Nibbering E. T. J, Grillon G, Franco M. A, Prade B. S, & Mysyrowicz A. « Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2, and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses ». Journal of the Optical Society of America B **14**, 650 (1997).

[74] Börzsönyi A, Heiner Z, Kovács A. P, Kalashnikov M. P, & Osvay K. « Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases ». Opt. Express **18**, 25847–25854 (2010).

[75] Smith P. L, Huber M. C. E, & Parkinson W. H. « Refractivities of H 2 , He, O 2 , CO, and Kr for 168 < λ < 288 nm ». Physical Review A **13**, 1422–1434 (1976).

[76] Bideau-Mehu A, Guern Y, Abjean R, & Johannin-Gilles A. « Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton and xenon in the 253.7–140.4 nm wavelength range. Dispersion relations and estimated oscillator strengths of the resonance lines ». Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **25**, 395–402 (1981).

[77] Börzsönyi A, Heiner Z, Kalashnikov M. P, Kovács A. P, & Osvay K. « Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800 nm ». Applied Optics **47**, 4856 (2008).

[78] Allakhverdiev K. R, Yetis M. O, Özbek S, Baykara T. K, & Salaev E. Y. « Effective nonlinear GaSe crystal. Optical properties and applications ». Laser Physics **19**, 1092–1104 (2009).

[79] Kato K, Tanno F, & Umemura N. « Sellmeier and thermo-optic dispersion formulas for GaSe (Revisited) ». Appl. Opt. **52**, 2325–2328 (2013).

[80] Feng Z.-S, Kang Z.-H, Li X.-M, Wang Z.-B, Gao J.-Y, Andreev Y. M, Atuchin V. V, Kokh K. A, Lanskii G. V, Potekaev A. I, Shaiduko A. V, & Svetlichnyi V. A. « Impact of fs and ns pulses on indium and sulfur doped gallium selenide crystals ». AIP Advances **4**, 037104 (2014).

[81] Zhu C, Dyomin V, Yudin N, Antipov O, Verozubova G, Eranov I, Zinoviev M, Podzyvalov S, Zhuravlyova Y, Slyunko Y, & Yang C. « Laser-Induced Damage Threshold of Nonlinear GaSe and GaSe:In Crystals upon Exposure to Pulsed Radiation at a Wavelength of 2.1 µm ». Applied Sciences **11**, 1208 (2021).

[82] Andreev Y, Badikov V, Voevodin V, Geiko L, Geiko P, Ivashchenko M, Karapuzikov A, & Sherstov I. « Radiation resistance of nonlinear crystals at a wavelength of 9.55 µm ». Quantum Electronics **31**, 1075 (2007).

[83] Vodopyanov K, Kulevskii L, Voevodin V, Gribenyukov A, Allakhverdiev K, & Kerimov T. « High efficiency middle IR parametric superradiance in ZnGeP2 and GaSe crystals pumped by an erbium laser ». Optics Communications **83**, 322–326 (1991).

[84] Vodopyanov K & Voevodin V. « 2.8 µm laser pumped type I and type II travelling-wave optical parametric generator in GaSe ». Optics Communications **114**, 333–335 (1995).

[85] Guo J, Xie J.-J, Zhang L, Chen F, Jiang K, Alexeev S. V, Andreev Y. M, Kokh K. A, Lanskii G. V, Losev V. F, Lubenko D. M, Shaiduko A. V, & Svetlichnyi V. A. (2013) *GaSe damage threshold under IR pulse pumping* ed. Allakhverdiev K. R. (International Society for Optics and Photonics, SPIE), Vol. 8677, pp. 359 – 366.

[86] Liu K, Liang H, Wang L, Qu S, Lang T, Li H, Wang Q. J, & Zhang Y. « Multimicrojoule GaSe-based midinfrared optical parametric amplifier with an ultrabroad idler spectrum covering 42–16 µm ». Optics Letters **44**, 1003 (2019).

[87] Liu K, Liang H, Li W, Zou X, Qu S, Lang T, Zhang Y, & Wang Q. J. « Microjoule Sub-Two-Cycle Mid-Infrared Intrapulse-DFG Driven by 3 µm OPCPA ». IEEE Photonics Technology Letters **31**, 1741–1744 (2019).

