



Processus non linéaires pour la génération d'impulsions picosecondes largement accordables dans l'infrarouge moyen

Jean-Baptiste Dherbecourt

► To cite this version:

Jean-Baptiste Dherbecourt. Processus non linéaires pour la génération d'impulsions picosecondes largement accordables dans l'infrarouge moyen. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT: . pastel-00599211

HAL Id: pastel-00599211

<https://pastel.hal.science/pastel-00599211>

Submitted on 9 Jun 2011

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

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



Thèse présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique

par

Jean-Baptiste DHERBECOURT

**Processus non linéaires pour la génération d'impulsions
picosecondes accordables dans l'infrarouge moyen**

soutenue le 15 Mars 2011 devant le jury composé de :

Fabrice DEVAUX	Institut FEMTO, Besançon	Rapporteur
Patrick GEORGES	IOTA, Palaiseau	Rapporteur
Fabien BRETENAKER	LAC, Orsay	Président
Benoît BOULANGER	Institut NÉEL, Grenoble	Directeur de thèse
Jean-Michel MELKONIAN	ONERA, Palaiseau	
Richard MONCORGÉ	CIMAP, Caen	
Majid EBRAHIM-ZADEH	ICFO, Barcelone	
Nicolas TREPS	LKB, Paris	Invité
Emmanuel ROSENCHER	ONERA, Palaiseau	Invité

Remerciements

La période de la thèse fut pour moi un enrichissement considérable, et je tiens tout naturellement à saluer et à remercier les personnes qui ont contribué à ce travail, ainsi que celles et ceux qui m'ont accompagné au cours de ces trois années. J'adresse mes plus grands remerciements à mes encadrants à l'ONERA : Michel Lefebvre, Antoine Godard, Myriam Raybaut et Jean-Michel Melkonian pour leur accueil, leur disponibilité, leurs conseils, et la confiance absolue qu'ils m'ont accordée pendant ces trois ans. Je leur dois beaucoup, et c'est non sans une certaine fierté, que je suis heureux de poursuivre mon parcours professionnel à leurs côtés. Merci également à Emmanuel Rosencher, qui a régulièrement pris soin de suivre l'avancée de mes travaux.

Toute ma gratitude va à mon directeur de thèse Benoît Boulanger, qui malgré l'éloignement géographique a su prendre le temps de s'impliquer avec minutie dans mes travaux et la rédaction de mon manuscrit. Merci également de m'avoir accueilli dans les labos de l'Institut Néel; le temps d'adaptation y fut très bref grâce à la bonne humeur des membres de l'équipe matériaux et optique non linéaire, que je salue au passage.

Je remercie vivement les membres de mon jury, en particulier mes deux rapporteurs, Fabrice Devaux et Patrick Georges, ainsi que Richard Moncorgé, Fabien Bretenaker, Nicolas Treps et Majid Ebrahim-Zadeh, pour leur regard critique et leurs questions pertinentes.

De nombreuses personnes ont contribué au bon déroulement de cette thèse. Je remercie très amicalement Jean-Louis Douallan, et, une fois de plus, Richard Moncorgé du CIMAP de Caen pour le laser Tm:YLF, que j'ai utilisé pendant plusieurs années après la thèse de Jean-Michel, et pour leur aide dans la fourniture d'échantillons de ZnSe:Cr^{2+} de qualité. Je remercie grandement Juliette Ryan de l'unité Calcul Haute Performance du DTIM à l'ONERA pour sa contribution, et son aide en matière de calculs numériques. Je remercie les personnes du Département d'Optique Théorique et Appliquée de l'ONERA, qui ont apporté leur pierre à l'édifice : Sophie Derelle et Julien Jaeck (mon dealer de proximité pour les cristaux de ZnSe:Cr^{2+}), pour leur collaboration, et leur solidarité, ainsi que Guillaume Canat et William Renard.

Je remercie Florence Baumgartner, Hélène Meler, et Sylvie Nicolle, pour leur bienveillance. Une pensée pour la troupe des atomes froids Alexandre Bresson, Nassim Zahzam, Yannick

Remerciements

Bidel, Olivier Carraz, et Renée Charrière, ainsi que pour Ajmal Mohamed. Je remercie bien entendu les collègues du J03 -01 : Jean-Pierre Faléni pour son expertise technique, Babacar Diop, à qui je souhaite bon courage pour la dernière ligne droite, Raphaël Vallon, l'As de la récupe, Bertrand Hardy, à qui j'adresse tous mes vœux de réussite. Je remercie grandement les stagiaires Lucie Servant et Adrien Denoeud, qui ont apporté un supplément d'énergie précieux sur des manipes difficiles. Je souhaite bon vent à Cédric Laporte, qui poursuit la thématique picoseconde, et salue Vincent Faivre, dont j'espère bien pouvoir tester un jour la fatissime guitare douze cordes.

Je remercie mes plus proches acolytes de tous les jours au labo, à commencer par Renaud Guérault. J'imagine que depuis que je n'emprunte plus régulièrement le RER B, ton train démarre et arrive toujours à la bonne heure au bon endroit. Sois fort.

Fabien Boëtier, que je salue bien bas, et avec force respect. Pendant ces trois années de thèse communes, j'ai pu admirer, et parfois même jalouser, ta capacité de travail, ta volonté sans limite, et ton aptitude toute particulière à savoir *doser* finement tes interlocuteurs. J'ai vite pris la mesure de ta puissance intellectuelle le jour où tu finissais pour la deuxième fois d'affilé les chromatrons 1, 2, 3, et 4 alors que j'en étais resté bloqué au milieu du premier. Je te remercie pour ton soutien inconditionnel, tes encouragements, et tes innombrables coups de pouce sur mes manipes. Je te souhaite bon courage pour la suite, qui, j'en suis sûr, sera brillante.

Merci à Jérémie - présent ! - Courtois, alias Potame. Je dois dire que bien au delà de la solidarité entre doctorants, tu es devenu un véritable ami, et ce n'est pas sans une certaine nostalgie que je repense à nos aventures Munichoises, aux sessions disquette / boule d'œuf, aux discussions sur le style "propre" de Walter Scott, à la veuve Clicquot, ou au canal Saint-Martin. J'espère te revoir bientôt, d'un côté ou de l'autre de l'atlantique, et, pour ta gouverne, je dirais en substance : "you look heavy, but you are not".

Je remercie tout particulièrement Thomas Schmid. Merci Thomas, tout d'abord, et cela va sans dire, pour ton support sur les manipes, mais surtout pour ta spontanéité, ta complicité, et les pauses café. Je ne désespère pas de comprendre un jour le secret de ton sens de la convivialité (sans doute un truc de Bourguignon). Je te suis également très reconnaissant d'avoir ré-ouvert le squat clamartien pour moi. C'est peu de dire que ça m'a facilité l'existence alors que j'abordais la dernière ligne droite de la rédaction de ce manuscrit.

Je souhaiterais enfin citer pour la postérité mes amis et ma famille, sans lesquels l'existence serait bien peu de chose : Bastien, 2 ans de coloc sans un *** de travers, Nico cuir & Nico moustache, Adrien, Bas, Édouard, Colin, la colo : Alexandre, Louise, et une mention spéciale à Jérem, qui s'est coltiné ma première version (imbuvable) de soutenance pendant 1h30 sans piquer du nez. J'embrasse ma sœur Laura, et mon frère Benjamin, et je remercie infiniment, pour tout, mon Père et ma Mère. Ce travail leur est dédié.

Table des matières

Remerciements	3
Table des matières	7
Introduction	9
1 Outils théoriques et numériques	19
Objectifs	19
1.1 Équations de propagation en régime d'impulsion brève	20
1.1.1 Équation d'onde et hypothèses simplificatrices	20
1.1.2 Importance de la phase non linéaire	25
1.2 Quelques éléments de calcul numérique	26
1.2.1 Description et justification du choix du schéma numérique utilisé pour les calculs	26
1.2.2 Validation du code sur quelques exemples et discussion sur le rôle de la saturation	32
1.2.3 Comparaison de l'efficacité du schéma numérique par différences finies, et du split-step	36
1.3 Modélisation de la fluorescence paramétrique	42
Synthèse	47
2 Sources OPO à pompage synchrone et analyse numérique de la synchronisa- tion	49
Objectifs	50
2.1 Sources paramétriques picosecondes dans l'infrarouge moyen	51
2.1.1 Génération paramétrique dans PPLN	51
2.1.2 Pompage synchrone	54
2.1.3 SP-OPO PPLN sans réseau	56
2.1.4 SP-OPO PPLN avec réseau	63

2.1.5	SP-OPO ZGP	70
2.2	Analyse numérique de la saturation et de la désynchronisation en pompage syn- chrone	75
2.2.1	Simulation numérique du pompage synchrone	76
2.2.2	SP-OPO large bande fortement saturé	77
2.2.3	SP-OPO faiblement saturé et effet de filtrage par un réseau	87
	Synthèse	97
3	Miroir non linéaire pour la production d'impulsions brèves dans l'infrarouge moyen	99
	Objectifs	100
3.1	Contexte	101
3.2	Laser ZnSe:Cr ²⁺ en CW	105
3.2.1	Effet de lentille thermique dans ZnSe:Cr ²⁺	106
3.2.2	Comparaison des performances laser de différents cristaux	118
3.2.3	Caractérisations complémentaires du cristal Pi1	123
3.2.4	Synthèse	129
3.3	Le MNL d'ordre 2 dans l'infrarouge moyen : Généralités	130
3.4	Modélisation et dimensionnement d'une expérience de démonstration sur ZnSe:Cr ²⁺	132
3.4.1	Réflexivité non linéaire en régime picoseconde	132
3.4.2	Modélisation du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr ²⁺ par miroir non linéaire	135
3.5	Caractérisation expérimentale du miroir non linéaire en régime picoseconde . . .	142
3.5.1	Dimensionnement du miroir non linéaire	142
3.5.2	Expériences de caractérisation du miroir non linéaire	146
3.6	Expériences de verrouillage de modes	152
3.6.1	Accord de phase et rendement de doublage	152
3.6.2	Propriétés du verrouillage de modes	156
	Synthèse	164
4	Miroir non linéaire généralisé	167
	Objectifs	168
4.1	Influence des paramètres du miroir non linéaire sur la dynamique du laser ZnSe:Cr ²⁺ - Approche expérimentale	169
4.1.1	Influence du désaccord de phase et du déphasage au retour sur le ver- rouillage de modes	169
4.1.2	Régime déclenché	171

4.2	Différents modes de fonctionnement du miroir non linéaire	173
4.2.1	Le miroir non linéaire en tant que modulateur d'amplitude	174
4.2.2	Modulation de phase par non-linéarités en cascade dans un cristal doubleur	181
4.2.3	Le miroir non linéaire en tant que modulateur de phase	183
4.3	Miroir non linéaire généralisé - Bilan	187
4.3.1	Étude bibliographique	187
4.3.2	Interprétation des observations expérimentales sur le laser ZnSe:Cr ²⁺ . .	190
	Synthèse	197
Conclusion		199
A Matrices ABCD		203
	Objectifs	203
B Verrouillage de modes par effet Kerr.		205
	Objectifs	205
B.1	Origine de l'effet lentille de Kerr	206
B.2	Puissance critique d'auto-focalisation	208
B.3	Verrouillage de modes passif par effet Kerr (Kerr Lens Mode-locking ou KLM) .	209
C Laser en incidence normale		213
D Ombroscopie		215
E Procédures d'alignement		219
F Détection en régime de comptage de photons dans l'infrarouge par détection à deux photons non-dégénérée dans l'arsenure de gallium (article)		221
Bibliographie		225

Introduction

Sources laser picosecondes émettant dans l'infrarouge moyen - Contexte et problématique.

Ces dernières décennies, le développement des sources laser émettant dans l'infrarouge moyen a connu une forte progression grâce à l'intérêt suscité par les applications de spectroscopie, de diagnostics environnementaux (détection de polluants, relevés topographiques, analyses atmosphériques), de télécommunication en espace libre, et de défense. L'infrarouge moyen¹ présente un intérêt majeur pour deux raisons particulières : il contient plusieurs fenêtres de transmission de l'atmosphère comme le montre la Fig. 1, et il correspond à une région du spectre électro-magnétique contenant les raies d'absorption rovibrationnelles d'un grand nombre de molécules². Par exemple, pour les applications de spectroscopie, chaque molécule est réceptive à un ensemble de longueurs d'onde dans un domaine spectral donné de l'infrarouge. La détection et la discriminations des espèces par le biais d'une unique source laser implique donc, d'une part que celle-ci émette dans l'infrarouge moyen, et d'autre part qu'elle soit largement accordable en longueur d'onde.

À l'Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales (ONERA), les concepts d'analyse à distance, de diagnostic à forte résolution spatiale, spectrale ou temporelle sont mis en œuvre dans nombre de systèmes pour des applications d'analyse de gaz [Ber08, Ray09, Ber10a], de défense (contre-mesure [God10]), de télécommunications [Bon10]. Ces activités entraînent des besoins croissants en sources optiques infrarouges, de puissance et de durées d'impulsion variées, qui ont récemment amené l'équipe SLM (Sources Laser et Métrologie) à s'orienter vers les sources impulsives en régime picoseconde.

Les sources à modes verrouillés en régime picoseconde fournissent des impulsions laser à des cadences très élevées, de l'ordre de 100 MHz, et de forte intensité crête, jusqu'à plusieurs centaines de MW/cm², généralement inaccessibles en régime nanoseconde, et particulièrement

1. La définition des frontières délimitant l'infrarouge moyen peut varier selon les branches de la physique. Dans le domaine des sources laser, on considère généralement les longueurs d'onde situées entre $\lambda \sim 2 \mu\text{m}$ et $\lambda \sim 30 \mu\text{m}$.

2. Ces raies d'absorption forment la signature spectrale permettant de détecter ces molécules. L'infrarouge moyen est, de ce fait, communément désigné par l'anglicisme "fingerprint region".

adaptées à des expériences de spectroscopie résolues en temps, qui nécessitent une acquisition rapide du signal [Saa09]. De plus, la possibilité d'obtenir des impulsions dont le spectre est limité par leur transformée de Fourier en font un outil de choix pour les applications nécessitant une certaine finesse spectrale généralement inaccessible en régime femtoseconde [Bar09, Gra96].

C'est dans ce contexte de développement de sources picoseconde accordables dans l'infrarouge moyen que s'est déroulé ce travail de thèse.

Quelques repères

La Fig. 1 donne un aperçu des systèmes et des matériaux laser existant dans le domaine de l'infrarouge moyen, ainsi que la manière dont ces différentes technologies se positionnent les unes par rapport aux autres. L'ensemble des technologies aujourd'hui disponibles permettent de couvrir un très large spectre. Néanmoins, selon les gammes de spectre, de puissance, et de durée d'impulsion recherchées, la maturité et la disponibilité des sources sont variables.

- Les diodes laser à base de puits quantiques uniques (QWLD), et les lasers à cascade quantique (QCL) ont connu une importante progression technologique ces dernières décennies grâce aux efforts de recherche considérables investis dans le domaine des semi-conducteurs. Avec les QWLD, il est possible d'obtenir des émissions jusqu'à plusieurs centaines de milliwatts, mais une accordabilité relativement faible sur quelques dizaines de nanomètres. Les QCLs permettent d'atteindre des puissances moyennes en continu allant jusqu'à quelques watts [Raz09], et les configurations de couplage par cavité externe permettent de larges accordabilités jusqu'à quelques centaines de cm^{-1} [Mau09]. Néanmoins, le fonctionnement à température ambiante reste problématique, et le régime d'impulsions brèves est encore peu exploré [Wan09a].
- Les sources lasers solide ont connu une forte progression depuis une quinzaine d'années grâce au développement de matériaux large bande de type chalcogénures (ZnSe ou CdSe) dopés aux métaux de transition (Chrome, Cobalt, Fer) [DeL96], qui offrent une alternative aux matériaux à base de terres rares (Erbium, Holmium, et Thulium) dont l'accordabilité est plus limitée. D'une manière générale, hormis les lasers à gaz (CO et CO_2) ou Raman [Wya81], les solutions laser au delà de $\lambda = 3 \mu\text{m}$ sont quasiment inexistantes (les développements expérimentaux de sources à base de ZnSe:Fe^{2+} étant très récents [Mir10]). Cependant, si les sources lasers ne peuvent fournir de solution directe dans les régions plus profondes de l'infrarouge, elles peuvent y contribuer indirectement par le biais de systèmes de conversion de fréquence, et l'existence de milieux laser très large bande, tels que le ZnSe:Cr^{2+} dont le spectre d'émission s'étend entre $2 \mu\text{m}$ et $3 \mu\text{m}$, est extrêmement profitable à la fois en termes d'accordabilité, et de génération d'impulsions brèves par verrouillage de modes.

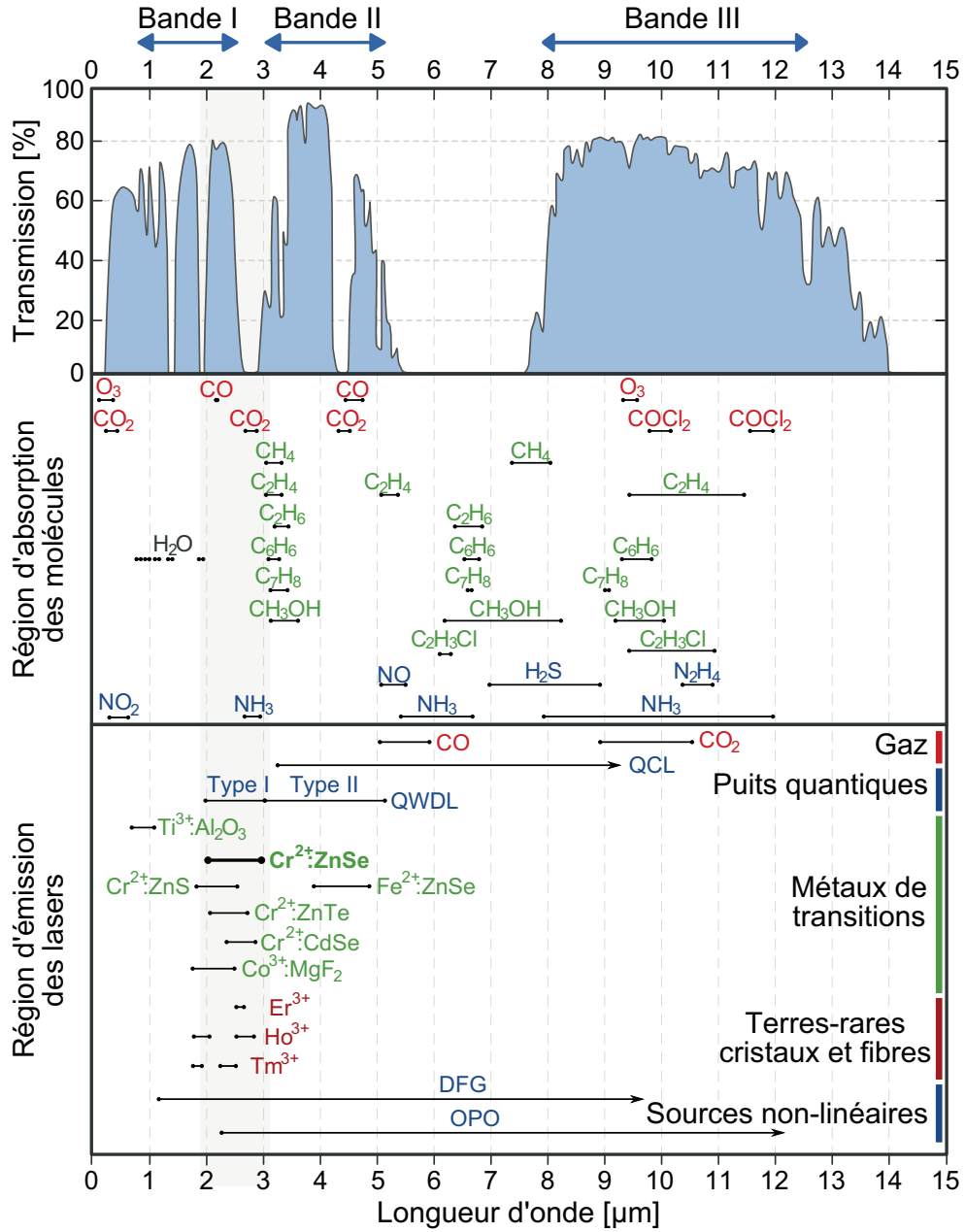


FIGURE 1: Spectre de transmission de l'atmosphère, spectre d'absorption d'un certain nombre de molécules, et couverture spectrale des sources laser existantes. Tableau issu de [Jae09], d'après [Rab99, Tit03].

- Enfin, les sources paramétriques, reposant sur la conversion de fréquence dans les cristaux non linéaires, permettent de couvrir un très large spectre. Les principales techniques permettant d’accéder aux grandes longueurs d’onde de l’infrarouge moyen sont la génération de différence de fréquences (DFG), et l’oscillation paramétrique optique (OPO), il s’agit de techniques dites de “down-conversion”, puisqu’elles consistent à générer des fréquences optiques plus basses que la (ou les) fréquence(s) en entrée de système. Le dispositif issu de l’optique non linéaire qui est probablement le plus polyvalent est l’oscillateur paramétrique optique. Le principal attrait des processus paramétriques réside dans le fait que la génération de nouvelles fréquences ne repose pas sur des résonances atomiques, ce qui permet de réaliser des dispositifs très largement accordables en longueur d’onde [Vod03]. Il est en outre possible de couvrir de très larges gammes de puissance et de durées d’impulsion, de quelques mW au régime multiwatt, et du continu au régime femtoseconde. Néanmoins, les performances des dispositifs de conversion de fréquence, notamment en termes de puissance, de qualité de faisceau, de durée d’impulsion, voire d’accordabilité ou de durée de vie, dépendent très fortement des performances des sources primaires de pompage.

Actuellement, les problématiques d’impulsions ultrabrèves et de large accordabilité concernent principalement les sources lasers et les sources paramétriques. En effet, si les sources lasers à base de semi-conducteurs permettent d’obtenir de larges accordabilités dans l’infrarouge moyen [Mau09, Wit06], la génération d’impulsions brèves à haute cadence reste limitée aux sources en cavité large bande et susceptibles d’être verrouillées en phase, ce qui implique l’existence d’une technique de modulation en amplitude ou en phase de l’onde laser.

Sources laser

Initialement, les lasers à modes verrouillés en phase émettant dans l’infrarouge moyen à température ambiante ont essentiellement été mis en œuvre à partir de cristaux dopés terres rares tels que le Thulium et l’Holmium [Hei92], ou l’Erbium [Vod91]. Pour ces sources laser, le verrouillage de modes actif par acousto-optique [Hei92], ou système électro-optique [PeI94] ont tout d’abord permis d’atteindre le régime picoseconde, puis les méthodes passives, principalement par le biais d’absorbants saturables³ [Sha96, Lag10, Vod91], ont permis le régime sub-picoseconde. Ces ions ont en outre l’avantage de pouvoir être incorporés comme dopant dans les matériaux utilisés dans la fabrication des fibres optiques tels que la silice, ce qui autorise la réalisation de sources laser fibrées de forte puissance moyenne en continu: [Sha96, Wan09b, Sol08]. Aujourd’hui la technologie fibrée associée à l’ion Thulium atteint une maturité telle qu’il est dé-

3. Généralement l’absorption saturée est obtenue par des composants à base de semi-conducteurs structurés en puits quantiques. Quelques travaux font état de sources lasers à modes verrouillés à partir de nanotubes de carbone [Sol08].

sormais possible de réaliser des sources continues de plusieurs dizaines de watts et accordables sur plusieurs dizaines de nanomètres autour de 2 μm [McC10].

Cependant, lorsqu'il s'agit d'accordabilité et de génération d'impulsions brèves, il est judicieux de donner la priorité aux nouvelles classes de matériaux dopés aux ions Chrome initialement proposées dans le milieu des années 1990 par le laboratoire Lawrence Livermore [DeL96]. Parmi ces matériaux, le ZnSe dopé Cr^{2+} a fait l'objet d'une attention toute particulière du fait de son très large spectre d'émission autour de 2.5 μm . Ce type de laser solide a tout d'abord permis de générer de fortes puissances moyennes dans l'infrarouge moyen, et dispose de très larges plages d'accordabilité sur plus de 1000 nm entre 2 μm et 3 μm [Wag99]. Outre la possibilité d'obtenir de larges accordabilités dans l'infrarouge moyen, les propriétés spectroscopique du ZnSe: Cr^{2+} présentent de nombreux avantages pratiques tels qu'une faible absorption à l'état excité, et un faible taux de désexcitations non radiatives⁴ à température ambiante. Actuellement, un important effort de recherche est consenti dans le développement de systèmes laser compacts ou à bas coût tels que le pompage électrique de micro-plaquettes de ZnSe: Cr^{2+} [Jae09], la réalisation de laser à partir de céramiques du ZnSe: Cr^{2+} [Mir10], le pompage par diodes [Mon02], ou encore plus récemment l'utilisation de guides d'ondes plans à base de ZnSe: Cr^{2+} [Wil10].

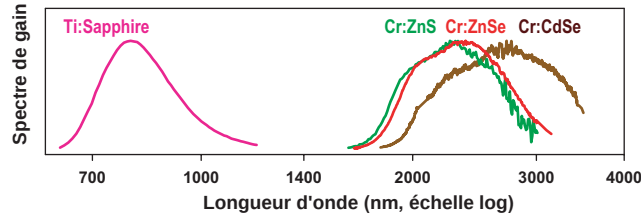


FIGURE 2: Spectres de gain de quelques lasers infrarouges large bande à base de Chrome comparés à celui du Saphir:Ti. D'après [Sor04]

Le très large spectre d'émission du ZnSe: Cr^{2+} en fait également un candidat idéal pour la génération d'impulsions ultrabrèves par verrouillage de modes⁵. En outre, pour la génération d'impulsions courtes, le ZnSe: Cr^{2+} présente l'avantage de posséder une forte non-linéarité d'ordre 3 ce qui permet d'envisager le verrouillage de modes par effet Kerr optique [Ciz09]. Ces propriétés assez exceptionnelles ont amené le ZnSe: Cr^{2+} à être largement décrit dans la littérature comme l'équivalent du Saphir:Ti de l'infrarouge moyen [Sor04, Sor05]. Les propriétés de ces deux matériaux sont en effet comparables à bien des égards. En particulier, ces deux types de cristaux possèdent une bande de gain relative équivalente $\Delta\lambda/\lambda_0 \sim \Delta\nu/\nu_0$ qui vaut $\sim 0,3$ pour le Saphir:Ti (à $\lambda_0 = 780$ nm), et $\sim 0,37$ pour le ZnSe: Cr^{2+} (à $\lambda_0 = 2450$ nm). La Fig. 2 donne un aperçu comparatif des bandes de gain de divers composés laser à base de Chrome.

4. L'énergie des phonons étant très faible de l'ordre de 31 meV [Jae09]

5. Nous renvoyons le lecteur au Chap. 3.1 pour une bibliographie plus détaillée des laser ZnSe: Cr^{2+} à modes verrouillés en phase.

Une large gamme de puissance, de durée d'impulsion et de longueur d'onde d'émission est donc couverte par les différents matériaux laser solide de l'infrarouge moyen.

Sources OPO

Grâce à l'optique non linéaire, il est possible d'étendre la gamme spectrale couverte, et d'accéder à des accordabilités supérieures à la plupart des sources laser. Le développement des sources OPO d'impulsions ultrabrèves en régime picoseconde ou femtoseconde dans l'infrarouge moyen s'est fait conjointement avec la généralisation et la fiabilisation des sources lasers de pompe verrouillées en phase et le développement de matériaux non linéaires efficaces. Parmi ces matériaux, une percée technologique majeure a été réalisée à partir de l'avènement des matériaux micro-structurés à domaines ferro-électriques périodiquement retournés tels que le PPLN (Periodically Poled Niobate Lithium) et des premières sources OPOs associées [Mye95].

Le régime impulsionnel picoseconde est particulièrement intéressant pour les sources OPOs à cause des très fortes intensités crêtes accessibles, qui donnent lieu à des gains paramétriques élevés. Les impulsions ultrabrèves permettent en outre de combiner ces hautes intensités crêtes avec de faibles énergies par impulsion ce qui autorise une tolérance au dommage optique supérieure, au régime nanoseconde notamment, dans les matériaux non linéaires.

À ce jour, une grande variété de cristaux a été utilisée dans des dispositifs OPO à pompage synchrone pour la génération d'impulsions picosecondes largement accordables dans l'infrarouge moyen. La plupart des meilleures performances, notamment en termes de puissance et d'accordabilité, ont été obtenues à partir de cristaux à base d'oxydes, périodiquement retournés ou non, tels que le KTiOPO_4 ou le LiNbO_3 comme le montre la Fig. 3.

Concernant les performances en puissance, le fort coefficient non linéaire du PPLN ($d_{\text{eff}} = 16 \text{ pm/V}$) permet d'atteindre le régime multiwatts et des efficacités de conversion supérieures à 60 % [Kok10]. Il est également possible de réaliser des OPO synchrones picoseconde accordables émettant des impulsions limitées spectralement par transformée de Fourier : pour le PPLN [Bhu09, Han01] ou pour le PPLT [Rya08], particulièrement adaptés aux applications de spectroscopie. Quant aux plages d'accordabilité, le fort gain paramétrique accessible en régime picoseconde a permis de pousser l'accordabilité au delà de $6 \mu\text{m}$ pour le PPLN⁶ [Lef98, Wat02], et jusqu'à près de $5 \mu\text{m}$ pour le PPRTA⁷ [Ken98]. Néanmoins les matériaux à base d'oxydes ont une transparence généralement déclinante au delà de $\lambda \sim 4,5 \mu\text{m}$ (voir Fig. 3). Pour atteindre des zones spectrales plus profondes dans l'infrarouge moyen, il devient nécessaire de recourir à des matériaux plus exotiques à base de semi-conducteurs. Par exemple, l'Arsenure de Gallium,

6. La transparence du Niobate de Lithium chute néanmoins de manière significative à partir de $4,5 \mu\text{m}$. L'accordabilité au-delà de cette limite se fait donc au prix d'une forte absorption de l'onde complémentaire, ce qui limite a priori l'intérêt d'une telle extension du domaine d'accordabilité.

7. Même remarque.

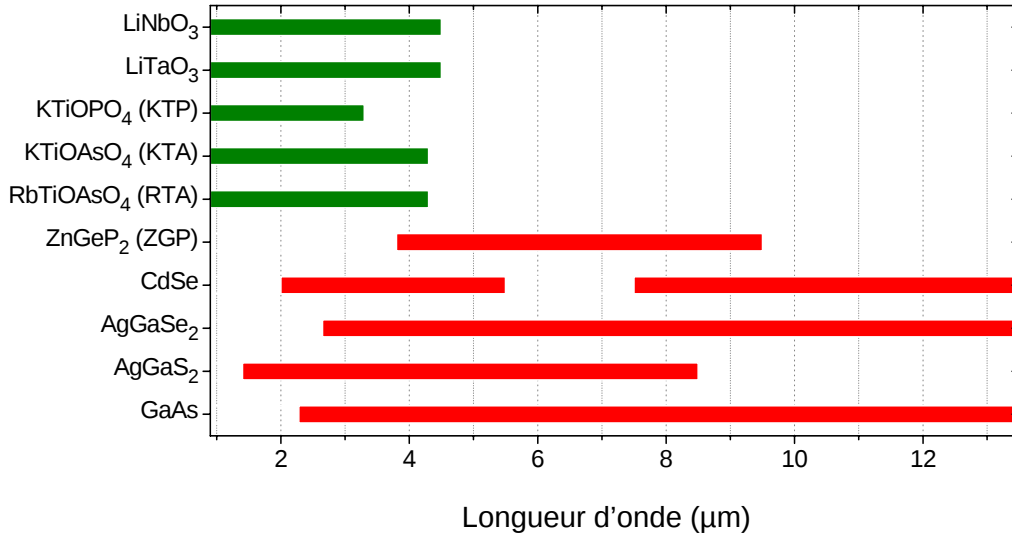


FIGURE 3: couverture spectrale des sources paramétriques. Cristaux à base d'oxydes en vert, et cristaux à base de semi-conducteurs en rouge.

dont les développements récents, notamment dans le domaine de la croissance de GaAs périodiquement retourné, font l'objet d'une recherche intense pour la mise en œuvre de nouvelles sources laser infrarouge [Blo10]. Dans le domaine des OPOs picosecondes, la plupart des sources développées à ce jour reposent sur des cristaux de type chalcopyrite tels que l'AgGaS₂ ou le CdSiP₂ qui ont l'avantage de pouvoir être pompés par des sources conventionnelles à 1 μm. Historiquement, les sources synchrones picosecondes émettant au-delà de 4,5 μm ont été mises en œuvre à partir de l'AgGaS₂, l'un des premiers cristaux non linéaires susceptibles de couvrir le spectre infrarouge au-delà de cette limite [Che94, McE98]. Plus récemment des impulsions de 12,6 ps cadencées à 100 MHz ont été mesurées en sortie d'un OPO synchrone CdSiP₂ émettant autour de 6,4 μm [Per09]. Certains matériaux non linéaires présentent une absorptions trop élevée aux basses longueurs d'onde pour pouvoir être directement pompés par un laser à 1 μm. Cette situation implique l'utilisation d'un laser de pompe à modes verrouillés émettant dans l'infrarouge moyen au-delà de 2 μm, mais les solutions sont rares. Une autre possibilité consiste à adopter une configuration où deux OPOs synchrones sont utilisés en tandem, l'un émettant autour de 2 μm utilisé comme source de pompage pour le second. Ce type de configuration a notamment été mise en œuvre pour le pompage synchrone en régime picoseconde du CdSe [Wat03], ou encore, en régime sub-picoseconde, pour le pompage d'un cristal de CsTiOAsO₄ [Mar00]. Enfin, l'OPGaAs (Oriented pattern GaAs) n'a pas été utilisé directement en pompage synchrone, mais a permis de générer des impulsions dans le domaine térahertz dans une expérience de différence de fréquences en intracavité d'un OPO PPLN à pompage synchrone en régime picoseconde [Sch07].

Les matériaux non linéaires permettent donc d'envisager le développement de sources d'im-

pulsions ultra brèves sur de très larges gammes spectrales dont les limites sont principalement définies par les zones de transparence des matériaux.

Objectifs de la thèse

Au cours de ces dernières décennies de très grands progrès ont donc été faits dans le domaine des sources laser solide infrarouge à modes verrouillés en phase grâce aux potentialités des matériaux lasers et non linéaires. Il nous semble néanmoins que ce potentiel est encore sous exploité. Par exemple, les systèmes lasers susceptibles de combiner accordabilité, finesse spectrale, et impulsions courtes picosecondes sont rares voire inexistants; à plus forte raison lorsqu'il s'agit de pompage continu et de méthodes passives de verrouillage de modes. En effet, pour les milieux laser, parmi les méthodes passives les plus courantes, les absorbants saturables à base de semi-conducteurs sont en général optimisés pour une longueur d'onde précise dans le spectre de gain du laser; les sources associées ne sont donc pas accordables. Le verrouillage de modes par lentille de Kerr est quant à lui adapté au régime d'impulsions femtosecondes à spectre très large. Dans le domaine des sources paramétriques infrarouges, de nombreuses configurations et/ou matériaux sont encore peu explorés voire inexplorés pour la génération d'impulsions courtes. À titre d'exemple, des matériaux adaptés aux grandes longueurs d'onde de l'infrarouge moyen tels que le GaAs ou le ZnGeP₂ n'ont encore que rarement été utilisés pour des sources picosecondes. Enfin, avec la progression des matériaux pour l'infrarouge moyen, des méthodes originales issues de l'optique non linéaire et développées dans le proche infrarouge telles que le verrouillage de modes dans les OPOs [Mel07], l'interaction entre un laser impulsional et un OPO synchrone intracavité [Vel10], ou plus généralement l'interaction entre un milieu laser et un milieu non linéaire [Sta89a], sont désormais envisageables dans des domaines spectraux plus éloignés.

Ce travail de thèse vise à s'inscrire dans ce mouvement d'élargissement du champ des sources d'impulsions picosecondes émettant dans l'infrarouge moyen. L'objectif est double: proposer des solutions originales dans des domaines spectraux où il existe peu d'alternatives, et contribuer à une meilleure compréhension des mécanismes de génération d'impulsions dans ces systèmes laser. Pour cela, nous avons mis à profit les propriétés des processus non linéaires, telles que l'accordabilité, l'instantanéité et la réversibilité de la conversion, à travers l'étude et le développement de sources d'impulsions courtes purement paramétriques (OPOs picosecondes), et d'une source laser ZnSe:Cr²⁺ à modes verrouillés en phase en régime picoseconde par un dispositif de miroir non linéaire accordable.

Méthodologie

Pour répondre aux objectifs de la thèse, il a d'abord fallu se doter d'outils numériques adaptés à la description et à la compréhension des processus non linéaires en régime d'impulsions brèves. Dans le Chap. 1, le cadre théorique et l'écriture des équations de propagation dans un cristal non linéaire en régime picoseconde est tout d'abord rappelé, en mettant l'accent sur les notions de vitesse de groupe et de dispersion des vitesses de groupe des ondes optiques. Puis, dans un second temps, le traitement numérique de ces équations est abordé en comparant, au travers d'exemples issus de la littérature, différentes méthodes de calcul; l'objectif étant de justifier le choix du schéma numérique que nous avons ensuite utilisé tout au long de ce manuscrit. Ce chapitre est également l'occasion d'introduire et d'illustrer les problèmes numériques posés par le calcul de signaux à spectre large et variable avec un exemple de calcul de génération paramétrique. Enfin, à travers les exemples traités numériquement, l'importance de la phase non linéaire dans la construction d'impulsions courtes par un processus non linéaire sera soulignée.

Au Chap. 2, l'instantanéité et l'accordabilité des processus non linéaires est directement mise en œuvre à travers l'étude du verrouillage en phase des modes longitudinaux d'un OPO par la technique du pompage synchrone. Pour cela, nous avons tout d'abord réalisé un OPO picoseconde à pompage synchrone basé sur un cristal de PPLN largement accordable autour de 2 μm , en adoptant différentes architectures. Les propriétés remarquables de ces différentes configurations sont étudiées à la fois expérimentalement et numériquement, l'objectif étant de donner quelques clés pour une meilleure compréhension du façonnage spectro-temporel des ondes émises par une telle source. Cet OPO PPLN a ensuite été utilisé en tant que source de pompage d'une source OPO picoseconde largement accordable dans l'infrarouge moyen originale basée sur un cristal non linéaire de ZnGeP_2 (ZGP). Les résultats expérimentaux de ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans Optics Letters [Dhe10].

Le Chap. 3 est consacré à l'étude du verrouillage en phase des modes d'une source laser $\text{ZnSe}:\text{Cr}^{2+}$ par une technique mettant en œuvre trois spécificités des processus non linéaire : l'accordabilité, la réversibilité, et l'instantanéité : un miroir non linéaire accordable en longueur d'onde. Cette partie s'inscrit dans le prolongement direct des premiers travaux réalisés sur l'interaction entre un milieu laser et un cristal doubleur intracavité dans l'infrarouge moyen réalisés à l'ONERA [Mel07]. L'objectif général de cette partie a été d'étendre le concept de verrouillage de modes par miroir non linéaire, initialement proposé par Stankov à la fin des années 1980 [Sta88b], en l'appliquant à une source laser originale de l'infrarouge moyen: le $\text{ZnSe}:\text{Cr}^{2+}$. Une part importante du travail a consisté en l'étude de ce laser en continu, puis en la définition et la caractérisation d'une architecture du miroir non linéaire qui soit adaptée à l'infrarouge moyen. Ces étapes préalables se sont révélées déterminantes dans la réalisation et la compréhension du montage final. La fin du chapitre est consacrée à la démonstration et à la

caractérisation expérimentale du laser à modes verrouillés.

Enfin, l'étude expérimentale du laser ZnSe:Cr^{2+} impulsionnel nous a amené à approfondir les mécanismes mis en jeu dans le miroir non linéaire en nous appuyant sur une modélisation des effets de reconversion et de décalage de phase dans le cristal doubleur. Couplée aux interprétations relevées dans la littérature, cette étude permet de généraliser le concept de verrouillage de modes par miroir non linéaire, constituant ainsi une mise en perspective des travaux du Chap. 3. Cette analyse du miroir non linéaire généralisé fait l'objet du quatrième et dernier chapitre.

Chapitre 1

Outils théoriques et numériques

Objectifs

Le but de ce chapitre est de faire un rappel de la théorie de la propagation d'une impulsion ultrabrève constituée de trois composantes fréquentielles à spectre large dans un milieu non linéaire dispersif, et de mettre en valeur les spécificités des processus non linéaires qui seront rencontrées tout au long de ce mémoire. Nous soulignerons la nécessité, en régime picoseconde, d'un traitement quasi-stationnaire des équations prenant en compte la vitesse de groupe de chacune des impulsions. Nous insisterons sur les effets de saturation en intensité ainsi que sur la réversibilité du processus non linéaire en introduisant la phase non linéaire. Celle-ci jouera un rôle essentiel au Chap. 3 dans le cadre du développement d'une source laser à modes verrouillés en phase par miroir non linéaire, ainsi que dans le Chap. 2 dans le cadre du façonnage des impulsions émises par un OPO synchrone. La prise en compte du caractère non stationnaire des ondes lors de leur propagation dans un cristal non linéaire nécessite une résolution numérique des équations couplées. Dans ce chapitre, nous exposerons deux méthodes de calcul de l'interaction non linéaire en régime d'impulsions brèves, que nous illustrerons par quelques exemples de simulations. Puis nous évaluerons l'efficacité relative de ces méthodes en termes de temps de calcul. Enfin, nous expliciterons nos choix numériques pour la modélisation du bruit de photons servant à l'initialisation des calculs de génération paramétrique et d'OPO.

1.1 Équations de propagation en régime d'impulsion brève

Le modèle macroscopique fondamental de l'optique non linéaire a été établi par Armstrong et al. [Arm62a], et modifié ultérieurement pour prendre en compte des phénomènes supplémentaires (walk-off spatial, focalisation ...). La prise en compte de la dispersion à des ordres supérieurs est venue ensuite avec les développements expérimentaux des premiers lasers picosecondes à modes verrouillés en phase [Akh68]. Avant de proposer une méthode de résolution des équations de propagation en tenant compte de la dispersion du milieu, nous rappelons ici les conditions d'obtention de ces équations et les principales hypothèses simplifiant leur écriture dans le domaine des impulsions brèves.

1.1.1 Équation d'onde et hypothèses simplificatrices

Équation de propagation

Dans l'approximation des ondes planes, et en négligeant les effets d'anisotropie ou de polarisation (champs scalaires, susceptibilités scalaires, et interaction colinéaire), l'équation de propagation d'une onde dans un milieu non linéaire d'ordre 2 s'écrit à partir des équations de Maxwell :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{(2)}}{\partial t^2}, \quad (1.1)$$

où $E(z, t)$ est le champ électrique (en V/m), $P^{(1)}(z, t)$ la polarisation linéaire, et $P^{(2)}(z, t)$ la polarisation non linéaire d'ordre 2, c est la vitesse de la lumière dans le vide et ε_0 la permittivité électrique dans le vide.

Le champ électrique total comporte de nombreuses composantes spectrales couplées entre elles par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire. Pour étudier séparément la propagation de chacune de ces composantes, il est commode de décrire le champ électrique et la polarisation en effectuant une décomposition de Fourier. Dans l'espace de Fourier, pour une interaction non linéaire à 3 ondes dont les pulsations sont ω_i , avec $i = 1, 2, 3$, l'équation de propagation Éq. 1.1 s'écrit sous la forme d'un système de trois équations de la forme :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}(z, \omega_i)}{\partial z^2} + \frac{\omega_i^2}{c^2} \tilde{E}(z, \omega_i) + \frac{\omega_i^2}{\varepsilon_0 c^2} \tilde{P}^{(1)}(z, \omega_i) = -\frac{\omega_i^2}{\varepsilon_0 c^2} \tilde{P}^{(2)}(z, \omega_i) \quad (1.2)$$

dans lequel $\tilde{E}(z, \omega_i)$, $\tilde{P}^{(1)}(z, \omega_i)$, $\tilde{P}^{(2)}(z, \omega_i)$ sont les composantes de Fourier de $E(z, t)$, $P^{(1)}(z, t)$, et $P^{(2)}(z, t)$ respectivement.