[88] Leblanc A, Lassonde P, Petit S, Delagnes J.-C, Haddad E, Ernotte G, Bionta M. R, Gruson V, Schmidt B. E, Ibrahim H, Cormier E, & Légaré F. « Phase-matching-free pulse retrieval based on transient absorption in solids ». Optics Express **27**, 28998 (2019).

[89] Baltuška A, Fuji T, & Kobayashi T. « Controlling the Carrier-Envelope Phase of Ultrashort Light Pulses with Optical Parametric Amplifiers ». Phys. Rev. Lett. **88**, 133901 (2002).

[90] Baltuska A, Uiberacker M, Goulielmakis E, Kienberger R, Yakovlev V, Udem T, Hansch T, & Krausz F. « Phase-controlled amplification of few-cycle laser pulses ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **9**, 972–989 (2003).

[91] Leblanc A, Lassonde P, Dalla-Barba G, Cormier E, Ibrahim H, & Légaré F. « Characterizing the carrier-envelope phase stability of mid-infrared laser pulses by high harmonic generation in solids ». Optics Express **28**, 17161 (2020).

[92] Ishii N, Xia P, Kanai T, & Itatani J. « Optical parametric amplification of carrier-envelope phase-stabilized mid-infrared pulses generated by intra-pulse difference frequency generation ». Optics Express **27**, 11447 (2019).

[93] Wang Z, Park H, Lai Y. H, Xu J, Blaga C. I, Yang F, Agostini P, & DiMauro L. F. « The roles of photo-carrier doping and driving wavelength in high harmonic generation from a semiconductor ». Nature Communications **8** (2017).

[94] Fuji T & Suzuki T. « Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air ». Opt. Lett. **32**, 3330–3332 (2007).

[95] Boulesbaa A, Isaienko O, Tuladhar A, & Borguet E. « Generation of sub-30-fs microjoule mid-infrared pulses for ultrafast vibrational dynamics at solid/liquid interfaces ». Opt. Lett. **38**, 5008–5011 (2013).

[96] Elu U, Baudisch M, Pires H, Tani F, Frosz M. H, Köttig F, Ermolov A, Russell P. S, & Biegert J. « High average power and single-cycle pulses from a mid-IR optical parametric chirped pulse amplifier ». Optica **4**, 1024–1029 (2017).

[97] Zou X, Li W, Liang H, Liu K, Qu S, Wang Q. J, & Zhang Y. « 300 µJ, 3W, few-cycle, 3 µm OPCPA based on periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystals ». Opt. Lett. **44**, 2791–2794 (2019).

[98] Phillips C. R, Mayer B. W, Gallmann L, & Keller U. « Frequency-domain nonlinear optics in two-dimensionally patterned quasi-phase-matching media ». Opt. Express **24**, 15940–15953 (2016).

[99] Li Y, Liang Y, Dai D, Yang J, Zhong H, & Fan D. « Frequency-domain parametric down-conversion for efficient broadened idler generation ». Photonics Research **5**, 669 (2017).

[100] Armstrong J. A, Bloembergen N, Ducuing J, & Pershan P. S. « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric ». Phys. Rev. **127**, 1918–1939 (1962).

[101] Miller G. D, Batchko R. G, Tulloch W. M, Weise D. R, Fejer M. M, & Byer R. L. « 42%-efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate ». Opt. Lett. **22**, 1834–1836 (1997).

[102] Bach F, Mero M, Chou M.-H, & Petrov V. « Laser induced damage studies of LiNbO3 using 1030-nm, ultrashort pulses at 10-1000 kHz ». Opt. Mater. Express **7**, 240–252 (2017).

[103] Zelmon D. E, Small D. L, & Jundt D. « Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol. % magnesium oxide-doped lithium niobate ». J. Opt. Soc. Am. B **14**, 3319–3322 (1997).

[104] Iwai H, Ishii S, Oda R, Mizutani K, Sekizawa S, & Murayama Y. « Performance and Technique of Coherent 2-µm Differential Absorption and Wind Lidar for Wind Measurement ». Journal of Atmospheric and Oceanic Technology **30**, 429–449 (2013).

[105] Taczak T. M & Killinger D. K. « Development of a tunable, narrow-linewidth, cw 2.066-μm Ho:YLF laser for remote sensing of atmospheric CO2 and H2O ». Appl. Opt. **37**, 8460–8476 (1998).

[106] Kraaij G, Malan D. F, van der Heide H. J, Dankelman J, Nelissen R. G, & Valstar E. R. « Comparison of Ho:YAG laser and coblation for interface tissue removal in minimally invasive hip refixation procedures ». Medical Engineering and Physics **34**, 370–377 (2012).

[107] Petrov V. « Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using non-oxide nonlinear crystals ». Progress in Quantum Electronics **42**, 1–106 (2015).

[108] Wisdom J, Digonnet M, & Byer R. L. « Ceramic Lasers ». Photonics spectra (2004).

[109] Ikesue A & Aung Y. L. « Ceramic laser materials ». Nature Photonics **2**, 721–727 (2008).

[110] Li J, Chen Q, Wu W, Xiao D, & Zhu J. « Densification and optical properties of transparent Ho:YAG ceramics ». Optical Materials **35**, 748–752 (2013).

[111] Dong J, Shirakawa A, ichi Ueda K, Yagi H, Yanagitani T, & Kaminskii A. A. « Laser-diode pumped heavy-doped Yb:YAG ceramic lasers ». Opt. Lett. **32**, 1890–1892 (2007).

[112] Giesen A, Hügel H, Voss A, Wittig K, Brauch U, & Opower H. « Scalable concept for diode-pumped high-power solid-state lasers ». Applied Physics B **58**, 365–372 (1994).

[113] Giesen A & Speiser J. « Fifteen Years of Work on Thin-Disk Lasers: Results and Scaling Laws ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **13**, 598–609 (2007).

[114] Lu J, ichi Ueda K, Yagi H, Yanagitani T, Akiyama Y, & Kaminskii A. A. « Neodymium doped yttrium aluminum garnet (Y3Al5O12) nanocrystalline ceramics—a new generation of solid state laser and optical materials ». Journal of Alloys and Compounds **341**, 220–225 (2002). Proceedings of the 5th International Conference on Excited States of Transition Elements.

[115] Qi Y, Zhu X, Lou Q, Ji J, Dong J, & Wei Y. « Nd:YAG ceramic laser obtained high slope-efficiency of 62% in high power applications ». Opt. Express **13**, 8725–8729 (2005).

[116] Nakamura S, Matsubara Y, Ogawa T, & Wada S. « High-Power High-Efficiency Yb3+ Doped Y3Al5O12 Ceramic Laser at Room Temperature ». Japanese Journal of Applied Physics **47**, 2149–2151 (2008).

[117] Cheng X, Xu J, Wang M, Jiang B, Zhang W, & Pan Y. « Ho:YAG ceramic laser pumped by Tm:YLF lasers at room temperature ». Laser Physics Letters **7**, 351–354 (2010).

[118] Zhang W, Zhou J, Liu W, Li J, Wang L, Jiang B, Pan Y, Cheng X, & Xu J. « Fabrication, properties and laser performance of Ho:YAG transparent ceramic ». Journal of Alloys and Compounds **506**, 745–748 (2010).

[119] Chen H, Shen D, Zhang J, Yang H, Tang D, Zhao T, & Yang X. « In-Band Pumped Highly Efficient Ho:YAG Ceramic Laser with 21 W Output Power at 2097 nm ». Optics letters **36**, 1575–7 (2011).

[120] Koopmann P, Lamrini S, Scholle K, Schäfer M, Fuhrberg P, & Huber G. « Holmium-doped Lu2O3, Y2O3, and Sc2O3 for lasers above 2.1 µm ». Opt. Express **21**, 3926–3931 (2013).

[121] Wang W, Tang F, Yuan X, Ma C, Guo W, & Cao Y. « Fabrication and properties of tape-casting transparent Ho:Y3Al5O12 ceramic ». Chinese Optics Letters **13**, 051404(4) (2015).

[122] Yang H, Zhang L, Luo D, Qiao X, Zhang J, Zhao T, Shen D, & Tang D. « Optical properties of Ho:YAG and Ho:LuAG polycrystalline transparent ceramics ». Opt. Mater. Express **5**, 142–148 (2015).

[123] Kaminskii A. « Crystalline Lasers: Physical Processes and Operating Schemes CRC ». Boca Raton, FL **60** (1996).

[124] Kelemen M, Gilly J, Ahlert S, Kissel H, Biesenbach J, Rattunde M, & Wagner J. « Diode laser arrays for 1.8 to 2.3 µm wavelength range ». Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering **7230** (2009).