Les trois composantes de la polarisation linéaire sont reliées aux composantes du champ électrique par :

$$\tilde{P}^{(1)}(z, \omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_1) \tilde{E}(z, \omega_1) \quad (1.3)$$

$$\tilde{P}^{(1)}(z, \omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_2) \tilde{E}(z, \omega_2) \quad (1.4)$$

$$\tilde{P}^{(1)}(z, \omega_3) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_3) \tilde{E}(z, \omega_3). \quad (1.5)$$

Les trois équations sont couplées par les composantes de la polarisation non linéaire $\tilde{P}^{(2)}(z, \omega_i)$ qui s'écrivent [Bou06] :

$$\tilde{P}^{(2)}(z, \omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \tilde{E}(z, \omega_3) \otimes \tilde{E}(z, -\omega_2) \quad (1.6)$$

$$\tilde{P}^{(2)}(z, \omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \tilde{E}(z, \omega_3) \otimes \tilde{E}(z, -\omega_1) \quad (1.7)$$

$$\tilde{P}^{(2)}(z, \omega_3) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \tilde{E}(z, \omega_1) \otimes \tilde{E}(z, \omega_2) \quad (1.8)$$

L'indice de réfraction n est donné par $n^2(\omega_i) = 1 + \chi^{(1)}(\omega_i)$, et le vecteur d'onde par $k(\omega_i) = n(\omega_i) \omega_i / c$, avec $i = 1, 2, 3$, si bien que le système d'équations couplées devient :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}(z, \omega_i)}{\partial z^2} + k^2(\omega_i) \tilde{E}(z, \omega_i) = -\frac{\omega_i^2}{\varepsilon_0 c^2} \tilde{P}^{(2)}(z, \omega_i) \quad (1.9)$$

Le membre de gauche de (1.9) décrit la propagation d'une onde plane dans un milieu d'indice $n(\omega)$ tandis que le membre de droite est un terme source non linéaire. La dispersion du milieu dans lequel l'onde lumineuse se propage est contenue dans les termes de polarisation.

Le contexte de notre étude étant celui des impulsions lumineuses brèves ou à spectre large, les champs électriques qui nous intéressent ne sont pas monochromatiques et présentent une certaine extension spectrale $\Delta\omega = \omega - \omega_0$, définie par la largeur de la transformée de Fourier du carré du champ électrique de l'impulsion lumineuse, où ω_0 est la pulsation centrale du champ électrique. Pour tenir compte de l'effet de cette extension spectrale sur la propagation et la conversion non linéaire, il est nécessaire de prendre en compte la dispersion du matériau, c'est-à-dire la dispersion de la polarisation. Nous nous plaçons dans le cas où seule la dispersion de la polarisation linéaire $P^{(1)}$ est prise en compte, ce qui revient à négliger la dispersion du membre de droite dans l'équation 1.9.

Notation complexe et hypothèse de l'enveloppe lentement variable

Afin de simplifier l'écriture de l'équation de propagation dans le milieu non linéaire d'ordre 2, la notation complexe est adoptée. La polarisation d'ordre 2 réelle s'écrit alors :

$$P^{(2)}(z,t) = \frac{1}{2}[\mathcal{P}^{(2)}(z,t) + cc]$$

où c.c désigne le complexe conjugué. Dans l'espace de Fourier on a donc :

$$\tilde{P}^{(2)}(z,\omega) = \frac{1}{2}[\tilde{\mathcal{P}}^{(2)}(z,\omega) + cc]$$

Supposons maintenant que le champ électrique dans le temps s'écrive selon la notation complexe :

$$E(z,t) = \frac{1}{2}[A(z,t)e^{-i\omega_0 t + ik(\omega_0)z} + cc] \quad (1.10)$$

Dans cette expression le champ est développé autour d'une porteuse de pulsation centrale ω_0 (terme $e^{-i\omega_0 t + ik(\omega_0)z}$), $A(z,t)$ étant l'enveloppe complexe du signal (qui contient l'information de l'extension spectrale $\Delta\omega$). La transformée de Fourier du champ électrique devient :

$$\tilde{E}(z,\omega) = \frac{1}{2}[\tilde{A}(z,\Delta\omega)e^{ik(\omega_0)z} + cc] \quad (1.11)$$

où $\Delta\omega = \omega - \omega_0$. La transformée de Fourier de l'enveloppe du champ électrique est centrée en 0, et la largeur de son module au carré donne directement la largeur spectrale de l'impulsion lumineuse autour de la pulsation ω_0 .

Afin de simplifier l'équation de propagation 1.9, on fait généralement l'hypothèse suivante :

$$\left| \frac{\partial^2 \tilde{A}}{\partial z^2} \right| \ll \left| k(\omega_0) \frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} \right|$$

Cette hypothèse, appelée approximation de l'enveloppe lentement variable, consiste à négliger les variations spatio-temporelles relatives de l'enveloppe A devant les oscillations rapides de la porteuse. Pour l'amplification paramétrique, cette approximation reste valable tant que les impulsions ne descendent pas en dessous de ~ 100 fs [Ser00, Bec82]. Dans ces conditions, en négligeant la dérivée d'ordre 2 de l'enveloppe A , la dérivée seconde du champ électrique devient :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}}{\partial z^2} = \frac{1}{2}e^{ik_0 z} (2ik_0 \cdot \frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} - k_0^2 \tilde{A}) + cc \quad (1.12)$$

où pour alléger les notations, $k_0 = k(\omega_0)$ et $\tilde{A} = \tilde{A}(z,\Delta\omega)$.

Prise en compte de la dispersion à l'ordre 2

Comme nous l'avons évoqué plus haut, la prise en compte de la dispersion s'effectue en considérant la dispersion de la polarisation linéaire du matériau tout en négligeant la dispersion de la polarisation non linéaire. Si la dispersion est uniquement contenue dans le développement

du vecteur d'onde autour de la porteuse du champ électrique, alors, en se limitant à l'ordre 2 :

$$k(\omega) \simeq k_0 + \Delta\omega \cdot k'_0 + \frac{1}{2}\Delta\omega^2 \cdot k''_0$$

Dans ces conditions :

$$k^2(\omega) \simeq k_0^2 + 2\Delta\omega \cdot k_0 k'_0 + \Delta\omega^2 \cdot k_0 k''_0 \quad (1.13)$$

où k'_0 et k''_0 sont respectivement les dérivées première et seconde du vecteur d'onde en ω_0 , la pulsation centrale du spectre.

Ainsi, en injectant 1.13 et 1.12 dans l'équation de propagation du champ électrique, il vient :

$$\frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} - ik'_0 (\omega - \omega_0) \tilde{A} - \frac{1}{2} ik''_0 (\omega - \omega_0)^2 \tilde{A}_i = \frac{i\omega^2}{2\varepsilon_0 c^2 k_0} \tilde{\mathcal{P}}^{(2)} e^{-ik_0 z} \quad (1.14)$$

Nous passons ensuite dans le domaine temporel grâce aux transformations suivantes :

$$\begin{aligned} -i(\omega - \omega_0) &\leftrightarrow \frac{\partial}{\partial t} \\ -(\omega - \omega_0)^2 &\leftrightarrow \frac{\partial^2}{\partial t^2} \\ 1 &\leftrightarrow e^{i\omega_0 t} \end{aligned} \quad (1.15)$$

Pour cela il est nécessaire de considérer que le préfacteur du membre de droite de (1.14) est constant. Cette approximation est valable tant que la largeur spectrale reste modérée et que la dispersion de la polarisation non linéaire peut être négligée, ce qui est bien le cas pour des impulsions picosecondes. (1.14) s'écrit donc dans le domaine temporel :

$$\frac{\partial A}{\partial z} + k'_0 \frac{\partial A}{\partial t} + \frac{1}{2} ik''_0 \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} = \frac{i\omega_0}{2\varepsilon_0 c n_0} \mathcal{P}^{(2)}(z, t) e^{i\omega_0 t - ik_0 z} \quad (1.16)$$

Dans cette équation, $k'_0 = 1/v_{g0}$ est l'inverse de la vitesse de groupe de l'onde à ω_0 , et $k''_0 = \beta_0$ est la dispersion de la vitesse de groupe autour de v_{g0} qui peut être exprimé directement en fonction de l'indice et de la longueur d'onde par :

$$\begin{aligned} v_{g0} &= c \left[n_0 - \lambda_0 \frac{\partial n}{\partial \lambda} \right]^{-1} \\ \beta_0 &= \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \frac{\partial n^2}{\partial \lambda^2} \end{aligned} \quad (1.17)$$

Équations non linéaires couplées dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, les composantes de la polarisation non linéaire complexe autour de chaque porteuse s'écrivent :

$$\mathcal{P}_3^{(2)} = \varepsilon_0 \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_1 A_2 e^{i(k_1+k_2)z} \cdot e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} \quad (1.18)$$

$$\mathcal{P}_2^{(2)} = \varepsilon_0 \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_1^* e^{i(k_3-k_1)z} \cdot e^{-i(\omega_3-\omega_1)t} \quad (1.19)$$

$$\mathcal{P}_1^{(2)} = \varepsilon_0 \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_2^* e^{i(k_3-k_2)z} \cdot e^{-i(\omega_3-\omega_2)t} \quad (1.20)$$

Compte tenu des équations Éq. 1.6, Éq. 1.7, Éq. 1.8, et en faisant l'approximation que le milieu est sans pertes aux longueurs d'onde considérées¹, le coefficient $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ est donné par [Bou06] :

$$\begin{aligned} \chi_{\text{eff}}^{(2)} &= \mathbf{e}_1 \cdot [\chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \mathbf{e}_3 \otimes \mathbf{e}_2] \\ &= \mathbf{e}_2 \cdot [\chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \mathbf{e}_3 \otimes \mathbf{e}_1] \\ &= \mathbf{e}_3 \cdot [\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{e}_1 \otimes \mathbf{e}_2] \end{aligned}$$

Où $\mathbf{e}_1$, $\mathbf{e}_2$, $\mathbf{e}_3$ sont les vecteurs unitaires des champs électriques des trois ondes en interaction². En combinant les expressions des composantes de la polarisation non linéaire dans l'Éq.(1.16), nous aboutissons aux équations couplées :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_3}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,3}} \frac{\partial A_3}{\partial t} + i \frac{\beta_3}{2} \frac{\partial^2 A_3}{\partial t^2} &= \frac{i\omega_3}{2cn_3} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_1 A_2 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,2}} \frac{\partial A_2}{\partial t} + i \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A_2}{\partial t^2} &= \frac{i\omega_2}{2cn_2} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_1^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{\partial A_1}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,1}} \frac{\partial A_1}{\partial t} + i \frac{\beta_1}{2} \frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} &= \frac{i\omega_1}{2cn_1} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_2^* e^{i\Delta k z} \end{aligned} \quad (1.21)$$

où le désaccord de phase $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ est évalué uniquement aux fréquences centrales. La vitesse de groupe qui intervient en facteur de la dérivée temporelle première permet d'évaluer la séparation temporelle des impulsions lumineuses. Le terme de dérivée seconde décrit les effets d'étalement et de dérive de fréquence (chirp) des impulsions au cours de la propagation, et

1. Approximation dénommée ABDP, dont le nom provient des initiales des auteurs de l'article fondateur de l'optique non linéaire [Arm62a].

2. Dans l'approximation scalaires, les trois vecteurs $\mathbf{e}_1$, $\mathbf{e}_2$, $\mathbf{e}_3$ sont confondus.

ne devient réellement significatif que pour les impulsions subpicosecondes³. La résolution de ce système d'équations couplées ne peut se faire de manière analytique, à moins de faire des hypothèses supplémentaires, par exemple le non dépeuplement de la pompe. Nous verrons dans la partie suivante les différentes méthodes de résolution numérique de ces équations couplées que nous avons développées pour les besoins de la thèse.

1.1.2 Importance de la phase non linéaire

La phase non linéaire φ_{NL} est définie à partir des arguments de l'amplitude lentement variable complexe du champ électrique :

$$A_j(z,t) = |A_j(z,t)| e^{i\varphi_j(z,t)}$$

$$\varphi_{\text{NL}} = \varphi_3 - \varphi_2 - \varphi_1$$

Cette quantité joue un rôle extrêmement important dans le mélange non linéaire à trois ondes, puisque sa valeur permet de définir le sens du transfert d'énergie entre les ondes⁴.

Plus précisément, supposons que dans le cristal non linéaire, l'accord de phase soit réalisé pour le schéma de conversion $\omega_3 \rightleftharpoons \omega_1 + \omega_2$, soit $\Delta k = 0$ dans le système d'équations couplées Éq. 1.21. Lorsque la valeur de la phase non linéaire est $-\frac{\pi}{2}$, alors le sens effectif du transfert d'énergie sera $\omega_3 \rightarrow \omega_1 + \omega_2$ (cas de la fluorescence paramétrique), tandis que si la phase non linéaire est de $+\frac{\pi}{2}$, alors le transfert effectif de l'énergie lumineuse se fera dans le sens $\omega_1 + \omega_2 \rightarrow \omega_3$ (par exemple, cas du doublage de fréquence lorsque $\omega_3 = 2\omega_1 = 2\omega_2$). Cette propriété sera explicitée plus en détail lors des exemples de calcul réalisés dans le Chap. 1.2.2.

Cette propriété joue un rôle absolument central dans l'ensemble de ce manuscrit. Nous verrons en effet que dans le cas d'un amplificateur paramétrique picoseconde (OPA ou OPO) la phase non linéaire relative des impulsions peut être modifiée au cours de leur propagation dans le cristal non linéaire en fonction de la saturation, et donner lieu à des effets de reconversions locales qui modifient considérablement le profil temporel des impulsions (Chap. 1.2.2 et Chap. 2). Nous verrons par ailleurs comment le contrôle de la phase relative des ondes permet de réaliser de nouvelles fonctions optiques modulables. Cette propriété sera mise à profit dans le Chap. 3 qui concerne l'étude et la réalisation d'un miroir non linéaire dans l'infrarouge moyen pour le

3. Nous verrons néanmoins, essentiellement dans le Chap. 2, que lors du façonnage d'impulsions picosecondes par un processus non linéaire, la forme des impulsions peut devenir complexe et faire intervenir des structures multi-impulsions dont les échelles de temps caractéristique sont de l'ordre de la centaine de femtoseconde. Dans pareille situation la prise en compte du terme de dispersion d'ordre deux est nécessaire.

4. Voir par exemple la référence [Arm62a] pour une description complète du système d'équations couplées en fonction de la phase non linéaire dans le cas où la dispersion du cristal est négligeable.

verrouillage en phase des modes d'un laser ZnSe:Cr²⁺.

1.2 Quelques éléments de calcul numérique

Dans ce chapitre nous décrivons les principales caractéristiques des schémas numériques utilisés pour calculer l'interaction non linéaire entre des impulsions ultrabrèves pour lesquelles les effets de la dispersion ne sont pas négligeables. Le principal objectif est de pouvoir résoudre les équations couplées à trois ondes (Éq. 1.21) dans un temps de calcul raisonnable. En effet pour décrire numériquement les expériences qui feront l'objet des Chap. 2 et Chap. 3, nous avons besoin de mener le calcul sur un très grand nombre de passages des ondes dans le cristal non linéaire afin de déterminer un régime permanent. Par exemple, pour le calcul du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr²⁺ par miroir non linéaire, le régime permanent atteint par le système {laser + miroir non linéaire} se fait typiquement au bout de plusieurs dizaines de milliers de tours de cavité, de sorte qu'il faut pouvoir calculer successivement autant de conversions non linéaires en résolvant le système 1.21. Le même type de problème se pose pour la simulation d'un OPO puisque le régime permanent n'est atteint qu'au bout d'un grand nombre de passages dans le cristal non linéaire. Par conséquent il est nécessaire de mettre en place un schéma numérique qui soit suffisamment efficace pour pouvoir être enchaîné plusieurs dizaines de milliers de fois en un temps raisonnable.

1.2.1 Description et justification du choix du schéma numérique utilisé pour les calculs

Écriture des équations couplées normalisées

Considérons le cas général d'une interaction non linéaire d'ordre deux entre trois ondes planes. Chaque onde est définie par sa porteuse de fréquence ω_j , son vecteur d'onde k_j , et son amplitude lentement variable A_j , où $j=1, 2, 3$ désigne le complémentaire, le signal, et la pompe respectivement. La partie réelle du champ électrique est définie par :

$$E_j(z,t) = \frac{1}{2} [A_j(z,t) e^{-i\omega_j t + ik_j z} + cc] \quad (1.22)$$

et son intensité est donnée par :

$$I_j = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_j |E_j|^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_j |A_j|^2 = \frac{n_j}{2Z_0} |A_j|^2$$

où Z_0 est l'impédance du vide. Si l'on ne tient compte que du terme dispersif d'ordre 1, à savoir la vitesse de groupe des ondes, le système d'équations s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial A_3}{\partial z} + \frac{n_{g3}}{c} \frac{\partial A_3}{\partial t} &= \frac{i\omega_3}{2cn_3} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_1 A_2 e^{-i\Delta kz} \\
 \frac{\partial A_2}{\partial z} + \frac{n_{g2}}{c} \frac{\partial A_2}{\partial t} &= \frac{i\omega_2}{2cn_2} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_1^* e^{i\Delta kz} \\
 \frac{\partial A_1}{\partial z} + \frac{n_{g1}}{c} \frac{\partial A_1}{\partial t} &= \frac{i\omega_1}{2cn_1} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A_3 A_2^* e^{i\Delta kz}
 \end{aligned} \tag{1.23}$$

où n_{gj} est l'indice de groupe de l'onde j définie par $\frac{n_{gj}}{c} = \frac{1}{v_{gj}}$. Afin de simplifier le calcul, les équations sont généralement transposées dans une fenêtre temporelle synchrone avec l'une des trois ondes. Pour que la fenêtre de calcul soit synchrone avec l'impulsion de pompe, il est nécessaire d'effectuer le changement de variable suivant: $t' = t - z/v_{g3}$. L'équation peut être simplifiée d'avantage en définissant les facteurs d'échelle suivants :

$$u_j = A_j \frac{\chi_{\text{eff}}^{(2)}}{2c} \left(\frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 n_j}{n_1 n_2 n_3 \omega_j} \right)^{1/2}$$

Dans ces conditions le système d'équation devient :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial u_3}{\partial z} &= iu_1 u_2 e^{-i\Delta kz} \\
 \frac{\partial u_2}{\partial z} + \frac{\delta n_{g2}}{c} \frac{\partial u_2}{\partial t'} &= iu_3 u_1^* e^{i\Delta kz} \\
 \frac{\partial u_1}{\partial z} + \frac{\delta n_{g1}}{c} \frac{\partial u_1}{\partial t'} &= iu_3 u_2^* e^{i\Delta kz}
 \end{aligned} \tag{1.24}$$

où $\delta n_{gj} = n_{gj} - n_{g3}$ désigne la différence des indices de groupe entre l'onde j et l'onde pompe. Sous cette forme, le nombre de paramètres indépendants est considérablement réduit, les longueurs d'onde, l'indice de refraction et la susceptibilité non linéaire effective n'entrant plus que comme facteur d'échelle des amplitudes complexes.

Les champs électriques normalisés u_j sont numériquement définis par des vecteurs de nombres complexes de taille N_{pts} (typiquement $N_{pts} \sim 1024$); sur une fenêtre temporelle de durée T_{fen} l'échantillonnage en temps est donc $\Delta T = T_{fen}/N_{pts}$. Les champs électriques sont groupés dans un vecteur U tel que :

$$U = \begin{pmatrix} u_3 \\ u_2 \\ u_1 \end{pmatrix}$$

Ainsi, le système d'équation à résoudre peut schématiquement se noter :

$$\frac{\partial U}{\partial z} + \frac{\delta n}{c} \cdot \frac{\partial U}{\partial t'} = S(U) \quad (1.25)$$

où S est la fonction qui à U associe le membre de droite de l'équation Éq. 1.24 que nous appellerons la fonction source, et δn est le vecteur des différences d'indice de groupe. $\frac{\partial U}{\partial z}$ et $\frac{\partial U}{\partial t'}$ sont les notations pour désigner les vecteurs dérivés par rapport à z , et t .

Méthode Split-step par transformée de Fourier [Ari07, Smi99]

La méthode la plus couramment utilisée pour résoudre numériquement l'équation Éq. 1.25 consiste à adopter une méthode dite par “split-step” en découpant le cristal en tranches infinitésimales de taille Δz . Sur chaque tranche, l'algorithme consiste d'abord à propager les champs sans prendre en compte le couplage non linéaire, puis à tenir compte de ce dernier sans propager les champs. Le champ électrique $U(t, z + \Delta z)$ est déterminé à partir du champ $U(t, z)$ d'abord en intégrant l'équation de propagation sans le terme source :

$$\frac{\partial U}{\partial z} + \frac{\delta n}{c} \cdot \frac{\partial U}{\partial t'} = 0 \quad (1.26)$$

qui est dans l'espace de Fourier :

$$\frac{\partial \tilde{U}}{\partial z} + i\Delta\omega \cdot \frac{\delta n}{c} \cdot \tilde{U} = 0 \quad (1.27)$$

où $\Delta\omega = \begin{pmatrix} \Delta\omega_3 \\ \Delta\omega_2 \\ \Delta\omega_1 \end{pmatrix}$ désigne l'écart en fréquence par rapport à chaque porteuse de pulsation ω_j

dans l'espace de Fourier. L'équation 1.27 montre que la propagation sur une épaisseur Δz de cristal est équivalente, dans l'espace de Fourier, à déphaser le champ électrique d'une quantité :

$$\tilde{U}(\Delta\omega, z + \Delta z) = \tilde{U}(\Delta\omega, z) \cdot \exp \left(-i\Delta z \Delta\omega \frac{\delta n}{c} \right).$$

Puis, le champ électrique est retransposé dans l'espace des temps t' afin de résoudre uniquement l'équation de mélange qui définit l'interaction non linéaire entre les composantes du champ sans le terme contenant les différences de vitesse de groupe :

$$\frac{\partial U}{\partial z} = S(U) \quad (1.28)$$

Cette équation peut être résolue numériquement avec un schéma classique Runge Kutta. Le schéma numérique associé au split-step est résumé par la Fig. 1.1.

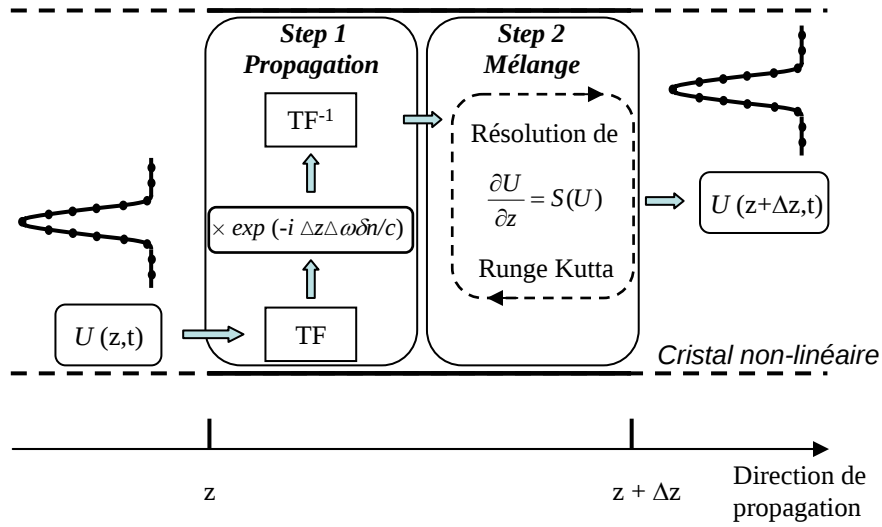


FIGURE 1.1: Schéma numérique split-step par transformée de Fourier. Le calcul du champ en $z + \Delta z$ se fait en deux étapes séparées (split-steps), d'abord le calcul de la propagation dans l'espace de Fourier, puis le calcul du mélange non linéaire par une discrétisation de type Runge Kutta.

Méthode par différences finies [Bak89]

La méthode de split-step par transformée de Fourier présente l'avantage d'être relativement accessible et simple à implémenter. Elle peut également être utilisée dans un modèle spatio-temporel qui prendrait en compte la diffraction, puisque la diffraction peut être traitée de manière similaire par simple déphasage des champs électriques en passant dans l'espace des fréquences spatiales. Nous avons donc dans un premier temps adopté ce schéma de calcul numérique pour nos simulations. Néanmoins, il présente un inconvénient du point de vue numérique : à chaque étape du split-step, les champs électriques doivent subir deux transformées de Fourier successives (voir Fig. 1.1) ce qui est coûteux en temps de calcul lorsque la haute résolution est recherchée, c'est-à-dire lorsqu'un grand nombre de Npts est considéré. Dans les exemples de calculs que nous développons dans la partie suivante, nous avons évalué les performances en temps

du schéma split-step et transformée de Fourier. Il s'est avéré que le calcul est trop long dans l'optique d'un calcul multi-passage (OPO ou verrouillage de modes d'un laser), et que la majeure partie du temps de calcul est dédiée aux calculs de transformées de Fourier (typiquement 50 % du temps de calcul total). Nous avons donc été amenés à étudier un schéma numérique ne faisant pas intervenir de va-et-vient entre l'espace des temps et l'espace de Fourier.

Dans cette méthode, les équations sont résolues directement dans l'espace des temps par une méthode dite de différences finies pour le calcul du terme de dérivée temporelle du champ électrique. Cette méthode est directement inspiré de l'approche numérique développée par Bakker [Bak89]. Dans le même esprit, le calcul pourrait être mené en résolvant l'intégralité des équations de mélange et de propagation dans l'espace de Fourier. Une telle méthode est notamment développée dans [Vel10] pour le calcul de l'interaction entre un laser et un OPO synchrone intracavité.

De manière très schématique, le principe du calcul par différences finies est le suivant : l'équation de propagation est résolue par une méthode de Runge Kutta (d'ordre variable 2, ou 4) appliquée sur la variable z de la même manière que lors de la résolution de l'équation de mélange dans la méthode par split-steps. Néanmoins, plutôt que de séparer la propagation du mélange non linéaire, la dérivée en temps est évaluée directement à chaque étape du calcul Runge Kutta par une méthode de différence finie (d'ordre variable 2, ou 4).

Symboliquement, le schéma Runge Kutta est appliqué à l'équation numérique suivante :

$$\begin{aligned}\frac{\partial U}{\partial z} &= S(U) - \frac{\delta n}{c} \cdot \frac{\partial U}{\partial t} \\ \frac{\partial U}{\partial z} &= F\left(\frac{\partial U}{\partial t}, U\right)\end{aligned}\tag{1.29}$$

La méthode de différence finie consiste à effectuer un développement en série de Taylor du vecteur U en fonction de la variable t afin d'évaluer la valeur de la dérivée $\frac{\partial U}{\partial t}$. Par exemple, à l'ordre 2, le développement en série de Taylor du vecteur U permet de construire le vecteur $\frac{\partial U}{\partial t}$ en chaque point T_n pour une position z donnée :

$$\frac{\partial U}{\partial t}(z, T_n) = \frac{U(z, T_{n+1}) - U(z, T_{n-1})}{2\Delta T}.\tag{1.30}$$

En bord de fenêtre la valeur de la dérivée est prise égale à 0 : $\frac{\partial U}{\partial t}(z, T_0) = \frac{\partial U}{\partial t}(z, T_{Npts}) = 0$. En pratique, le vecteur $\frac{\partial U}{\partial t}(z, t)$ est donc l'image par une application linéaire du vecteur $U(z, t)$, application linéaire dont la matrice A peut se calculer aisément à partir de l'expression 1.30 de sorte que :

$$\frac{\partial U}{\partial t}(z,t) = A \times U(z,t) \quad (1.31)$$

Illustration du schéma numérique à l'ordre 2

Afin d'illustrer plus simplement ce schéma numérique, prenons le cas d'un schéma Runge Kutta d'ordre 2 (RK2) schématiquement représenté sur la Fig. 1.2. A l'ordre 2, le schéma Runge Kutta s'apparente à la méthode d'Euler.

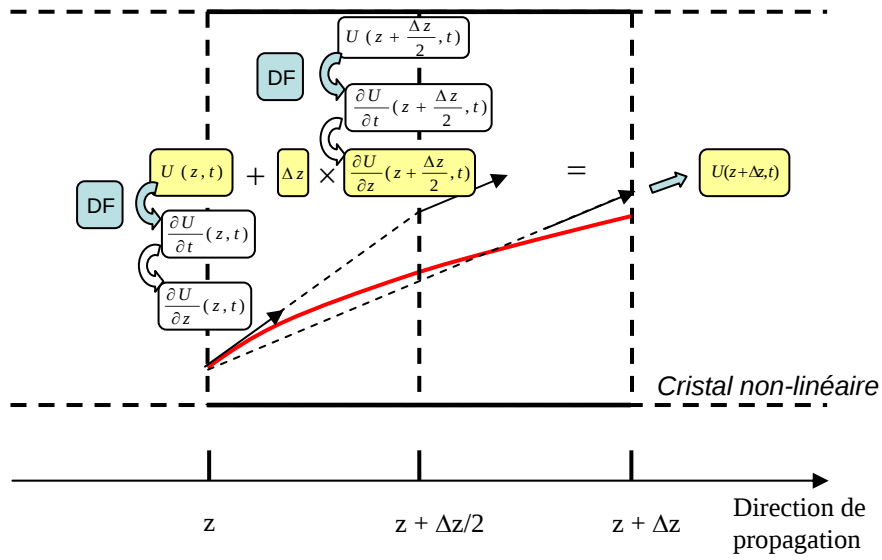


FIGURE 1.2: Représentation en deux dimensions du schéma numérique RK2 et différences finie. Augmenter l'ordre du Runge Kutta consiste à augmenter le nombre d'évaluations intermédiaires de la pente $\frac{\partial U}{\partial z}$.

La méthode de RK2 consiste à calculer le vecteur U en $z + \Delta z$ en évaluant la pente $\frac{\partial U}{\partial z}$ en $z + \frac{\Delta z}{2}$ puis en effectuant le calcul suivant :

$$U(z + \Delta z, t) = U(z, t) + \Delta z \times \frac{\partial U}{\partial z}(z + \frac{\Delta z}{2}, t) \quad (1.32)$$

Le but du calcul va donc être d'évaluer le vecteur $\frac{\partial U}{\partial z}(z + \frac{\Delta z}{2}, t)$. Pour cela, la pente en z est évaluée en deux étapes :

- étape 1 : construction du vecteur $\frac{\partial U}{\partial t}(z, t)$ $\frac{\partial U}{\partial t}(z, t) = A \times U(z, t)$
- étape 2 : évaluation de la pente en z $\frac{\partial U}{\partial z}(z, t) = F \left[\frac{\partial U}{\partial t}(z, t), U(z, t) \right]$

Le vecteur U est ensuite évalué en $z + \frac{\Delta z}{2}$:

$$U(z + \frac{\Delta z}{2}, t) = U(z, t) + \frac{\Delta z}{2} \times \frac{\partial U}{\partial z}(z, t),$$

puis la pente en $z + \frac{\Delta z}{2}$ est évaluée de la même manière que la pente en z , soit :

$$\begin{array}{ll} \text{construction du vecteur } \frac{\partial U}{\partial t}(z + \frac{\Delta z}{2}, t) & \frac{\partial U}{\partial t}(z + \frac{\Delta z}{2}, t) = A \times U(z + \frac{\Delta z}{2}, t) \\ \text{évaluation de la pente en } z + \frac{\Delta z}{2} & \frac{\partial U}{\partial z}(z + \frac{\Delta z}{2}, t) = F \left[\frac{\partial U}{\partial t}(z + \frac{\Delta z}{2}, t), U(z + \frac{\Delta z}{2}, t) \right] \end{array}$$

Une fois connu la pente au milieu de l'intervalle, le vecteur U est enfin évalué en $z + \Delta z$:

$$U(z + \Delta z, t) = U(z, t) + \Delta z \times \frac{\partial U}{\partial z}(z + \frac{\Delta z}{2}, t) \quad (1.33)$$

Ainsi, à chaque évaluation de la pente (en z puis en $z + \frac{\Delta z}{2}$), une ré-évaluation du terme de dérivée temporelle est effectuée par le biais du développement en série de Taylor du vecteur U . La méthode est transposable à des ordres supérieurs du Runge Kutta (voir [Bak89, Pre93]); en pratique on augmente simplement le nombre d'itérations pour l'évaluation de la pente selon la variable z .

L'avantage de la méthode par différences finies est qu'il n'y a plus de calcul de transformée de Fourier, ce qui raccourcit considérablement le temps de calcul. Ainsi, sur les exemples présentés dans la partie suivante, il y a un net gain en temps pour des résultats similaires (typiquement un facteur 2 à 30, selon les ordres d'intégration, sur le temps de calcul).

1.2.2 Validation du code sur quelques exemples et discussion sur le rôle de la saturation

Avant d'utiliser le code de calcul sur les cas pratiques qui nous intéressent directement dans cette étude, nous avons voulu tester sa justesse et sa robustesse sur différents cas développés dans la littérature.

Exemple de calcul d'OPA

Dans cette section, nous reprenons directement les calculs numériques publiés par Arisholm [Ari07] sur la modélisation de l'amplification paramétrique d'impulsions picosecondes ou sub-picosecondes. La méthode employée est celle du split-step avec transformées de Fourier.

Les simulations sont menées pour des OPA en simple passage, ce qui correspond à des

amplificateurs paramétriques initialisés avec une impulsion de pompe à laquelle vient s'ajouter une impulsion signal "seed", qui vient amorcer la conversion non linéaire. Les paramètres d'entrée du calcul sont rassemblés dans le Tab. 1.1. L'intensité crête initiale de la pompe I_p est telle que $u_3(0,t) = u_p \exp \left[- \left(\frac{2t}{T} \right)^2 \right]$. L'impulsion signal seed est prise avec la même largeur à $1/e^2$.

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
λ_1	3.29 μm	n_j	1.6
λ_2	1.5 μm	n_{g1}	1.6
λ_3	1.03 μm	n_{g2}	1.66
χ_{eff}	20 pm/V	n_{g3}	1.63
I_p	10 GW/cm ²	L_{cri}	4 – 7.2 mm
I_2	10 mW/cm ²	T	0.2 – 4 ps

TABLE 1.1: Paramètres de simulation

La Fig. 1.3 donne quelques résultats caractéristiques du calcul pour $N_{\text{pts}} = 512$, $T = 200$ fs, et une fenêtre temporelle synchrone avec l'impulsion pompe typiquement 6 fois plus grande que la largeur de l'impulsion initiale à $1/e^2$. On peut constater que pour ces conditions initiales, le résultat du calcul est rigoureusement identique entre les deux méthodes de calcul. La différence entre les deux images provient du fait que dans [Ari07], la fenêtre temporelle est prise synchrone avec l'impulsion idler (rouge).

Importance de la phase non linéaire

Du point de vue physique, il est intéressant de noter ici que l'impulsion pompe est très rapidement dépeuplée en son centre au bout de 4,8 mm. L'amplification paramétrique du signal et du complémentaire est donc localement saturée. Par la suite, le sens du transfert d'énergie est inversé, et la pompe est partiellement reconstruite tant que les trois paquets d'onde sont encore temporellement superposés (jusque $z = 5,8$ mm). Cette propriété montre le rôle fondamental joué par la phase non linéaire décrite au chapitre précédent (Chap. 1.1.2). La Fig. 1.4 donne le type de courbe qui peuvent être tracées lorsque l'évolution de la phase non linéaire est considérée au centre de la fenêtre temporelle. Sur cette courbe, il apparaît que la phase non linéaire au départ de la conversion s'établit mécaniquement à $-\frac{\pi}{2}$ (la phase de la pompe et du signal sont initialisées à 0, mais la phase du complémentaire est libre de s'ajuster). Le transfert d'énergie se fait donc dans le sens $\omega_3 \rightarrow \omega_1 + \omega_2$. Puis, à $z = 4,8$ mm la phase non linéaire au centre de la fenêtre se déphase de π et s'ajuste à $+\frac{\pi}{2}$ le transfert d'énergie se fait donc dans le sens $\omega_1 + \omega_2 \rightarrow \omega_3$ ce qui explique qu'entre 4.8 mm et 7.2 mm la pompe est localement

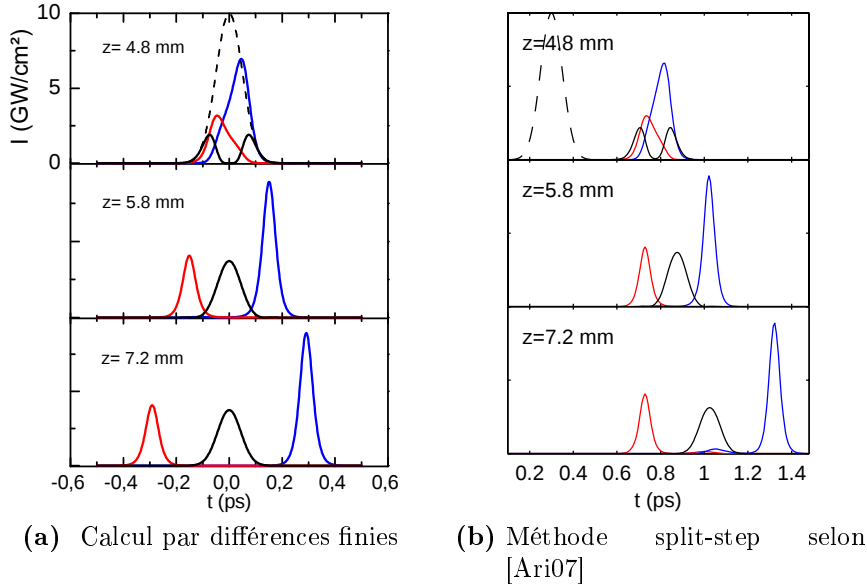


FIGURE 1.3: Intensités idler (rouge), signal (bleu), et pompe (noir) à différentes positions dans le cristal. L'impulsion pompe initiale ($T = 200$ fs) est représentée au centre de la fenêtre temporelle en pointillés. La Fig. 1.3a donne le résultat du calcul numérique selon la méthode de Runge Kutta et différences finies d'ordre 2 décrite au Chap. 1.2.1. La Fig. 1.3b donne le résultat du calcul publié dans [Ari07] réalisé selon la méthode split-step.

reformée. Enfin, en $z = 7,2$ mm la phase est décalée une nouvelle fois de π pour passer à $\frac{3\pi}{2}$, ce qui signifie que le transfert d'énergie est de nouveau engagé dans le sens $\omega_3 \rightarrow \omega_1 + \omega_2$. En d'autres termes, si l'évolution des impulsions était suivie au delà de 7,2 mm, il y aurait à nouveau une conversion de la pompe vers le signal et le complémentaire au centre de la fenêtre temporelle. Cette courbe illustre donc bien l'importance de la phase non linéaire locale sur le façonnage des impulsions par la saturation: lorsque le transfert d'énergie est localement saturé du fait du dépeuplement total de la pompe ou de l'ensemble {signal + complémentaire}, la phase non linéaire s'auto-ajuste de sorte que le transfert d'énergie se fasse dans le sens opposé à la saturation.

Afin de bien visualiser le caractère local de cette propriété, l'ensemble de la phase non linéaire peut être tracée en fonction du temps dans la fenêtre temporelle pour différentes valeurs de z . Le type de courbe obtenue alors est représenté Fig. 1.5. En $z = 4,8$ mm, la phase non linéaire est décalée de π uniquement dans la zone située au centre de la fenêtre temporelle où l'intensité de la pompe est proche de 0, c'est-à-dire là où l'amplification du signal et du complémentaire est localement saturée; tandis qu'en dehors de cette zone, où l'intensité pompe n'est pas nulle, la phase non linéaire reste à $-\frac{\pi}{2}$. Ceci signifie qu'au centre de la fenêtre le mélange non linéaire est favorable au transfert d'énergie dans le sens $\omega_3 \leftarrow \omega_1 + \omega_2$, tandis qu'en périphérie de l'impulsion pompe dépeuplée, la phase relative des ondes est toujours favorable au

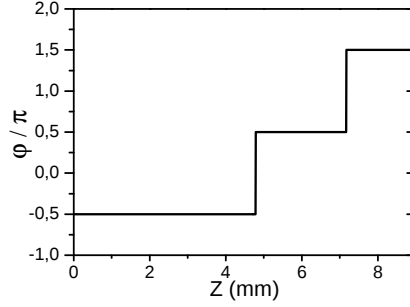


FIGURE 1.4: Évolution de la phase non linéaire au centre de la fenêtre temporelle en fonction de la position z dans le cristal.

sens de conversion $\omega_3 \rightarrow \omega_1 + \omega_2$. Par conséquent, en $z = 5,8$ mm, on retrouve logiquement une impulsion pompe reconstituée au centre tandis que les bords de l'impulsion non consommés en $z = 4,8$ mm ont disparu. La phase non linéaire prends alors une valeur $+\frac{\pi}{2}$ sur un intervalle de temps beaucoup plus important, ce qui signifie que dans la suite de la propagation, le transfert d'énergie dans cette zone va continuer à favoriser la pompe. Ceci est vrai jusqu'à $z = 7,2$ mm où la phase non linéaire au centre repasse à $\frac{3\pi}{2}$ ce qui signifie que le centre de l'impulsion pompe précédemment reformée va de nouveau être consommée pour produire du signal et du complémentaire si l'on continue le calcul au delà de $z = 7,2$ mm. Ces figures illustrent donc clairement que la saturation et les décalages de phase non linéaire qui en découlent ont un impact déterminant sur le façonnage des impulsions lors du mélange non linéaire. Le cas développé ici est relativement simple du fait que les impulsions sont très courtes devant le temps au bout duquel elles se séparent sous l'effet de la différence de leurs vitesses de groupe.

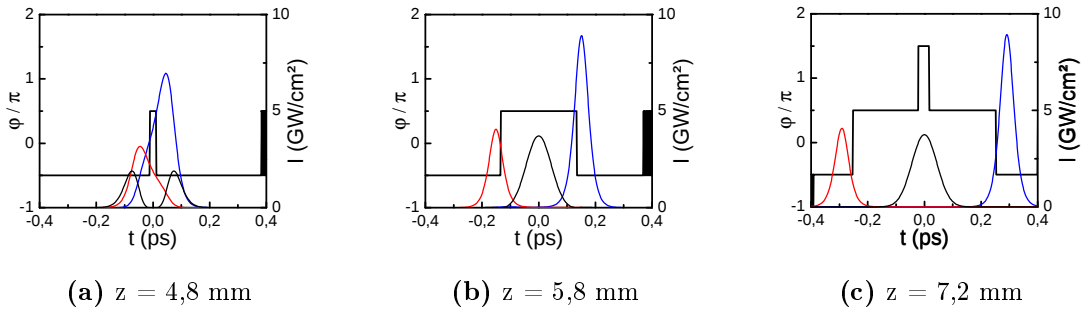


FIGURE 1.5: Phase non linéaire en fonction du temps pour différentes valeurs de z . Les paramètres de la simulation sont les mêmes que ceux de la Fig. 1.3.

Pour des impulsions plus longues, le façonnage des impulsions par la saturation peut devenir nettement plus complexe. C'est ce qui est illustré sur la Fig. 1.6 avec un autre cas théorique

développé dans [Ari07]. Les conditions initiales sont toujours celles décrites dans le Tab. 1.1; les impulsions initiales ont les mêmes intensités crêtes mais une durée à $1/e^2$ plus longue ($T = 4$ ps).

Force est de constater qu'au fur et à mesure de la propagation dans le cristal non linéaire, les zones de saturation et de reconversion se multiplient, donnant aux impulsions des formes extrêmement complexes. Ces phénomènes de saturation et de reconversion locales apparaissent d'autant plus que l'intensité pompe initiale est élevée, étant donné que l'efficacité des conversions non linéaires dépend directement de l'intensité. Dans les cas développés dans ce chapitre, les intensités crêtes initiales sont très élevées (plusieurs GW/cm^2), ce qui explique que les effets de saturation se font sentir au bout de quelques mm de cristal. Dans le cas d'un OPO synchrone, les effets de la saturation sur le façonnage des impulsions apparaissent pour des intensités pompes plus faibles (plusieurs MW/cm^2) du fait que l'une des ondes filles (signal ou complémentaire) est partiellement recyclée à chaque tour de cavité.

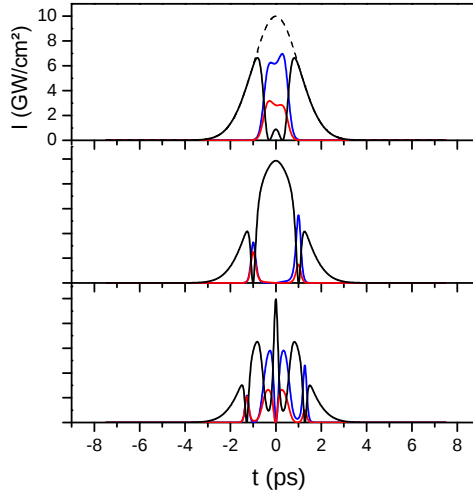


FIGURE 1.6: Intensités idler (rouge), signal (bleu), et pompe (noir) à différentes positions dans le cristal décrit Tab. 1.1. L'impulsion pompe initiale ($T = 4$ ps) est représentée au centre de la fenêtre temporelle en pointillés. Le calcul est mené selon la méthode de Runge Kutta et différences finies d'ordre 2.

1.2.3 Comparaison de l'efficacité du schéma numérique par différences finies, et du split-step

Nous venons de voir que le schéma numérique par différences finies donne des résultats quantitativement identiques à la référence choisie pour effectuer les tests préliminaires. Dans cette partie nous allons quantifier plus en détail l'efficacité de ce schéma comparativement au

schéma par split-steps. Cette quantification est faite de manière empirique sur un problème de départ fixé, celui correspondant au cas de la Fig. 1.3.

La notion de code de calcul efficace est relative. Il est d'abord souhaitable que le résultat du calcul soit juste, c'est-à-dire avec la plus faible erreur possible par rapport à la solution exacte, au problème posé. Dans notre cas, l'évaluation de la justesse du résultat ne peut être absolue, étant donné que la solution exacte n'est pas connue. On ne peut donc évaluer la justesse que de manière relative; par rapport à une référence par exemple, ou relativement à un calcul a priori plus précis. Pour évaluer la précision de nos calculs, nous procédons de deux manières. Il faut tout d'abord comparer le résultat du calcul avec le résultat donné par un code de référence. Nous prenons pour code de référence le logiciel SNLO disponible gratuitement en ligne⁵ et développé par A. Smith [Smi99, Smi00]. SNLO permet notamment de réaliser des calculs en régime d'impulsions brèves prenant en compte les différences de vitesses de groupe, ainsi qu'éventuellement la dispersion des vitesses de groupe. Le schéma numérique utilisé par le logiciel est un schéma de type split-step comme décrit au Chap. 1.2.1. Dans un deuxième temps, nous évaluerons également la précision d'une méthode relativement à elle-même. En pratique, il s'agit d'évaluer l'écart entre le résultat d'un calcul avec le résultat obtenu selon le même calcul mais avec un échantillonnage supérieur, donc plus précis a priori.

Ensuite, il est généralement souhaitable que le schéma numérique choisi soit rapide. Nous évaluerons donc le temps de calcul nécessaire à chaque schéma numérique pour atteindre le résultat. Ainsi l'évaluation conjointe de la rapidité et de la précision permettent de définir les données d'entrée optimales du point de vue numérique (c'est-à-dire le type d'algorithme, et le niveau de discrétisation) pour un problème donné. Enfin, le calcul doit être stable, c'est-à-dire qu'il faut que l'erreur diminue avec le nombre d'itérations, jusqu'à fluctuer autour de la précision numérique.

Intéressons nous dans un premier temps au code de référence SNLO pour effectuer le calcul de conversion non linéaire avec les paramètres physiques de départ donnés par le Tab. 1.1. L'évaluation de la précision peut se faire de différentes manières. En effet, il existe deux niveaux de discrétisation dans le calcul : d'une part l'échantillonnage temporel des impulsions (nombres de points et taille de la fenêtre temporelle), et d'autre part la discrétisation du cristal (échantillonnage Δz et ordre de l'algorithme d'intégration Runge Kutta). Afin de faciliter la comparaison entre les différentes méthodes, nous choisissons de fixer l'échantillonnage en temps ($N_{\text{pts}} = 512$), et de ne faire varier que le nombre de pas en z : $N_{\text{pas}} = L_{\text{cri}}/\Delta z$. SNLO étant notre référence, on ne peut comparer sa précision que relativement à lui-même. Pour évaluer la convergence de la précision du calcul, nous procédons à une évaluation de l'écart entre le résultat obtenu pour un pas Δz donné et le résultat obtenu pour un pas deux fois plus petit $\Delta z/2$.

5. <http://www.as-photonics.com/SNLO.html>

D'une manière générale, l'écart relatif entre les résultats de deux calculs différents s'évalue de la manière décrite ci-après.

Soient

$$\begin{aligned} \text{résultat du calcul 1} \quad I &= [I_1, I_2, \dots, I_n, \dots, I_{N_{\text{pts}}}] \\ \text{résultat du calcul 2} \quad I' &= [I'_1, I'_2, \dots, I'_n, \dots, I'_{N_{\text{pts}}}] \end{aligned}$$

les résultats en intensité obtenus à l'issu du calcul pour une des trois ondes (pompe, signal, ou complémentaire) obtenus selon un calcul 1 et un calcul 2 respectivement. L'écart relatif entre les deux résultats est évalué en faisant la moyenne pondérée des écarts relatifs calculés pour chaque point n :

$$\Delta\xi = \frac{\sum_n \frac{|I_n - I'_n|}{I_n} \times p_n}{\sum_n p_n},$$

où $\frac{|I_n - I'_n|}{I_n}$ est l'écart du calcul à N_{pas} relativement au calcul à $2 \times N_{\text{pas}}$, et p_n est le coefficient de pondération de l'erreur que nous prenons tel que $p_n \propto I_n$ de sorte que les écarts aux fortes intensités (c'est-à-dire là où se situe l'essentiel du signal calculé) pèsent plus que les écarts aux faibles intensités. Ainsi l'écart relatif entre deux calculs devient :

$$\Delta\xi = \frac{\sum_n |I_n - I'_n|}{\sum_n I_n}.$$

C'est ainsi qu'est calculé l'écart relatif moyen entre deux résultats de calcul en faisant la moyenne de chaque écart mesuré pour chacune des trois ondes. La Fig. 1.7 donne l'écart relatif en fonction du nombre d'itérations N_{pas} entre le résultat SNLO sur N_{pas} itérations et le résultat SNLO obtenu sur $2 \times N_{\text{pas}}$ itérations, pour le problème de conversion correspondant au Tab. 1.1, et à la Fig. 1.3.

Pour le problème considéré, SNLO voit sa précision converger rapidement, puisqu'au delà de 200 pas en z le résultat ne change quasiment pas. En $N_{\text{pas}} = 200$, l'écart relatif avec le calcul pour $N'_{\text{pas}} = 400$ est de 2,6 %, de sorte qu'il soit possible de considérer que le calcul atteint sa précision ultime au-delà de ce point⁶.

Nous traçons ensuite le même type de courbes pour les deux méthodes que nous avons développées : la méthode par algorithme de Runge Kutta couplé à un schéma par différences finies, et la méthode par split-step, qui est en fait analogue à la méthode de calcul SNLO. Pour des raisons de simplicité et de rapidité d'évaluation, nous choisissons d'abord un ordre de discrétisation faible ($n_{\text{RK}} = 2$) pour les algorithmes de Runge Kutta (présents à la fois dans la

6. Il ne s'agit pas d'une précision absolue, puisque la solution exacte n'est pas connue.

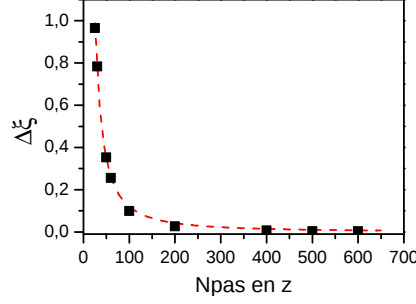


FIGURE 1.7: Écart relatif entre le résultat du calcul SNLO pour N_{pas} en z , et le résultat du même calcul pour $2 \times N_{\text{pas}}$. Le problème modélisé correspond aux paramètres physiques d'entrée du Tab. 1.1. L'échantillonnage temporel est effectué sur 512 points et une fenêtre temporelle de 2,16 ps. La courbe rouge pointillée est un ajustement par une fonction de type $1/N^a$ où $a \sim 1,5$.

méthode split-step et la méthode par différences finies). Pour la méthode par différences finies, nous choisissons également un ordre de calcul égal à 2 pour les calculs de dérivée temporelle (voir Chap. 1.2.1). Les résultats des évaluations des écarts relatifs propres, c'est-à-dire lorsque chaque méthode est évaluée par rapport à elle-même pour différentes valeurs de nombre de pas, sont présentés Fig. 1.8.

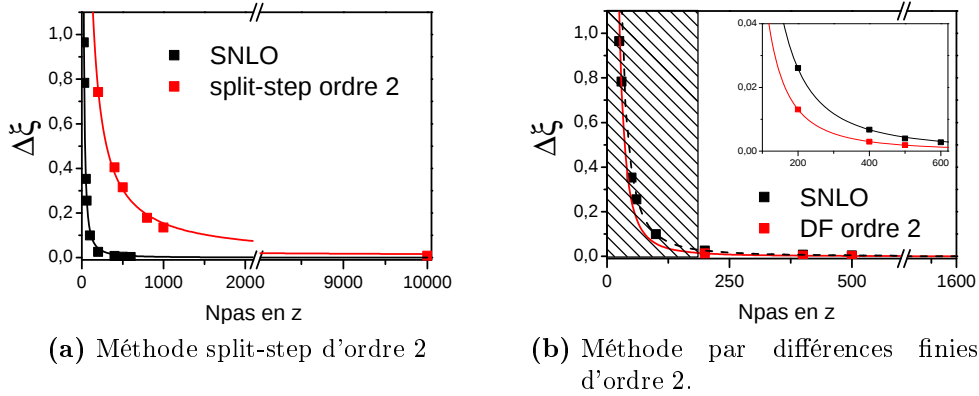


FIGURE 1.8: Écarts relatifs propres pour les méthodes split-step et différences finies. L'écart est évalué entre le résultat du calcul pour N_{pas} en z , et le résultat du même calcul pour $2 \times N_{\text{pas}}$. Les courbes sont ajustées par des fonctions de type $y = 1/N^a$. La figure en insert de la Fig. (b) est un zoom entre $N_{\text{pas}} = 100$ et $N_{\text{pas}} = 600$. En pratique le schéma par différences finies diverge pour $N_{\text{pas}} \lesssim 200$ (zone hachurée).

Plusieurs enseignements peuvent être tirés de ces courbes d'écart propre. Tout d'abord, pour la méthode split-step d'ordre 2, il faut typiquement plusieurs milliers de pas en z pour atteindre la limite de précision, soit environ 10 fois plus que le logiciel SNLO. La différence de convergence entre les deux méthodes provient du fait que SNLO utilise un algorithme Runge Kutta d'ordre supérieur à 2 (probablement d'ordre 4 voire 5), tandis que la méthode split-step

que nous testons ici est d'ordre 2.

Pour la méthode par différences finies, le résultat est plus complexe. En effet pour un schéma numérique d'ordre 2, nous constatons que pour les faibles échantillonnages ($N_{\text{pas}} \lesssim 200$), le code diverge (résultat NaN dans Matlab). Puis, à partir du moment où le calcul converge vers un résultat, la limite de précision est presque immédiatement atteinte. Ainsi il n'y a pratiquement aucune différence entre le calcul avec 200 pas d'intégration en z et le calcul selon la même méthode avec 1000 pas d'intégration. Ces propriétés remarquables ne sont pas nécessairement des avantages a priori. En effet, le fait que le code diverge en dessous d'un certain seuil de discrétisation est considéré comme une instabilité. Le fait que le code atteigne très vite sa limite de précision est certes intéressant du point de vue rapidité, mais la question de la précision absolue se pose alors.

Pour le savoir, comparons les résultats obtenus avec un résultat de référence. Les graphes représentés Fig. 1.9 montrent l'écart entre le calcul obtenu par l'une ou l'autre des méthodes développées par rapport à un résultat "référence" calculé par SNLO dans des conditions de sur-échantillonnage ($N_{\text{pas}} = 1200$ en z).

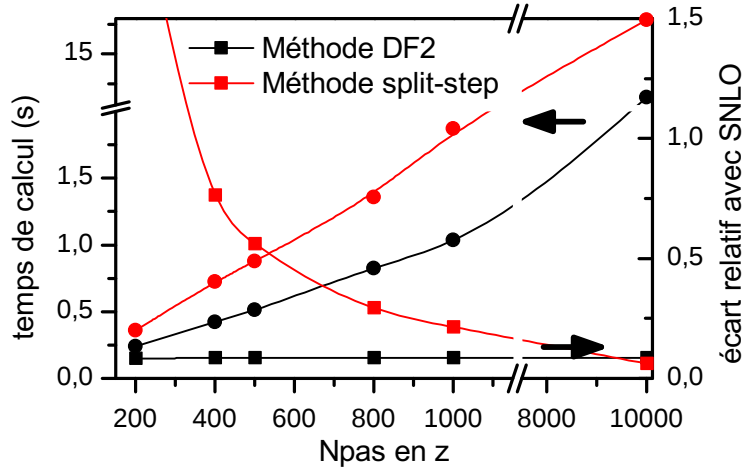


FIGURE 1.9: Écart relatif entre les résultats obtenus par les méthodes de split-step ou de différences finies par rapport à un résultat de référence (calcul SNLO sur $N_{\text{pas}} = 1200$). Pour la méthode par split-step, 60% du temps de calcul est consacré aux calculs de transformée de Fourier (quel que soit N_{pas}).

Sur ces courbes, il apparaît tout d'abord que le temps de calcul est logiquement une fonction croissante du nombre d'itérations pour chaque schéma de calcul. Cependant le schéma split-step d'ordre 2 est systématiquement plus long que le schéma par différences finies d'ordre 2. Concernant la précision du calcul, les deux schémas ont un comportement très différent. En effet, l'écart entre la méthode split-step et la référence SNLO diminue avec le nombre d'itérations et semble tendre vers 0, pour 10 000 pas d'intégration l'écart relatif moyen avec SNLO est d'environ 6 %. En revanche, la méthode par différences finies présente une fonction d'erreur

constante : quel que soit le nombre d'itérations, l'écart relatif avec le résultat SNLO est de 8 % environ. Cet écart systématique est indépendant du nombre d'itérations, et nous avons pu vérifier qu'il se retrouvait également entre notre méthode par split-step et notre méthode par différences finies⁷. Il est donc possible d'en déduire qu'il s'agit d'une différence intrinsèque entre les deux types de schémas numériques du fait que les méthodes de calcul ne sont pas les mêmes. Il est cependant impossible de dire a priori quelle méthode est la plus précise dans l'absolue, la solution exacte étant inconnue.

D'après ces constatations, le schéma par différences finies d'ordre 2 apparaît comme très efficace par rapport au schéma par split-step. D'une part il atteint sa limite de précision pour un nombre d'itérations plus faible, et une fois la limite de précision atteinte, l'écart par rapport à un calcul de référence est nettement inférieur. Pour obtenir un écart de l'ordre de 8 % avec la méthode par split-step, il faut typiquement 10 000 itérations contre quelques centaines pour la méthode par différences finies, ce qui représente un facteur supérieur à 30 sur le temps de calcul. L'élément réellement pénalisant pour la méthode par split-step, est la succession de calculs de transformées de Fourier à chaque itération, qui occupent près de 60 % du temps de calcul.

La solution pour diminuer le poids des transformées de Fourier dans le temps de calcul consiste à augmenter l'ordre d'intégration. En effet, en passant à l'ordre 4 pour le schéma Runge Kutta, la précision du calcul est augmentée sans augmenter le nombre de transformées de Fourier, et ce, pour un même nombre d'itérations N_{pas} , puisque le calcul de la propagation dans l'espace de Fourier et le calcul du mélange non linéaire sont découplés.

Nous avons effectué le même type d'évaluation de l'efficacité des schémas par split-step et différences finies à l'ordre 4 qu'à l'ordre 2. La Fig. 1.10 donne l'évolution de la précision propre des différents schémas à l'ordre 4 (toujours pour le même problème de départ), ainsi que le temps de calcul, le tout en fonction du nombre d'itérations en z ⁸.

Il est intéressant de constater qu'il y a un gain significatif en précision sur les deux schémas. La Fig. 1.10a indique que les deux méthodes atteignent leur limite de précision très rapidement pour quelques centaines d'itérations. L'effet est toujours prédominant pour la méthode par différences finies puisque dès $N_{\text{pas}} = 200$ des écarts relatifs inférieurs à un pour mille sont atteints. Quant aux temps de calcul, la méthode par split-step d'ordre 4 est certes toujours moins rapide que la méthode par différences finies, mais l'écart entre les deux est considérablement réduit. Nous n'avons pas représenté les courbes d'écart relatif entre les résultats des différentes méthodes et le calcul de référence donné par SNLO, puisque à l'ordre 4, quel que soit le nombre d'itérations, les deux calculs donnent un écart relatif constant de l'ordre de 6 %, ce qui signifie

7. Pour un nombre de pas en z supérieur à 10000.

8. Le temps de calcul SNLO n'est pas directement mesurable, mais, a priori, le calcul repose sur un split-step et une discrétisation Runge Kutta d'ordre au moins 4, ce qui laisse raisonnablement penser que les temps de calcul sont proches de notre propre calcul Split-step d'ordre 4. Des essais sur des temps très longs ($N_{\text{pas}} = 10000$) confirment le bien fondé de cette hypothèse.

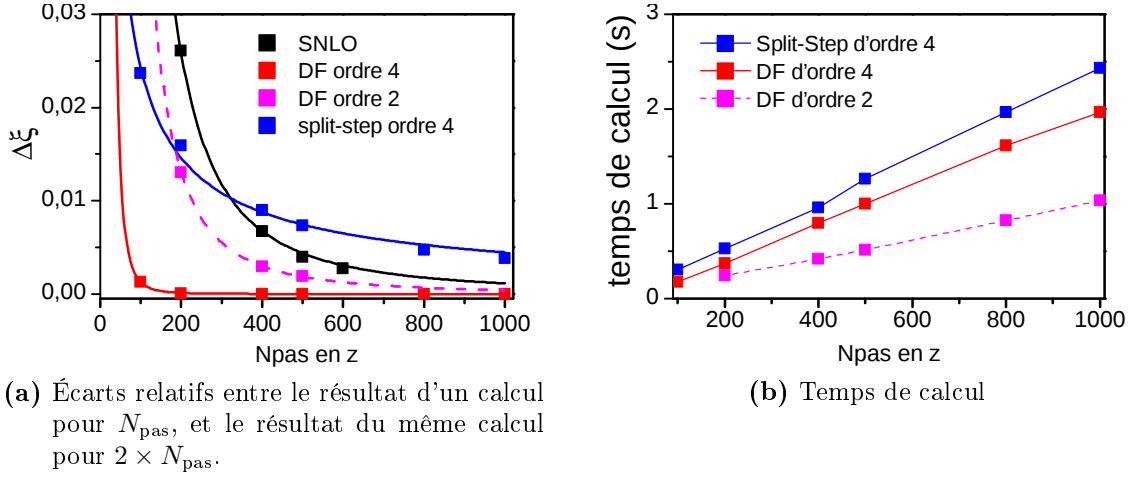


FIGURE 1.10: Précision propre et temps de calcul comparés des méthode par split-step et par différences finies d'ordre 4. Pour la méthode split-step, le calcul des transformées de Fourier occupe environ 45 % du temps total de calcul.

qu'il s'agit d'écarts intrinsèques entre les différents codes.

En conclusion, d'après l'étude réalisée dans cette partie, nous pouvons dire que globalement le schéma par différences finies est le plus efficace. Il permet d'atteindre des niveaux de précision élevés pour des discrétisations plus faibles que les autres méthodes. Son seul inconvénient semble être une tendance à être instable pour les échantillonnages trop faibles. La méthode par différences finies autorise en outre des temps de calcul très intéressants dans la perspective de calculs multi-passages, simulation d'OPO ou d'un laser à modes verrouillés. Dans les différentes simulations que nous mènerons par la suite, nous privilégierons donc la méthode par différences finies. La démarche sera en général la suivante : mener les calculs par le biais d'un schéma par différences finies d'ordre 2, rapide et offrant une certaine précision, puis augmenter l'ordre d'intégration, toujours en utilisant la méthode des différences finies, si le calcul diverge ou nécessite une précision supérieure.

1.3 Modélisation de la fluorescence paramétrique

Dans le cas des OPO non injectés, l'oscillation démarre à partir des photons émis par la fluorescence paramétrique. Numériquement, il est nécessaire de se donner un modèle de fluorescence paramétrique pour initialiser le calcul d'oscillation paramétrique. Dans cette partie, nous expliquons les choix numériques mis en œuvre pour modéliser la fluorescence paramétrique. Un exemple de calcul de génération paramétrique reprenant les conditions expérimentales du montage décrit au Chap. 2.1.1 nous permettra d'illustrer ces choix.

La génération paramétrique est un processus non linéaire différent des exemples d'ampli-

fication paramétrique que nous avons développés dans les calcul numériques précédents. La différence fondamentale réside dans l'initialisation du processus non linéaire. En pratique, l'amplification paramétrique consiste à éclairer un cristal non linéaire avec une onde de pompe, et une onde signal (ou complémentaire) d'injection, tandis que la génération paramétrique consiste à éclairer le cristal non linéaire par l'onde de pompe seule, comme cela peut être le cas expérimentalement au moment où l'on démarre un OPO. Numériquement, le problème est extrêmement différent. En effet, si les ondes signal et complémentaire initiales sont nulles, le terme de source dans le système d'équations de propagation non linéaires (Eq. 1.21) est lui aussi nul; le système est alors équivalent à une simple équation de propagation de l'onde de pompe dans un milieu diélectrique linéaire. Un bruit de départ est donc nécessaire pour initialiser le processus. L'origine de ce bruit, ou fluorescence paramétrique spontanée, est généralement modélisé par un champ électrique phénoménologique attribué aux fluctuations quantiques du vide.

D'après les travaux présents dans la littérature [Men00, Ari99], une description rigoureuse de la fluorescence paramétrique spontanée consiste à initialiser chaque onde (signal et complémentaire) par une superposition de modes de cavité contenant chacun une intensité correspondant à $1/2$ photon par mode, et de phase aléatoire. La statistique de répartition de la phase initiale du bruit est une distribution gaussienne telle que la moyenne du champ électrique initiale est nulle, et la moyenne du carré du champ est équivalente à la présence d'un $1/2$ photon par mode du champ.

Dans le cadre de notre modèle ondes planes, la diffraction étant négligée, la distribution du champ électrique dans la base des modes propres de la cavité n'est donc pas considérée. Une première approximation va donc consister à prendre comme point de départ l'intensité d'un $1/2$ photon par mode longitudinal circulant dans un volume spatial délimité par un cylindre de rayon égal au waist du mode fondamental de la cavité, et de longueur la longueur optique de la cavité OPO. Dans le domaine spectral, l'intervalle spectral libre (ISL) de la cavité étant très inférieur au pas d'échantillonnage en fréquence⁹ utilisé, l'initialisation est faite en prenant une intensité moyenne égale à l'intensité d'un demi photon multipliée par le nombre de modes longitudinaux dans la fenêtre de calcul.

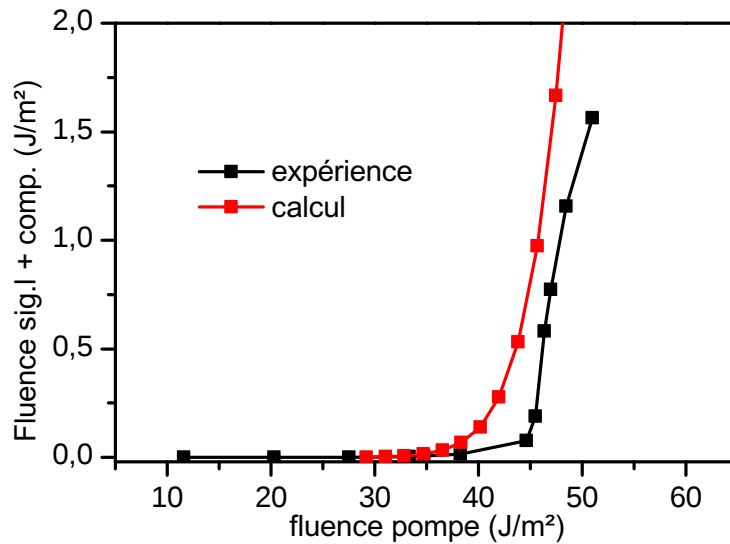
Dans le domaine temporel, une seconde approximation va consister à modéliser le bruit de photons par une impulsion de phase fixée, et de spectre large. Les propriétés statistiques du bruit de photons ne sont donc pas considérées; en particulier, la moyenne du champ électrique est non nulle. En d'autres termes, l'initialisation du calcul consiste à injecter l'OPO par des impulsions signal et complémentaire de faible intensité, équivalente en moyenne à $1/2$ photon par mode longitudinal circulant dans un mode cylindrique simplifié, et de spectre large; l'idée

9. $\frac{c}{2L} \sim 76$ MHz et le pas d'échantillonnage en fréquence est typiquement de plusieurs dizaines de GHz.

est de pouvoir rendre compte de l'adaptation spectro-temporelle de l'OPO en fonction de la désynchronisation, tout en simplifiant le calcul. Cette approximation est justifiée par le fait que la modélisation des fluctuations quantiques du vide est un raffinement qui va de pair avec un traitement spatial de la conversion non linéaire. Dans notre modèle théorique, nous avons considéré des ondes planes, hypothèse simplificatrice, qui réduit la portée quantitative des résultats.

A titre de première illustration, nous avons cherché à simuler l'expérience d'OPG présentée dans le Chap. 2.1.1. Les paramètres de la simulation sont décrits dans le Tab. 1.2. L'accord de phase est réalisé aux longueurs d'onde centrales sur lesquelles le signal et le complémentaire sont initialisés. L'injection initiale du signal et du complémentaire est faite en construisant des impulsions de faible intensité moyenne correspondant à la circulation d'un $1/2$ photon dans le mode fondamental de la cavité OPO et de très courte durée de sorte que le spectre initial soit large. La génération paramétrique est limitée par la bande de gain du PPLN aux longueurs d'onde signal et complémentaire; la logique est donc de construire des impulsions initiales dont la transformée de Fourier donne un spectre de largeur équivalente à la bande de gain du cristal. Cependant, dans la perspective d'un calcul d'OPO, l'échantillonnage doit pouvoir répondre au nécessaire compromis entre la résolution des signaux et le temps de calcul; la durée des impulsions d'injection est par conséquent numériquement limitée par les caractéristiques de l'échantillonnage en temps. Or, dans les conditions décrites dans le Tab. 1.2, l'échantillonnage en temps est $Te = 3,3 \cdot 10^{-14}$ s. La bande de gain du PPLN est $\Delta\nu_{\text{gain}} = 14,4$ THz, ce qui correspond à une durée pour les impulsions initiales de l'ordre de $1/\Delta\nu_{\text{gain}} \sim 7 \cdot 10^{-14}$ s, la limite de l'échantillonnage temporel est donc atteinte, ce qui est susceptible de rendre le calcul instable. La solution adoptée consiste alors à allonger la durée des impulsions signal et complémentaire initiales afin d'atteindre un compromis entre la largeur du spectre des impulsions de départ et leur échantillonnage dans le temps. Dans le calcul de génération paramétrique mené ici, nous nous sommes placés proches de la dégénérescence afin de comparer la simulation aux mesures expérimentales. De ce fait, la bande de gain du PPLN est extrêmement large (~ 14 THz). Dans la suite des simulations OPOs, nous nous placerons plus loin de la dégénérescence, ce qui réduit la bande de gain et donc la contrainte sur l'échantillonnage du bruit d'initialisation. Par exemple, pour $\lambda_s = 1,95 \mu\text{m}$, on a $\Delta\nu_{\text{gain}} = 5$ THz, et donc $1/\Delta\nu_{\text{gain}} \sim 2 \cdot 10^{-13}$ s, ce qui relâche le nombre de points d'échantillonnage quasiment d'un facteur 20 sur la durée de l'impulsion bruit initiale. Par sécurité, dans la plupart des simulations présentées dans la suite du manuscrit, le bruit d'injection est modélisé avec une largeur spectrale 2 à 10 fois plus faible que la bande de gain théorique du cristal non linéaire de manière à garantir un échantillonnage temporel suffisant.

Paramètre	notation	valeur
Fenêtre temporelle	Tf	70 ps
échantillonnage	Npts	2112
ordre d'intégration	nRK	4
durée impulsion pompe	τ	6,8 ps
longueur d'onde signal	λ_s	2,06 μm
longueur d'onde complémentaire	λ_c	2,2 μm
Longueur cristal	L_{cri}	25 mm
coefficient non linéaire	d_{eff}	14 pm/V

TABLE 1.2: Paramètres de simulations pour la génération paramétrique**FIGURE 1.11:** Simulation de génération paramétrique. Puissance totale extraite (signal + complémentaire) en fonction de la puissance pompe incidente. Les points expérimentaux sont corrigés des pertes de Fresnel aux interfaces du cristal de PPLN, le cristal utilisé pour l'expérience étant non traité.

Le calcul est mené pour un signal et un complémentaire proche de la dégénérescence dans des conditions proches de l'expérience d'OPG décrite au Chap. 2.1.1. Pour effectuer le calcul, les équations de couplages sont résolues en prenant en compte les différences de vitesses de groupe entre les paquets d'onde ainsi que la dispersion des vitesses de groupe selon le schéma par différences finies décrit au Chap. 1. Nous relevons la fluence générée dans le cristal en fonction de la puissance de pompe. La Fig. 1.11 donne le résultat de la simulation comparée aux mesures expérimentales. Cette courbe révèle que l'efficacité de la génération paramétrique est légèrement surestimée par le code de calcul. En règle générale, ce type de propriété se reproduit sur les simulations d'OPO, pour lesquelles les seuils d'oscillation sont plus faibles et les efficacités plus importantes que ce qui est mesuré expérimentalement. Ceci s'explique par le modèle ondes planes qui ne tient pas compte des effets de la diffraction, ainsi que par les hypothèses simplificatrices décrites précédemment quant à la modélisation de l'injection de la conversion non linéaire. De ce fait, la comparaison entre les résultats des calculs numériques et l'expérience ne peut être quantitative. Néanmoins, comme nous le verrons dans la partie suivante, le calcul numérique permet d'accéder à un certain nombre d'informations sur les processus physiques mis en jeu dans la conversion paramétrique en régime picoseconde, à condition de considérer des densités de puissance plus faibles que dans la réalité, et de se souvenir que pour un faisceau gaussien, les effets de saturation sont intégrés sur l'ensemble du faisceau, ce qui contribue à lisser les profils spectraux et temporels des signaux générés. Par conséquent, dans la suite des travaux de modélisation (du Chap. 2.2), les résultats des simulations seront normalisés afin de permettre une comparaison théorie / expérience plus significative.

En conclusion, dans cette partie nous avons résumé les caractéristiques du modèle d'injection utilisé pour calculer la génération paramétrique, et à terme, mener un calcul d'OPO. Les premiers calculs de génération paramétrique nous ont permis d'illustrer et de justifier certains choix simplificateurs concernant les conditions initiales du calcul. Pour des raisons de simplicité et de traitement purement classique, le bruit que nous injectons pour démarrer le calcul est relativement arbitraire, et ne reflète pas exactement la réalité physique de la fluorescence paramétrique. Néanmoins, la plupart des concessions effectuées (bruit non quantique, et taille du spectre d'injection) sont justifiées par notre modélisation ondes planes, et par la recherche d'un compromis résolution / temps de calcul.

Synthèse

Lorsque la durée des impulsions devient sub-nanoseconde, la vitesse de groupe des ondes n'est pas négligeable, et joue même un rôle fondamental dans l'efficacité de la conversion ainsi que dans le façonnage temporel des impulsions générées par le processus paramétrique. Le terme de dispersion des vitesses de groupe devient quant à lui significatif à des échelles de temps sub-picosecondes; il en sera donc rarement question dans l'ensemble de ce mémoire. Dans la perspective de simuler les systèmes optiques qui feront l'objet du Chap. 2 et du Chap. 3, et qui nécessitent un traitement multi-passages dans un milieu non linéaire, nous avons cherché à mettre en œuvre un code de calcul numérique le plus efficace possible. Pour cela, deux méthodes ont été comparées en termes de précision et de vitesse de calcul sur des exemples de calculs numériques présents dans la littérature. Il ressort de cette comparaison que le schéma numérique par différences finies offre les temps de calcul les plus intéressants comparativement à la méthode par split-step. Enfin, à travers quelques exemples de calcul d'amplifications paramétriques, nous avons pu mettre en évidence le rôle central joué par la saturation des échanges d'énergie entre les ondes, qui apparaît lorsque de fortes puissances instantanées sont mises en jeu. Cette saturation induit des décalages de phase non linéaire, qui se traduisent par l'apparition de zones de reconversion locales, effet opposé à saturation. La saturation et la phase jouent donc un rôle essentiel dans le façonnage d'impulsions picosecondes issues de processus non linéaires. Cette propriété sera plus largement abordée dans le Chap. 2 de même que dans le Chap. 3, où le contrôle de la phase non linéaire, dans le cas particulier du doublement de fréquence, nous permettra de créer une fonction optique originale dans le cadre du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr^{2+} . Enfin, la modélisation d'une expérience de fluorescence paramétrique nous a permis d'exposer les choix numériques opérés pour décrire le bruit d'initialisation d'un processus non linéaire en l'absence d'injection. Ces choix ont leur importance pour une bonne compréhension des simulations d'OPO présentées dans la suite du manuscrit, et nous ont en outre permis d'aborder l'une des difficultés inhérentes à ce type de simulation et à laquelle nous serons également confrontés par la suite, à savoir la nécessité de trouver un compromis entre l'échantillonnage en temps et l'échantillonnage en fréquence.

Chapitre 2

Sources OPO à pompage synchrone et analyse numérique de la synchronisation

Objectifs

Faute de milieux amplificateurs laser adéquats, c'est sur la base de processus de génération paramétrique que repose la plupart des sources d'impulsions brèves dans l'infrarouge moyen. Les principales techniques utilisées sont la différence de fréquences (DFG) et le pompage synchrone d'OPO. Ces techniques bénéficient notamment de la très large accordabilité des conversions non linéaires d'ordre deux du fait de leur caractère non résonant. La solution du pompage synchrone d'OPO présente en outre quelques avantages pratiques : un OPO ne nécessite qu'une unique source de pompage, à la différence de la technique de DFG qui requiert deux ondes initiales, comme le gain paramétrique est une fonction non linéaire de l'éclairement et qu'en régime picoseconde les impulsions atteignent aisément plusieurs centaines de kilowatts, les OPO synchrones ont des seuils d'oscillation très bas en termes de puissance moyenne. Dans ce chapitre, nous abordons le développement, la caractérisation et l'optimisation des performances de sources OPO synchrones, le principal objectif étant la réalisation d'une source OPO synchrone originale émettant dans la bande spectrale $4\text{ }\mu\text{m} - 6\text{ }\mu\text{m}$ à partir de cristaux de ZGP. Avant de parvenir à ce résultat, nous aborderons dans le détail le développement d'une source de pompe adaptée : un OPO synchrone de forte puissance moyenne à base de PPLN largement accordable dans la gamme spectrale $1.85\text{ }\mu\text{m} - 2.55\text{ }\mu\text{m}$. Cette partie fera l'objet d'une analyse numérique détaillée au moyen des outils décrits dans le chapitre précédent afin de mieux comprendre et prévoir le comportement spectro-temporel d'un OPO synchrone.

2.1 Sources paramétriques picosecondes dans l'infrarouge moyen

2.1.1 Génération paramétrique dans PPLN

La génération paramétrique (OPG) consiste en un mélange de fluorescence paramétrique et d'amplification de la fluorescence dans un cristal non linéaire en simple passage. Il n'y a donc pas de cavité. Ainsi cette configuration présente l'avantage de la simplicité puisqu'il requiert peu d'optique et d'étape d'alignement. En revanche, il nécessite des intensités crêtes extrêmes, de l'ordre du GW/cm^2 , atteignables presque uniquement en régime picoseconde ou sub-picoseconde pour un rendement de conversion généralement faible, quelques dixièmes de %, et un spectre émis très large¹, avec une bande passante allant de quelques cm^{-1} à plusieurs centaines de cm^{-1} selon la longueur du cristal et la condition d'accord de phase.

Avant la mise en œuvre de sources OPO synchrones, nous avons voulu réaliser quelques tests préliminaires de génération paramétrique à partir de cristaux de PPLN. La source infrarouge décrite dans cette partie a en outre été utilisée dans le cadre d'un travail de caractérisation du temps de réponse d'un détecteur infrarouge à base de semiconducteur $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ développé à l'ONERA (DOTA/CIO).

Le montage expérimental réalisé est schématisé Fig. 2.1. La source de pompe est un laser $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ amplifié émettant des impulsions de 7 ps à une cadence de 76 MHz pour une puissance moyenne de l'ordre de 20 W. Le faisceau pompe est focalisé avec une lentille de 100 mm de focale (waist $\sim 50 \mu\text{m}$) dans un cristal de PPLN non traité de 25 mm de longueur, et présentant un pas d'inversion de ses domaines ferro-électriques de $31,2 \mu\text{m}$. Le cristal non linéaire est placé dans un four régulé en température. La condition d'accord de phase peut donc être modifiée en changeant la température du cristal. Un filtre infrarouge constitué d'une lame de silicium traitée antireflets à $2 \mu\text{m}$ en sortie d'OPG, permet de séparer les ondes signal et complémentaire de la pompe résiduelle.

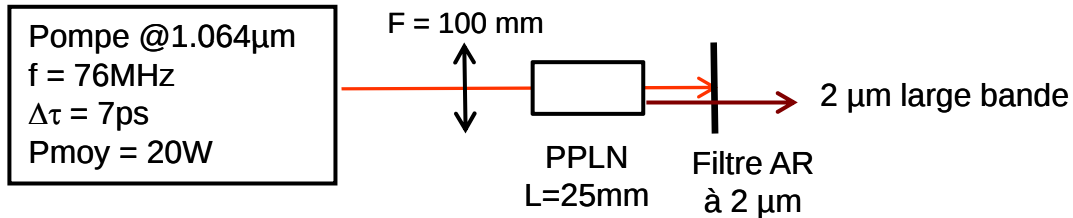


FIGURE 2.1: Montage de génération paramétrique dans PPLN.

1. Par conséquent, la densité spectrale d'énergie d'un OPG est faible, ce qui peut être un inconvénient pour certaines applications.

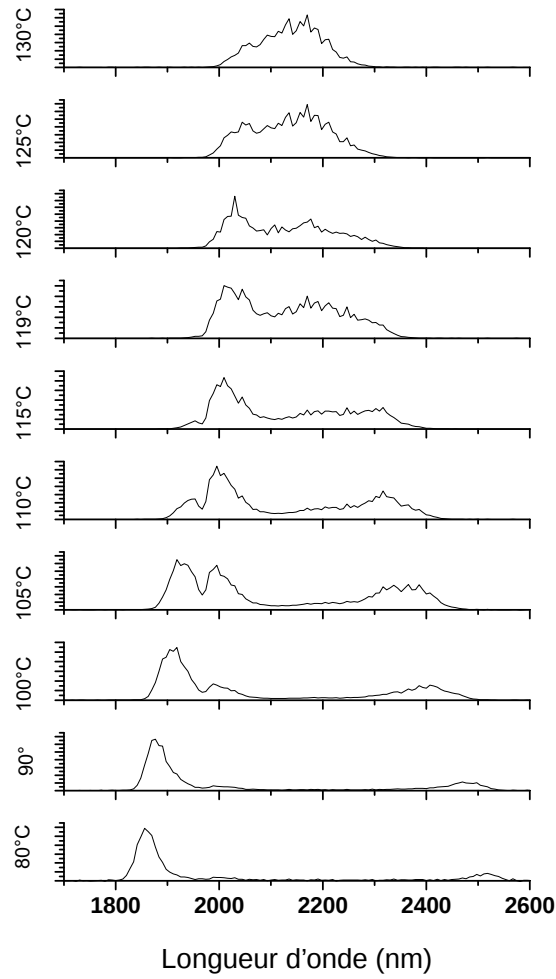


FIGURE 2.2: Spectres de génération paramétrique normalisés en fonction de la température du cristal de PPLN.

Les relevés des spectres expérimentaux en fonction de la température et de la caractéristique en puissance de l'OPG pour une température donnée sont présentés Fig. 2.2 et Fig. 2.3. À proximité de la dégénérescence ($T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$), le spectre de fluorescence amplifiée est très large de plusieurs centaines de nm. La courbe d'accordabilité représentée Fig. 2.3a correspond en fait aux extrema locaux d'intensité en fonction de la température extraits de la Fig. 2.2.

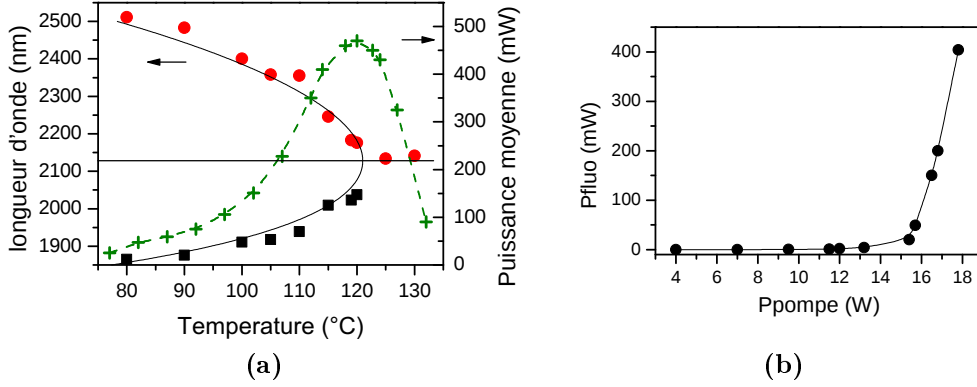


FIGURE 2.3: (a) Accordabilité en température de l'OPG PPLN; ajustement par l'équation de Sellmeier donnée dans [Jun97], et puissance moyenne totale extraite pour $P_{\text{pompe}} = 18 \text{ W}$. Pour l'accordabilité, la longueur d'onde relevée correspond au maximum de densité spectrale de puissance. (b) Caractéristique en Puissance à 120°C à la dégénérescence.

La courbe de puissance mesurée en fonction de la température Fig. 2.3a donne une indication de la fonction de gain paramétrique petit signal en fonction des longueurs d'onde générées. En effet, tant que le désaccord de phase est faible ($\Delta k \rightarrow 0$), le gain petit signal en intensité est une fonction parabolique de la pulsation signal ω_s , ou complémentaire ω_c , les deux pulsations étant liées par la relation $\omega_s + \omega_c = \omega_{\text{pompe}}$. Par ailleurs, l'ajustement mathématique de la courbe d'accordabilité dans le domaine de longueurs d'ondes considéré montre que la température peut être approximée par une fonction parabolique de la longueur d'onde. Les termes qui gouvernent le gain petit signal sont alors :

$$\text{gain} \sim \omega_s^2 \sim \frac{1}{\lambda_s^2} \sim \frac{1}{T} \quad (2.1)$$

La puissance relevée est donc une fonction de la température de type hyperbolique tant que $\Delta k \simeq 0$. Une fois que l'on dépasse $T \simeq 120 \text{ }^\circ\text{C}$, le gain chute brutalement du fait de l'absence de quasi-accord de phase au-delà de la dégénérescence. À partir de ce point, la fluorescence paramétrique reste dégénérée (voir Fig. 2.2), mais l'efficacité est gouvernée par le désaccord de phase. Les températures supérieures ne sont pas explorées afin d'éviter l'endommagement de la thermistance utilisée pour la régulation en température du thermostat. La courbe de puissance en fonction de la puissance de pompe Fig. 2.3b mesurée pour $T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$ semble indiquer

une augmentation brutale de la puissance de fluorescence à partir d'une certaine puissance de pompe; environ 15 W, et au-delà de cette puissance, l'efficacité de la conversion est de l'ordre de 17 %². En augmentant la puissance de pompe au-delà de 18 W, le seuil de dommage du cristal est dépassé : il a été évaluée expérimentalement à environ 1 GW/cm² en régime picoseconde.

2.1.2 Pompage synchrone

D'une manière générale, le pompage synchrone est une technique de mise en phase des modes longitudinaux d'un laser ou d'un OPO par une modulation temporelle du gain imposée par la source de pompe. Pour cela, il est nécessaire que la cavité de la source considérée soit synchronisée avec la cavité pompe, de sorte qu'à chaque tour de cavité, l'impulsion oscillante arrive en même temps que l'impulsion pompe à l'entrée du milieu amplificateur. Ce principe est rappelé de manière schématique sur la Fig. 2.4. Dans la suite du manuscrit nous emploierons indifféremment la dénomination SP-OPO (Synchronously Pumped - Optical Parametric Oscillator) et la dénomination OPO synchrone.