[125] Bollig C, Hayward R. A, Clarkson W. A, & Hanna D. C. « 2-W Ho:YAG laser intracavity pumped by a diode-pumped Tm:YAG laser ». Opt. Lett. **23**, 1757–1759 (1998).

[126] Budni P, Lemons M, Mosto J, & Chicklis E. « High-power/high-brightness diode-pumped 1.9-/spl mu/m thulium and resonantly pumped 2.1-/spl mu/m holmium lasers ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **6**, 629–635 (2000).

[127] Shen D, Abdolvand A, Cooper L, & Clarkson W. « Efficient Ho:YAG laser pumped by a cladding-pumped tunable Tm:silica-fibre laser ». Applied Physics B **79**, 559–561 (2004).

[128] Scholle K, Lamrini S, Koopmann P, & Fuhrberg P. (2010) *2 µm Laser Sources and Their Possible Applications*.

[129] Malinowski M, Frukacz Z, Szuflińska M, Wnuk A, & Kaczkan M. « Optical transitions of Ho3+ in YAG ». Journal of Alloys and Compounds **300-301**, 389–394 (2000).

[130] McComb T. S, Sims R. A, Willis C. C. C, Kadwani P, Sudesh V, Shah L, & Richardson M. « High-power widely tunable thulium fiber lasers ». Applied Optics **49**, 6236 (2010).

[131] Yin K, Zhang B, Xue G, Li L, & Hou J. « High-power all-fiber wavelength-tunable thulium doped fiber laser at µm ». Optics Express **22**, 19947 (2014).

[132] Wang X, Jin X, Zhou P, Wang X, Xiao H, & Liu Z. « High power, widely tunable, narrow-band superfluorescent source at 2 µm based on a monolithic Tm-doped fiber amplifier ». Optics Express **23**, 3382 (2015).

[133] Yin K, Zhu R, Zhang B, Liu G, Zhou P, & Hou J. « 300 W-level, wavelength-widely-tunable, all-fiber integrated thulium-doped fiber laser ». Opt. Express **24**, 11085–11090 (2016).

[134] Allen L & Peters G. « Superradiance, coherence brightening and amplified spontaneous emission ». Physics Letters A **31**, 95–96 (1970).

[135] Peters G. I & Allen L. « Amplified spontaneous emission I. The threshold condition ». Journal of Physics A: General Physics **4**, 238–243 (1971).

[136] Burns M. D, Shardlow P. C, Barua P, Jefferson-Brain T. L, Sahu J. K, & Clarkson W. A. « 47 W continuous-wave 1726 nm thulium fiber laser core-pumped by an erbium fiber laser ». Opt. Lett. **44**, 5230–5233 (2019).

[137] Yokota M & Tanimoto O. « Effects of Diffusion on Energy Transfer by Resonance ». Journal of the Physical Society of Japan **22**, 779–784 (1967).

[138] Sennaroğlu A, Kurt A, & Özen G. « Effect of cross relaxation on the 1470 and 1800 nm emissions in Tm3+:TeO2–CdCl2 glass ». Journal of Physics: Condensed Matter **16**, 2471–2478 (2004).

[139] Walbaum T, Heinzig M, Schreiber T, Eberhardt R, & Tünnermann A. « Monolithic thulium fiber laser with 567 W output power at 1970 nm. » Opt. Lett. **41**, 2632–2635 (2016).

[140] Gaida C, Gebhardt M, Heuermann T, Stutzki F, Jauregui C, & Limpert J. « Ultrafast thulium fiber laser system emitting more than 1 kW of average power ». Opt. Lett. **43**, 5853–5856 (2018).

[141] Sincore A, Bradford J. D, Cook J, Shah L, & Richardson M. C. « High Average Power Thulium-Doped Silica Fiber Lasers: Review of Systems and Concepts ». IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **24**, 1–8 (2018).

[142] Gebavi H, Milanese D, Balda R, Chaussedent S, Ferrari M, Fernandez J, & Ferraris M. « Spectroscopy and optical characterization of thulium doped TZN glasses ». Journal of Physics D: Applied Physics **43**, 135104 (2010).

[143] Feit M. D & Fleck J. A. « Computation of mode properties in optical fiber waveguides by a propagating beam method ». Appl. Opt. **19**, 1154–1164 (1980).

[144] Guo C, Shen D, Long J, & Wang F. « High-power and widely tunable Tm-doped fiber laser at 2 µm ». Chin. Opt. Lett. **10**, 091406–091406 (2012).