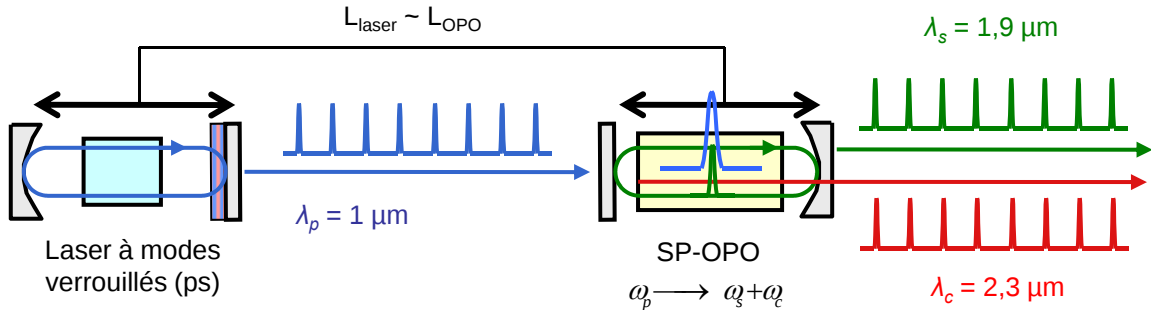


FIGURE 2.4: Principe du pompage synchrone dans le cas d'un OPO simplement résonnant à l'onde signal (proche de la dégénérescence). Lorsque le temps d'aller-retour de l'impulsion signal (temps de groupe) dans la cavité OPO est le même que le temps entre deux impulsions pompes, il y a synchronisme exact.

La cavité OPO admet néanmoins une certaine tolérance vis-à-vis de la synchronisation. Ainsi, dans une certaine limite, lorsque le dispositif est écarté du synchronisme exact, le décalage temporel entre l'impulsion oscillante et l'impulsion pompe peut en partie être compensée par l'interaction non linéaire dans le cristal de l'OPO. Ceci se traduit d'abord par une diminution de la puissance de sortie, et éventuellement par une adaptation spectro-temporelle de l'OPO. En particulier, l'interaction non linéaire ayant une certaine acceptation spectrale, le décalage temporel entre pompe et signal se traduit généralement par une sélection spectrale du signal, de

2. Le processus d'OPG ne présente pas de seuil, puisque la puissance paramétrique générée en simple passage est une fonction exponentielle de la puissance de pompe, comme nous l'avons illustré au Chap. 1.3. Ainsi ce qui pourrait faire penser à un "seuil" n'est donc dû qu'à la sensibilité du détecteur, et au choix de l'échelle choisie pour représenter la caractéristique en puissance de l'OPG.

sorte que la vitesse de groupe de l'impulsion oscillante compense le décalage. Par ailleurs, selon le sens du décalage temporel induit par la désynchronisation, soit un retard ou une avance du signal par rapport à l'impulsion pompe, la durée et la forme des impulsions émises par l'OPO peut considérablement être modifiée. Cette dépendance de la durée des impulsions vis-à-vis de la désynchronisation des cavités a notamment fait l'objet de nombreuses études sur la compression d'impulsions picosecondes vers des impulsions sub-picosecondes [Kha95, Kha94]. Nous reviendrons plus en détail sur ces différents points dans le Chap. 2.2.

Lorsque les temps d'aller-retour de la cavité OPO et de la cavité pompe sont égaux, alors le taux de répétition des impulsions de l'OPO est exactement calqué sur celui de la source de pompe. En réalité, cette configuration n'est pas la seule envisageable du point de vue du synchronisme. D'une manière générale, le synchronisme existe lorsque le rapport des longueurs des cavités³ de la pompe et de l'OPO est un nombre entier ou une fraction rationnelle. Cette propriété peut être mise en œuvre pour créer des sources synchrones de cadences très élevées.

Ce concept a récemment été utilisé par [Kie10] pour réaliser une source SP-OPO de cadence variable avec une unique cavité OPO de longueur fixe. Dans ce cas, le taux de répétition est fixé par la source de pompe dont la cadence variable est un multiple de la cadence fondamentale de l'OPO. L'OPO fonctionne alors avec un nombre d'impulsions circulant dans sa cavité égal au rapport entre la cadence de la pompe et la cadence fondamentale de l'OPO. Avec un tel dispositif, la cadence fondamentale de l'OPO a pu être multipliée par 8. En pratique, à partir d'une cavité OPO dont le taux de répétition fondamental est de 114 MHz, la multiplication de la cadence de la pompe par 8 permet d'atteindre un taux de répétition proche du GHz. Un tel dispositif est très agile, puisqu'à partir du moment où la cadence de la pompe est largement modulable, de très hautes cadences OPO peuvent être atteintes sans avoir à modifier la géométrie du montage optique. Le fait que la cadence pompe soit un multiple de la cadence fondamentale de l'OPO présente l'avantage que chaque impulsion qui circule dans la cavité OPO est amplifiée successivement, l'inconvénient étant, qu'en contre partie de l'augmentation de la cadence, la charge thermique dans le cristal non linéaire augmente du fait de l'absorption résiduelle, ce qui limite le taux de répétition maximal.

Une seconde méthode peut être mise en œuvre lorsque la source de pompe n'a pas de cadence variable : il s'agit de construire une cavité OPO dont la longueur est une fraction rationnelle de la longueur de la cavité pompe. Dans une telle configuration, l'OPO contient également plusieurs impulsions oscillantes dans la cavité. La différence avec le schéma de pompage précédent se situe dans le fait que les impulsions ne sont pas amplifiées à chaque tour de cavité, ce qui se traduit par une émission de trains d'impulsions où les intensités crêtes décroissent du fait des

3. au sens du temps de parcours i.e. $L = v_g \times T_{cav} = v_g / \nu_{fond}$ où v_g est la vitesse de groupe de l'impulsion résonnante, T_{cav} le temps de parcours pour un tour de cavité, et ν_{fond} le taux de répétition "fondamental" correspondant.

pertes de la cavité⁴. Cette technique a permis d'atteindre des taux de répétition records de plusieurs GHz pour des sources largement accordables [Kok09].

2.1.3 SP-OPO PPLN sans réseau

Dans cette partie nous décrivons le premier montage d'OPO synchrone que nous avons réalisé. Nous verrons que les propriétés générales d'émission de cette source justifieront certaines améliorations qui seront étudiées au Chap. 2.1.4. L'objectif est de disposer d'une source picoseconde accordable autour de 2 μm et de forte puissance moyenne dans la perspective de l'utiliser en tant que source de pompage pour d'autres systèmes de conversion tels que l'OPO synchrone ZGP qui fera l'objet du Chap. 2.1.5. Dans le Chap. 3.5, nous utiliserons directement la source SP-OPO PPLN comme source de pompe lors de la caractérisation en régime picoseconde d'un miroir non linéaire pour l'infrarouge moyen. Pour ces applications, il est donc nécessaire de disposer d'une source à la fois puissante, stable, et fine spectralement. Les performances du SP-OPO seront donc jugées à l'aune de ces exigences.

Montage SP-OPO PPLN

Le SP-OPO est conçu à partir d'un cristal de PPLN proche de la dégénérescence à 1 μm et pompé par un laser Nd:YVO₄ commercial de forte puissance moyenne ($P_{\text{moy}} \sim 6 \text{ W}$) à modes verrouillés en phase par un miroir à absorbant saturable (SESAM) puis amplifié par deux étages amplificateurs pour atteindre une puissance moyenne totale en sortie $P_{\text{moy}} \sim 20 \text{ W}$. Le schéma du montage est détaillé Fig. 2.5.

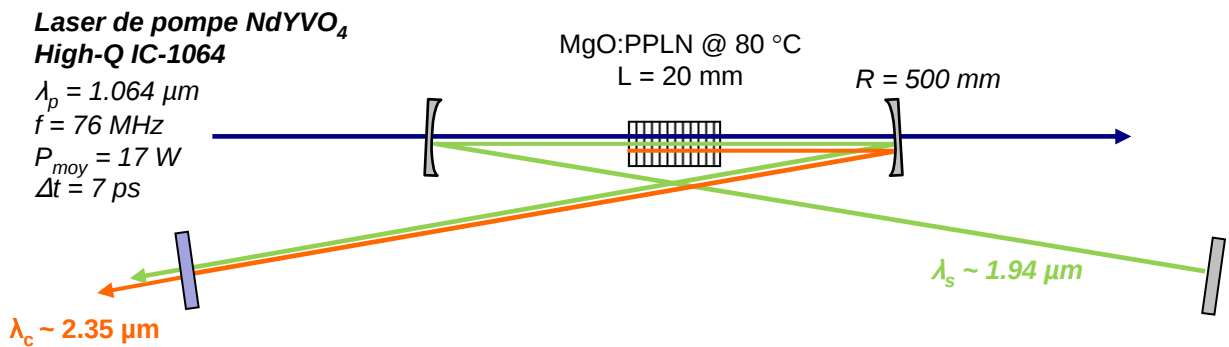


FIGURE 2.5: Schéma de montage du SP-OPO PPLN pour la génération d'impulsions picosecondes dans la bande spectrale 1,85 μm - 2,5 μm . Cavité large bande.

4. Par exemple, si la longueur de la cavité OPO est égale à 4/3 de la longueur de la cavité du laser de pompe, alors l'OPO contient 4 impulsions résonnantes, et la cadence fondamentale est multipliée par 3. Cependant, chaque impulsion est ré-amplifiée une fois tous les 3 tours de cavité OPO, soit avec une cadence 4 fois plus faible que la cadence fondamentale du laser de pompe.

La cavité OPO est linéaire, et montée dans une configuration symétrique. La longueur optique est de l'ordre de 4 m de sorte qu'il y ait synchronisme exacte avec la source de pompe, cadencée à 76 MHz. Le milieu non linéaire est un cristal de PPLN de 20 mm de long dopé MgO à 5 %, afin de limiter les effets photoréfractifs, traité anti-reflets à 1064 nm, ainsi que dans l'intervalle 1,9 μm – 2,4 μm , avec un pas d'inversion de ses domaines ferro-électriques de 32,03 μm , et placé dans un four régulé en température. Les deux miroirs concaves qui entourent le cristal non linéaire ont un rayon de courbure de 500 mm, et sont inclinés de sorte que l'angle d'incidence des faisceaux laser soit d'environ 5°, ce qui correspond à des conditions d'astigmatisme négligeables. Dans le PPLN, le waist signal calculé est d'environ 200 μm . Le rapport entre la longueur du cristal et le paramètre confocal est donc $< 0,1$ ce qui correspond à des conditions de faible focalisation. Malgré cela, étant donné la forte puissance moyenne de pompe disponible ($P_{\text{moy}} \sim 20 \text{ W}$) et la durée des impulsions ($\tau \sim 7 \text{ ps}$), l'intensité pompe crête dans le cristal demeure importante ($I_{\text{crête}} \sim 10 \text{ MW/cm}^2$) tout en étant largement inférieure au seuil de rupture des cristaux évalué dans le Chap. 2.1.1. La pompe est focalisée par une lentille de 300 mm de focale pour un faisceau de rayon à $1/e^2$ au waist dans le cristal de 200 μm . Le premier miroir concave par lequel entre la pompe est traité anti-reflets à 1064 nm, et est hautement réfléchissant sur sa face concave entre 1,9 μm et 2,06 μm . Les autres miroirs sont quant à eux hautement réfléchissants entre 1,85 μm et 2,6 μm , sauf le miroir plan de couplage qui est totalement transparent au-delà de 2 μm , et partiellement réfléchissant autour de 1,9 μm ($R_{\text{signal}} \sim 0,95$). L'OPO est donc simplement résonnant à l'onde signal, autour de $\lambda = 1,9 \mu\text{m}$, et, étant donné la réflectivité du miroir concave d'entrée, il est probable qu'il y ait une diminution de la puissance extraite derrière le coupleur de sortie pour les longueurs d'onde signal situées en dehors de l'intervalle 1,9 μm – 2,06 μm . Enfin, l'accordabilité de l'ensemble est obtenu par une modification de la température du cristal, la dégénérescence se situant vers $T = 95 \text{ }^\circ\text{C}$. L'ensemble des mesures présentées par la suite sont effectuées sur les faisceaux transmis par le coupleur de sortie.

Caractéristique en puissance

La caractéristique en puissance de l'OPO pour $T_{\text{PPLN}} = 85 \text{ }^\circ\text{C}$ est représentée Fig. 2.6. La puissance totale (signal + complémentaire) est mesurée derrière différents éléments de filtrage. Le premier composant filtrant est un miroir Rmax entre 1,85 μm et 2,5 μm , et Tmax à 1 μm , qui permet d'éliminer le résidu de pompe en sortie d'OPO. Derrière ce miroir, un filtre infrarouge en silicium traité anti-reflets entre 2 μm et 5 μm élimine le reste de pompe résiduelle. Enfin, le complémentaire et le signal sont séparés par un miroir diélectrique traité, totalement réfléchissant à 2,3 μm , et transparent à 1,9 μm . La synchronisation de la cavité OPO est telle que la puissance extraite est maximale; la longueur de la cavité correspondant au maximum de

puissance de sortie sera prise comme position de référence du synchronisme dans toute la suite des expériences.

Tout d'abord, il apparaît que le seuil d'oscillation du SP-OPO est très bas (< 1 W), ce qui autorise des taux de pompage très élevés, jusqu'à environ 20 fois le seuil. Cette caractéristique se traduit notamment par la saturation de la puissance signal extraite lorsque le taux de pompage dépasse 10 fois le seuil. La puissance totale maximale mesurée avoisine alors les 5 W avec une efficacité proche de 30 %. Ces propriétés indiquent que la cavité est trop surtendue, et qu'un couplage plus important vers l'extérieur est souhaitable. Cela augmenterait le seuil d'oscillation du SP-OPO, mais en contre partie il aurait une amélioration de l'efficacité de conversion tout en évitant la saturation en puissance de l'onde oscillante. Une telle amélioration sera décrite dans la partie suivante (Chap. 2.1.4).

Par ailleurs il existe un différentiel important entre la puissance signal et la puissance complémentaire mesurée. Cette différence tient à la manière dont les deux ondes sont extraites de la cavité. En effet, le signal étant l'onde oscillante, il est susceptible d'être couplé avec l'extérieur ailleurs⁵ que par le miroir coupleur de sortie. L'effet de ces pertes sur l'onde signal est ici relativement important du fait que la transmission du coupleur derrière lequel sont effectuées les mesure est faible, de 5 %. Ainsi, augmenter le couplage vers l'extérieur devrait réduire l'écart entre les puissances signal et complémentaire, en rendant négligeables les pertes du signal relativement à la puissance effectivement mesurée derrière le coupleur. Cette propriétés sera confirmée au Chap. 2.1.4 avec l'utilisation expérimentale d'un couplage plus fort, ainsi qu'à travers les différentes simulation menées au Chap.2.2.

Propriétés spectrales

Étant donné qu'aucun élément filtrant ne vient contraindre le spectre de l'onde signal résonnante, nous qualifierons la cavité de la Fig. 2.5 de cavité OPO large bande. En outre, le cristal de PPLN étant construit pour fonctionner proche de la dégénérescence, la bande passante paramétrique est extrêmement large. A titre d'illustration, la bande de gain théorique⁶ en longueur d'onde autour de $\lambda_{\text{complémentaire}} = 2,35 \mu\text{m}$ est $\Delta\lambda = 80 \text{ nm}$. Dans les conditions de pompage et de couplage du signal décrites dans la partie précédente, nous avons vu qu'il était possible de monter plus de 10 fois au dessus du seuil, ce qui tend à faire saturer la puissance de l'onde signal; nous nous situons donc dans des conditions de gain très élevé dans le cristal non linéaire. Ces caractéristiques se traduisent spectralement par une tendance du SP-OPO à émettre sur une très large gamme de longueurs d'onde lorsque la cavité OPO est exactement

5. Du fait des pertes passives de la cavité, et des transmissions résiduelles des miroirs de cavité.

6. La bande spectrale de gain est ici évaluée comme étant l'intervalle en longueur d'onde sur lequel le désaccord de phase ΔkL varie entre $-\pi$ et π . Cette définition donne une estimation de la bande de gain légèrement plus large, d'environ 13 %, qu'avec le critère de largeur à mi-hauteur de la fonction $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$.

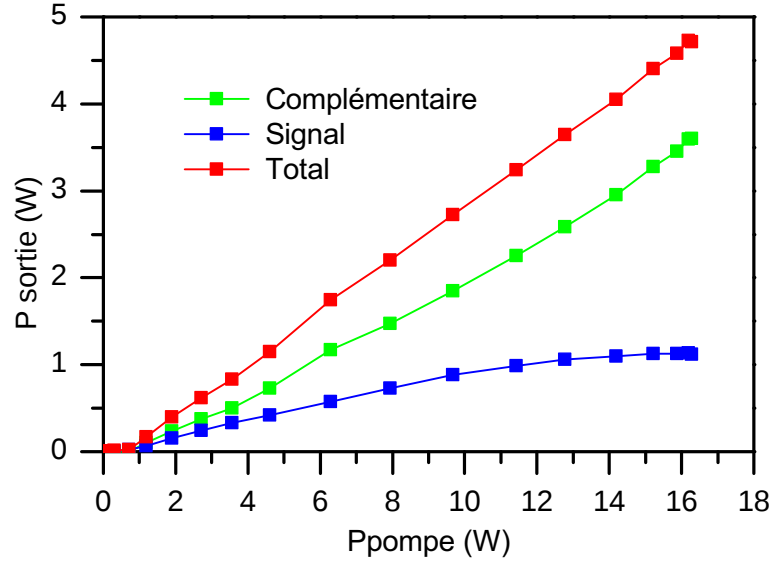


FIGURE 2.6: Caractéristique en puissance de l'OPO derrière le coupleur de sortie. La température du PPLN est de 85 °C.

synchronisée. La Fig. 2.7 donne un exemple typique du spectre mesuré en sortie de l'OPO à la synchronisation.

La résolution du spectromètre utilisé pour cette mesure n'est que de 10 nm, mais est suffisante pour mettre en évidence le fait que le spectre émis par l'OPO à la synchronisation est extrêmement large ($\Delta\lambda \sim 100$ nm à la fois pour l'onde signal et l'onde complémentaire). En outre, le spectre émis est instable. En particulier, les pics d'émission que l'on peut observer sur le spectrogramme de la Fig. 2.7 évoluent dans le temps à la fois en amplitude et en position. L'origine de ces variations peut être attribuée soit aux fluctuations tir à tir du bruit quantique sur lequel démarre l'OPO, soit à des fluctuations thermiques ou mécaniques dont le temps caractéristique est plus important. Cependant, étant donné le temps d'intégration des spectres par le spectromètre, au mieux d'une milliseconde, nous n'avons pas la possibilité de discriminer l'effet prépondérant sur les variations du spectre.

Une méthode intéressante pour affiner spectralement l'émission d'un SP-OPO large bande consiste à désynchroniser légèrement la cavité OPO par rapport à la source de pompe, de sorte que le retard (ou l'avance) imposé(e) à l'impulsion signal par rapport à l'impulsion pompe se traduise par une sélection spectrale des classes de longueur d'onde qui optimisent le compromis entre la maximisation du gain et la minimisation de la différence des vitesses de groupes entre le signal et la pompe [Rya08, Kha95, Fal95]. Dans le cas de notre SP-OPO à base de PPLN, la désynchronisation se traduit bien par un affinement spectral, et une sélection en longueur d'onde. Cet effet est illustré par la Fig. 2.8 où est représentée la mesure de la puissance complémentaire en sortie d'OPO en fonction de la désynchronisation, en même temps qu'un exemple

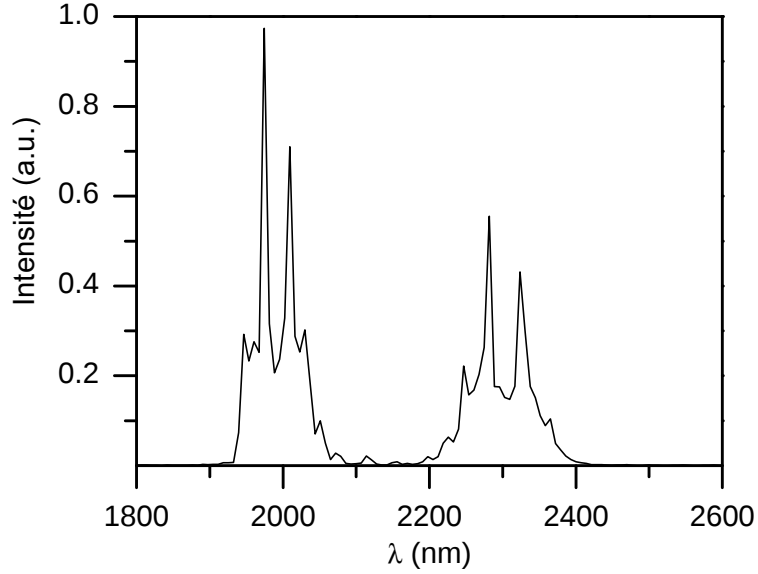


FIGURE 2.7: Spectre OPO à la synchronisation. $T_{PPLN} = 85$ °C.

de spectrogramme relevé hors synchronisation exacte.

La désynchronisation s'accompagne d'une réduction importante de la largeur spectrale. Néanmoins, cet affinement spectral s'effectue au prix d'une lourde perte sur la puissance totale extraite de la cavité, la plage totale de désynchronisation correspondant à la moitié de la puissance maximale extraite étant d'environ 1 mm. Dans le cas développé Fig. 2.8, la cavité est raccourcie d'une quantité $\Delta L = -0,84$ mm, le spectre s'affine à $\Delta\lambda < 10$ nm (limite de résolution du spectromètre), mais la puissance du complémentaire extraite est divisée de moitié. L'affinement spectral dû à la désynchronisation s'accompagne généralement d'une modification de la durée des impulsions émises par l'OPO [Kha95]. Cependant, au moment de l'expérience, nous ne disposons pas d'outils de mesure de la durée d'impulsion. Les conséquences de la désynchronisation sur la durée et la forme des impulsions émises par l'OPO synchrone large bande seront discutées ultérieurement lors de l'étude numérique du Chap. 2.2.

Une autre propriété spectrale liée à la désynchronisation est le fait que selon la valeur du décalage ΔL imposé à la cavité OPO, les longueurs d'onde centrales émises par l'OPO varient. Dans une cavité SP-OPO large bande, la désynchronisation joue donc à la fois un rôle d'affinement spectral et de paramètre d'accordabilité. C'est ce qui est illustré Fig. 2.9, où est représenté le spectre relevé en sortie d'OPO pour différentes valeurs de ΔL .

En pratique, l'onde signal est plus rapide que l'onde de pompe dans le PPLN, ce qui signifie a priori que la cavité OPO présente une longueur optique légèrement supérieure à la cavité du laser de pompe lorsqu'il y a synchronisme exact. La longueur de cavité OPO pour laquelle la puissance de sortie est maximale est considérée expérimentalement comme étant la référence de la synchronisation ($\Delta L = 0$). Lorsque la cavité OPO est rallongée ($\Delta L > 0$) l'impulsion

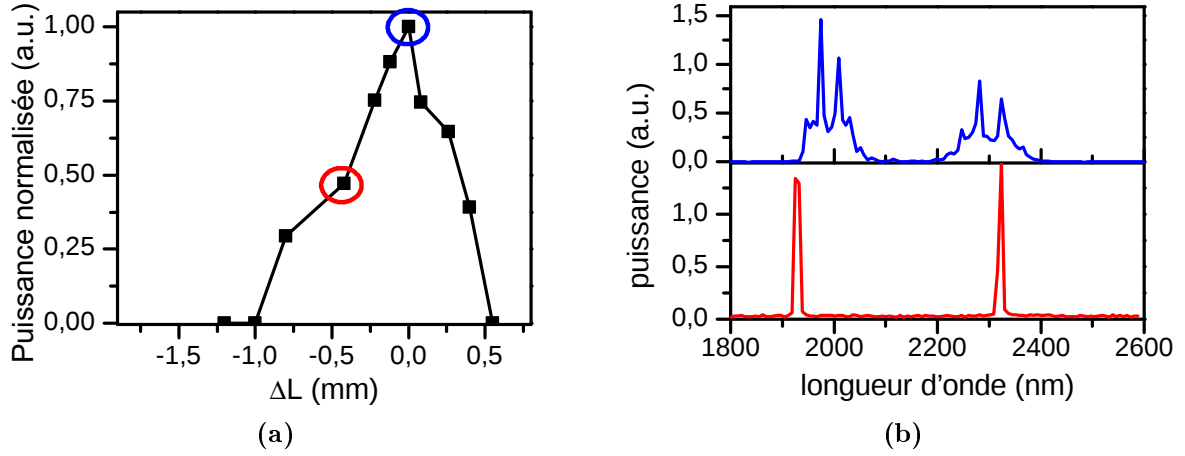


FIGURE 2.8: Effet de la désynchronisation du SP-OPO large bande sur la puissance de sortie et le spectre émis. $T_{\text{PPLN}} = 85^\circ\text{C}$. (a) Puissance signal normalisée en sortie d'OPO en fonction de la variation de longueur de la cavité. (b) Spectres comparés à la synchronisation (bleu) et hors synchronisation (rouge).

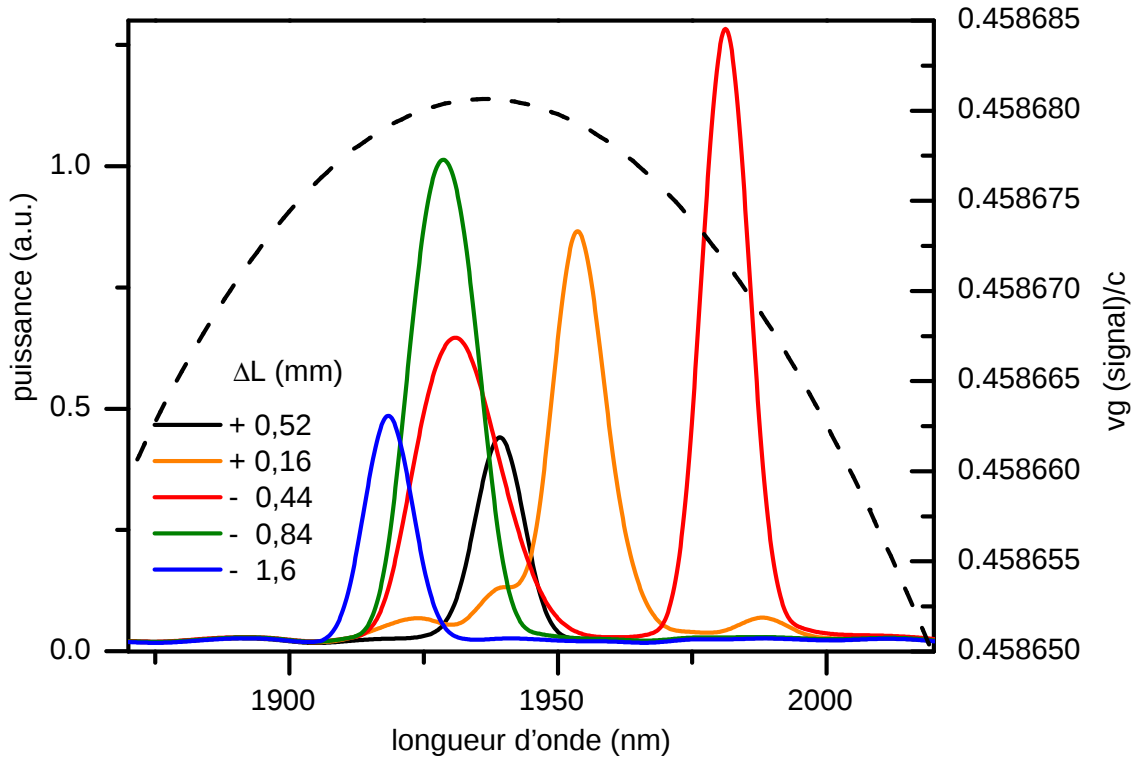


FIGURE 2.9: Spectres d'émission du SP-OPO PPLN en fonction de la désynchronisation ΔL . Dans cette expérience $T_{\text{PPLN}} = 75^\circ\text{C}$. En pointillés la vitesse de groupe du signal en fonction de la longueur d'onde.

signal arrive dans le cristal non linéaire légèrement en retard par rapport à l'impulsion pompe. La Fig. 2.9 montre que le spectre de l'onde signal a tendance à se décaler vers $\lambda = 1,935 \mu\text{m}$ où la vitesse de groupe atteint son maximum (spectre de couleur noire). Puis, lorsque la cavité est progressivement raccourcie, le spectre se décale vers les longueurs d'onde pour lesquelles la vitesse de groupe diminue en se décalant vers les grandes longueurs d'onde. Le spectre représenté pour $\Delta L = -0,44 \text{ mm}$ (courbe rouge) est remarquable puisqu'en cette position, l'OPO oscille sur deux longueurs d'onde principales réparties autour du maximum de la courbe de vitesse de groupe. Cet effet indique que la compensation de la désynchronisation par la vitesse de groupe de l'impulsion signal n'est pas l'unique paramètre qui gouverne l'adaptation spectrale de l'OPO. D'autres paramètres comme le rapport gain / pertes perçu par le signal, et la vitesse de groupe du complémentaire jouent un rôle important mais difficilement quantifiable. L'adaptation de la vitesse de groupe du signal à la désynchronisation est donc un phénomène complexe qui résulte d'une optimisation à la fois des pertes, du désaccord de phase introduit par les différences de vitesse de groupe et de la compensation du retard (ou de l'avance) introduit par la variation de longueur de la cavité. Dans le cas de notre OPO, cette optimisation semble privilégier les longueurs d'onde courtes sur le signal lorsque la cavité se raccourcit au-delà de $\Delta L = -0,44 \text{ mm}$, comme le montrent les deux derniers spectres enregistrés expérimentalement Fig. 2.9.

Propriétés spatiales

Enfin, il est apparu expérimentalement que la désynchronisation de l'OPO se traduisait non seulement par une adaptation spectrale de l'émission, mais aussi par une modification à la fois du profil spatial et du pointé des faisceaux émis par l'OPO.

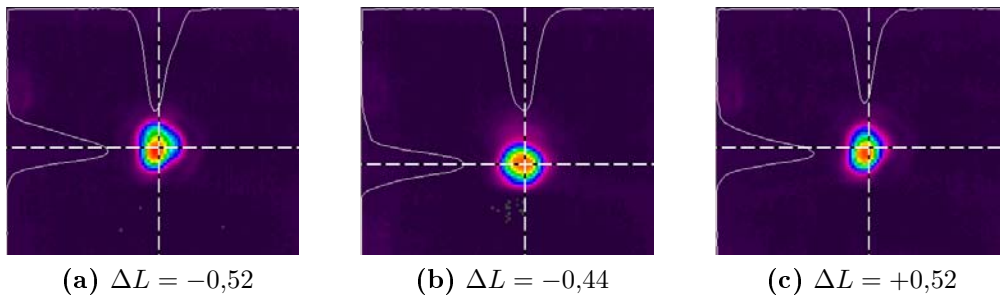


FIGURE 2.10: Profils spatiaux de l'onde complémentaire en fonction de la désynchronisation. Les échelles de couleurs ne sont pas identiques d'une figure à l'autre du fait des écarts de puissance moyenne.

Sur la Fig. 2.10 sont représentés quelques exemples de captures du faisceau complémentaire relevées en sortie d'OPO par une caméra pyroélectrique et pour différents états de désynchronisation. Le fait que le profil spatial change à la fois légèrement de forme et de position indique

que la désynchronisation, en plus de ses conséquences spectro-temporelles, se traduit par une adaptation spatiale de l'émission dans le cristal non linéaire. Lorsque l'OPO est à la synchronisation exacte, le faisceau complémentaire est faiblement multimode avec un $M^2 \sim 2,2$. Ainsi, d'une manière comparable aux propriétés spectrales, les propriétés spatiales des faisceaux émis par l'OPO se dégradent par rapport à celles du faisceau de pompe du fait de la saturation. Les modifications du pointé avec la désynchronisation indiquent de plus que le faisceau signal résonnant dispose d'un degré de liberté supplémentaire, en plus des libertés spectro-temporelles, pour compenser le changement de longueur de la cavité.

En conclusion, les propriétés spatiales et spectrales de l'OPO synchrone large bande conviennent relativement mal à une utilisation en tant que source de pompage. Le principal inconvénient provient du fait que le maximum de puissance émis par l'OPO coïncide avec une émission largement multimode spectralement et légèrement multimode spatialement. Désynchroniser l'OPO permet de sélectionner un nombre plus réduit de classes de longueur d'onde dont la vitesse de groupe maximise le rapport gain / pertes subi par l'onde signal, mais cette sélection s'accompagne d'une perte significative de puissance moyenne, et d'une instabilité sur le profil spatial des faisceaux.

2.1.4 SP-OPO PPLN avec réseau

Afin de contraindre l'émission du SP-OPO, une solution consiste à insérer dans la cavité un filtre spectral. L'insertion d'un réseau de diffraction en configuration Littrow en remplacement d'un réflecteur plan de la cavité est une technique efficace largement décrite dans les travaux de Hanna et Puech [Han01, Pue99]. Par ailleurs, dans la partie précédente, l'étude de la caractéristique en puissance de l'OPO large bande nous a permis d'identifier qu'au delà d'un taux de pompage supérieur à 10, la puissance du signal sature. Il s'agit d'une saturation de la puissance moyenne, mais comme nous l'avons déjà évoqué au Chap. 1.2.2, la saturation peut être à l'origine d'un façonnage très complexe des impulsions générées par un processus d'amplification paramétrique. Cet effet est donc à éviter, la solution consistant à remplacer le coupleur de sortie initial ($R_{\text{signal}} = 0,95$) par un coupleur largement moins réfléchissant. Nous verrons le cas d'un coupleur de coefficient de réflexion au signal $R_{\text{signal}} \sim 0,5$.

Dans cette partie, sauf mention contraire, nous présenterons les performances nominales de l'OPO synchrone PPLN obtenues par l'insertion d'un réseau de diffraction intracavité, et l'utilisation d'un coupleur de faible réflectivité.

Sélection spectrale par un réseau de diffraction

Le schéma de montage est représenté Fig. 2.11. Le réseau à échelettes, dont l'angle de blaze est optimisé pour $1,9 \mu\text{m}$, présente 600 traits/mm. Le calcul de la bande spectrale de

réflectivité du réseau se fait en considérant la dispersion angulaire du réseau, et le recouvrement sur lui même d'un faisceau gaussien incident collimaté. D'après [Pue99], la bande spectrale de réflectivité du réseau est donnée par :

$$\Delta\nu_{\text{réseau}} \simeq \frac{0,83c}{\pi w_0 \tan \theta}, \quad (2.2)$$

où c est la célérité de la lumière, w_0 le rayon au waist⁷ du faisceau incident sur le réseau, et θ est l'angle d'incidence. L'angle d'incidence θ peut être calculé par l'équation du réseau en configuration Littrow, l'angle d'incidence étant égal à l'angle de réflexion :

$$\tan \theta = \left(\frac{4D^2}{\lambda^2} - 1 \right)^{-1/2}, \quad (2.3)$$

D est l'inverse du nombre de traits par unité de longueur. Dans notre configuration où le réseau présente 600 traits/mm, l'angle d'incidence à $\lambda = 1,9 \mu\text{m}$ est $\theta = 34,75^\circ$. Le rayon au waist signal calculé au niveau du réseau est d'environ $w_0 \sim 1 \text{ mm}$, ce qui nous donne une bande passante $\Delta\nu_{\text{réseau}} \sim 114 \text{ GHz}$, soit $\Delta\lambda_{\text{réseau}} \sim 1,4 \text{ nm}$ à $\lambda = 1,9 \mu\text{m}$.

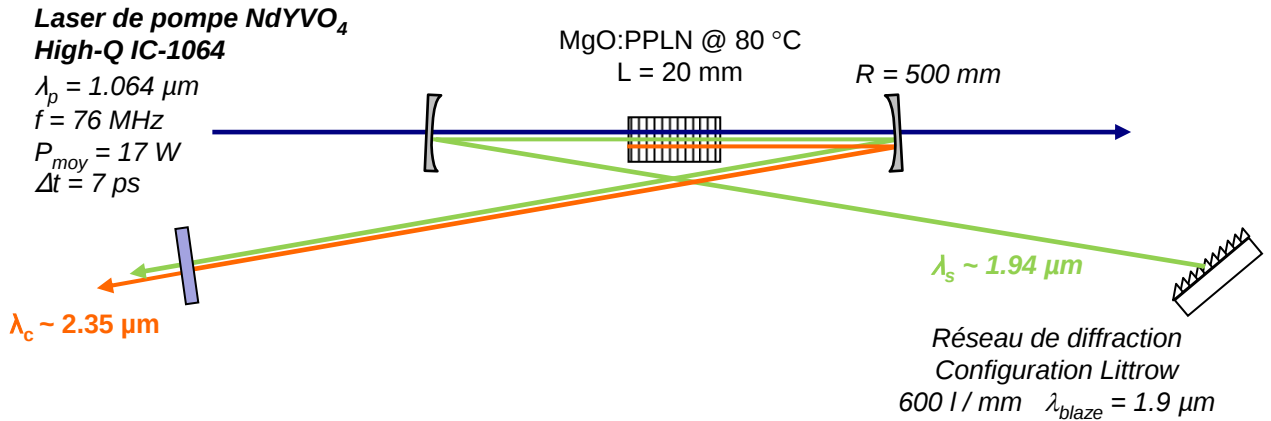


FIGURE 2.11: Montage expérimental du SP-OPO PPLN avec réseau de diffraction.

Caractérisation en puissance

Avec le nouveau montage, la caractéristique en puissance est représentée Fig. 2.12. Dans cette expérience, la séparation des faisceaux pompe, complémentaire et signal a pu être menée entièrement grâce à l'utilisation de miroirs diélectriques dont les réflectivités en fonction de la longueur d'onde incidente sont connues avec précision. Comme attendu, du fait du changement de coupleur, l'écart entre la puissance complémentaire et la puissance signal extraite est

7. Le waist désigne le rayon minimal à $1/e^2$ d'un faisceau laser. Cette convention est conservée dans toute la suite du manuscrit.

considérablement réduit par rapport à la mesure effectuée Fig. 2.6.

Le fait d'utiliser un coupleur de plus faible réflectivité augmente notablement le seuil d'oscillation, qui est ici d'environ 5 W. Le taux de pompage maximal accessible n'est donc plus que de 4, mais l'efficacité de la conversion est améliorée, ce qui se traduit par le fait que la puissance extraite atteint un niveau maximal comparable (environ 7 W) à celui atteint par la première configuration d'OPO plus surtendue. La réduction de la réflectivité du coupleur permet donc de réduire significativement la saturation de la conversion non linéaire dans l'OPO PPLN. Cette réduction de la saturation s'accompagne d'une amélioration notable de la qualité des faisceaux émis, se rapprochant de la qualité du faisceau de pompe : le facteur de propagation du complémentaire est évalué à $M^2 \sim 1,2$ ce qui est proche de la limite de diffraction. Pour notre OPO PPLN, cette amélioration de la qualité des faisceaux émis est à relier au changement de coupleur plutôt qu'à la présence du réseau intracavité. En effet, dans la configuration avec le réseau et le coupleur de sortie de réflectivité $R_{\text{signal}} = 0,95$, le faisceau complémentaire est légèrement multimode, avec un facteur de propagation d'environ $M^2 \sim 2^8$.

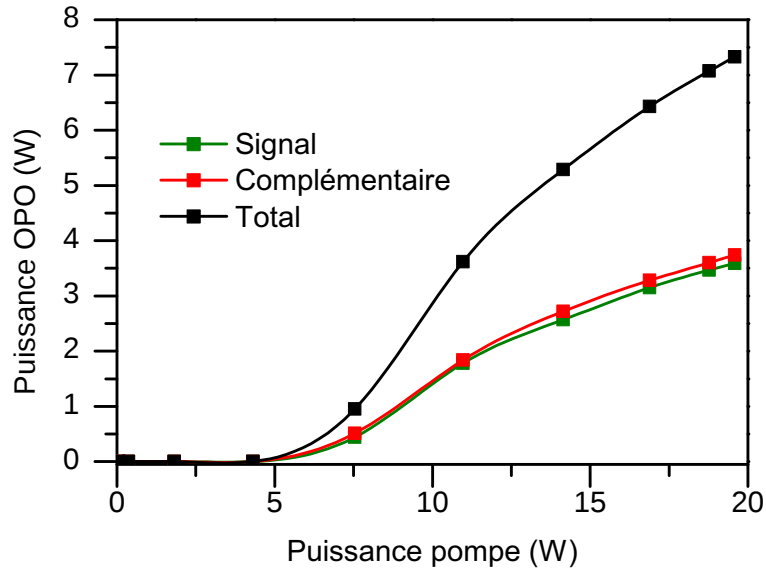


FIGURE 2.12: Caractéristique en puissance du SP-OPO PPLN avec réseau et coupleur $R_{\text{signal}} = 0,5$. $T_{\text{PPLN}} = 85^\circ\text{C}$, le synchronisme est exact.

8. Au cours de la thèse, nous avons utilisé le SP-OPO PPLN principalement pour des applications de pompage de systèmes de conversion de fréquence entre $2,3\ \mu\text{m}$ et $2,5\ \mu\text{m}$ (OPO ZGP au Chap. 2.1.5, puis miroir non linéaire au Chap. 3.5.2). Nous nous sommes donc essentiellement penchés sur la qualité du faisceau complémentaire. Néanmoins, la qualité des faisceaux signal et complémentaire n'est pas nécessairement identique. En particulier, l'onde signal étant résonnante, son extension spatiale peut être filtrée par la cavité OPO, ce qui favorise a priori une meilleure qualité de faisceau que pour le complémentaire.

Accordabilité

La longueur d'onde du signal peut être réglée en modifiant la température du cristal de PPLN puis, pour une température donnée, en modifiant l'angle d'incidence sur le réseau (Eq. 2.3). Pour une température donnée, il existe un optimum sur le réglage de l'orientation du réseau qui donne un maximum de puissance en sortie, le réglage est alors tel que le gain disponible à la température T est maximisé. L'accordabilité est donc réalisée à la fois en changeant la température du cristal non linéaire et en recherchant le maximum de puissance en sortie par rotation du réseau. De cette manière, nous avons pu mesurer une accordabilité du SP-OPO PPLN entre $1,85\text{ }\mu\text{m}$ et $2,5\text{ }\mu\text{m}$ (signal et complémentaire confondus) comme l'indique la Fig. 2.13. La puissance complémentaire est maximale dans une plage en température qui s'étend de $77\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $90\text{ }^{\circ}\text{C}$, correspondant à des longueurs d'onde du signal comprises entre $1,95\text{ }\mu\text{m}$ et $2,03\text{ }\mu\text{m}$. Dans cette zone, l'OPO bénéficie à la fois d'un gain élevé et de pertes minimales. Lorsque la température diminue, l'accord de phase s'éloigne de la dégénérescence et le gain diminue. Cette diminution s'accompagne en outre d'une augmentation des pertes de la cavité, notamment par le miroir concave qui transmet la pompe incidente dont la réflectivité commence à chuter pour le signal en deçà de $\lambda = 1,9\text{ }\mu\text{m}$. Lorsque la température se rapproche de la dégénérescence, la puissance chute également du fait de l'augmentation des pertes induites par le miroir concave d'entrée, dont la réflectivité chute au-delà de $\lambda = 2,06\text{ }\mu\text{m}$.

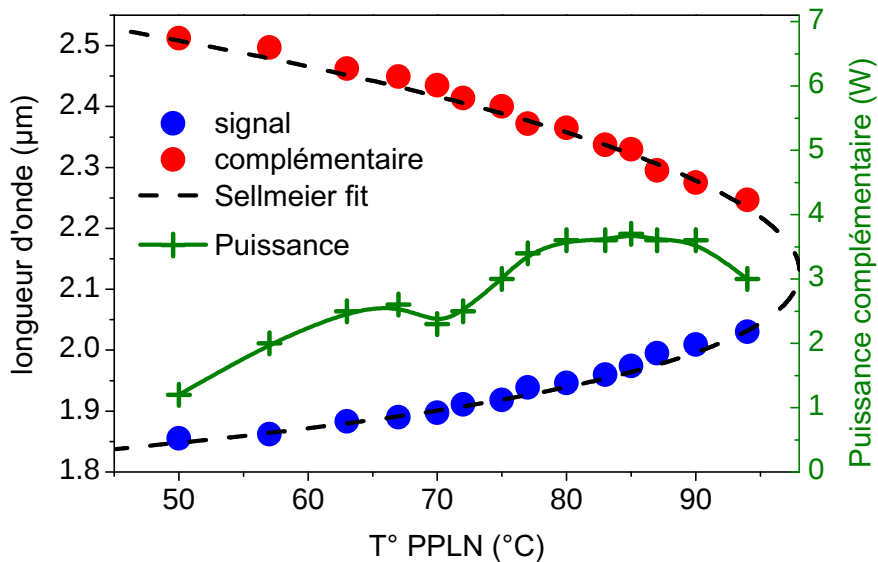


FIGURE 2.13: Accordabilité du SP-OPO PPLN en fonction de la température, et puissance maximale du complémentaire extraite en sortie.

Propriétés spectro-temporelles

Le principal bénéfice lié à l'utilisation du réseau de diffraction intracavité est la réduction radicale de la largeur spectrale du signal et du complémentaire émis par l'OPO. La Fig. 2.14 montre un exemple typique de trace d'autocorrélation mesurée sur le signal, ainsi que son spectre mesuré avec un spectromètre de résolution 0,4 nm. Les mesures sont effectuées pour un synchronisme exact, c'est-à-dire un maximum de puissance en sortie. L'autocorrélation de l'impulsion signal a une largeur à mi-hauteur de 9 ps, ce qui correspond à des impulsions d'environ 6,5 ps si leur profil temporel est supposé gaussien. Le spectre quant à lui possède une largeur à mi-hauteur approximative de 1,3 nm, ce qui est cohérent avec la valeur théorique de la bande passante du réseau de diffraction. Étant donné la faible résolution spectrale avec laquelle la mesure est effectuée devant la largeur du spectre, le produit durée d'impulsion par largeur spectrale peut être majoré par la valeur $\Delta\tau \cdot \Delta\nu \leq 0,65$. Nous sommes donc relativement proches de la limite de Fourier de 0,44 qui correspond aux impulsions gaussiennes.

La nouvelle configuration de la cavité OPO, contenant le réseau de diffraction et un coupleur de sortie de plus faible réflectivité, a donc eu pour effet principal de considérablement augmenter la luminance de la source. En effet, pour une puissance de sortie équivalente à celle relevée en sortie de la cavité large bande, le spectre du signal est proche de la limite de la transformée de Fourier des impulsions. Une telle amélioration est très importante dans la perspective d'une utilisation de la source SP-OPO PPLN en tant que source de pompage.

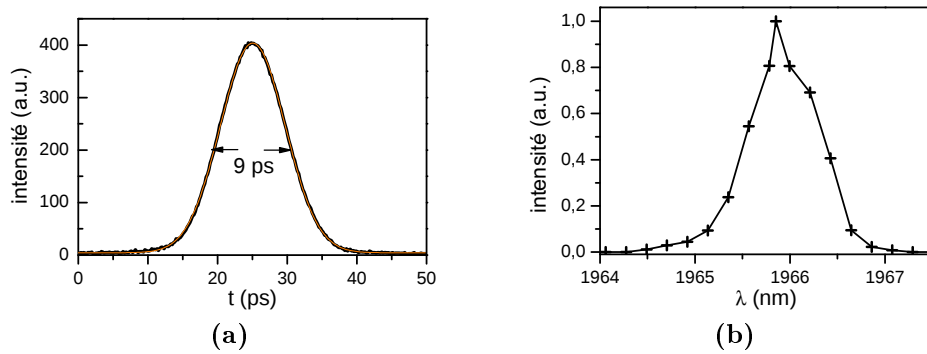


FIGURE 2.14: (a) Autocorrélation du signal et ajustement gaussien (orange), et (b) spectre signal pour $T_{PPLN} = 85$ °C. Taux de pompage à 4 fois le seuil ($P_{pompe} = 20$ W).

Effets de désynchronisation

Nous nous sommes enfin intéressés au comportement de la nouvelle configuration vis-à-vis de la désynchronisation. Pour cela, nous avons tout d'abord relevé la puissance de sortie en fonction des variations de longueur de la cavité OPO en même temps que la durée des

impulsions signal émises⁹.

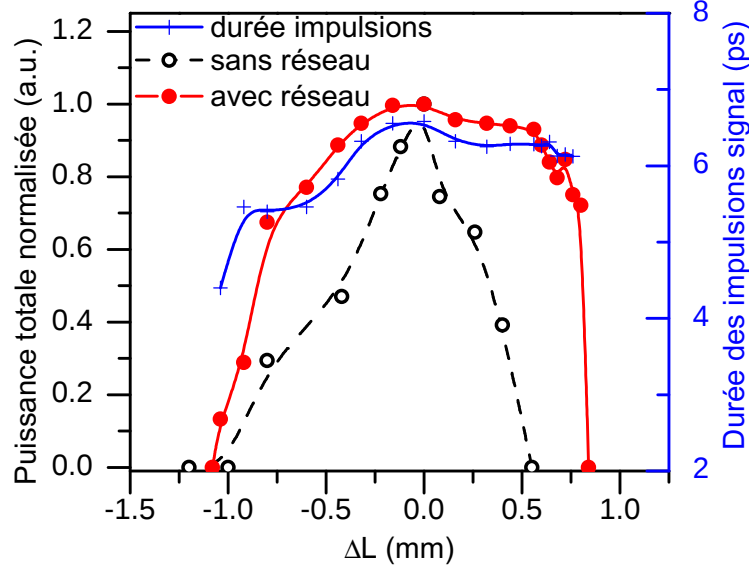


FIGURE 2.15: Puissance en sortie de SP-OPO et durée d’impulsion signal en fonction de la désynchronisation ΔL . Pour toutes les courbes, le taux de pompage est maximal (environ 4 pour l’OPO avec réseau, et 20 pour l’OPO sans réseau), et la température du cristal est $T_{\text{PPLN}} = 85^\circ\text{C}$.

La Fig. 2.15 montre une propriété remarquable de l’OPO synchrone avec réseau : la tolérance vis-à-vis de la désynchronisation est plus importante que pour l’OPO sans réseau¹⁰. Cette propriété est cohérente avec les observations déjà faites par [Han01] pour une source paramétrique similaire basée sur un cristal de PPLN. Dans notre cas, la largeur à mi-hauteur de la courbe de puissance en fonction de la désynchronisation est environ deux fois plus importante que pour l’OPO monté sans réseau. Par ailleurs, alors que pour un OPO large bande sans réseau la durée des impulsions dépend fortement de la désynchronisation [Rya08, Fal95, Kha95], ici la durée d’impulsion n’est quasiment pas modifiée sur la plage où l’OPO émet une puissance maximale, entre $\Delta L = -0,25$ mm et $\Delta L = +0,5$ mm, et vaut environ $\Delta\tau \sim 6,5$ ps. Nous expliciterons cette différence au Chap. 2.2. Spectralement, l’utilisation du réseau impose une longueur d’onde quasiment fixe sur toute la plage de désynchronisation. Au cours de l’expérience de désynchronisation, nous avons néanmoins pu observer de légères modifications, de l’ordre de quelques nanomètres, sur la longueur d’onde correspondant au maximum de puissance du signal. Ce type de variation n’est pas mentionné dans la littérature, où le spectre des ondes est considéré

9. les traces d’autocorrélations sont mesurées avec un autocorrélateur commercial de la marque APE (pulsecheck 50) dont la bande passante est limitée entre $1,5\ \mu\text{m}$ et $2,2\ \mu\text{m}$; les mesures de durée d’impulsion du complémentaire sont donc généralement inaccessibles dans la gamme de fonctionnement nominale de notre OPO.

10. Propriété qu’il faut tout de même relativiser ici, du fait que les deux configurations, avec et sans réseau, ne sont pas mises en œuvre avec le même coupleur de sortie.

comme fixé par le réseau [Han01]. La Fig. 2.16 donne un aperçu du décalage en fréquence subi par l'onde complémentaire pour une cavité OPO qui se raccourcit par rapport au synchronisme exact. L'amplitude du décalage sur le spectre complémentaire est ici d'environ 3 nm, ce qui correspond à une amplitude d'environ 2 nm pour l'onde signal. Le sens du déplacement du spectre semble cohérent avec le sens de variation de la longueur de la cavité OPO : ici la cavité est raccourcie par rapport à la position où la puissance en sortie est maximale, et le spectre du complémentaire se déplace légèrement vers les grandes longueurs d'onde, ce qui correspond à une diminution de la vitesse de groupe. Ces variations sont néanmoins difficiles à interpréter et ne sont pas encore totalement comprises, mais il est fort probable qu'elles participent à augmenter la tolérance de l'OPO synchrone vis-à-vis de la désynchronisation.

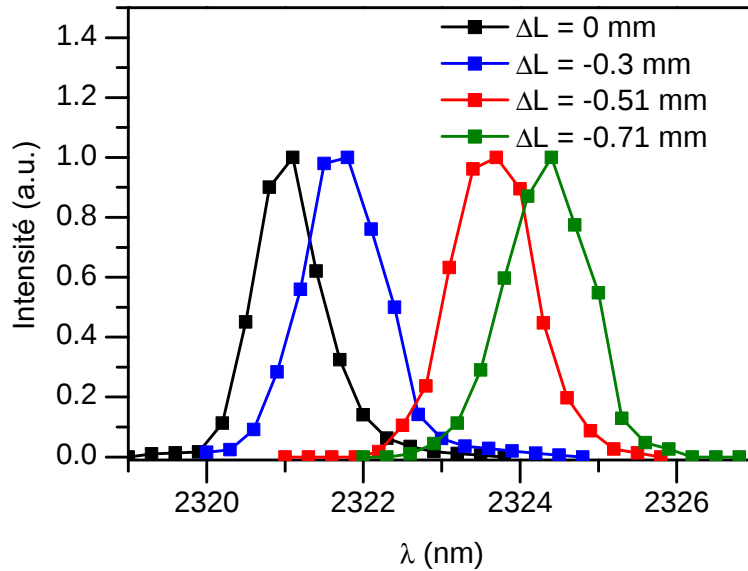


FIGURE 2.16: Spectre de l'onde complémentaire pour différents rétrécissements de la cavité SP-OPO PPLN avec réseau.

Le réseau de diffraction stabilise donc considérablement l'émission de l'OPO, à la fois temporellement et spectralement. Cependant, la différence de comportement en terme de puissance de sortie en fonction de la désynchronisation, en particulier la meilleure tolérance de la cavité avec réseau, reste pour le moment difficile à comprendre. En effet, un tel comportement peut sembler paradoxal : a priori, l'OPO monté avec le réseau de diffraction n'étant pas libre d'adapter son spectre d'émission pour compenser les variations de longueur de la cavité, sa tolérance vis-à-vis de la désynchronisation devrait être moins grande que pour une cavité large bande. Nous tenterons d'éclaircir ces aspects dans le Chap. 2.2.3. La qualité spatiale des faisceaux émis par l'OPO PPLN semble quant à elle dépendre plus particulièrement du couplage et du taux de pompage. En effet, la réduction des effets de saturation par l'utilisation du coupleur $R_{\text{signal}} = 0,50$ s'est accompagnée d'une amélioration notable de la qualité des faisceaux signal

et complémentaire.

2.1.5 SP-OPO ZGP

Grâce aux améliorations des propriétés de luminance du SP-OPO PPLN, nous disposons désormais d'une source picoseconde largement accordable dans l'infrarouge moyen, de forte puissance moyenne, et fine spectralement. Ces propriétés en font un outil tout à fait adapté au pompage d'autres systèmes de conversion de fréquence pour aller plus loin dans l'infrarouge. Dans cette partie, nous présentons la réalisation expérimentale d'un OPO synchrone construit à partir d'un cristal de germano-diphosphate de zinc ou ZGP (ZnGeP_2) émettant dans la bande $4 - 5,7 \mu\text{m}$. Ce travail constitue une première, et fait l'objet d'un article publié dans la revue Optics Letters [Dhe10].

Quelques propriétés importantes du ZGP

D'élaboration difficile, le ZGP a été synthétisé pour la première fois sous forme monocristalline par Masumoto en 1966 [Mas66]; il est aujourd'hui exclusivement utilisé par la conversion de fréquence dans la bande $2 - 8 \mu\text{m}$. Il s'agit d'un cristal uniaxe positif ($n_e > n_o$) appartenant au groupe de symétrie $\bar{4}2m$ (type AgGaS_2). Parmi les cristaux de type chalcopyrite, le ZGP est l'un des plus robustes pour les applications d'optique non linéaire. Il combine en effet une grande efficacité non linéaire ($d_{14} = 75 \text{ pm/V}$), un seuil de dommage optique élevé, une bonne conductivité thermique, et la possibilité d'élaborer des échantillons de grandes taille [Zaw06], ce qui en fait un candidat tout à fait adapté aux fortes puissances. Son seul véritable inconvénient, est son seuil de transparence en longueur d'onde, qui se situe autour entre $2 \mu\text{m}$ et $2,2 \mu\text{m}$ selon les échantillons et les méthodes de croissance : il est donc impossible de pomper le ZGP avec des sources néodyme classiques à $1 \mu\text{m}$. La Fig. 2.17 donne la courbe de transparence du ZGP d'après [Zel01] et Verozubova [Ver00].

Jusqu'à présent les principaux efforts de recherche sur le ZGP se sont concentré sur les sources OPO nanosecondes : la puissance moyenne pour ces sources a été poussée au régime multiwatts [Bud00], et l'accordabilité a été démontrée entre $3,8 \mu\text{m}$ et $12,4 \mu\text{m}$ [Vod03] avec un unique cristal. L'énorme potentiel du ZGP vis-à-vis de l'accordabilité est illustré Fig. 2.18. Dans le domaine des impulsions ultra-brèves, le ZGP a été utilisé dans des montages de génération et d'amplification paramétrique, mais jusqu'à présent le pompage synchrone du ZGP n'avait encore jamais été examiné en dépit de la possibilité d'émettre des impulsions brèves avec une efficacité de conversion et une accordabilité élevées.

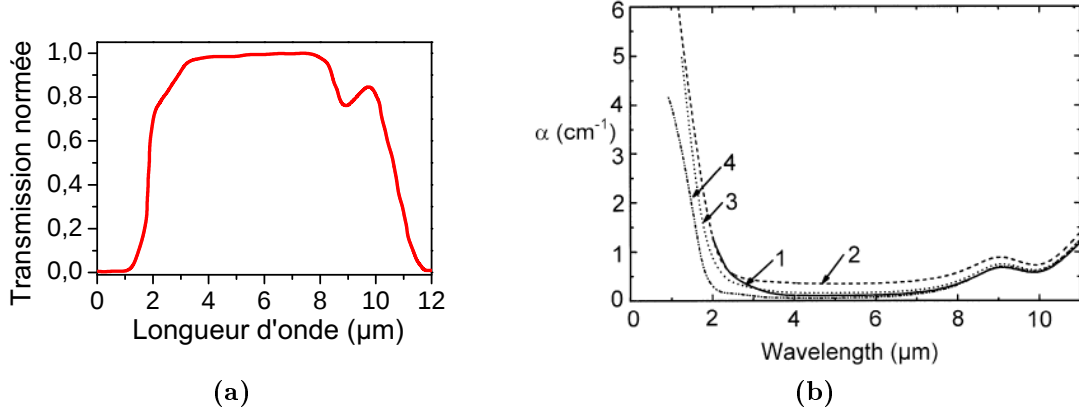


FIGURE 2.17: (a) Transmission en cm^{-1} d'après [Zel01], (b) absorption d'après [Ver00].

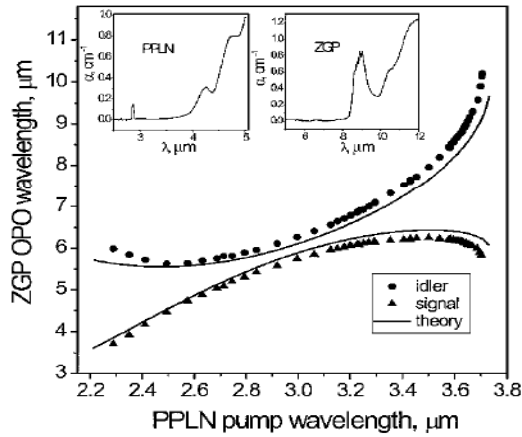


FIGURE 2.18: Accordabilité expérimentale d'un OPO ZGP d'après [Vod03] obtenue dans une configuration d'accord de phase non-critique (en angle) de type II ($\theta = 90^\circ$). L'accordabilité du ZGP est entièrement réalisée en accordant la longueur d'onde de la source de pompe.

Montage expérimental

Pour mettre en œuvre le pompage synchrone d'un OPO ZGP, nous avons opté pour une source SP-OPO PPLN largement accordable autour de $\lambda = 2 \mu\text{m}$. Ce type de configuration présente l'avantage de mettre intégralement à profit les larges accordabilités des sources OPO. Le schéma de montage est représenté Fig. 2.19. L'OPO ZGP est directement pompé par le complémentaire du SP-OPO PPLN accordable entre $2,25 \mu\text{m}$ et $2,5 \mu\text{m}$. Il est à noter qu'au moment de la mise en œuvre de cette expérience sur ZGP, notre SP-OPO PPLN est certes monté avec le réseau de diffraction intracavité en configuration Littrow, mais aussi avec un coupleur de sortie de fort coefficient de réflexion ($R_{\text{signal}} = 0,95$). Le spectre d'émission de l'OPO pompe est donc contraint par la présence du réseau, mais le facteur de propagation de l'onde complémentaire utilisée pour le pompage du ZGP a été mesuré avec un M^2 de l'ordre de 2 (voir Chap. 2.1.4).

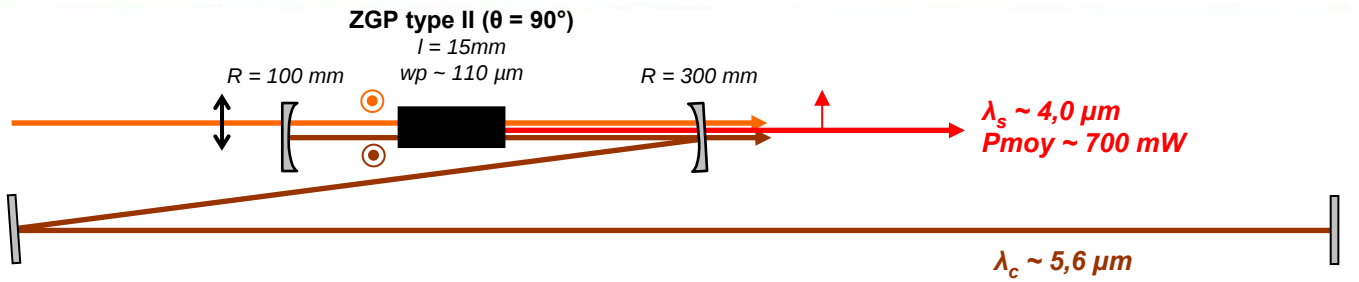


FIGURE 2.19: Schéma de montage SP-OPO ZGP.

Lors de nos expérimentations, nous avons testé deux cristaux de ZGP taillés à $\theta = 90^\circ$, correspondant à un accord de phase de type II non critique en angle, de 15 mm et 20 mm de longueur. Les cristaux sont traités anti-reflets aux longueurs d'ondes d'intérêt, qui sont ici $\lambda_p \sim 2,3 \mu\text{m}$ pour la pompe, $\lambda_c \sim 5,5 - 6 \mu\text{m}$ pour le complémentaire, et $\lambda_s \sim 4,0 - 4,8 \mu\text{m}$ pour le signal. L'intérêt de l'accord de phase non critique dans ZGP est que l'accordabilité de la source peut être simplement modulée en faisant varier la longueur d'onde de la source de pompage sans avoir à modifier l'orientation du cristal. Par ailleurs, l'acceptance du ZGP sur le spectre de la pompe est très grande, $\Delta\lambda_p \sim 50 \text{ nm}$ à $\lambda_p \sim 2,3 \mu\text{m}$, ce qui signifie que toute la largeur du spectre de la pompe participe à la conversion. Théoriquement, avec une telle acceptance spectrale, il serait même envisageable de pomper l'OPO ZGP avec un l'OPO PPLN large bande, c'est-à-dire sans réseau. Néanmoins, la répartition de la puissance sur une large plage de longueur d'onde réduirait la densité spectrale de puissance et augmenterait par conséquent le seuil d'oscillation de l'OPO ZGP. Cette problématique du développement de sources OPO adaptées au pompage d'OPO ZGP a fait l'objet de travaux détaillés en régime nanoseconde [Hen10].

La cavité est montée dans une configuration principalement déterminée par les rayons de courbure des miroirs disponibles au moment de l'expérience. Le miroir M1 a un rayon de courbure $R_{oc1} = 100$ mm, et le miroir M2 $R_{oc2} = 300$ mm. Les deux miroirs sont traités pour être hautement réfléchissant sur $5,5 - 6$ μm et transparents sur $4,0 - 4,8$ μm . Les deux autres miroirs sont des miroirs plans hautement réfléchissants sur $5,5 - 6$ μm . La cavité ZGP est donc simplement résonnante à l'onde complémentaire dont le spectre se situe autour de $5,6$ μm . Les rayons de courbures des miroirs sont tels que le rayon au waist calculé dans le cristal de ZGP est d'environ 110 μm . Une fois de plus, les conditions de focalisation sont plutôt faibles puisque le rapport entre la longueur du cristal et le paramètre confocal du faisceau complémentaire est au maximum de $0,4$ (pour le ZGP de 20 mm de longueur). Dans notre configuration, le couplage du complémentaire vers l'extérieur de la cavité est très faible, tous les miroirs étant Rmax à cette longueur d'onde, les pertes subies par le complémentaire sont donc essentiellement les pertes passives de la cavité telles que l'absorption de l'atmosphère, les fuites à travers les miroirs, et les pertes à la traversée du cristal. Le fait d'avoir une cavité simplement résonnante à l'onde complémentaire implique une caractéristique intéressante du point de vue du synchronisme entre la pompe et l'onde résonnante. En effet, dans l'accord de phase non critique de type II, la polarisation de la pompe et du complémentaire sont croisées, ce qui a notamment pour conséquence que la vitesse de groupe du complémentaire est quasiment égale à la vitesse des impulsions de pompe.

Caractérisation en puissance et propriétés spatiales

L'ensemble des caractérisations de l'OPO sont effectuées en aval du miroir M2 à travers lequel est extraite l'onde signal. La puissance de sortie de l'OPO est mesurée derrière un filtre infrarouge traité qui sépare le signal de la pompe résiduelle. Comme le montre la Fig. 2.20, la puissance signal extraite de la cavité est d'environ 700 mW pour une puissance de pompe de 3 W. Le seuil d'oscillation est d'environ 1 W pour le cristal de 20 mm de long, et $1,5$ W pour le cristal de 15 mm, ce qui est proche du ratio théoriquement attendu : soit $\sim 0,56$ pour un rapport $15/20$ sur les longueurs des cristaux. Le dépeuplement de la pompe incidente est d'environ 30 %. Au-delà du seuil, la conversion paramétrique est très efficace et commence même à saturer vers 3 W de pompe, en dépit des faibles conditions de focalisation dans le ZGP. Ces performances en puissance peuvent donc être améliorées en optimisant à la fois le paramètre confocal des faisceaux dans le ZGP, et en modifiant la réflectivité du miroir de sortie à l'onde complémentaire.

Le profil spatial du faisceau signal en sortie de cavité présente une certaine asymétrie, et nous avons évalué le facteur de propagation du faisceau à $M^2 < 2$ par la méthode du couteau [ISO99]. Le principal facteur qui gouverne la qualité des faisceaux émis par l'OPO ZGP est la qualité

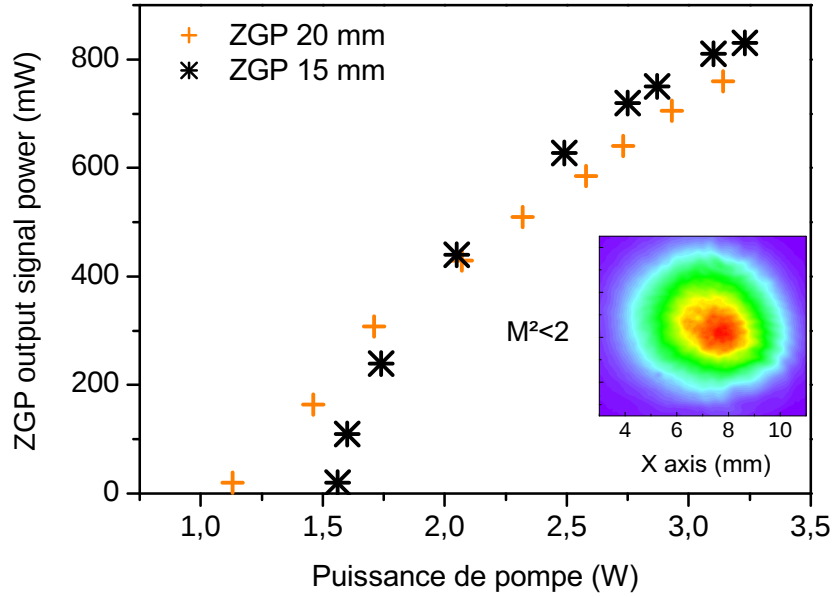


FIGURE 2.20: Caractéristique en puissance du SP-OPO ZGP. $\lambda_{\text{pompe}} = 2,35 \mu\text{m}$, et $\lambda_{\text{signal}} = 4 \mu\text{m}$. Insert : profil spatial du faisceau signal en sortie de cavité relevé à la caméra pyroélectrique.

du faisceau pompe lui-même, dont les défauts tendent à être reproduits sur les ondes générées dans le cristal de ZGP lors de la conversion non linéaire. Or, lors de notre expérimentation, la qualité spatiale du faisceau de pompe a été évaluée pour un $M^2 < 2$. La qualité spatiale des faisceaux émis par le SP-OPO ZGP peut donc être grandement améliorée, simplement en améliorant la qualité du faisceau pompe¹¹.

Accordabilité et propriétés spectrales

Comme nous l'avons évoqué en introduction de cette partie, le grand intérêt de notre configuration de pompage est de pouvoir bénéficier des larges plages d'accordabilité offertes par les sources OPO. Ce dispositif est très efficace lorsqu'une source de pompage accordable (voir Fig. 2.18) est disponible, puisqu'aucun réglage n'est requis sur la cavité ZGP.

Notre SP-OPO ZGP a donc pu être accordé en longueur d'onde en faisant varier la longueur d'onde du complémentaire du SP-OPO PPLN entre $2,25 \mu\text{m}$ et $2,5 \mu\text{m}$. Comme indiquée Fig. 2.21, la gamme de longueurs d'onde correspondante pour le signal se situe entre $3,8 \mu\text{m}$ et $4,5 \mu\text{m}$ tandis que le complémentaire demeure quasiment constant entre $5,65 \mu\text{m}$ et $5,7 \mu\text{m}$. La mesure de la largeur spectrale du signal est limitée par la résolution de notre spectromètre

11. En particulier, nous avons pu remarquer que l'introduction d'un coupleur de plus faible réflectivité, $R_{\text{signal}} = 0,5$, soulageait considérablement cette contrainte, puisque, même à pleine puissance, le profil spatial des faisceaux générés est stable et quasi-monomode.

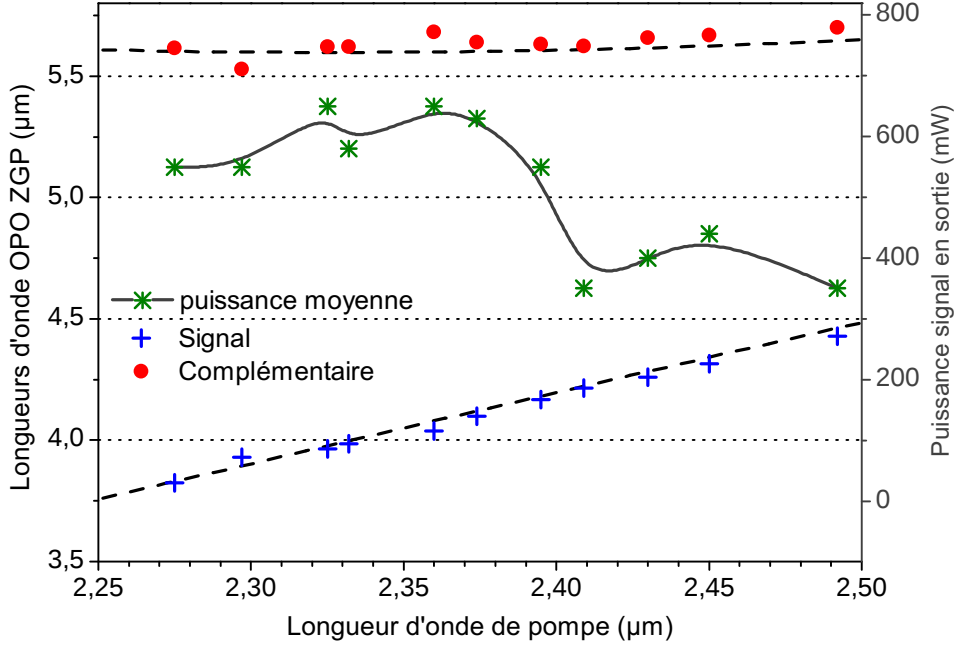


FIGURE 2.21: Accordabilité du SP-OPO ZGP (cristal de 15 mm) et puissance signal typiquement extraite en fonction de la longueur d'onde pour une puissance pompe de 3 W. La courbe en pointillée est la courbe d'accordabilité théorique d'après [Das03]

($\Delta\lambda_{\text{spectro}} \sim 10$ nm), et les longueurs d'onde relevées correspondent aux valeurs centrales. Enfin, la puissance extraite de l'OPO ZGP suit les variations de puissance complémentaire maximale extraite de la cavité SP-OPO PPLN (Fig. 2.13).

En conclusion, nous avons démontré expérimentalement le pompage synchrone d'un OPO ZGP. Il apparaît que la plupart des performances de notre dispositif sont en fait limitées par les performances de la pompe. En particulier, la qualité des faisceaux, la puissance maximale atteignable, et la plage d'accordabilité peuvent en principe être largement améliorées en travaillant directement les performances de la pompe. Malgré ces quelques limitations, nous avons mis en évidence que le pompage synchrone du ZGP constituait un dispositif de génération paramétrique hautement efficace en régime picoseconde dans l'infrarouge moyen.

2.2 Analyse numérique de la saturation et de la désynchronisation en pompage synchrone

Bien que le principe de fonctionnement des OPO soit relativement simple, la prévision quantitative de leur comportement est souvent complexe. Remplir un tel objectif nécessiterait un traitement numérique complet prenant en compte simultanément les effets spectro-temporels et spatiaux du mélange à trois ondes. Le but poursuivi ici est de mieux comprendre les effets liés

à la désynchronisation d'un OPO synchrone, tels que ceux que nous avons décrits expérimentalement dans la partie précédente, et d'illustrer l'importance de la saturation dans le façonnage des impulsions signal et complémentaire par la conversion non linéaire. Il s'agit donc de compléter les observations et interprétations présentées précédemment. Pour cela nous aborderons une simulation de l'oscillation paramétrique par le biais du code de calcul développé sous MATLAB présenté lors du Chap. 1. Dans un premier temps, nous rappellerons le principe du calcul de simulation d'un OPO, puis nous évoquerons quelques résultats de simulation significatifs, en les comparant aux mesures expérimentales du Chap. 2.1 sur le pompage synchrone de l'OPO PPLN.

2.2.1 Simulation numérique du pompage synchrone

La méthode de modélisation d'un OPO est décrite Fig. 2.22. Le calcul est initialisé selon les critères explicités dans le chapitre précédent sur la génération paramétrique. Le calcul est mené de manière itérative : à chaque tour de cavité, l'impulsion pompe est réinitialisée, tandis que les impulsions signal et complémentaire sont recyclées à partir des résultats du tour de cavité précédent. Les impulsions traversent chaque élément de cavité de manière séquentielle : le cristal non linéaire, un filtre fréquentiel, puis les éléments de couplage vers l'extérieur (pertes + miroir de couplage), et enfin une fonction désynchronisation.

Dans le cristal non linéaire, les équations de couplage sont résolues en tenant compte de la dispersion à l'ordre 2 (différences de vitesse de groupe + dispersion de la vitesse de groupe) en suivant un schéma numérique par différences finies. Dans toutes les simulations, l'ordre d'intégration de l'algorithme Runge Kutta vaut 4.

Le filtrage fréquentiel peut avoir différentes fonctions. La première est de limiter arbitrairement l'extension maximale du spectre des impulsions afin d'éviter les effets de recouvrements ou de sous échantillonnage temporel. Cette fonction est notamment utile dans la modélisation d'un OPO large bande pour lequel l'extension spectrale finale des ondes générées est a priori inconnue. La seconde fonction du filtre fréquentiel que nous illustrerons par la suite, est de simuler la contrainte spectrale imposée par un élément dispersif intracavité, à savoir le réseau de diffraction utilisé expérimentalement en configuration Littrow.

La fonction de désynchronisation permet de décaler temporellement les impulsions oscillantes par rapport à l'impulsion pompe pour le tour de cavité suivant. Cette fonction est réalisée en passant les impulsions dans l'espace de Fourier, et en les multipliant par le terme de phase $\Theta = \exp(i2\pi\nu T_{\text{sync}})$, où T_{sync} est le décalage temporel introduit pour le tour de cavité suivant. Par convention, $T_{\text{sync}} > 0$ correspond à un retard; expérimentalement cela correspond à un allongement de la cavité OPO soit un $\Delta L_{\text{cavité}} > 0$.

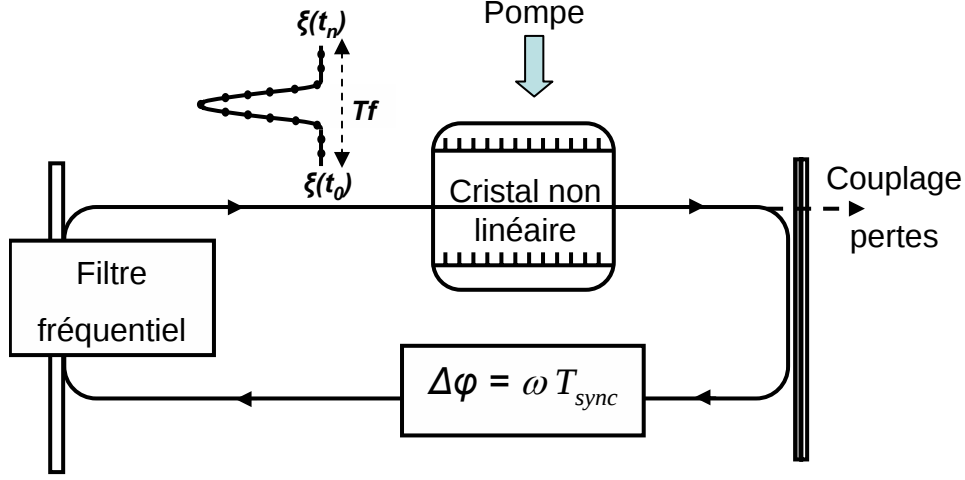


FIGURE 2.22: Principe du calcul numérique OPO synchrone.

2.2.2 SP-OPO large bande fortement saturé

Dans cette partie, nous donnons quelques résultats significatifs de la modélisation du SP-OPO PPLN large bande dont les propriétés expérimentales ont été présentées au Chap. 2.1.3.

Caractéristique en puissance

La principale caractéristique de l'OPO simplement résonant à modéliser ici est le fait que le couplage vers l'extérieur est faible pour l'onde signal, le coefficient de réflexion du coupleur de sortie étant de 95 %. La cavité est donc surtendue, ce qui se traduit par un seuil très faible, et la possibilité d'atteindre des taux de pompage très élevés, de l'ordre de 20 fois le seuil.

Les paramètres de la simulation sont réunis dans le Tab. 2.1. L'OPO est simplement résonnant à l'onde signal, et le complémentaire est intégralement extrait de la cavité après avoir subi les mêmes pertes passives que le signal. Le point de synchronisation exact, qui correspond à l'optimisation du recouvrement entre le signal et l'impulsion pompe à chaque tour de cavité, est considéré à ce stade. Le signal étant plus rapide que la pompe dans le PPLN, se placer au synchronisme exact impose que l'impulsion signal subisse un retard temporel à chaque tour de cavité, de sorte que l'écart subi dans le PPLN soit exactement compensé. La synchronisation s'effectue donc en imposant un retard T_{sync} au signal tel que :

$$T_{\text{sync}} = \left(\frac{1}{v_{g,p}} - \frac{1}{v_{g,s}} \right) L_{\text{cri}} = 2,24 \text{ ps.} \quad (2.4)$$

Paramètres	notations	valeurs
fenêtre temporelle	T_f	70 ps
échantillonnage	N_{pts}	3112
durée impulsion pompe	τ	6,8 ps
décalage temporel	T_{sync}	2.24 ps
longueur d'onde signal	λ_s	1,95 μm
longueur d'onde complémentaire	λ_c	2,34 μm
température du PPLN	T	85° C
pertes passives	T_{pass}	5 %
réflectivité du coupleur signal	R_s	95 %
longueur cristal	L_{cri}	20 mm
coefficient non linéaire	d_{eff}	14 pm/V
largeur bande de gain pour le signal	$\Delta\nu_{gain}$	5 THz
largeur spectrale bruit de photons	$\Delta\nu_{bruit}$	0.5 THz
largeur filtre fréquentiel	$\Delta\nu_{filtre}$	10 THz

TABLE 2.1: Paramètres de simulation.

La Fig. 2.23 donne la densité d'énergie en sortie d'OPO une fois que le régime stationnaire est atteint¹². Les densités d'énergie sont normalisées pour permettre une comparaison plus significative avec les résultats expérimentaux : la densité d'énergie de pompe est normalisée à la densité d'énergie seuil, et celles du signal et complémentaire sont normalisées à la densité d'énergie pompe incidente, en d'autre termes, on calcule un rendement d'extraction.

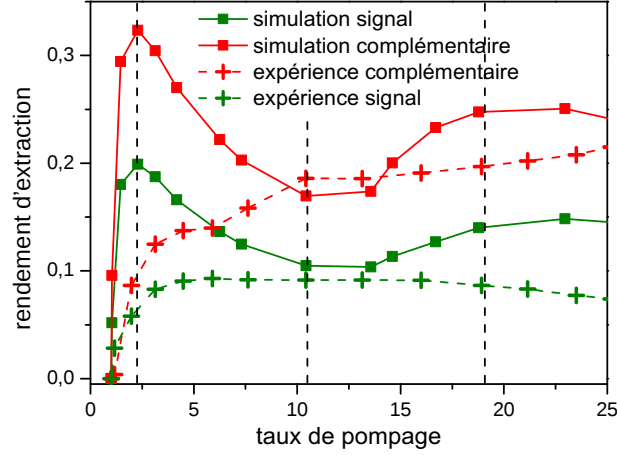
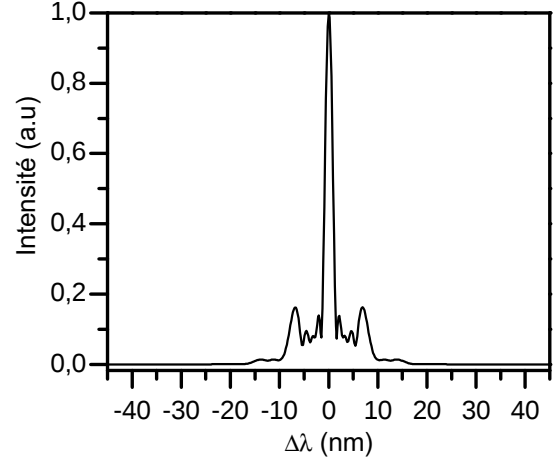
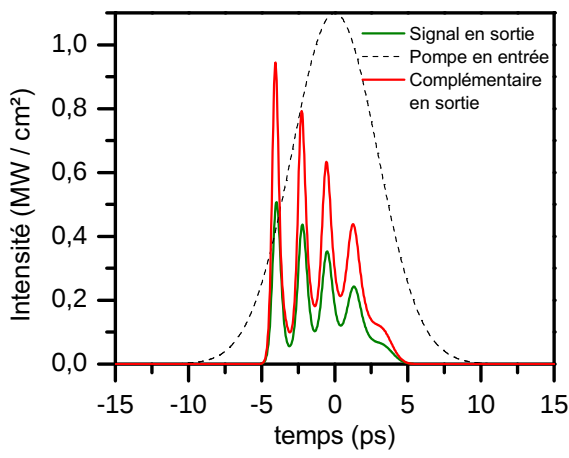


FIGURE 2.23: Rendement d'extraction simulé et expérimental en fonction du taux de pompage. La ligne pointillée indique les taux de pompage pour lequel sont représentés les profils temporels et spectraux Fig. 2.27.

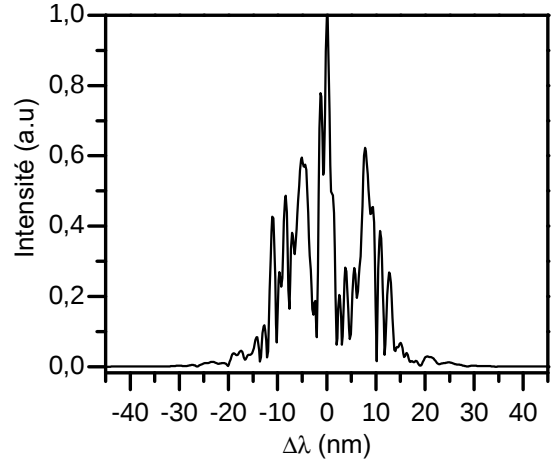
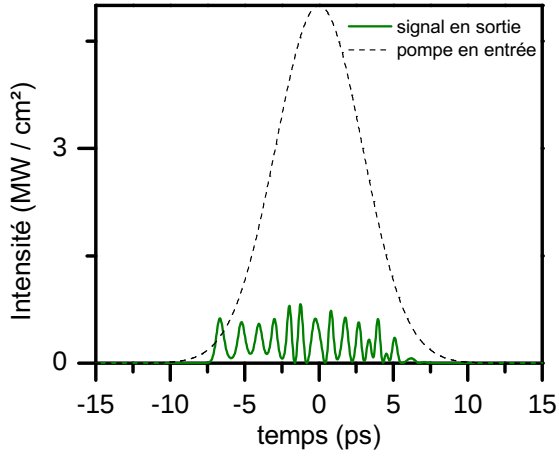
De nombreuses informations peuvent être tirées de ces courbes. Tout d'abord, le rendement d'extraction du complémentaire est globalement plus important que le rendement d'extraction du signal, comme nous avons pu l'observer expérimentalement. Cette propriété a priori surprenante s'explique par le fait que les pertes passives sur le signal sont du même ordre que le taux de couplage par le miroir de sortie. Comme évoqué dans le Chap. 1.2.2, l'efficacité de la reconversion dépend de la phase non linéaire locale. Dans le cas développé ici, ce phénomène est très complexe car les impulsions générées lorsque l'OPO est saturé sont fortement modulées en intensité (voir Fig. 2.24), et la phase non linéaire change localement de valeur avec une fréquence très élevée.

Autre constat : la simulation surestime les rendements d'extraction pour les faibles taux de pompage, c'est-à-dire lorsque l'OPO n'est pas saturé. En effet, si signal et complémentaire sont totalisés, des taux de dépeuplement de la pompe initiale de plus de 50 % sont atteints, alors qu'expérimentalement, au mieux environ 30 % de la pompe incidente peuvent être convertis. Cet écart provient du traitement en ondes planes qui est effectué lors des simulations.

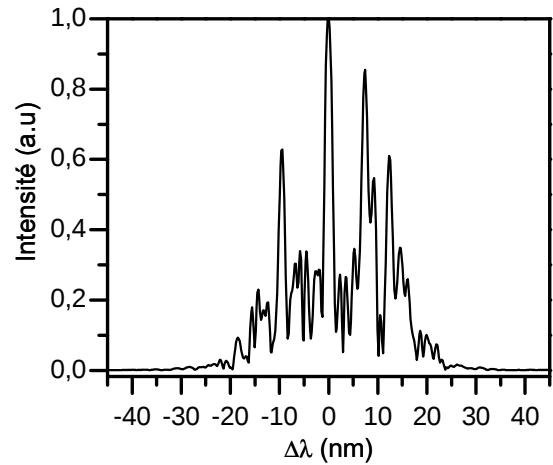
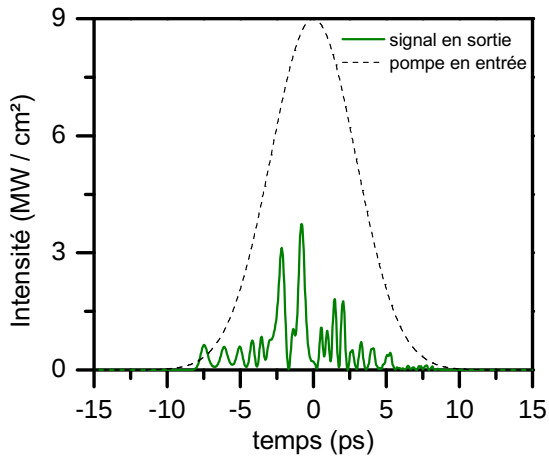
12. Pour déterminer si l'OPO est en régime stationnaire, l'intensité moyenne du signal intracavité est évaluée. Lorsque cette quantité devient constante, l'OPO est considéré comme stationnaire. Ce critère est relativement simple, et permet généralement d'atteindre le régime stationnaire au terme d'un nombre raisonnable de tours de cavité, typiquement quelques dizaines à quelques centaines de passages selon les paramètres de départ.