[145] Clarkson W. A, Barnes N. P, Turner P. W, Nilsson J, & Hanna D. C. « High-power cladding-pumped Tm-doped silica fiber laser with wavelength tuning from 1860 to 2090 nm ». Opt. Lett. **27**, 1989–1991 (2002).

[146] Ghisler C, Lüthy W, Weber H, Morel J, Woodtli A, Dändliker R, Neuman V, Berthou H, & Kotrotsios G. « A Tm3+ sensitized Ho3+ silica fibre laser at 2.04 µm pumped at 809 nm ». Optics Communications **109**, 279–281 (1994).

[147] Hemming A, Jackson S, Sabella A, Bennetts S, & Lancaster D. « High power, narrow bandwidth and broadly tunable Tm3+, Ho3+-co-doped aluminosilicate glass fibre laser ». Electronics Letters **46**, 1617 (2010).

[148] Xue G, Zhang B, Yin K, Yang W, & Hou J. « Ultra-wideband all-fiber tunable Tm/Ho-co-doped laser at 2 µm ». Opt. Express **22**, 25976–25983 (2014).

[149] Sharbirin A, Ismail M. F, & Ahmad H. « Isolator-free, widely tunable thulium/holmium fiber laser ». Malaysian Journal of Fundamental and Applied Sciences **14**, 439–442 (2018).

[150] Hemming A, Sabella A, Bennetts S, Jackson S. D, & Lancaster D. G. (2008) *A 4W tunable Tm^{3+}:Ho^{3+} silica fibre laser*. (IEEE, San Jose, CA, USA), pp. 1–2.

[151] Zelmon D. E, Small D. L, & Page R. « Refractive-index measurements of undoped yttrium aluminum garnet from 0.4 to 5.0 µmm ». Appl. Opt. **37**, 4933–4935 (1998).

[152] Wang L, Gao C, Gao M, Li Y, Yue F, Zhang J, & Tang D. « A resonantly-pumped tunable Q-switched Ho:YAG ceramic laser with diffraction-limit beam quality ». Opt. Express **22**, 254–261 (2014).

[153] Wang Y, Lan R, Mateos X, Li J, Hu C, Li C, Suomalainen S, Härkönen A, Guina M, Petrov V, & Griebner U. « Broadly tunable mode-locked Ho:YAG ceramic laser around 21 µm ». Optics Express **24**, 18003 (2016).

[154] Viers L. (2021) Ph.D. thesis. Thèse de doctorat dirigée par Maître, Alexandre et Boulesteix, Rémy Matériaux Céramiques et Traitements de Surface Limoges 2021.

[155] Furuse H, Horiuchi N, & Kim B.-N. « Transparent non-cubic laser ceramics with fine microstructure ». Scientific Reports **9**, 10300 (2019).

[156] Tang F, Wang W, Yuan X, Zhu C, Huang J, Ma C, Wang F, Lin Y, & Cao Y. « Dependence of optical and thermal properties on concentration and temperature for Yb:YAG laser ceramics ». Journal of Alloys and Compounds **593**, 123–127 (2014).

[157] Lyberis A, Patriarche G, Gredin P, Vivien D, & Mortier M. « Origin of light scattering in ytterbium doped calcium fluoride transparent ceramic for high power lasers ». Journal of the European Ceramic Society **31**, 1619–1630 (2011).

[158] Aull B & Jenssen H. « Vibronic interactions in Nd:YAG resulting in nonreciprocity of absorption and stimulated emission cross sections ». IEEE Journal of Quantum Electronics **18**, 925–930 (1982).

[159] Kumar G. A, Pokhrel M, Sardar D. K, Samuel P, Ueda K, Yanagitani T, & Yagi H. « 2.1 m Emission Spectral Properties of Tm and Ho Doped Transparent YAG Ceramic ». Science of Advanced Materials **4**, 617–622 (2012).

[160] Šulc J, Němec M, Vyhlídal D, Jelínková H, Nejezchleb K, & Polák J. (2021) *Holmium doping concentration influence on Ho:YAG crystal spectroscopic properties* eds. Clarkson W. A & Shori R. K. (International Society for Optics and Photonics, SPIE), Vol. 11664, pp. 105 – 115.