(a) Impulsions signal et complémentaire en sortie d'OPO et spectre signal normalisé pour un taux de pompage de 2,3 fois le seuil.



(b) Impulsion et spectre signal en sortie d'OPO. Taux de pompage : 10,4 fois le seuil.



(c) Impulsion et spectre signal en sortie d'OPO. Taux de pompage : 18,8 fois le seuil.

FIGURE 2.24: Profils temporels et spectres simulés de l'onde signal extraite de l'OPO pour différents taux de pompage. L'impulsion complémentaire simulée présente des propriétés analogues. À titre d'illustration, l'impulsions complémentaire extraite de la cavité pour un taux de pompage de 2,3 fois le seuil est représentée.

Enfin, les courbes de puissance simulées pour le signal et le complémentaire prennent une forme très particulière. En effet, pour les faibles taux de pompage, le rendement de conversion augmente rapidement avec la puissance moyenne de la pompe. Il sature, pour des taux de pompage d'environ 3 fois le seuil, puis diminue, ce qui signifie qu'en moyenne, une partie de la pompe est reconvertie au cours de la propagation dans le cristal non linéaire. Puis, pour les taux de pompage plus élevés encore, plus de 13 fois le seuil, le rendement de conversion augmente de nouveau, sans toutefois atteindre le niveau maximum atteint pour les faibles taux de pompage, ce qui signifie qu'en moyenne, lors de la propagation, la reconversion vers la pompe sature elle aussi. En d'autres termes, lorsque l'intensité de la pompe est très largement supérieure au seuil d'oscillation, il se produit dans le cristal non linéaire une succession de conversions / reconversions. Cet effet n'est pas visible sur les courbes expérimentales, très certainement du fait d'effets transverses non pris en compte dans la modélisation ¹³.

Le profil temporel ainsi que le spectre de l'onde signal en sortie d'OPO pour différents taux de pompage (Cf. lignes pointillée sur la Fig. 2.23) sont représentés Fig. 2.24. Le profil temporel de l'onde complémentaire ainsi que son spectre ont des propriétés semblables. Le calcul révèle que lorsque l'OPO est fortement saturé, les impulsions générées prennent une forme complexe composée de multiples sous-impulsions de quelques centaines de femtosecondes. Cette structure est façonnée par les saturations et les variations locales dans le temps de la phase non linéaire lors de la propagation des ondes dans le cristal. D'une manière générale, ce type de structure multi-impulsions, lorsqu'elles sont évaluées expérimentalement par autocorrélation, donne une trace d'autocorrélation bruitée et présentant un pic central très fin et intense. Ce type de propriété n'a pas pu être vérifié expérimentalement au moment où l'OPO synchrone large bande a été étudié, mais la confirmation en est donnée dans la littérature [Rya08]. Le spectre quant à lui prend également une structure complexe pour les taux de pompage élevés, et s'étale sur près de 40 nm, ce qui est cohérent avec les spectres relevés expérimentalement, qui s'étalent sur plusieurs dizaines de nanomètres, et présentent une structure multi-pics lorsque l'OPO est à la synchronisation exacte (Fig. 2.7).

D'après l'évolution du profil des impulsions et de leur spectre en fonction du taux de pompage, il est légitime de conclure que la structure multi-impulsions se complexifie en même temps que le spectre s'élargit lorsque le taux de pompage augmente. Il est intéressant de constater que même pour des taux de pompage relativement faible, par exemple 2,3 fois le seuil, l'impulsion signal se structure aussi en sous-impulsions. De fait, ce ne sont que pour des taux de pompage extrêmement faibles, typiquement $< 1,5$ dans le cas de notre simulation, que le signal et le complémentaire adoptent des profils temporels à un seul pic. Ce résultat de calcul n'est pas propre au pompage synchrone, et a également fait l'objet de travaux antérieurs en régime

13. Cette surestimation des effets de conversions / reconversions dans les calculs en ondes planes est un problème bien connu [Smi05].

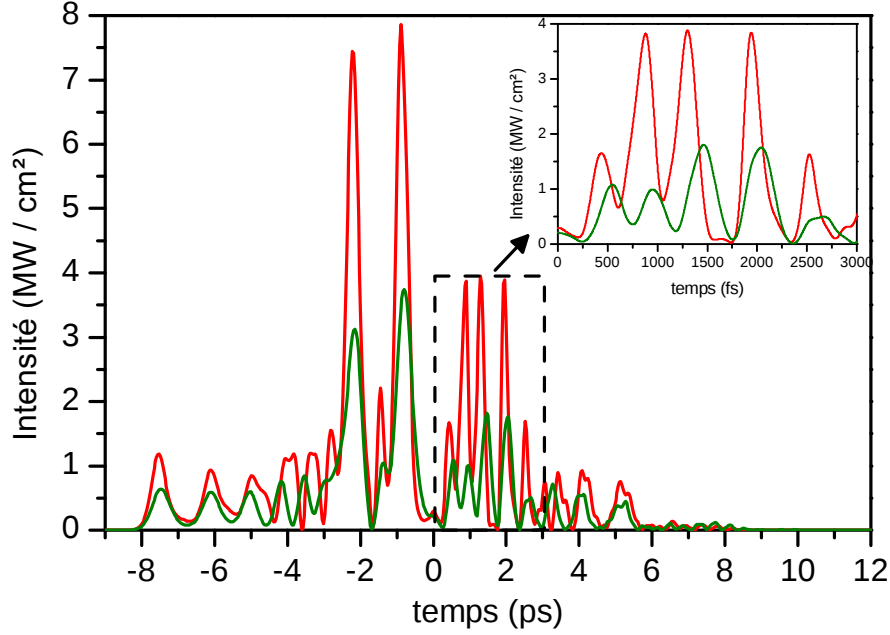


FIGURE 2.25: Impulsion signal et complémentaire en sortie d'OPO pour un taux de pompage de 18,8 fois le seuil. En insert, une partie zoomée de l'impulsion permet de visualiser le glissement.

nanoseconde [Smi05]. D'après A. Smith, l'organisation du signal et du complémentaire en multiples sous-impulsions peut être interprétée comme étant un moyen pour l'OPO de minimiser la reconversion de l'énergie vers l'onde de pompe. En effet, le signal et le complémentaire n'ayant pas exactement la même vitesse de groupe, leurs impulsions vont légèrement glisser l'une par rapport à l'autre au cours de la propagation. De ce fait, si l'énergie est répartie en multiples impulsions très courtes, le glissement entre le signal et le complémentaire permet de réduire les chances de superposition de fortes intensités favorables aux effets de reconversion. Pour cela, les impulsions doivent s'organiser selon une structure de sous-impulsions dont la durée doit être typiquement du même ordre que le glissement entre signal et complémentaire. Cette durée est de l'ordre de :

$$\tau_{\text{glis}} = \left(\frac{1}{v_{g,s}} - \frac{1}{v_{g,c}} \right) L_{\text{cri}} \sim 200 \text{ fs},$$

ce qui est tout à fait en accord avec la durée des sous-impulsions signal calculées (voir Fig. 2.25). Pour les forts taux de pompage, les ondes signal et complémentaire sont susceptibles d'atteindre la saturation dès les premiers millimètres du cristal de PPLN. De ce fait, la longueur effective sur laquelle doit être évaluée le temps de glissement caractéristique des sous-impulsions est inférieure à la longueur totale du cristal L_{cri} . Par conséquent, l'augmentation du taux de pompage se traduit par une organisation en sous-impulsions, dont la durée diminue.

Effet de désynchronisation

Nous nous sommes ensuite intéressés aux conséquences spectro-temporelles de la désynchronisation des impulsions signal par rapport aux impulsions pompes injectées à chaque nouveau tour de cavité. Pour cela, nous nous plaçons dans le même cas d'étude que précédemment avec les paramètres de simulation du Tab. 2.1, en nous plaçant largement au-dessus du seuil, avec un taux de pompage égal à 18,8 fois le seuil, et nous relevons les puissances moyennes, les spectres, et les profils d'impulsions en sortie d'OPO en fonction de la désynchronisation. À titre d'illustration, et afin de montrer la cohérence du calcul, nous avons superposé à ce graphe, la courbe expérimentale de la puissance signal en sortie d'OPO mesurée pour un taux de pompage du même ordre. Une comparaison quantitative entre le calcul et l'expérience est néanmoins difficile pour les raisons déjà évoquées dans la partie précédente.

Regardons tout d'abord l'effet général de la désynchronisation sur la puissance signal moyenne extraite de l'OPO. La Fig. 2.26 montre que le maximum de puissance ne se situe pas exactement à $T_{\text{sync}} = 2,24$ ps, valeur théorique du synchronisme exact, mais pour une valeur légèrement inférieure vers $T_{\text{sync}} = 2,1$ ps, soit une légère avance de 140 fs par rapport à la position théorique. Si l'OPO "cherche" à minimiser les effets de la saturation, cet écart de 140 fs est très certainement à relier au fait qu'en arrivant légèrement en avance, l'impulsions signal est globalement moins saturée, tout en bénéficiant d'un gain important, 140 fs étant très faible devant la plage totale de désynchronisation d'environ 4 ps. La position de ce maximum correspond à la position de référence que nous avons choisie expérimentalement pour repérer le synchronisme exact. D'autre part, en s'écartant de la position où la puissance de sortie est maximale, la puissance moyenne extraite de l'OPO diminue brutalement d'une manière très similaire à ce qui a été mesuré. En outre, lorsque le décalage temporel diminue par rapport au synchronisme, c'est-à-dire lorsque le signal arrive en avance par rapport à la synchronisation exacte, l'OPO est légèrement plus tolérant, et la simulation fait apparaître une sorte de plateau, situé entre - 1 ps et + 1 ps, sur lequel la puissance extraite évolue peu. Cette propriété apparaît moins nettement sur la courbe expérimentale, mais une tolérance plus grande est observée quand le décalage temporel diminue. Ce type de comportement est également décrit dans d'autres expériences relatées dans la littérature [Rya08].

Plus particulièrement, trois plages caractéristiques de désynchronisation à l'intérieur desquelles les propriétés temporelles et spectrales du signal sont homogènes peuvent être observées. Ces trois zones¹⁴ sont représentées sur la Fig. 2.26. Les profils temporels caractéristiques des impulsions signal et complémentaire, de même que leur spectre, sont représentés Fig. 2.27.

Dans la zone I, l'impulsion signal arrive en retard par rapport à l'impulsion pompe à l'entrée

14. Les frontières entre ces plages de désynchronisation ont été positionnées de manière relativement subjective; les propriétés spectro-temporelles des impulsions qui caractérisent ces zones évoluant de manière progressive, et les points de calcul étant discrets.

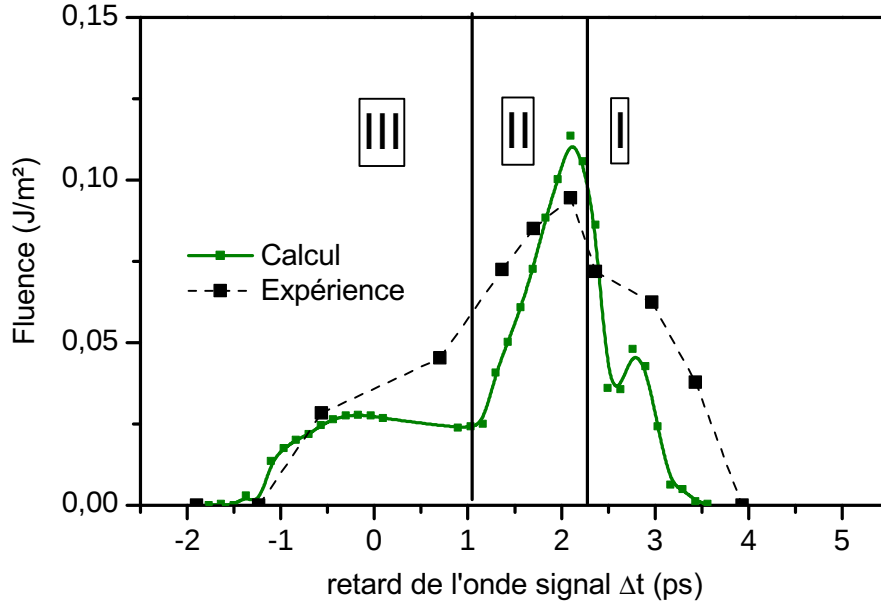


FIGURE 2.26: Puissance totale (signal + complémentaire) normalisée au maximum en sortie d'OPO en fonction de la désynchronisation pour un taux de pompage de 18. La courbe expérimentale (Fig. 2.8) a été recalée en abscisse de sorte que les maxima des deux courbes coïncident (synchronisation exacte).

du cristal. Du point de vue temporel, comme le signal a une vitesse de groupe supérieure à la pompe, l'impulsion signal va progressivement reprendre son retard et même dépasser l'impulsion pompe. Au fur et à mesure que le signal rattrape l'impulsion pompe, c'est le front montant de l'impulsion qui va “voir” en premier lieu l'intensité de la pompe augmenter. Comme nous sommes en régime de fort gain, non seulement le front montant est amplifié en premier, mais il participe également en priorité au dépeuplement de la pompe, laissant ainsi peu de gain au front descendant de l'impulsion qui traverse l'impulsion pompe en ne voyant plus que de faibles intensités. Ce processus d'amplification déséquilibré entre le front montant et le front descendant de l'impulsion est à l'origine du phénomène de compression d'impulsion, qui a notamment été utilisé dans les OPO picosecondes pour générer des impulsions signal et complémentaire sub-picosecondes [Kha95, Kha94]. Nous retrouvons ce type de propriété dans nos simulations. Sur la Fig. 2.27, l'impulsion signal générée dans la zone de désynchronisation I présente un front montant très court devant le front descendant, et une largeur à mi-hauteur globalement plus courte que la durée des impulsions pompe (environ 1,5 ps contre 7 ps). Néanmoins, du fait que nous sommes en régime fortement saturé, et le front montant de l'impulsion ne pouvant être indéfiniment amplifié, une quantité d'énergie non négligeable se retrouve dans le front descendant de l'impulsion, de même qu'une structure légèrement multi-impulsions pour les raisons que nous avons évoquées dans la partie précédente. Le spectre calculé dans cette zone de désynchronisation présente typiquement la forme présentée Fig. 2.27. Le spectre est dominé

par un pic fin (2 nm de large) quasiment centré en $\Delta\lambda = 0$ nm, en réalité légèrement décalé de -0.6 nm par rapport au centre. L'OPO n'a donc pas tendance à modifier sa longueur d'onde centrale pour compenser le retard dû à la désynchronisation. Ceci s'explique du fait que nous avons supposé l'accord de phase en $\lambda = 1,95$ μm , c'est à dire que la longueur d'onde centrale est très proche du maximum de vitesse de groupe du signal (voir Fig. 2.9); de ce fait le compromis entre la vitesse de groupe et le gain est déjà optimal à la longueur d'onde centrale.

La zone II de désynchronisation correspond au cas où l'onde signal est synchrone avec la pompe à l'entrée du cristal non linéaire, ou légèrement en avance. Globalement, dans cette plage de désynchronisation, les impulsions émises prennent une structure temporelle multi-impulsions, et présentent un spectre très large et multi-pics comme déjà vu Fig. 2.24. Cette zone correspond donc à un recouvrement entre le signal et la pompe tel que les impulsions subissent localement un grand nombre de conversions /reconversions. Cependant, lorsque l'avance du signal par rapport à la pompe augmente (T_{sync} diminue), l'OPO commence à effectuer une sélection spectrale. C'est ce qui est illustré Fig. 2.27, où nous avons choisi le point de désynchronisation où la puissance signal moyenne extraite de la cavité est maximale. En effet, dans ce cas, le spectre de l'impulsion, bien que s'étalant sur une cinquantaine de nm, privilégie les longueurs d'onde situées en dehors de la longueur d'onde centrale. Cette situation n'est pas sans rappeler le spectre à deux pics principaux relevé expérimentalement Fig. 2.9. En conclusion, dans la zone II, l'émission est large spectralement est fortement multi-impulsionnelle, mais l'OPO commence à opérer une sélection de classes de longueurs d'onde, dont la vitesse de groupe compense la désynchronisation.

Enfin, la zone III correspond à une situation très particulière pour laquelle les impulsions signal ne sont plus formées d'un ensemble de sous-impulsions très brèves, mais d'une unique impulsion dont la durée est nettement supérieure à la durée des impulsions pompe, environ 10 ps dans l'exemple représenté Fig. 2.27. Sur cette plage de désynchronisation, l'impulsion signal arrive encore plus en avance dans le cristal par rapport à la pompe que dans la zone II. De ce fait, le gain perçu est nettement inférieur. La conséquence est double : d'une part la puissance moyenne est largement diminuée par rapport à la position synchrone, et dans le même temps l'OPO n'a plus à adopter de structure multi-impulsions pour minimiser les effets de la saturation. Cette zone est relativement tolérante, notamment par rapport à la zone I, du fait que l'émission peut largement décaler sa longueur d'onde, jusqu'à 100 nm dans l'exemple présenté Fig. 2.27, pour compenser la désynchronisation en diminuant la vitesse de groupe.

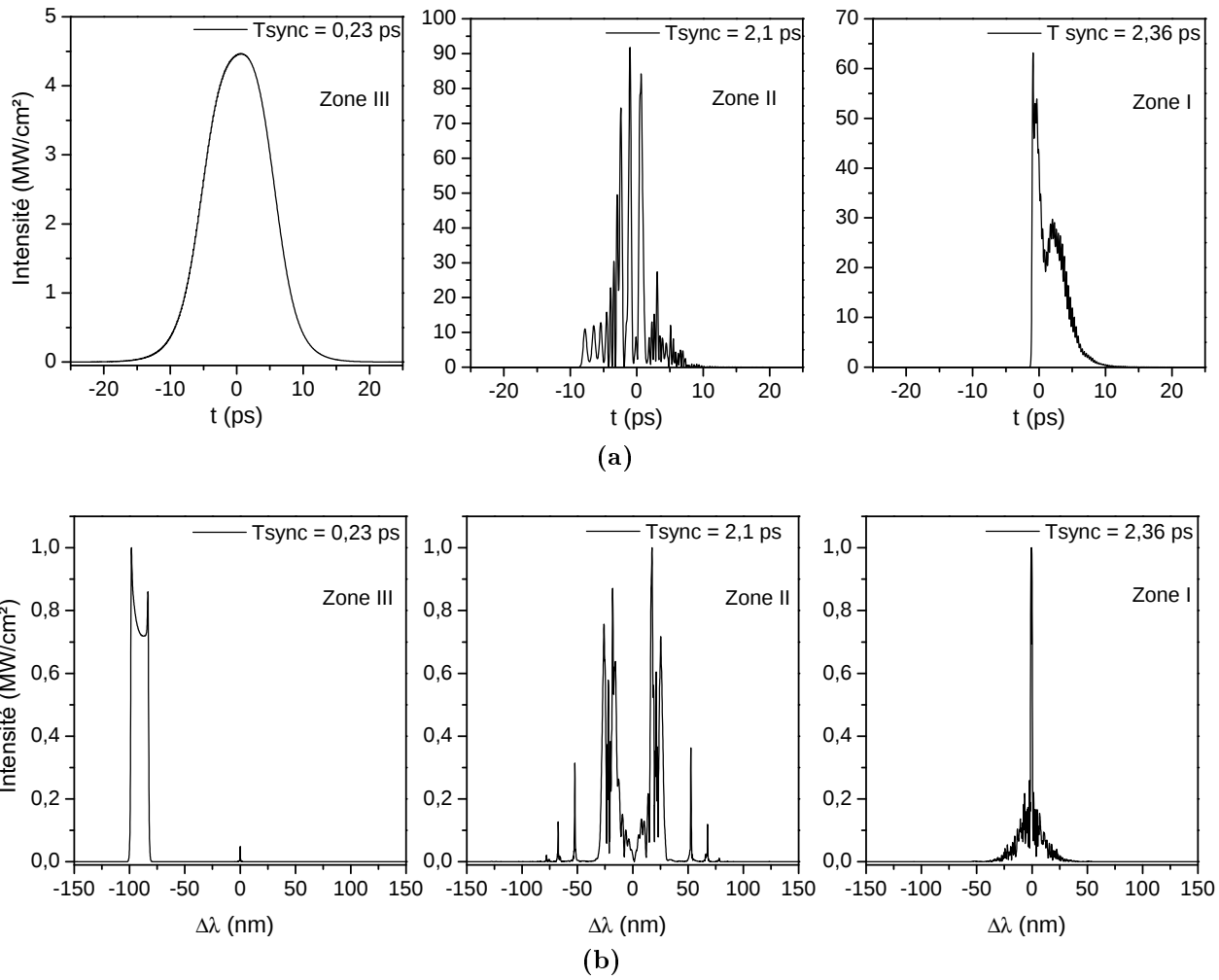


FIGURE 2.27: (a) Profil temporel d'impulsion et (b) spectre de l'onde signal en fonction de la désynchronisation. OPO fortement saturé.

2.2.3 SP-OPO faiblement saturé et effet de filtrage par un réseau

Caractéristique en puissance

Nous réalisons le même type d'étude numérique que précédemment en nous intéressant au cas d'un OPO faiblement saturé. Pour cela, nous prenons les mêmes paramètres physiques et numériques¹⁵ que ceux décrits dans le Tab. 2.1, en changeant simplement le coefficient de réflexion en intensité du coupleur de sortie ($R_s = 50\%$) afin de reproduire des conditions proches de l'expérience du Chap. 2.1.4). Dans le même temps, nous avons cherché à modéliser le filtrage fréquentiel opéré par l'insertion d'un réseau de diffraction intracavité, et son impact sur les propriétés spectro-temporelles de l'OPO synchrone. La modélisation du filtrage par le réseau est considérée dans les calculs comme un rétrécissement de la largeur spectrale du filtre fréquentiel. Dans les cas que nous développons par la suite, la largeur spectrale à mi-hauteur du filtre "réseau" sera $\Delta\nu_{\text{réseau}} = 0,3$ THz, ce qui correspond à une bande passante spectrale en longueur d'onde de 3,8 nm à $\lambda = 1,95$ μm . Le filtre choisi ici est donc environ 2 fois plus large que la largeur spectrale théorique du réseau que nous avons utilisé expérimentalement, qui était de 1,4 nm à $\lambda = 1,9$ μm . Une fois de plus, ce choix est justifié par le fait que la fonction de filtrage doit être échantillonnée sur un nombre non négligeable de points. Ici, dans nos conditions d'échantillonnage, le filtre fréquentiel de 3,8 nm de largeur à mi-hauteur est calculé sur 30 points environ¹⁶.

La Fig. 2.28 donne le résultat des différentes simulations, avec ou sans le filtrage réseau, comparé avec les données expérimentales relevées sur notre SP-OPO PPLN monté avec le réseau de diffraction intracavité et un coupleur de 50 % (voir Fig. 2.12). Une fois de plus l'écart entre l'expérience et le calcul est important du fait de la non prise en compte de la diffraction, et comme pour le cas de l'OPO fortement saturé, l'idée est de montrer que les simulations présentées par la suite correspondent à des taux de pompage accessibles en pratique.

Les mêmes remarques et interprétations que celles concernant la modélisation de l'OPO largement saturé (Fig. 2.23) peuvent être faites. Une différence majeure par rapport à la Fig. 2.23 réside dans le fait que l'écart de rendement de conversion entre le signal et le complémentaire est considérablement réduit¹⁷ du fait que les pertes passives deviennent quasiment négligeable devant la puissance signal transmise par le miroir de couplage. Les rendements de conversion,

15. La diminution des effets de saturation rend le calcul nettement moins complexe du fait que les signaux sont plus réguliers, ce qui autorise un échantillonnage plus relâché. En pratique, la plupart des calculs de cette partie sont effectués avec un nombre de points d'échantillonnage moindre que dans la partie concernant l'OPO largement saturé en passant d'environ 3000 points d'échantillonnage à environ 2000 points.

16. Pour un nombre de points $N_{\text{pts}} = 2112$, et une fenêtre temporelle $T_f = 70$ ps, l'échantillonnage dans l'espace des fréquences est $F_{\text{step}} = 0,014$ THz. Le filtre réseau est formé par une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 3,8 nm à $\lambda = 1,95$ μm , soit 0,3 THz en intensité, ce qui correspond à une largeur à mi-hauteur de 0,4 THz pour le champ électrique; le filtre est donc calculé sur $0,4/0,014 \sim 30$ points

17. Il est ici quasiment restreint au défaut quantique $\eta = 1 - \frac{\lambda_s}{\lambda_c} = 0,16$.

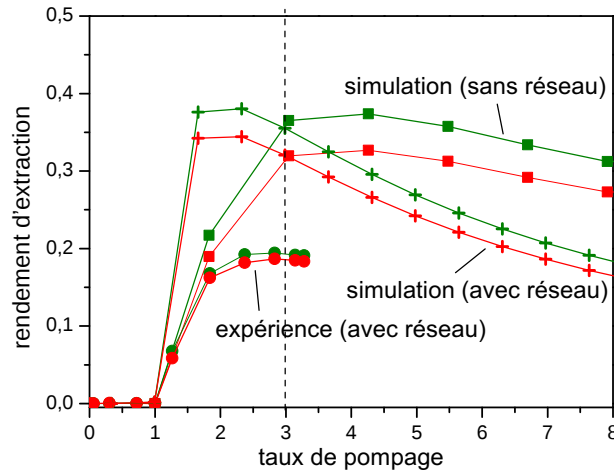


FIGURE 2.28: Rendement de conversion signal (vert) et complémentaire (rouge) en fonction du taux de pompage pour un coupleur de sortie de réflectivité $R_s = 50\%$, et à la synchronisation exacte. La ligne pointillée indique le taux de pompage pour lequel l'étude spectro-temporelle détaillée est effectuée.

ainsi que l'efficacité en fonction du taux de pompage, sont comme précédemment sur-estimés par le code de calcul. En effet, pour les taux de pompage situés entre 2 et 4 fois le seuil, le dépeuplement de la pompe atteint des niveaux extrêmement élevés, de l'ordre de 75 % signal et complémentaire confondus, alors qu'expérimentalement il culmine à un peu moins de 40 %.

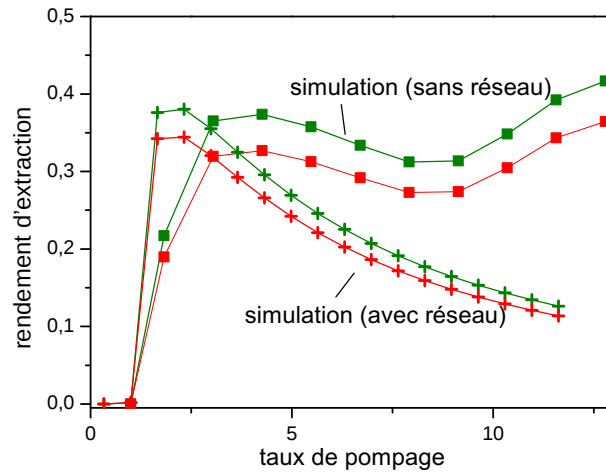


FIGURE 2.29: Rendement d'extraction signal (vert) et complémentaire (rouge) pour des taux de pompage élevés (> 10). Comparaison du comportement de l'OPO avec ou sans filtre réseau, pour un coupleur de sortie de 50 %.

D'après les simulations, il est intéressant de constater que le comportement de l'OPO est différent lorsque son spectre est fortement contraint par le filtre spectral. D'une part, l'efficacité

de la conversion aux faibles taux de pompage est nettement supérieur pour l'OPO contraint que pour le même OPO libre. En revanche, la saturation du rendement de conversion intervient elle aussi pour des taux de pompage plus faible. Par ailleurs, une fois l'OPO saturé, la configuration avec réseau voit son rendement de conversion invariablement diminuer, tandis que la configuration sans réseau voit son rendement d'extraction osciller de manière analogue au cas décrit Fig. 2.23. La Fig. 2.29, qui représente le rendement de conversion pour des taux de pompage plus importants, permet de mieux visualiser ces propriétés. L'interprétation de ce phénomène est à relier à ce que nous avons déjà pu remarquer dans la partie précédente concernant la saturation. Lorsque l'OPO est libre, le profil temporel du signal tend à adopter une organisation faite de multi-impulsions brèves afin de limiter la reconversion. Cette organisation s'accompagne d'un élargissement spectral qui n'est plus permis lorsqu'il y a filtrage par le réseau, d'où une diminution continue du rendement de conversion avec le taux de pompage.

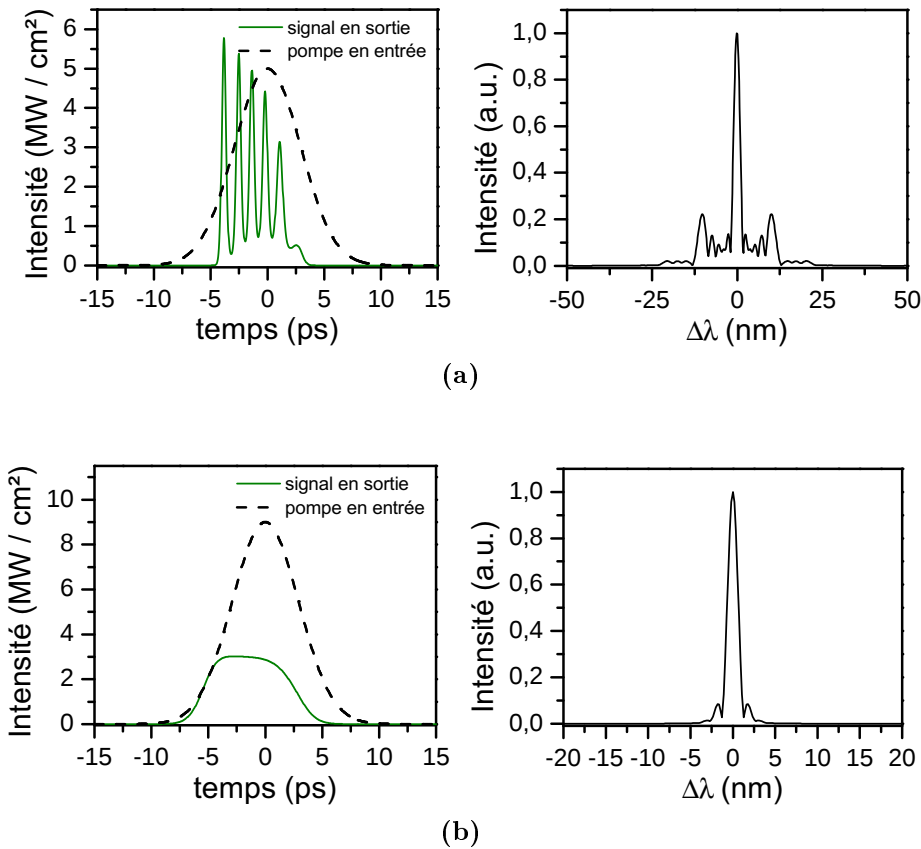


FIGURE 2.30: Simulation du profil temporel et spectre de l'onde signal extraite de l'OPO pour un taux de pompage de 3. $T_{\text{sync}} = 2,24$ ps. (a) OPO libre. (b) OPO contraint (filtre réseau)

Cette interprétation est confirmée par la représentation des profils temporel et spectral du signal Fig. 2.30, pour un taux de pompage égal à 3. Lorsque l'OPO est libre, on retrouve un profil temporel multi-impulsions et un spectre élargi. Du fait que le taux de pompage est plus

faible que dans le cas où la cavité est surtendue, la structure de l'impulsion est plus régulière, et le spectre subit un élargissement moins prononcé que précédemment Fig. 2.24. Le fait d'utiliser un coupleur de forte transmission pour l'onde signal est donc très bénéfique lorsque la pompe dispose d'une forte puissance moyenne : le seuil d'oscillation est plus élevé, mais l'efficacité de conversion est améliorée, par conséquent il est possible d'atteindre des puissances moyennes en sortie d'OPO comparables pour un taux de pompage nettement inférieur (3 au lieu de 18), ce qui se traduit par une diminution des effets de saturation sur le façonnage du spectre et du profil temporel de l'impulsion. Par ailleurs, l'utilisation d'un élément filtrant augmente encore la luminance de la source, comme indiqué Fig. 2.30 : la contrainte spectrale imposée sur le signal réduit la largeur spectrale de l'émission, et supprime les modulations haute fréquence de l'intensité dans le profil temporel de l'impulsion.

Effet de désynchronisation sur un OPO libre

Pour évaluer le comportement de l'OPO avec un fort taux de couplage vers l'extérieur en fonction de la désynchronisation, nous calculons le même type de courbe que pour l'OPO fortement saturé en relevant la fluence, le spectre, et le profil temporel des impulsions signal en sortie d'OPO en fonction du retard imposé sur l'impulsion signal à chaque tour. Considérons dans un premier temps le comportement de l'OPO non contraint spectralement en fonction de la désynchronisation. Nous nous plaçons à un taux de pompage à la synchronisation égal à 3 fois le seuil. La Fig. 2.31 représente alors la fluence signal et complémentaire en sortie d'OPO en fonction de la désynchronisation T_{sync} . Il apparaît le même type de courbe que pour l'OPO fortement saturé (Fig. 2.26), dont un découpage similaire en trois zones peut être effectué : zone de compression où le signal est très en retard par rapport à la pompe, zone de synchronisation ou de faible avance où les impulsions sont très fortement saturées et leur spectre très élargi, et enfin zone de plateau où les impulsions ont un profil régulier. Les caractéristiques en sortie d'OPO en fonction de la désynchronisation sont donc globalement identiques. Les profils spectraux et temporels caractéristiques des impulsions en fonction de la zone de désynchronisation sont représentées Fig. 2.32.

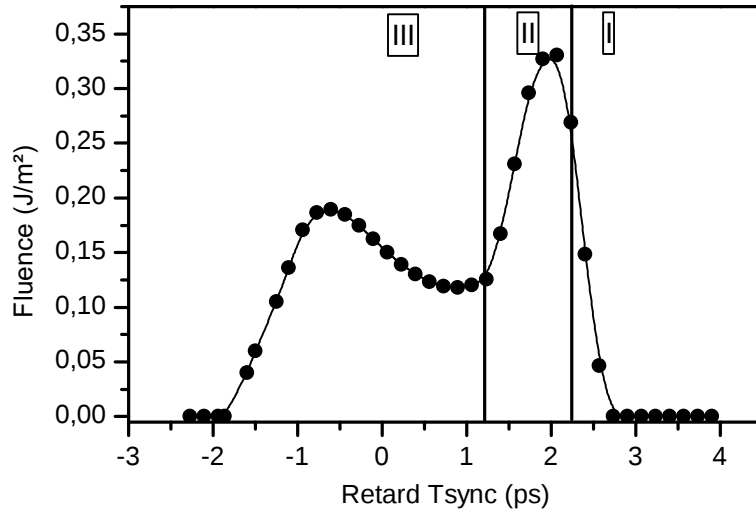


FIGURE 2.31: Fluence signal et complémentaire en fonction de la désynchronisation pour l'OPO large bande faiblement saturé (taux de pompage = 3). La fluence de la pompe incidente est $F_{\text{pompe}} = 0,8 \text{ J/m}^2$.

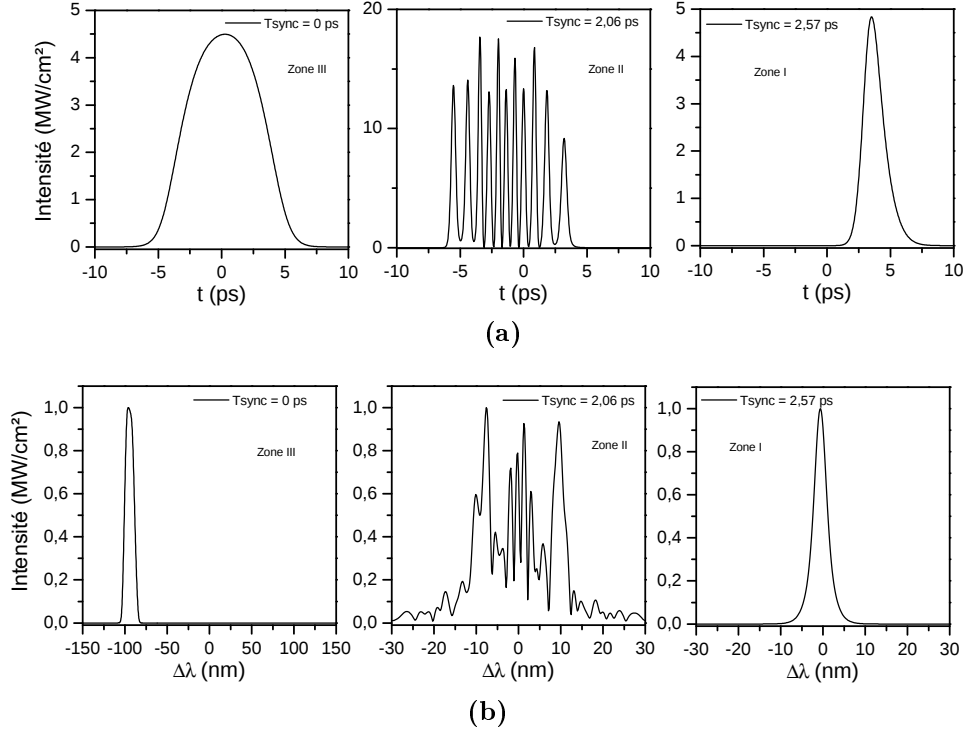


FIGURE 2.32: Simulation (a) des profils temporel et (b) des spectres des impulsions émises par un OPO faiblement saturé en fonction de la désynchronisation.

Effet de désynchronisation sur un OPO monté avec réseau

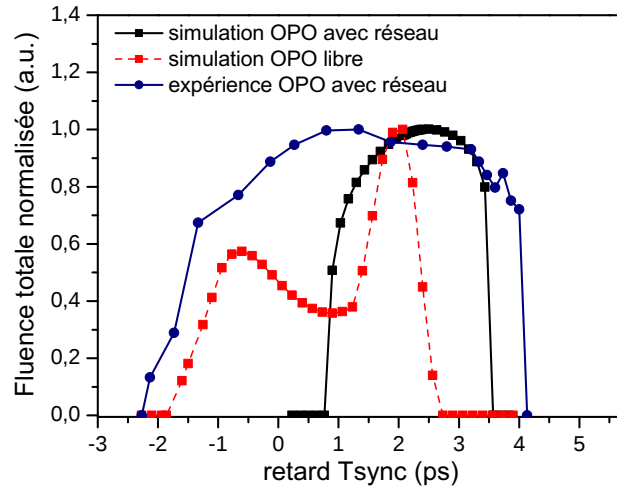
Enfin, nous nous sommes intéressés à la courbe de puissance en fonction de la désynchronisation lorsque l'OPO est contraint par un filtrage fréquentiel très sélectif. Les résultats sont donnés Fig. 2.33 et comparés à la mesure expérimentale que nous avons effectuée sur notre SP-OPO PPLN monté avec un réseau de diffraction. Sur cette figure, la courbe expérimentale a été recalée de manière arbitraire, étant donné qu'il n'y a pas de repère absolu pour évaluer la position de la synchronisation exacte, contrairement à la Fig. 2.26 où le maximum de puissance en sortie est nettement marqué.

Le calcul de la puissance moyenne en fonction de la désynchronisation donne une courbe dont la forme reproduit correctement ce qui a été observé expérimentalement. En effet, l'évolution de la puissance avec la désynchronisation est nettement moins brutale que lorsque l'OPO n'est pas contraint spectralement, et la puissance totale en sortie ne diminue que de 20 % sur une plage de désynchronisation d'environ 2 ps. Il est également intéressant de constater qu'en présence du filtrage spectral, l'OPO semble plus tolérant vis-à-vis du retard de l'impulsion signal que lorsque l'OPO est libre, puisqu'il a été possible d'aller jusqu'à $T_{\text{sync}} = 3,5$ ps, alors que pour l'OPO libre, la courbe de désynchronisation stoppe à $T_{\text{sync}} = 2,5$ ps. L'interprétation de ce phénomène n'est pas évidente a priori, mais dépend probablement du fait que la contrainte spectral s'effectue autour de $\lambda \sim 1,95$ μm , là où la vitesse de groupe est proche du maximum pour le signal.

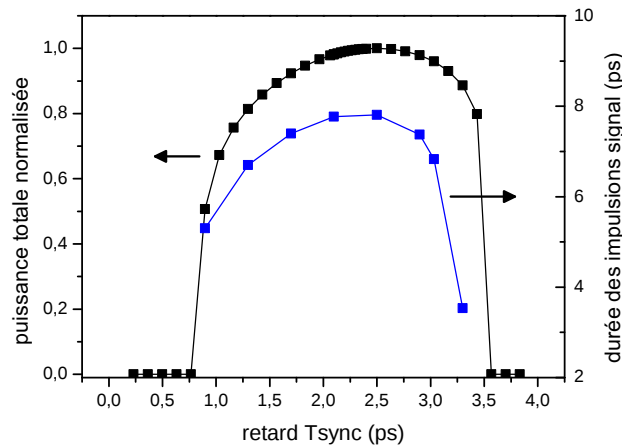
Par ailleurs, de manière analogue aux mesures expérimentales (Fig. 2.15), la durée des impulsions évolue peu dans la plage de désynchronisation : entre $T_{\text{sync}} = 1,25$ ps et $T_{\text{sync}} = 3,25$ ps la largeur totale à mi-hauteur des impulsions varie lentement entre 6,8 ps et 7,7 ps.

Il existe cependant une très nette différence de tolérance à la désynchronisation entre le calcul OPO et la mesure expérimentale. En effet d'après le calcul, le simple fait d'imposer une contrainte spectrale au signal se traduit par une plage totale de désynchronisation de l'ordre de 3 ps, ce qui d'une part est inférieur l'amplitude calculé pour l'OPO libre, qui est d'environ 4 ps, et d'autre part très largement inférieur à l'amplitude mesurée sur notre SP-OPO PPLN, environ 6 ps.

L'interprétation de cette différence, et notamment de la plus grande plage de désynchronisation accessible par l'expérience, est encore mal comprise. À première vue, imposer une contrainte spectrale à l'onde résonante dans l'OPO devrait réduire la plage de désynchronisation par rapport à un OPO libre. En effet, si l'OPO n'est pas contraint, le signal est libre de s'adapter en longueur d'onde pour optimiser son gain, tandis qu'en imposant un spectre restreint, la compensation de la désynchronisation par le spectre n'est a priori plus possible. C'est ce que semble confirmer le calcul. Cependant, expérimentalement, non seulement l'amplitude de désynchronisation est nettement supérieure au calcul, mais elle est aussi plus importante



(a)



(b)

FIGURE 2.33: (a) Densité d'énergie totale normalisée en fonction de la désynchronisation. OPO faiblement saturé. (b) Densité d'énergie normalisée et durée d'impulsion d'après la simulation avec réseau. Dans tous les cas, le taux de pompage est d'environ 3.

que celle dont dispose l'OPO libre. Cette propriété a également pu être constatée par Hanna & al. [Han01], sur une source OPO synchrone basée sur un cristal de PPLN. Il est probable que la réponse soit à rechercher dans les degrés de liberté spatiaux et géométriques dont peut disposer l'OPO en pratique, et dont le calcul numérique ne tient pas compte. En particulier, il est tout à fait envisageable que pour compenser la désynchronisation, le faisceau signal modifie légèrement sa trajectoire afin de faire varier soit son angle d'attaque sur le réseau, ce qui décalerait en longueur d'onde la contrainte spectrale, soit son point d'incidence, ce qui modifierait la longueur optique de la cavité, soit bien évidemment une combinaison des deux effets. Ces hypothèses sont schématiquement décrites Fig. 2.34.

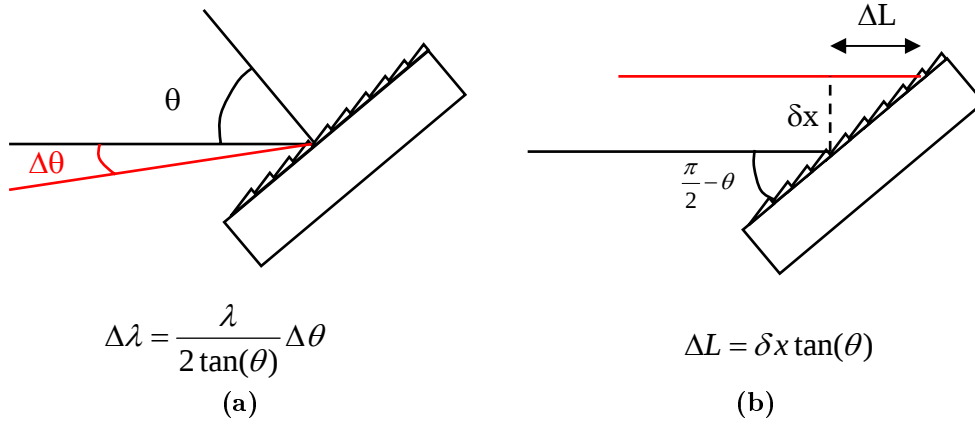


FIGURE 2.34: Hypothèses d'adaptation géométrique du faisceau signal pour compenser la désynchronisation. (a) Modification de l'angle d'incidence. (b) Modification du point d'impact.

Une telle adaptation géométrique du faisceau signal n'est pas sans conséquence. En particulier, une légère modification de trajectoire par rapport à la trajectoire fondamentale se traduira nécessairement par un changement d'angle d'incidence sur le PPLN par rapport au faisceau pompe qui lui est fixe, et par conséquent, introduira un désaccord de phase.

Afin d'estimer la plausibilité de cette hypothèse, prenons l'exemple d'une modification du point d'impact, sans variation de l'angle d'incidence sur le réseau; la longueur d'onde du signal n'est donc pas modifiée. Dans notre configuration Littrow, l'angle d'incidence du faisceau signal est $\theta = 36,1^\circ$. Pour obtenir une compensation de longueur de cavité $\Delta L = 800 \mu\text{m}$, il faut que le centre du faisceau signal se décale d'une quantité $\delta x = \Delta L / \tan(\theta) \sim 1,1 \text{ mm}$. De manière très grossière, un décalage de 1,1 mm sur le miroir de focalisation de focale $f = 250 \text{ mm}$ dans le cristal de PPLN se traduit géométriquement par l'apparition d'un angle d'inclinaison $i = \delta x / f = 0,25^\circ$, ce qui induit un désaccord de phase $|\Delta k L / 2\pi| \sim 0,1$ dans le PPLN pour le centre du faisceau, en supposant que la pompe et le complémentaire restent colinéaires. Une telle modification angulaire ne ferait donc pas sortir le signal de l'acceptance du cristal.

De manière analogue, si l'angle d'incidence sur le réseau est légèrement modifié, alors la

longueur d'onde centrale du signal se décale en même temps que la direction du vecteur d'onde est modifiée dans le PPLN par rapport à l'accord de phase colinéaire, mais la désynchronisation serait en partie compensée du fait de la modification de la vitesse de groupe du signal. Une telle hypothèse est à mettre en relation avec l'observation expérimentale que nous avons effectuée sur le SP-OPO PPLN monté avec réseau, pour lequel nous avons pu mesurer un décalage en longueur d'onde du complémentaire lorsque la longueur de la cavité est modifiée. Le décalage mesuré sur le complémentaire est d'environ 3 nm pour une modification de la longueur de cavité d'environ 700 μm ¹⁸ (Fig. 2.16), ce qui correspond à un décalage de la longueur d'onde centrale du signal d'environ 2 nm. Dans l'hypothèse où cette variation est permise par une modification de l'angle d'incidence de l'onde signal sur le réseau, la déflexion par rapport à l'incidence de départ est :

$$\Delta\theta = 2 \tan(\theta) \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \sim 0,1^\circ.$$

Dans une telle situation, le facteur limitant sera l'acceptance angulaire du PPLN. Dans notre expérience, le cristal non linéaire présente une ouverture d'environ 1 mm. Géométriquement, une déflexion de 0,1° sur un miroir de 250 mm de focale se traduit par un décalage spatial à l'entrée du cristal dont l'ordre de grandeur est :

$$\Delta y \sim f \Delta\theta \sim 0,4 \text{ mm}$$

ce qui est supportable dans notre situation.

Pris séparément, les deux effets géométriques susceptibles d'accroître l'acceptance de la configuration OPO avec réseau vis-à-vis de la désynchronisation introduisent des écarts angulaires dont les ordres de grandeurs géométriques sont a priori supportables du point de vue de l'acceptance du cristal. Il est de plus tout à fait envisageable que ces effets se combinent simultanément. Néanmoins, ces hypothèses ne sont ici soutenues que par des ordres de grandeurs purement géométriques, et nécessiteraient une étude plus approfondie. En particulier, le rapide calcul géométrique ne permet pas d'évaluer la stabilité spatiale de la cavité dans des conditions où l'alignement est perturbé, si tel était le cas il serait alors nécessaire de calculer la tolérance de la cavité par un traitement spatial gaussien, voire multimode, tenant compte de l'astigmatisme des différents composants. Expérimentalement, l'adaptation géométrique du faisceau peut être mise en évidence par l'insertion d'un obturateur à l'intérieur de la cavité, empêchant les déplacements du faisceau. Cet effet de dépointé du faisceau signal a été mesuré lors de travaux postérieurs à la thèse par le biais d'un couteau obturateur placé à proximité du réseau de diffraction, afin de mesurer le décalage du faisceau signal sur le réseau. Typiquement, une variation de pointé du faisceau signal de 0,9 mm sur la plage de désynchronisation

18. Ce qui correspond à une valeur $\Delta L = 350 \mu\text{m}$ avec la convention de la Fig. 2.34.

de $1,5 \text{ mm}^{19}$ a été mesurée. Cette valeur expérimentale de dépointé est inférieure à la valeur calculé précédemment de $1,1 \text{ mm}$ pour une désynchronisation de $800 \text{ }\mu\text{m}$ dans l'hypothèse où l'angle de Littrow n'est pas modifié. Il apparaît par conséquent que l'adaptation du signal au désynchronisme se fait de manière combinée : à la fois par une modification du point d'impact sur le réseau, révélée par l'insertion d'un couteau intracavité, et par une modification de l'angle d'incidence, qui se traduit par une modification de la longueur d'onde d'émission de l'OPO (Fig. 2.16).

Conclusion

En conclusion, les simulations numériques d'OPO synchrones picosecondes nous ont permis de compléter les observations et interprétations expérimentales du Chap. 2.1, et de mettre en lumière l'importance de la saturation sur le façonnage spectro-temporel des impulsions signal et complémentaire. La réalisation d'une source OPO synchrone de forte brillance en régime picoseconde passe par une optimisation du couplage et du taux de pompage, de sorte que les effets de reconversion locaux soient minimisés, et par l'insertion intracavité d'un élément dispersif qui contraigne le spectre de l'onde résonnante. L'étude numérique de la désynchronisation révèle des régimes de fonctionnement très particuliers lorsque l'OPO est saturé : il peut y avoir une adaptation spectrale de l'onde résonnante pour compenser le retard ou l'avance par rapport à la pompe, et pour certaines plages de désynchronisation, le spectre est affiné en même temps que le profil temporel des impulsions devient plus régulier.

19. Cette plage de désynchronisation correspond au "plateau" de la Fig. 2.15.

Synthèse

Dans ce chapitre nous avons présenté le développement et la caractérisation de sources OPO émettant des impulsions brèves par pompage synchrone. Nous avons pu mettre en évidence l'immense potentiel de ces sources en termes d'accordabilité, notamment par la mise en œuvre d'une source SP-OPO ZGP pompée par une source SP-OPO PPLN. Le façonnage spectral, temporel, et spatial des faisceaux émis en régime d'impulsions brèves est complexe. La compréhension du caractère large bande et instantané du pompage synchrone nécessite une analyse numérique dont nous avons donné quelques clés. Les résultats des simulations numériques confirment et complètent les observations expérimentales. L'interprétation de certains phénomènes reste cependant encore ouverte. En particulier, la tolérance expérimentale au désynchronisme de la cavité OPO PPN avec réseau est plus large que celle d'un OPO large bande, ce qui est à la fois contraire à l'intuition et aux simulations ondes planes. L'explication d'un tel phénomène est à rechercher dans un modèle de cavité qui tienne compte du profil spatial du faisceau résonnant.

Chapitre 3

Miroir non linéaire pour la production d'impulsions brèves dans l'infrarouge moyen

Objectifs

Nous avons vu dans le chapitre précédent les nombreux avantages que procure la structure SP-OPO lorsqu'il s'agit de générer des impulsions courtes dans l'infrarouge moyen. Cette solution bénéficie notamment du potentiel d'accordabilité des sources OPO dans des domaines spectraux où les sources laser font généralement défaut comme nous avons pu le démontrer avec le SP-OPO ZGP. Cependant, la structure SP-OPO présente certaines limitations. La principale d'entre elles est la nécessité de disposer au préalable d'une source d'impulsions courtes pour générer des impulsions courtes, le taux de répétition et la durée des impulsions étant de surcroît largement gouvernés par le laser pompe. Ainsi, la réalisation d'un SP-OPO ZGP a nécessité la mise en oeuvre et la synchronisation de trois cavités optiques de 4 m de longueur. Dans le cas du ZGP, ou de tout autre cristal non linéaire adapté à la bande III non transparent à 1 μm , il serait intéressant de disposer directement d'un laser de pompe picoseconde largement accordable, émettant au delà de 2 μm . Pour cela, nous proposons dans ce chapitre l'étude et le développement d'une source laser combinée à un dispositif de verrouillage de modes, accordable dans l'infrarouge moyen. Nous montrerons comment mettre en oeuvre de façon pratique le verrouillage de modes par miroir non linéaire dans un laser ZnSe:Cr^{2+} émettant autour de 2,5 μm . Nous étudierons dans un premier temps les propriétés majeures d'un laser ZnSe:Cr^{2+} continu.

Nous examinerons ensuite l'application du concept de miroir non linéaire à une telle source, d'abord par le biais d'un modèle numérique afin de prédire les performances du système, puis expérimentalement. Nous justifierons le choix des composants constitutifs du miroir non linéaire avant d'en étudier expérimentalement les caractéristiques. Enfin, nous présenterons les premiers résultats expérimentaux de verrouillage de modes d'un laser de l'infrarouge moyen par miroir non linéaire.

3.1 Contexte

D'un point de vue général, le contexte de ce chapitre est l'étude de l'interaction d'un milieu laser avec un milieu non linéaire. L'idée est de profiter à la fois des avantages du laser, en termes de finesse spectrale, de qualité de faisceau, de puissance, de stockage de l'énergie etc., et de la conversion de fréquence tels que l'instantanéité, la cohérence, et l'accordabilité. Dans ce cadre, l'exemple d'interaction le plus ancien est probablement celui du cristal doubleur de fréquence utilisé intracavité dans le but de bénéficier de plus fortes intensités qu'en extracavité et donc de rendements de conversion de fréquence très élevés [Fos72]. L'insertion d'un cristal doubleur peut également permettre d'introduire dans le laser des pertes non linéaires avec l'intensité qui amortissent fortement les oscillations de relaxation au démarrage [Sto10]. Dans la plupart des applications, le doubleur est utilisé en simple passage, c'est-à-dire que tout ou partie des ondes générées est directement extraite en sortie de cristal et non recyclée par la suite. La configuration double passage, où toutes les ondes générées sont au moins partiellement réfléchies par un miroir de fond et réinjectées dans le même cristal non linéaire, peut s'avérer avantageuse : par exemple, dans le cas du doublage de fréquence intracavité, l'augmentation de la longueur d'interaction effective permet d'augmenter le rendement de conversion. Néanmoins, dans une configuration double passage, un paramètre supplémentaire vient gouverner le sens du transfert d'énergie, du fait de la phase relative au retour entre les ondes. Cette phase relative peut être modifiée sous l'action conjointe de la réflexion par un miroir diélectrique traité et de la propagation dans un milieu dispersif avant le retour dans le cristal non linéaire. Le contrôle de la phase au retour par un élément de dispersion réglable pour la maximisation des rendements de conversion a fait l'objet d'un certain nombre de travaux, comme l'étude du doublage intracavité en double passage [Pea99], ou le doublage en double passage extra-cavité [Ime98], ou encore la SHG/DFG en cascade [Nou10], en extracavité également.

Un dispositif intracavité plus avancé est le miroir non linéaire d'ordre deux, constitué d'un doubleur de fréquence et d'un miroir dichroïque. En contrôlant la phase au retour, de sorte que le second harmonique généré au premier passage soit entièrement reconverti au retour, il

devient possible de moduler les pertes d'un laser de façon passive, à la manière d'un absorbant saturable. Le concept du miroir non linéaire fut proposé pour la première fois par Stankov [Sta88b], et a depuis été appliqué avec succès au verrouillage de modes d'un grand nombre de lasers à $1\text{ }\mu\text{m}$ ([Sta91b, Agn99, Dan94, Ili10]...), ainsi qu'au laser Ti:sapphire [Ham91].

Principe du miroir non linéaire d'ordre 2

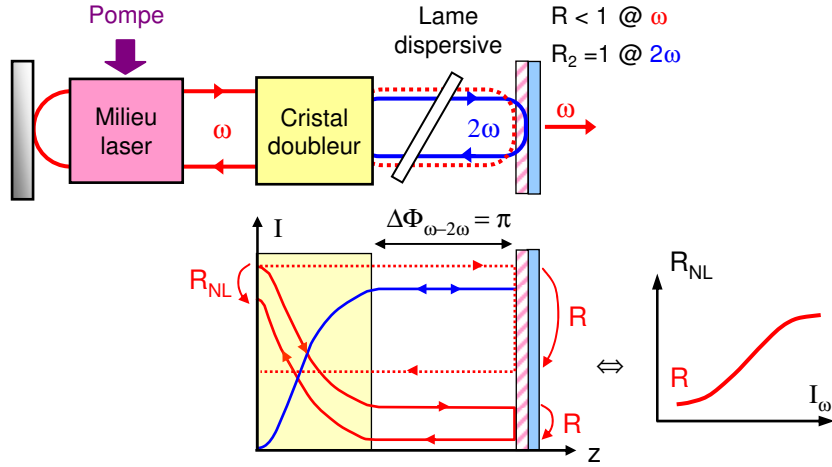


FIGURE 3.1: Principe du miroir non linéaire d'ordre 2.

Le principe du miroir non linéaire d'ordre 2 est schématisé sur la Fig. 3.1. La cavité laser oscille à ω avec un coupleur de sortie partiellement réfléchissant à ω , $R < 1$, et hautement réfléchissant à 2ω , $R_2 = 1$. Un cristal doubleur de fréquence est inséré dans la cavité près du coupleur. Il est réglé à l'accord de phase de façon à maximiser la conversion $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$, la phase non linéaire valant $\varphi = \pi/2$. La distance optique entre le cristal et le coupleur est telle que les ondes à ω et 2ω se déphasent de π , afin de maximiser la reconversion $2\omega \rightarrow \omega + \omega$ au retour, la phase non linéaire valant alors $\varphi = -\pi/2$. Comme l'onde à 2ω subit beaucoup moins de pertes que l'onde à ω , la puissance qui revient vers le laser est plus élevée en présence du cristal non linéaire. La réflectivité de sortie équivalente vue par le laser est donc $R_{NL} \geq R$. Comme schématisé sur la Fig. 3.1, la réflectivité équivalente R_{NL} augmente avec l'intensité à ω , car l'efficacité des processus de doublage et de reconversion augmente avec l'intensité. Autrement dit, l'ensemble {cristal non linéaire + miroir dichroïque} forme un miroir non linéaire, dont la fonction de transfert est celle d'une porte optique.

La fonction de porte optique est la fonction de base servant à favoriser le régime impulsionnel, constitué d'impulsions courtes et intenses, par rapport au régime continu, de faible intensité. Pour que ce système fonctionne correctement, l'efficacité de doublage du cristal, et la réflectivité à ω du miroir dichroïque sont deux paramètres critiques. Leur détermination nécessite une

modélisation dynamique du système complet, ce qui sera effectué au Chap. 3.4. Le déphasage entre les ondes au retour est également très important, mais il peut facilement être ajusté : soit en ajustant la distance du miroir dichroïque au cristal doubleur, si c'est la dispersion de l'air qui est utilisée pour créer ce déphasage; soit par modulation de l'épaisseur d'une lame dispersive. En pratique, cette modulation d'épaisseur se fait par translation d'une lame prismatique comme nous le verrons plus en détails par la suite.

Laser ZnSe:Cr²⁺ à modes verrouillés en phase

Le miroir non linéaire d'ordre 2 n'a jusqu'ici été utilisé que dans des lasers visibles ou autour de 1 μm . Nous proposons ici d'étendre son utilisation au domaine de l'infrarouge moyen. En particulier, il apparaît intéressant de transposer la technique du miroir non linéaire pour verrouiller les modes d'un laser infrarouge récent faisant l'objet d'un effort de recherche constant, à savoir le ZnSe:Cr²⁺.

Découvert en 1996 [DeL96], le ZnSe dopé Cr²⁺ fait partie d'une nouvelle famille de matériaux lasers à base de semiconducteurs II–VI dopés chrome. Les propriétés de ce milieu laser sont assez exceptionnelles. Tout d'abord, il présente un gain laser autour de 2,5 μm , dans une région qui compte peu ou pas d'alternatives. Ensuite, sa bande d'émission est très large, puisqu'elle s'étend de 2 à 3 μm . Elle est même comparable à celle du Ti:Sapphire, ce qui permet de produire des impulsions très courtes. L'efficacité de ce laser est renforcé par son caractère quatre niveaux, sa forte section efficace d'émission, sa faible absorption dans l'état excité, et une efficacité quantique de fluorescence proche de 1 à température ambiante [Mir10, Mir07, Küc02].

Pour la génération d'impulsions courtes, le ZnSe:Cr²⁺ a l'avantage de posséder une forte non-linéarité d'ordre 3, ce qui permet d'envisager le verrouillage de modes par effet Kerr optique. Son seul défaut est une forte variation de l'indice avec la température, qui est 6 fois celle du Nd:YAG ramenée à l'indice de réfraction. Il a donc tendance à former une lentille thermique à forte puissance, bien que cet effet soit partiellement compensé par sa bonne conductivité thermique, qui est 1,2 fois celle du Nd:YAG.

Le laser ZnSe:Cr²⁺ est donc un candidat idéal pour la génération d'impulsions courtes à 2–3 μm , et de manière accordable. Parmi les travaux déjà publiés sur ce sujet, les premiers concernent le verrouillage des modes par modulation active des pertes [Car00, Sor01]. Des impulsions de 4,4 ps pour 82 mW de puissance moyenne ont été obtenues. Le verrouillage des modes de manière passive par effet de lentille Kerr a été présenté par plusieurs groupes [Ciz09, Mos08a, Sor09] : les puissances moyennes extraites sont relativement faibles, de l'ordre de quelques dizaines de mW, et la durée des impulsions reportée est généralement de l'ordre de 100 fs. Il semble difficile, même avec l'utilisation de systèmes de compensation de la dispersion, de repousser la limite de la durée des impulsions obtenues par Kerr lens mode-locking, où les

derniers travaux de [Ciz09] en la matière font état d'impulsions de 95 fs. D'autre part, les conditions d'obtention d'un verrouillage de modes passif auto-déclenché par la seule lentille de Kerr sont très contraignantes sur l'alignement et la stabilité mécanique du montage. Bien que tout ne soit pas compris, il est possible que cela soit dû à des problèmes de stabilité du verrouillage de modes et à la difficulté d'optimiser la lentille de Kerr [Kal03].

Récemment, le verrouillage des modes de manière passive a été obtenu à l'aide d'un miroir semiconducteur à absorbant saturable, ou SESAM [Pol05, Sor06, Sor07]. Cette méthode est très efficace puisque des impulsions de l'ordre de 100 fs ont été obtenues avec 75 mW de puissance moyenne. Le record de durée d'impulsion dans ZnSe:Cr^{2+} de 80 fs [Sor07] a été obtenu par cette technique de verrouillage de modes couplée à une compensation de la dispersion par des miroirs chirpés. Néanmoins, elle nécessite de concevoir un composant par épitaxie dans un domaine spectral peu usuel au delà du proche infrarouge des télécommunications. Le composant doit être optimisé à la longueur d'onde choisie, avec une reproductibilité souvent difficile à assurer. Cela représente un développement technologique assez lourd. De plus, le SESAM exploite une non-linéarité résonante d'ordre 3, ce qui a trois conséquences importantes : il n'est opérationnel qu'autour d'une certaine longueur d'onde, la gestion des effets thermiques due à l'absorption peut être problématique en termes seuil de dommage et de durée de vie du composant, et le temps de réponse est limité par la dynamique des porteurs [Kel96].

Dans le domaine des impulsions picosecondes, le miroir non linéaire d'ordre 2 étudié dans ce chapitre n'a aucun des inconvénients technologiques attribués aux SESAM puisqu'il n'utilise que des composants optiques standards. Comme son principe repose sur de l'optique non linéaire d'ordre 2, il est transposable à n'importe quelle longueur d'onde, et son temps de réponse est quasi-instantané. C'est donc a priori un très bon candidat pour le verrouillage des modes du laser ZnSe:Cr^{2+} . Toutefois, comme pour tout miroir non linéaire, il doit être dimensionné spécifiquement pour le laser dans lequel il est inséré, afin d'obtenir un régime stable d'impulsions courtes. Il est donc nécessaire de mener une étude complète, théorique et expérimentale, du miroir non linéaire appliqué au ZnSe:Cr^{2+} .

Dans un premier temps, nous détaillerons l'étude du laser ZnSe:Cr^{2+} en continu, étape préalable indispensable. Nous présenterons ensuite le calcul numérique des performances du miroir de Stankov afin de vérifier qu'elles sont adaptées au ZnSe:Cr^{2+} et à la production d'impulsions picosecondes. Puis nous procéderons à la description et à la caractérisation du miroir non linéaire hors cavité en régime picoseconde en utilisant le complémentaire du SP-OPO PPLN développé au Chap. 2.1 comme source de pompe. Enfin, nous aborderons la réalisation expérimentale du verrouillage de modes. La dernière partie de ce chapitre sera consacrée à un approfondissement des propriétés du miroir non linéaire, approfondissement rendu nécessaire par l'observation de phénomènes inattendus a priori sur notre laser ZnSe:Cr^{2+} .

3.2 Laser ZnSe:Cr²⁺ en CW

La démonstration du verrouillage de modes d'une source ZnSe:Cr²⁺ s'est faite selon une démarche principalement guidée par le déblocage de verrous expérimentaux rencontrés avant la réalisation du montage final représenté sur la Fig. 3.2.

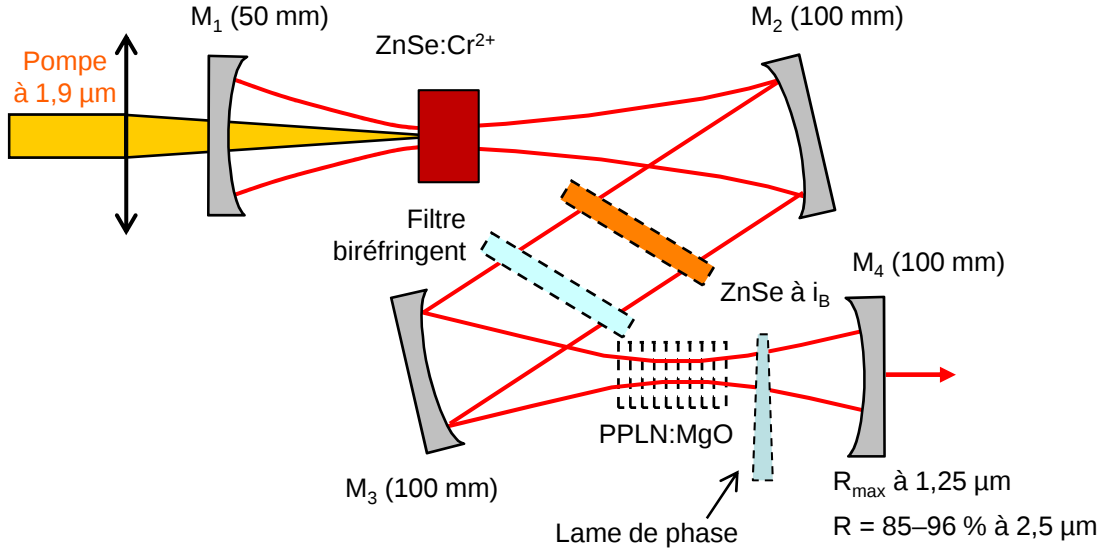


FIGURE 3.2: Schéma de montage final du laser ZnSe:Cr²⁺ avec miroir non linéaire. Dans l'étude du laser continu, les composants représentés en lignes pointillées ne sont pas présents dans la cavité.

La cavité laser est constituée de quatre miroirs concaves qui forment trois bras dont deux bras focalisés. Les deux bras focalisés sont nécessaires pour obtenir à la fois un gain élevé dans le cristal de ZnSe:Cr²⁺, et une forte efficacité de conversion dans le cristal non linéaire. Cette architecture, que nous nommerons cavité en "Z", a été principalement déterminée par les travaux de dimensionnement réalisés dans la thèse de Jean-Michel Melkonian [Mel07], qui indiquent que l'efficacité du verrouillage de modes est une fonction croissante du gain et de l'efficacité de la conversion / reconversion dans le cristal non linéaire.

Le premier objectif expérimental a été de tester les performances laser en continu et la qualité optique de différents cristaux que nous avons à notre disposition, afin de déterminer le plus adapté à la réalisation de la source finale. Pour cela, il nous a fallu réaliser une cavité laser susceptible d'accueillir un grand nombre de cristaux interchangeables. Le choix de la cavité de test s'est fait en prenant compte des contraintes de stabilités liées notamment à l'effet de lentille thermique induit par l'absorption de la pompe dans le cristal laser. En effet, comme nous l'aborderons dans ce chapitre, la focale thermique qui s'installe dans le cristal de ZnSe:Cr²⁺ est extrêmement courte, de l'ordre du centimètre. La prise en compte de ce phénomène nous a amené à nous orienter dans un premier temps vers une cavité différente de la cavité en Z pour

tester les différents cristaux dans des conditions tolérantes. Une fois le cristal le plus performant identifié, nous avons procédé à une analyse plus détaillée de ses performances laser en continu.

3.2.1 Effet de lentille thermique dans ZnSe:Cr^{2+}

Les propriétés thermo-optiques du ZnSe sont connues depuis de nombreuses années [Har77]. Du point de vue de notre application, le principal défaut de ce matériau est son coefficient de variation de l'indice avec la température $\frac{dn}{dT}$ qui vaut $70 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ à peine compensée par un bon coefficient de conductivité thermique $\kappa = 0,18 \text{ W/cm K}$. Ainsi, dans le cas d'un laser ZnSe:Cr^{2+} , les effets thermiques, et notamment les effets d'autofocalisation de la pompe et du mode laser, peuvent poser des problèmes d'instabilité sur la cavité à fort taux de pompage, et limiter la montée en puissance [Ber10b, Mos09a]. L'augmentation de la température du cristal peut également influencer sur l'efficacité du laser en réduisant le temps de vie de l'état excité [Sen00]. Dans ce chapitre nous rappellerons brièvement l'origine de la lentille thermique, et donnerons quelques éléments de compréhension qui nous ont amenés à abandonner l'utilisation d'un cristal laser à incidence de Brewster au profit d'une configuration en incidence normale avec traitements anti-reflets.

Origine de la lentille thermique

La description et l'étude de la lentille thermique et plus généralement des transferts de chaleur dans les cristaux laser a fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales quasiment dès l'invention du laser [Koe70, Cou92, Che02]. L'objectif ici n'est pas de faire une présentation exhaustive du phénomène, ce qui nécessiterait le référencement de nombreux travaux effectués sur des architectures de pompage parfois très différentes de la notre, mais de donner quelques éléments de compréhension et ordres de grandeur dans nos conditions expérimentales, à savoir le pompage longitudinal par laser d'un cristal de ZnSe:Cr^{2+} .

L'origine des effets thermiques réside dans la structure des niveaux d'énergie du milieu laser. Dans un laser à quatre niveaux comme le ZnSe:Cr^{2+} , l'absorption d'un photon de pompe s'accompagne inévitablement de la transformation d'une partie de son énergie en chaleur par le biais de transferts énergétiques non radiatifs. Idéalement, l'écart d'énergie entre les photons de pompe et les photons laser, le défaut quantique, donnera la quantité de chaleur transférée vers le cristal. Dans le meilleur des cas seulement puisque ce schéma suppose un rendement quantique de 1, i.e. un photon pompe absorbé donne un photon laser, si bien qu'en général, la part de la pompe absorbée qui participe au réchauffement du cristal est plus importante que le simple défaut quantique. Par ailleurs, la distribution de température qui résulte de ce transfert de chaleur entre la désexcitation des ions dopants et le matériau cristallin est fortement inhomogène du fait de l'inhomogénéité du faisceau de pompe. Il en résulte l'apparition d'un gradient de

température dans le cristal laser qui modifie l'indice de réfraction localement, par le biais du coefficient thermo-optique $\frac{dn}{dT}$, ainsi que la longueur du cristal, par le biais de la dilatation thermique. Ces déformations sont équivalentes à celle apportées par une lentille épaisse dont la focale dépend des paramètres de pompage. La présence d'une focale variable dans un oscillateur laser a plusieurs conséquences, la stabilité de la cavité et de la taille du faisceau laser dépendant de la puissance de pompe. Ajouter à cela que la lentille thermique générée peut présenter des aberrations, ce qui est le cas dans un cristal à incidence de Brewster impliquant donc de l'astigmatisme, le problème devient alors vite complexe. Dans ce chapitre, nous donnerons quelques ordres de grandeur significatifs de la lentille thermique dans ZnSe:Cr²⁺, et son impact sur la stabilité de la cavité laser.

Le calcul de Koechner - matrice de transfert d'un milieu comportant une lentille thermique

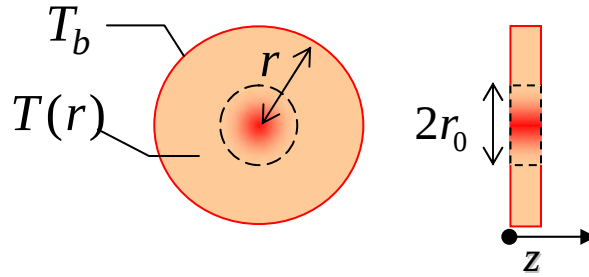


FIGURE 3.3: Géométrie du problème de diffusion de la chaleur dans un cristal laser. Z est la direction de propagation du faisceau de pompe. r_0 est l'extension radiale de la zone d'absorption, typiquement le rayon au waist du faisceau de pompe.

Koechner [Koe70] est le premier à s'être intéressé aux problèmes thermiques dans les cristaux de Nd:YAG. Son modèle fait plusieurs hypothèses simplificatrices qui le rendent inadapté à une description rigoureuse de notre configuration de pompage, mais il permet d'illustrer simplement la notion de lentille thermique, tout en fournissant un ordre de grandeur de la puissance de la focale thermique.

Pour connaître la fonction de température dans un cristal, il faut résoudre l'équation de la chaleur en régime permanent :

$$\nabla^2 T(x, y, z) = -\frac{Q_{th}(x, y, z)}{\kappa} \quad (3.1)$$

où T est la température, Q_{th} la charge thermique, et κ la conductivité thermique. Dans un problème à symétrie radiale (voir Fig. 3.3), les hypothèses suivantes peuvent être faites : pompe à symétrie radiale, flux de chaleur radial, ce qui revient à négliger les transferts par les faces

d'entrée et de sortie du cristal, conductivité thermique constante, et enfin charge thermique constante; cette dernière est de loin l'hypothèse la moins valable dans notre cas, puisque cela suppose notamment que l'absorption de la pompe est uniforme dans le cristal. Dans ce cadre, le profil gaussien de la pompe, ainsi que l'absorption longitudinale dans le cristal, sont donc négligés. Dans ces conditions, la charge thermique vaut :

$$Q_{\text{th}} = \frac{P_{\text{th}}}{\pi r_0^2 L} \quad (3.2)$$

où $P_{\text{th}} = \eta P_{\text{abs}}$ est la fraction de pompe absorbée convertie en chaleur (au minimum $\eta = 1 - \lambda_p/\lambda_l$ est le défaut quantique), r_0 est le rayon de la zone du barreau laser où s'effectue le dépôt de chaleur, L sa longueur.

La température a alors un profil parabolique dans la zone où s'effectue le dépôt de chaleur :

$$T(r) = T_0 - \frac{\eta P_{\text{abs}}}{4\pi\kappa L} \times \frac{r^2}{r_0^2} \quad (3.3)$$

où T_0 est la température au centre du cristal. Notons que cette distribution parabolique de la température est valable dans la zone du cristal où se situe la source de chaleur Q_{th} , c'est-à-dire dans la zone de pompage. Cette description est suffisante pour décrire la focalisation du faisceau laser par la lentille thermique puisque le spot laser est a priori adapté au spot de la pompe. Dans [Cou92], une description plus complète de la distribution de température est proposée : dans la zone où la chaleur est déposée, le profil de température est une fonction parabolique de r , tandis qu'en dehors, la température est fonction du logarithme de r .

À l'ordre 1 en température, l'indice de réfraction dans le cristal laser s'écrit :

$$n(r) = n_0 + \frac{dn}{dT} [T(r) - T_0] \quad (3.4)$$

où n_0 est l'indice au centre du cristal. A noter que ce développement limité ne tient pas compte de la déformation du matériau sous l'effet de la dilatation thermique, mais uniquement des variations d'indices avec la température. En remplaçant $T(r)$ par son expression 3.3, il vient :

$$n(r) = n_0 - \frac{\eta P_{\text{abs}}}{4\pi\kappa L} \times \frac{dn}{dT} \times \frac{r^2}{r_0^2} \quad (3.5)$$

$$n(r) = n_0 \left(1 - \frac{\gamma^2 r^2}{2}\right) \quad (3.6)$$

où $\gamma^2 = \eta P_{\text{abs}} \frac{dn}{dT} / (2\pi n_0 \kappa L r_0^2)$. L'indice est donc une fonction parabolique de la coordonnée radiale r . Dans le cadre du formalisme des matrices ABCD utilisé classiquement pour calculer la divergence d'un faisceau gaussien suite à son passage à travers un système optique, l'intégration

de la déviation d'un rayon lumineux par un milieu dont l'indice est une fonction parabolique de la coordonnée transverse à la direction de propagation se conclut par l'obtention d'une matrice de transfert de la forme [Sie86] :

$$\begin{pmatrix} \cos(\gamma L) & \frac{1}{n_0 \gamma} \sin(\gamma L) \\ -n_0 \gamma \sin(\gamma L) & \cos(\gamma L) \end{pmatrix} \quad (3.7)$$

Lorsque $\gamma L \ll 1$ (faible lentille thermique), la matrice de transfert du milieu contenant un indice parabolique se simplifie à l'ordre 2 en :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \cos(\gamma L) & \frac{1}{n_0 \gamma} \sin(\gamma L) \\ -n_0 \gamma \sin(\gamma L) & \cos(\gamma L) \end{pmatrix} &\simeq \begin{pmatrix} 1 - \frac{\gamma^2 L^2}{2} & \frac{L}{n_0} \\ -n_0' \gamma^2 L & 1 - \frac{\gamma^2 L^2}{2} \end{pmatrix} \\ &\simeq \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n_0} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -n_0 \gamma^2 L & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n_0} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Ainsi, la matrice de transfert d'un milieu d'indice parabolique dans la direction transverse est équivalente au produit de trois matrices décrivant une lentille mince de focale $\frac{1}{f} = n_0 \gamma^2 L$ placée entre deux lames d'épaisseur optique $\frac{L}{2}$, d'où la notion de "lentille thermique". Il est alors possible d'évaluer la stabilité d'une cavité laser contenant une lentille thermique ainsi que l'évolution de la taille du mode laser en fonction de l'intensité laser par l'intermédiaire du formalisme des matrices ABCD.

Le formalisme que nous venons de rappeler est relativement simpliste pour décrire les conditions de pompage de notre cristal de ZnSe:Cr²⁺ car il ne tient notamment pas compte de la géométrie du cristal ni de l'inhomogénéité du faisceau pompe. Néanmoins, il est possible d'obtenir un ordre de grandeur facilement calculable de la lentille thermique. Les grandeurs caractéristiques pour un cristal de ZnSe:Cr²⁺ de 2 mm de longueur sont rappelées dans le Tab. 3.1. Les caractéristiques de la source de pompe sont celles du laser Thulium ($\lambda_{pompe} = 1.9 \mu\text{m}$) que nous avons utilisé dans la partie concernant les expériences laser. Les propriétés du pompage du ZnSe:Cr²⁺ seront décrites plus en détail dans le Chap. 3.2.2.

Avec ces valeurs, l'ordre de grandeur de la focale thermique pour un cristal de 2 mm ayant absorbé 1 W de pompe est :

$$f_{\text{therm}} \approx \frac{2\pi w_p^2 \kappa}{\eta P_{\text{abs}} \frac{dn}{dT}} \approx 30 \text{ mm}$$

Paramètre	Notation	Valeur
Puissance de pompe absorbée	P_{abs}	1 W
Défaut quantique	$\eta = 1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_l}$	0.24
Conductivité thermique	κ	0.18 W/cm K
Variation de l'indice avec la température	$\frac{dn}{dT}$	$70 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
Rayon au waist de pompe	w_p	65 μm
Longueur du cristal laser	L	2 mm

TABLE 3.1: Grandeurs caractéristiques pour l'estimation de la focale thermique dans ZnSe:Cr^{2+} .

D'après ce calcul, la focale thermique induite dans le ZnSe:Cr^{2+} est très courte, ce qui correspond donc à des contraintes sur la stabilité de la cavité et du mode laser extrêmement fortes.

Mise en évidence expérimentale de la lentille thermique.

Afin de compléter cette évaluation théorique des effets thermiques dans ZnSe:Cr^{2+} , nous avons cherché à mettre en évidence l'effet de lentille thermique expérimentalement. Pour cela nous avons réalisé l'expérience décrite Fig. 3.4

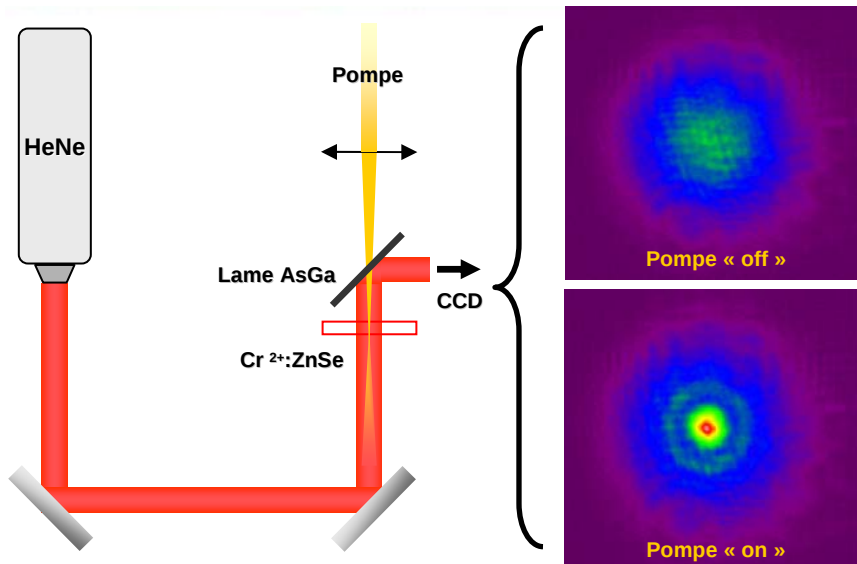


FIGURE 3.4: Schéma de montage d'étude de la lentille thermique dans ZnSe:Cr^{2+} . Les images du spot HeNe sont prises par une caméra CCD située à 6 cm environ du cristal.

Le principe est celui d'une expérience pompe - sonde. Il s'agit de venir pomper un cristal de ZnSe:Cr^{2+} , hors cavité laser, avec le laser $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ (voir Chap. 3.2.2) dans des conditions de

focalisation proches de celles rencontrées lors des expériences laser, c'est-à-dire avec un rayon au waist d'environ 65 μm dans le cristal. Le gradient de température entre les bords du cristal et la zone de pompage se traduit alors par l'apparition d'une lentille thermique que nous mettons en évidence en propageant colinéairement au faisceau pompe un faisceau laser HeNe collimaté. Comme indiqué sur la Fig. 3.4, l'He-Ne est séparé du faisceau de pompe par le biais d'une lame de GaAs à 45° qui réfléchit l'HeNe tout en transmettant une partie de la pompe. L'HeNe séparé et ensuite analysé par une caméra CCD située à quelques centimètres de la lame de GaAs. Il est à noter que le cristal de ZnSe:Cr²⁺ doit être légèrement incliné afin d'éviter les retours de pompe qui pourraient perturber le laser Tm³⁺:YLF (voir Annexe. C).

L'expérience a été menée sur trois différents cristaux G1, G2, Ci (voir Chap. 3.2.2 pour les caractéristiques générales de ces cristaux), pour une puissance de pompe incidente sur le cristal de ZnSe:Cr²⁺ de 500 mW. La Fig. 3.4 montre l'effet de focalisation sur le faisceau HeNe par la lentille thermique. Qualitativement, l'effet de focalisation sur la caméra CCD est comparable quel que soit le cristal utilisé, et nous verrons au Chap. 3.2.2 que les trois cristaux testés ont des propriétés d'absorption très comparables. La translation longitudinale de la caméra sur le trajet de l'HeNe confirme que la focalisation est très forte. Cette expérience a révélé que la focale thermique est extrêmement courte ($< 2\text{ cm}$), mais il n'a pas été possible de mesurer la position du foyer à la caméra du fait de l'encombrement de la lame de GaAs. Nous retiendrons donc que dans nos conditions expérimentales, la focale thermique est de l'ordre du centimètre, ce qui est cohérent avec l'ordre de grandeur obtenu par le calcul.

Nous avons par ailleurs pu évaluer le gradient thermique entre le bord du cristal et la zone de pompage en mesurant la température à l'aide d'une sonde thermique. La température est évaluée sur la face de sortie du cristal ZnSe:Cr²⁺. L'écart de température entre le bord du cristal et la zone de pompage est typiquement de l'ordre de 3°C pour une puissance incidente totale de 1 W, ce qui correspond à une puissance incidente d'environ 800 mW étant donnée la perte de puissance due à la réflexion sur la face d'entrée du cristal en incidence normale. Notons que la température ne peut être mesurée qu'au bord de la zone de pompage et non au centre, l'extrémité de la sonde thermique n'étant pas adaptée pour tenir le flux de la pompe focalisée. Néanmoins, cette mesure, qui révèle un gradient de température de quelques degrés, est cohérente avec les valeurs reportées dans la littérature [Sen00]. Il est donc tout à fait remarquable de noter que des gradients de température relativement faibles (quelques degrés Celsius) sont suffisants pour induire un effet de focale thermique très intenses, f_{therm} de quelques centimètres. Cette effet est principalement dû à la très forte variation de l'indice avec la température $\frac{dn}{dT}$ du ZnSe:Cr²⁺.

Stabilité comparée de différentes configurations de cavité.

Comme nous venons de le voir, à la fois par un calcul rapide et par l'observation expérimentale, la lentille thermique dans le ZnSe:Cr^{2+} est très courte, du même ordre de grandeur que la longueur des cristaux que nous avons utilisés. Il est donc nécessaire d'évaluer son impact sur la stabilité de la cavité laser. Dans cette partie, nous discutons la stabilité relative de deux configurations de cavité. La première correspond à la configuration en Z décrite en préambule du chapitre ZnSe:Cr^{2+} , et la seconde est la cavité dite en X représentée schématiquement sur la Fig. 3.5.

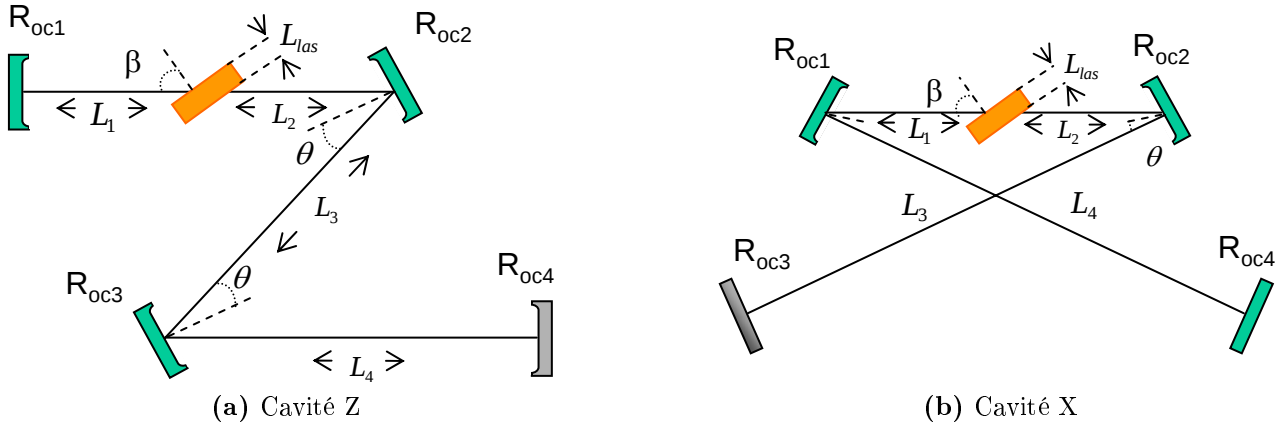


FIGURE 3.5: Schéma des cavités laser ZnSe:Cr^{2+} Z et X comprenant chacune 4 miroirs et un cristal laser à incidence de Brewster. Le plan tangentiel est le plan de la feuille, et le plan sagittal est le plan orthogonal.