[161] Guhur A & Jackson S. D. « Efficient holmium-doped fluoride fiber laser emitting 2.1 µm and blue upconversion fluorescence upon excitation at 2 µm ». Opt. Express **18**, 20164–20169 (2010).

[162] Zhang J, Schulze F, Mak K, Pervak V, Bauer D, Sutter D, & Pronin O. « High-Power, High-Efficiency Tm:YAG and Ho:YAG Thin-Disk Lasers ». Laser & Photonics Reviews **12**, 1870018 (2018).

Titre : ARCHITECTURE D'AMPLIFICATEUR PARAMETRIQUE OPTIQUE DANS L'ESPACE DES FRÉQUENCES POUR LA GÉNÉRATION DE SOURCES LASER INTENSES DE QUELQUES CYCLES OPTIQUES DANS L'INFRAROUGE MOYEN

Résumé : Au cours des années 2000, l'avènement des sources laser Titane:saphir (Ti:Sa) intenses a ouvert la voie à la mesure des phénomènes ultra-rapides pour la physique attoseconde. La progression de ce champ d'applications dépend aujourd'hui de la création de nouvelles sources laser intenses dans l'infrarouge moyen (MIR), un domaine spectral encore peu couvert à cause du manque de milieux amplificateurs émettant à ces longueurs d'ondes. Dans cette thèse, une architecture d'amplification paramétrique optique (OPA) dans l'espace des fréquences est présentée pour générer du rayonnement MIR intense à partir d'une chaîne laser Ti:Sa térawatt. Cette source MIR, accordable de 5,5 µm à 13 µm, a été caractérisée temporellement par une technique pompe-sonde développée en 2019 par l'Université de Bordeaux et l'Institut National de la Recherche Scientifique, puis utilisée pour piloter une expérience de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) en milieu solide. Une seconde architecture d'OPA est ensuite proposée pour générer du rayonnement intense cette fois-ci vers 3 µm par différence de fréquences (DFG) dans l'espace des fréquences. Enfin, une dernière étude traite le développement de nouveaux milieux amplificateurs à 2 µm, une longueur d'onde prometteuse pour le pompage d'OPA MIR. Dans ce cadre, des céramiques dopées à l'Holmium ont été fabriquées par une université partenaire et une méthode innovante est ici présentée pour analyser et quantifier les processus d'émission et de pertes dans ces matériaux, avec l'objectif d'égaler puis de surpasser à long terme les performances optiques des monocristaux.

Mots clés : amplification paramétrique optique, céramiques dopées à l'Holmium, génération d'harmoniques d'ordres élevés, infrarouge moyen, lasers intenses, physique attoseconde.

Title : ARCHITECTURE OF FREQUENCY DOMAIN OPTICAL PARAMETRIC AMPLIFIER FOR GENERATION OF INTENSE MID-INFRARED FEW-CYCLE LASER PULSES

Abstract : During the last decades, emergence of intense titanium:sapphire (Ti:Sa) lasers has allowed the measurement of ultrafast phenomena for attosecond physics. To go further in this field, scientists are now looking forward a new generation of intense coherent sources in the mid-infrared (MIR) domain, a range of wavelengths in which amplifier media are still lacking. In this thesis, an architecture of optical parametric amplification (OPA) in the frequency domain is presented to produce MIR intense field derived from a terawatt Ti:Sa laser. This MIR source, tunable from 5.5 µm to 13 µm, has been characterized temporally by a pump-probe technique developed in 2019 by University of Bordeaux and National Institute of Scientific Research, before being used to drive a high-harmonic generation (HHG) experiment in solids. A second architecture of OPA is then proposed to generate intense field around 3 µm, based on a difference frequency generation (DFG). In a last section, new amplifier media are investigated for emission at 2 µm, a wavelength of interest for pumping MIR OPA. In this context, Holmium-doped ceramics have been fabricated by a partner and an innovative method is presented here to study and characterize optical losses and emission processes in these materials, with the ambition of equaling, even exceeding, optical performances of monocrystals.

Keywords : attosecond physics, high-harmonic generation, Holmium-doped ceramics, intense lasers, mid-infrared, optical parametric amplification.

Unités de recherche :

Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences (LP2N) – UMR5298 – Institut d'Optique d'Aquitaine, Rue François Mitterrand, 33400 Talence

Advanced Laser Light Source – Institut National de la Recherche Scientifique – 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, QC J3X 1P7, Canada