La cavité en Z correspond au design retenu en vue de l'insertion du miroir non linéaire dans le deuxième bras focalisé; il s'agit de la configuration la plus simple présentant deux bras focalisés. La cavité en X correspond au design de cavité généralement retenue dans la plupart des travaux ([Ciz09, Mos08a, Sor05]...) lorsqu'il s'agit de compenser l'astigmatisme, mais elle comprend un unique bras focalisé, contenant le cristal laser. Comme nous allons le voir, le design en X est effectivement plus tolérant vis-à-vis de l'astigmatisme et de la lentille thermique que le design en Z.

Le calcul de la stabilité de l'oscillateur laser est mené classiquement par le biais du formalisme des matrices ABCD [NH97, Sie86]. Les différents éléments sont décrits par leur matrice de transfert, et le calcul consiste à rechercher l'existence d'un mode de cavité gaussien stable, c'est-à-dire revenant à l'identique sur lui-même après un tour de cavité. Le calcul tient compte de l'astigmatisme éventuel des éléments de cavité inclinés, c'est-à-dire que le mode de cavité est évalué dans le plan tangentiel puis dans le plan sagittal. Les deux zones de stabilité sont ensuite comparées. Pour que la cavité soit considérée comme stable, il est nécessaire que le

mode sagittal et le mode tangentiel soient stables ensemble pour une configuration de cavité donnée.

Ce type d'étude est largement répandu dans la littérature notamment dans les travaux concernant la compensation de l'astigmatisme par les miroirs concaves inclinés [Kog72], ou dans le cadre de l'optimisation de la lentille de Kerr dans les lasers à modes verrouillés en phase par effet Kerr [Anc00, Lin95]. Notre étude dans le cas du ZnSe:Cr²⁺ est très largement inspirée des travaux de [Hua96] sur le Saphirre:Ti. Une présentation plus détaillée du formalisme utilisé est présentée dans l'Annexe A. Le Tab. 3.2 donne l'ensemble des paramètres de l'étude de stabilité de la cavité en Z. Les cavités étudiées sont construites de sorte que le rayon au waist du faisceau dans le bras focalisé contenant le cristal laser soit de 65 μm .

Paramètres	Valeurs
$R_{oc1} = R_{oc2}$	100 mm
$R_{oc3} = R_{oc4}$	∞
$L_1 = L_2$	$52 \text{ mm} + \Delta x/2$
L_3	250 mm
L_4	250 mm
L_{las}	2,74 mm
θ	$0^\circ < \theta < 30^\circ$
β (Brewster)	$67,5^\circ$
f_{therm}	0 cm - 10 cm

(a) Paramètres de la configuration en X

Paramètres	Valeurs
$R_{oc1} = R_{oc4}$	50 mm
$R_{oc2} = R_{oc3}$	100 mm
$L_1 = L_2$	$51 \text{ mm} + \Delta x/2$
L_3	390 mm
L_4	100 mm
L_{las}	2,74 mm
θ	$0^\circ < \theta < 30^\circ$
β (Brewster)	$67,5^\circ$
f_{therm}	0 cm - 10 cm

(b) Paramètres de la configuration en Z

TABLE 3.2: Paramètres d'étude de la stabilité des configurations de cavité Z et X. Les deux cavités ont approximativement la même longueur optique correspondant à une fréquence de cavité $f_{cavité} \sim 250 \text{ MHz}$.

Les paramètres variables pour déterminer les diagrammes de stabilité sont la distance entre les deux miroirs concaves, avec le paramètre variable Δx , et l'angle d'incidence θ sur les miroirs concaves de repli. Le cristal est supposé être situé à égale distance des deux miroirs concaves. Le but est de visualiser l'évolution des zones de stabilité pour différentes puissances dioptriques de la lentille thermique, c'est-à-dire pour différentes puissances de pompe. Pour cela, considérons dans un premier temps le cas hypothétique où la lentille thermique est nulle ($f_{therm} = \infty$). La Fig. 3.6 représente les zones où la cavité est stable, avec un mode gaussien propre à la cavité, dans le plan sagittal et le plan tangentiel. La Fig. 3.6a donne les zones de stabilité dans les

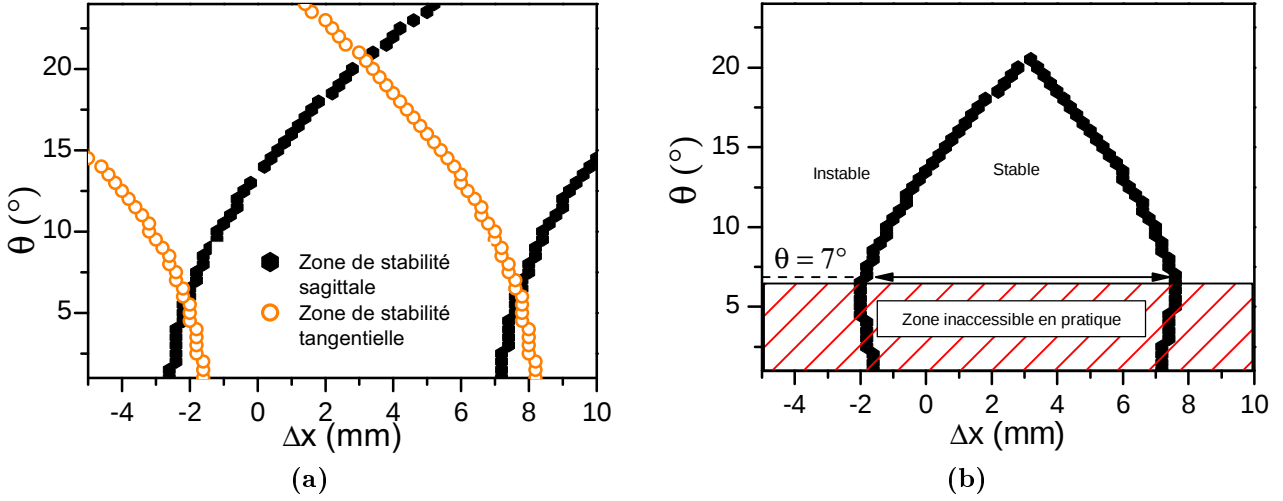


FIGURE 3.6: Stabilité de la cavité en Z en fonction des paramètres Δx et θ en l'absence de lentille thermique ($f_{therm} = \infty$) et pour un cristal à incidence de Brewster. Pour chaque plan, l'intérieur des pointillés correspond à une zone de stabilité pour la cavité, tandis qu'à l'extérieur, la cavité est instable. (a) Stabilité sagittale et tangentielle calculées séparément en l'absence de lentille thermique. (b) Zone de stabilité commune en l'absence de lentille thermique. Les cas où θ est proche de 0 n'ont pas de sens pratique, puisque l'encombrement des composants impose un angle d'incidence minimum.

deux plans séparément. Lorsque l'angle d'incidence θ est compris entre 0° et 20° environ, les zones tangentielle et sagittale se recouvrent. Par ailleurs, il existe un angle d'incidence optimal ($\theta = 7^\circ$) pour lequel le recouvrement des zones sagittale et tangentielle est maximal. Pour cet angle la cavité est dite compensée de l'astigmatisme¹ [Kog72]. Expérimentalement l'objectif est de se rapprocher du mieux possible de cette valeur. En pratique, l'angle d'incidence minimal accessible vu l'encombrement des diverses montures est de l'ordre de 8° , nous nous sommes donc contentés de minimiser le plus possible l'angle de repli de la cavité. Nous verrons par la suite qu'il est possible que la cavité présente des zones de stabilité fortement disjointes dans l'espace des paramètres $\{\Delta x, \theta\}$, dans ce cas, ce sont plus particulièrement les zones de stabilité à la fois larges et permettant d'obtenir des rayons aux waists sagittal et tangential les plus proches possibles, qui sont recherchées. La Fig. 3.6b donne la représentation de la zone de stabilité

1. L'expression compensation de l'astigmatisme est quelque peu abusive. Elle semble en effet indiquer que la cavité n'est plus astigmatique et que les modes sagittal et tangential sont identiques, ce qui n'est généralement pas le cas. En réalité la cavité est dite compensée à partir du moment où le recouvrement des zones de stabilité sagittale et tangentielle est maximal. Il est éventuellement possible d'optimiser les paramètres de cavité de sorte que le mode tangential et le mode sagittal aient la même dimension localement (par exemple dans le cristal laser), mais en règle générale, les modes n'ont pas la même taille transverse en tout point de la cavité ni la même divergence. En pratique, l'étude de la compensation est importante dans les cavités contenant des éléments épais et inclinés (typiquement un cristal laser à incidence de Brewster). La stratégie consiste alors à calculer l'inclinaison des miroirs concaves de sorte que l'astigmatisme introduit par les miroirs compense l'astigmatisme du cristal à Brewster en termes de stabilité de cavité.

commune aux deux plans. La principale conclusion est que la configuration en Z avec cristal à angle de Brewster présente des zones de stabilité très restreintes, puisque même à l'angle θ optimal, la tolérance sur Δx n'est que d'une dizaine de millimètres.

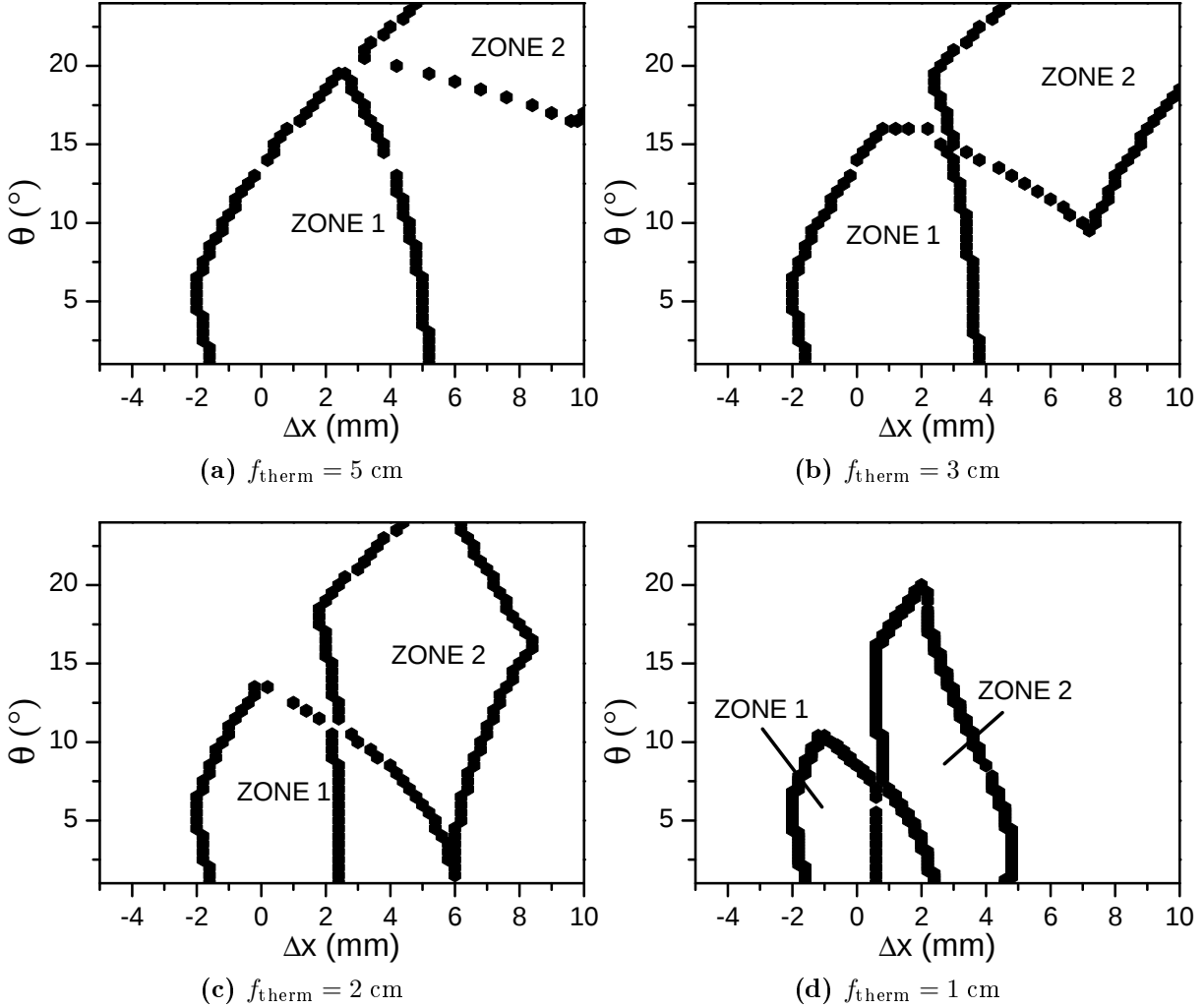


FIGURE 3.7: Évolution de la stabilité de la cavité en Z pour différentes lentilles thermiques.

Intéressons nous ensuite à la manière dont évolue la zone commune lorsque l'effet de lentille thermique est progressivement augmenté en plus des contraintes liées à l'astigmatisme du miroir de repli et du cristal laser à Brewster. La Fig. 3.7 donne un aperçu de la zone de stabilité pour différentes lentilles thermiques.

Plusieurs remarques peuvent être formulées. Premièrement, la lentille thermique a tendance à réduire considérablement la stabilité de la cavité (zone 1 sur la Fig. 3.7). Deuxièmement, une seconde zone de stabilité commune apparaît et se déplace progressivement (zone 2). Cette zone, qui se déplace et se réduit en même temps que la focale thermique diminue, existe majoritaire-

ment pour des angles d'incidence θ importants, au delà de 10° , ce qui a pour conséquence que dans cette zone, les rayons aux waists sagittal et tangential ont des tailles très différentes. Par exemple, pour une focale thermique de 5 cm, et un angle d'incidence θ de 20° , le waist sagittal fait typiquement 100 μm tandis que le waist tangential fait 50 μm . La cavité est donc théoriquement stable mais fortement astigmatique. C'est la zone 1 qui sera privilégiée, là où les deux waists prennent des valeurs plus proches, approximativement 65 μm pour un angle d'incidence de 8° . Enfin, lorsque la focale thermique devient très courte, de l'ordre de 2 cm, la zone 1 utile devient extrêmement limitée : à peine quelques millimètres sur le tirage Δx des miroirs 1 et 2. Il apparaît donc que la cavité en Z est mal adaptée en termes de stabilité et de compensation de l'astigmatisme lorsque le cristal laser est à angle de Brewster, et qu'il contient une lentille thermique.

Afin de compenser cette limitation, deux solutions peuvent être envisagées. La première est d'utiliser un cristal en incidence normale. Cette solution a pour effet de réduire la contrainte d'astigmatisme. La seconde option est de changer la configuration et de passer à une cavité en X beaucoup plus tolérante même avec un cristal à incidence de Brewster. La Fig. 3.8 illustre cette propriété. Les paramètres sont ceux répertoriés dans le Tab. 3.2.

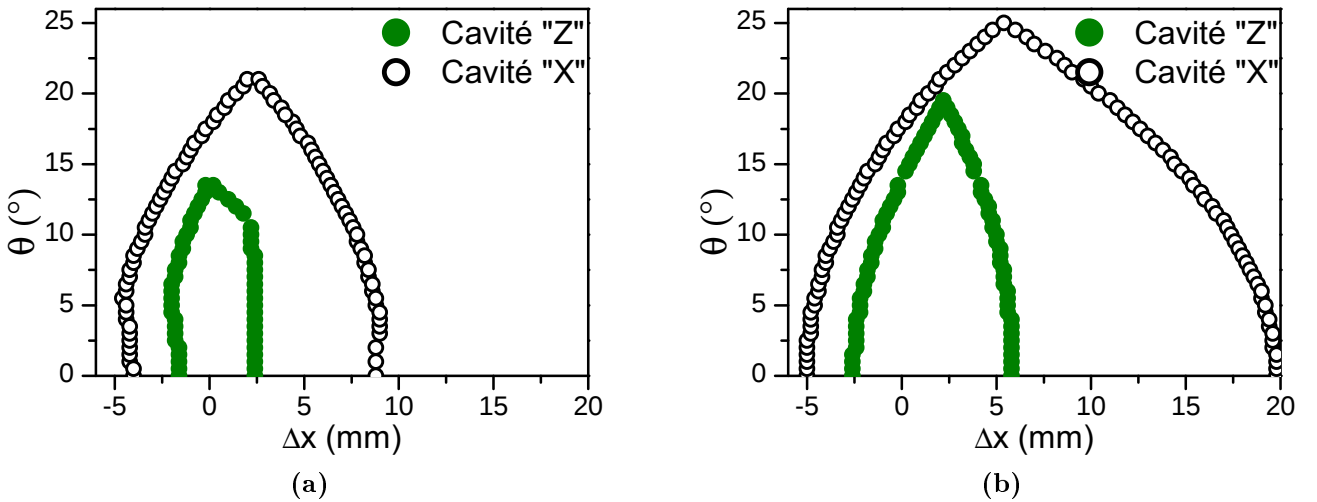


FIGURE 3.8: Comparaison de différentes configurations de cavité pour une focale thermique de 2 cm; (a) Cristal à incidence de Brewster, (b) Cristal en incidence normale

Dans le cas où le cristal est à Brewster dans la cavité en Z, nous n'avons représenté que la zone 1, la zone 2 étant inadaptée en termes d'astigmatisme. Il apparaît clairement que la cavité en X est la mieux adaptée, les zones de stabilité étant plus tolérantes à la fois pour un cristal à incidence Brewster et en incidence normale. Les diagrammes confirment également que la configuration en incidence normale est plus stable quelle que soit la configuration de cavité. Cette propriété justifie en grande partie l'intérêt d'adopter des traitements anti-reflets sur un

cristal à faces parallèles, afin de réduire les contraintes d'astigmatisme, imposées par l'incidence à Brewster [Ber10b]. Nous verrons dans la suite du manuscrit d'autres motifs expérimentaux qui justifient l'adoption de traitements anti-reflets sur les faces du cristal laser.

Avant de faire traiter anti-reflets les faces de nos cristaux afin de pouvoir les utiliser en incidence normale, nous avons étudié les performances laser en continu de nos différents échantillons de ZnSe:Cr²⁺ dans une cavité en X plus tolérante à l'astigmatisme.

Remarques complémentaires sur la stabilité de la cavité en X

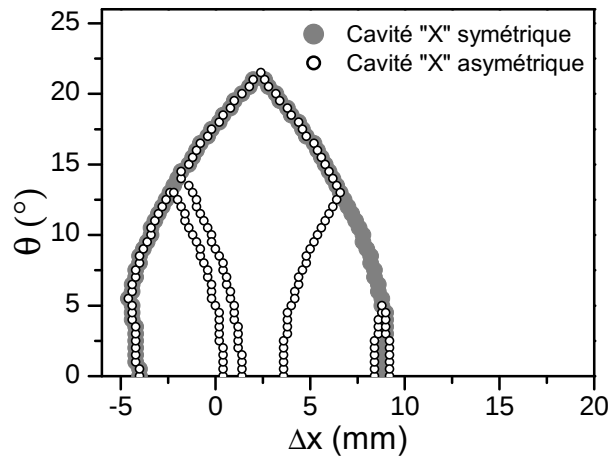


FIGURE 3.9: Cavité en X asymétrique pour un cristal laser à Brewster et une focale thermique de 2 cm.

La plus grande tolérance vis-à-vis de l'astigmatisme et de la lentille thermique peut être attribuée à la symétrie de la cavité en X. En effet, alors qu'il est impossible de symétriser la cavité en Z du fait de la présence de deux bras de cavité focalisés différents, l'un avec cristal laser l'autre sans, la cavité en X peut être étudiée dans une configuration parfaitement symétrique, ce qui est le cas sur la Fig. 3.8. En revanche dès que la configuration est rendue asymétrique, la cavité perd en stabilité. C'est ce qui est illustré sur la Fig. 3.9 représentant l'étude d'une cavité en X avec des bras de longueurs différentes : $L_3 = 200$ mm et $L_4 = 300$ mm, au lieu de $L_3 = L_4 = 250$ mm. Ainsi, pour une cavité asymétrique, les zones de stabilité sont en fait des fragments de la zone de stabilité d'une cavité parfaitement symétrique. Cet effet de fragmentation se produit pour tout type d'asymétrie introduite dans le calcul : des angles d'incidence différents sur les deux miroirs concaves entourant le cristal laser, des rayons de courbure différents, en déplaçant le cristal laser hors du centre du bras focalisé, ou encore en repliant l'un des bras collimatés avec un miroir concave. Expérimentalement, il est donc important de s'assurer avec le plus grand soin du positionnement des optiques afin de minimiser les écarts par rapport à une cavité idéalement symétrique.

3.2.2 Comparaison des performances laser de différents cristaux

Lors de nos expériences, nous avons pu travailler avec trois sources d'approvisionnement de cristaux de ZnSe:Cr^{2+} : deux cristaux, notés G1 et G2, du GEMaC (Groupe d'Étude de la Matière Condensée, situé à Meudon) aux propriétés très proches, un échantillon prêté par le CIMAP (Centre de Recherche sur les Ions, la Matière et la Photonique, situé à Caen) noté Ci, et enfin deux échantillons commerciaux de Photonics Innovation (États-Unis), que nous nommerons PI1 et PI2.

Suite aux considérations de la partie précédente, nous avons étudié ces cristaux dans une cavité laser en X en incidence normale puis à incidence de Brewster. Le schéma de cavité est représenté Fig. 3.10. L'échantillon de ZnSe:Cr^{2+} est placé au centre de la cavité, et est pompé par un laser solide $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ délivrant jusqu'à 1 W en continu à la longueur d'onde $\lambda_{\text{pompe}} = 1,9 \mu\text{m}$.

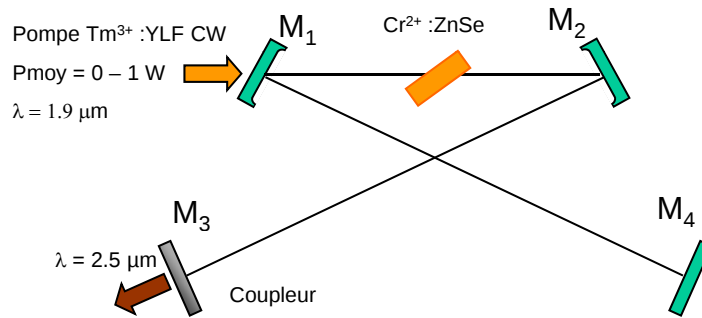


FIGURE 3.10: Schéma du montage pour les tests laser en continu sur différents cristaux de ZnSe:Cr^{2+} .

La cavité est montée avec deux miroirs concaves identiques M_1 et M_2 de rayons de courbure $R_{oc} = 100 \text{ mm}$, et deux miroirs plans M_3 et M_4 . Les miroirs M_1 , M_2 , et M_4 sont traités afin d'être totalement réfléchissants à la longueur d'onde laser, $\lambda \sim 2.5 \mu\text{m}$, et totalement transparents à la longueur d'onde de pompe. Le miroir M_3 joue le rôle de coupleur de sortie. Nous disposons de trois coupleurs de réflectivités différentes : $R_{c1} = 96,5 \%$, $R_{c2} = 92,5 \%$, $R_{c3} = 85 \%$. La cavité est calculée de sorte que le rayon au waist dans le cristal laser soit du même ordre que le rayon au waist du faisceau de pompe soit environ $65 \mu\text{m}$.

Les caractéristiques des cristaux utilisés sont répertoriées dans le Tab. 3.3. En pratique, un très grand nombre de cristaux d'épaisseur et de densité en dopant Cr^{2+} variables ont été testés en conditions laser. Les échantillons présentés ici sont ceux ayant fourni les meilleures performances laser. Il est à noter que ces cristaux ont des caractéristiques, épaisseur et absorption, très proches des valeurs optimales déterminées à la fois théoriquement et empiriquement dans [Sen07].

Échantillon	Ci	Ge1	Ge2	Pi1	Pi2
Épaisseur (mm)	2.5	0.108	0.108	5	2.74
Absorption (cm ⁻¹)	7	10.8	11.5	4	5
Dopage ($\times 10^{18}$ cm ⁻³)	10	17	18	6.2	7.7
Poly- χ ou mono- χ	poly- χ	poly- χ	poly- χ	mono- χ	mono- χ

TABLE 3.3: Caractéristiques des cristaux testés. Le dopage est calculé en supposant une section efficace d'absorption à 1,9 μm de $\sigma_{\text{abs}} = 6,5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$. Les abbréviations poly- χ et mono- χ signifient poly-cristallin et mono-cristallin respectivement.

Source de pompe

Le ZnSe:Cr²⁺ présente un large spectre d'absorption situé entre 1,5 μm et 2 μm (voir Fig. 3.11) recouvrant le spectre d'émission d'une grande variété de sources laser. Cette propriété autorise notamment le pompage par diode dans la perspective de réaliser des sources ZnSe:Cr²⁺ compactes [Mon02, Sor02a, Sor02b, Kis04, Mos10]. La section efficace d'absorption est maximale vers 1775 nm, de l'ordre de $8,5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ [Can08, Küc02], si bien que la source de pompage de prédilection présente dans la plupart des travaux est le laser thulium, dont le spectre d'émission se situe entre 1800 nm et 2000 nm selon les configurations. Les récentes avancées technologiques sur ce type de laser en font de plus un candidat de choix dès lors qu'il s'agit de travailler avec de fortes puissances moyennes. Les records de puissance sur ZnSe:Cr²⁺ en continu [Mos09b, Ber10b] ont ainsi été obtenus à partir de lasers thulium fibrés pouvant délivrer plusieurs dizaines de watts à 1900 nm. Le choix de la source de pompe pour notre montage s'est également porté sur une source laser thulium. Nous avons ainsi eu l'occasion de travailler avec deux sources laser thulium à 1900 nm, la première étant un laser solide basé sur un cristal de Tm³⁺:YLF développé par le CIMAP, la seconde est un laser thulium fibré commercial développé par la société IPG acquis au laboratoire plus tardivement, la caractérisation du laser ZnSe:Cr²⁺ pompé par ce laser à fibre en continu sera abordée dans le chapitre sur le verrouillage de modes.

Dans nos premières expérience de laser ZnSe:Cr²⁺ continu, le laser de pompe utilisé est un laser solide constitué d'un cristal de Tm³⁺:YLF de 6 mm de long et dopé à 5 % pompé par diode à 793 nm. La puissance maximale disponible en sortie est de l'ordre du Watt avec une efficacité différentielle de l'ordre de 30 %, ce qui n'est pas très éloigné de la limite de 42 % due au défaut quantique. En revanche, son émission est très bruitée et extrêmement sensible aux perturbations extérieures, notamment aux vibrations mécaniques, ainsi qu'aux retours de lumière, qui provoquent un bruit assimilable à des oscillations de relaxation.

Cette problématique est renforcée par le fait que le ZnSe:Cr²⁺ est un excellent absorbant

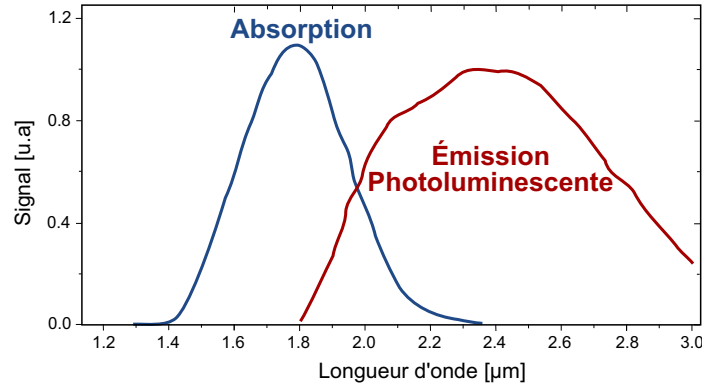


FIGURE 3.11: Spectre d'absorption et d'émission du ZnSe:Cr^{2+} d'après [Pag97].

saturable utilisé pour déclencher passivement les lasers thulium [Seg10], de sorte que les retours de lumière dans le laser de pompe, après double passage dans le cristal de ZnSe:Cr^{2+} , ont tendance à créer de fortes instabilités en intensité. Dans notre cas, ces instabilités peuvent avoir pour effet de déclencher passivement le laser solide $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$, de sorte que l'oscillation du ZnSe:Cr^{2+} ne se fait plus en régime continu mais en régime déclenché par le gain [Mel07]. L'étude et la caractérisation expérimentale de ce régime particulier est présenté dans l'Annexe. D. Il est donc indispensable d'éviter ces retours directs de lumière dans le laser de pompe, afin de caractériser la cavité et nos cristaux en régime parfaitement continu. Comme le montre la Fig. 3.10, le seul élément susceptible d'être en autocollimation avec la pompe, est le cristal de ZnSe:Cr^{2+} si celui-ci est en incidence normale. Par conséquent, l'étude des cristaux en incidence normale sera en réalité effectuée pour des cristaux en incidence quasi-normale, de sorte que la lumière renvoyée par le ZnSe:Cr^{2+} ne soit plus dans l'alignement du laser de pompe².

Essais en incidence quasi-normale

Comme nous l'avons vu au Chap. 3.2.1, le fait d'utiliser un cristal à Brewster diminue considérablement la taille des zones de stabilité de la cavité. Nous avons donc voulu d'abord rechercher l'oscillation laser avec un cristal en incidence quasi-normale avant d'orienter nos cristaux à Brewster. La Fig. 3.12 donne les caractéristiques en puissance de tous les cristaux, obtenues dans les conditions d'incidence quasi-normale non perturbatives pour le laser de pompe.

L'ensemble des cristaux présente des caractéristiques très proches, avec un seuil situé être

2. Pour la longueur d'onde qui nous intéresse ($\lambda = 1900 \text{ nm}$) il n'existe pas encore commercialement de solution d'isolation efficace. Une solution viable est l'utilisation d'un polariseur de Glan couplé à une lame quart d'onde afin de réaliser une pseudo isolation. Cette solution comprend néanmoins de nombreux inconvénients, car outre le taux d'isolation qui peut s'avérer faible (notamment dans le cas où la lumière rétrodiffusée a subi des effets de polarisation ou de dépolarisation), et les pertes occasionnées sur la puissance de pompe disponible, l'utilisation d'une lame quart d'onde impose une polarisation circulaire sur le faisceau de pompe utile, ce qui rend moins efficace le pompage d'un cristal à incidence de Brewster.

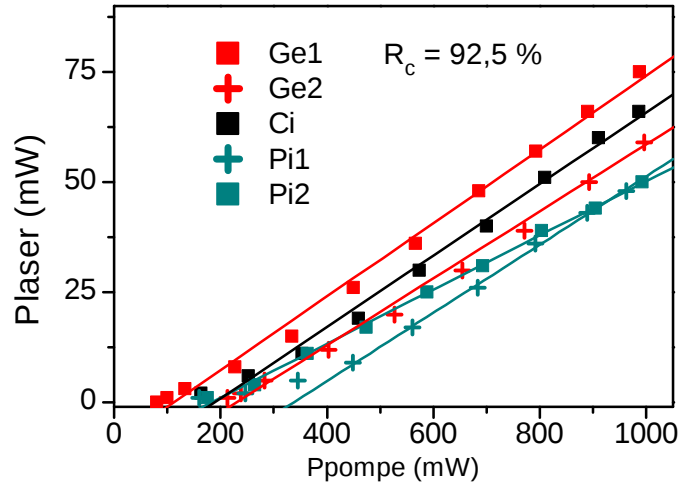


FIGURE 3.12: Caractéristique des différents cristaux en CW. Le coupleur de sortie est $R_c = 92,5 \%$. Les cristaux, non traités anti-reflets, sont décalés de 1° par rapport à l'incidence normale, repérée par l'apparition du régime déclenché.

100 mW et 250 mW environ, et des efficacités variant entre 6 % et 8.5 %. À la vue des courbes, le choix du cristal offrant les meilleures performances devrait se porter sur le Ge1 qui présente à la fois un excellent seuil et une bonne efficacité. Néanmoins, ces performances n'ont été obtenues que dans une zone bien spécifique du cristal. En dehors de cette zone, les performances laser sont très dégradées voire parfois nulles. La plupart des cristaux testés présentent ce défaut d'inhomogénéité des performances laser en fonction du point où passe le faisceau dans le cristal. Les cristaux les plus inhomogènes sont les cristaux Ge1 et Ge2, pour lesquels, il existe un unique point de fonctionnement. Le cristal Ci est un peu plus tolérant avec quelques points de fonctionnement accessibles donnant des performances similaires, et ce sont les cristaux Pi1 et Pi2 qui semblent présenter le moins de défauts. L'origine de ces inhomogénéités n'est pas clairement identifiée. Il peut être tentant d'attribuer ces défauts à des inhomogénéités de dopage, ou à des défauts de structure dans les matériaux poly-cristallins étant donné que les cristaux Ge1, Ge2, et Ci le sont. Néanmoins, des inhomogénéités existent aussi sur les cristaux Pi1 et Pi2. Une étude plus approfondie de ces défauts de performance laser sera présentée dans le Chap. 3.2.3.

En conclusion, bien que les cristaux Ge1 et Ge2 présentent ponctuellement les meilleures performances, leur inhomogénéité les rend très difficiles à utiliser en pratique. Nous aurons donc plutôt tendance à privilégier les cristaux Pi1, Pi2, et Ci.

Essais à Brewster

Le passage de l'incidence quasi-normale à l'incidence de Brewster n'est pas sans difficulté, étant donné que la stabilité de la cavité est diminuée du fait de l'astigmatisme du cristal (Chap. 3.2.1) et du fait de l'inhomogénéité des cristaux. La Fig. 3.13 donne un aperçu des

caractéristiques en puissance obtenues sur les cristaux Pi1 et Pi2 pour le coupleur de sortie $R_c = 92,5\%$.

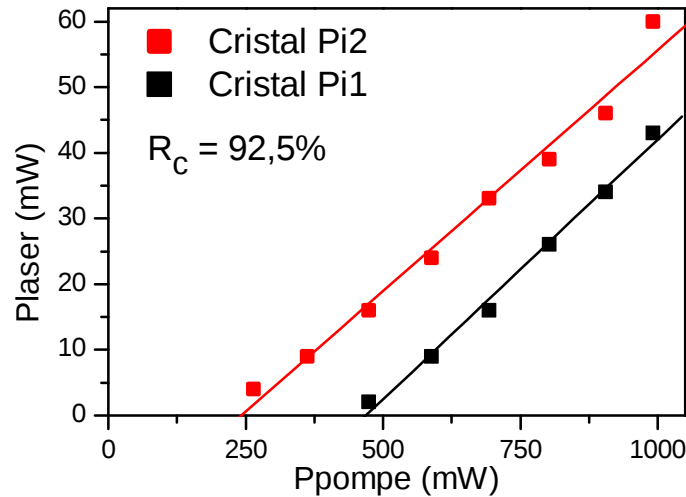


FIGURE 3.13: Caractéristiques en puissances des cristaux Pi1 et Pi2 placés à l'angle de Brewster. $R_c = 92,5\%$.

Les performances à Brewster sont très comparables à celles obtenues en incidence quasi-normale. Pour l'échantillon Pi2, le seuil est plus élevé passant d'environ 190 mW à 250 mW, mais l'efficacité est améliorée passant de 6,1 % à 7,3 %. Pour l'échantillon Pi1, le seuil est augmenté, passant de 250 mW à 490 mW, et l'efficacité très légèrement améliorée passant de 7,7 % à 7,9 %. L'absence d'amélioration significative peut surprendre étant donné qu'a priori les pertes de Fresnel aux interfaces sont inférieures lorsque le cristal est à l'angle de Brewster. Nous verrons dans le chapitre suivant où nous abordons ce point plus en détail, que cette différence provient très probablement de l'apparition de cavités parasites dans le résonateur laser, permettant de compenser les pertes aux interfaces lorsque le laser est en incidence quasi-normale.

De l'ensemble de ces essais, il ressort donc que l'utilisation pratique des cristaux dépend essentiellement de leur qualité, et de l'homogénéité de leurs performances en fonction de la zone du cristal traversée par le faisceau laser. À cet égard, les cristaux Pi1 et Pi2 offrent le plus de souplesse. Il ressort également que la mise en œuvre expérimentale d'une cavité laser avec un cristal placé en incidence normale ou quasi-normale est nettement plus aisée qu'avec un cristal à incidence de Brewster pour deux raisons : d'une part la cavité est beaucoup plus tolérante donc plus facile à aligner, et d'autre part l'inclinaison du cristal à Brewster rend son positionnement très sensible du fait des inhomogénéités de performance. Ces deux constatations nous ont donc amenées à choisir de traiter anti-reflets les faces des cristaux, afin de les utiliser en incidence normale.

3.2.3 Caractérisations complémentaires du cristal Pi1

L'objectif de cette partie est d'approfondir la compréhension du fonctionnement du laser ZnSe:Cr²⁺ par le biais d'expérimentations complémentaires réalisées sur le cristal Pi1. Il s'agit du cristal qui sera utilisé dans toute la suite du manuscrit.

Apports du traitement anti-reflets

Le but est ici de mieux comprendre la différence de performance observée dans la partie précédente entre la configuration Brewster et la configuration en incidence quasi-normale. Pour cela, nous avons évalué les performances du laser ZnSe:Cr²⁺ en fonction de l'angle d'incidence sur les interfaces du cristal. La Fig. 3.14 montre la puissance de sortie pour le cristal Pi1 en fonction de l'inclinaison du cristal et pour différents coupleurs de sortie. Cette expérience a d'abord été réalisée pour un cristal Pi1 non traité anti-reflets.

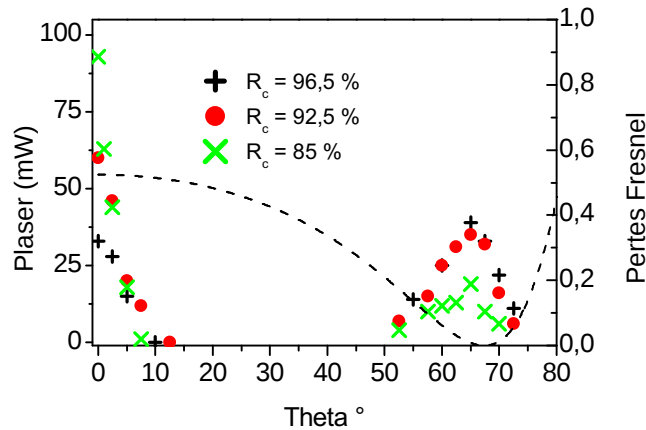


FIGURE 3.14: Puissance de sortie du laser ZnSe:Cr²⁺ en fonction de l'angle d'incidence sur le cristal. L'angle de Brewster pour le ZnSe est d'environ 67°. La puissance de pompe est 700 mW. La courbe pointillée représente les pertes de Fresnel en fonction de l'angle d'incidence.

Le calcul des pertes de Fresnel suppose que la fraction de puissance réfléchie aux interfaces sur le cristal de ZnSe:Cr²⁺ est définitivement perdue. Or, comme nous pouvons le constater Fig. 3.14, la puissance de sortie ne suit pas les variations des pertes calculées. En particulier, entre 10° et 50° le laser n'oscille pas alors que dans cet intervalle la fonction perte est décroissante avec l'angle. On en déduit que pour les angles faibles, c'est-à-dire en incidence "quasi-normale", l'énergie réfléchie sur les faces du cristal n'est pas perdue et reste piégée dans la cavité optique. La Fig. 3.15 résume de manière schématique la possibilité d'existence de sous-cavités à l'intérieur de la cavité principale lorsque l'angle d'incidence sur le cristal de ZnSe:Cr²⁺ est faible. Ces sous-cavités permettent à la lumière réfléchie aux interfaces de revenir dans le cristal et par conséquent d'être amplifiée par le gain laser. En revanche, lorsque l'angle d'incidence devient

trop important, la lumière réfléchie aux interfaces sort définitivement de la cavité sans pouvoir être interceptée par la surface des miroirs.

Il existe d'importantes différences de puissance de sortie entre un cristal à l'incidence de Brewster et un cristal en incidence normale, comme l'illustre la Fig. 3.14 pour le coupleur $R_{c3} = 85\%$. Il n'est cependant pas immédiat de comparer l'incidence normale et l'incidence de Brewster, notamment parce que l'autocollimation réalisée par le cristal laser sur le faisceau de pompe en incidence normale se traduit par le déclenchement de la pompe, et l'apparition du régime déclenché par le gain sur le ZnSe:Cr^{2+} . Il n'est donc pas directement possible de comparer l'efficacité relative de l'incidence normale et de l'incidence de Brewster du fait que les régimes de fonctionnement du laser sont différents.

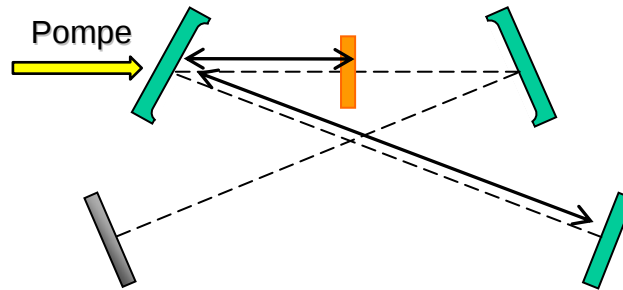


FIGURE 3.15: Exemple de résonance en sous-cavité pour un cristal laser non traité en incidence normale. Une partie de l'énergie est réfléchie sur la face arrière du cristal laser.

Pour compléter ces caractérisations, nous avons reproduit l'expérience décrite précédemment avec le même cristal, dont les faces ont été traitées antireflets à la pompe et au laser. L'utilisation de traitements AR a deux conséquences : d'une part le cristal est utilisable en autocollimation sans perturber le laser de pompe, et d'autre part l'effet de résonance dans les sous-cavités est éliminé. La Fig. 3.16 donne le résultat de l'expérimentation pour le coupleur $R_{c1} = 96,5\%$.

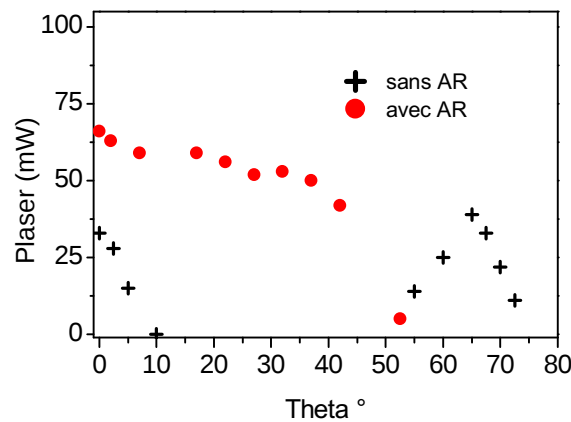


FIGURE 3.16: Puissance de sortie du laser pour le cristal Pi1 avec ou sans traitement, pour le coupleur de sortie $R_{c1} = 96,5\%$, et une puissance de pompe de 700 mW.

Pour le cristal traité, la courbe de puissance extraite en fonction de l'angle d'incidence est lentement décroissante, et connaît une chute brutale vers $\theta = 40^\circ$. Cette évolution correspond à la diminution de l'efficacité du traitement anti-reflet. Par ailleurs, en incidence normale ou quasi-normale, la puissance extraite de la cavité est nettement supérieure lorsque le cristal est traité que lorsque le cristal est non traité et à angle de Brewster, nous avons donc tout intérêt à utiliser un cristal de ZnSe:Cr²⁺ dont les faces sont traitées anti-reflets.

Pertes passives

Dans la perspective d'une modélisation du verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr²⁺ par miroir non linéaire, nous avons besoin d'évaluer les pertes passives du laser. Pour cela, nous montons le laser ZnSe:Cr²⁺ dans la configuration en Z permettant à terme d'accueillir le miroir non linéaire. Une fois l'oscillation laser obtenue, nous caractérisons la puissance de sortie du laser pour différents coupleurs de sortie afin de mener l'étude des pertes. Notons que l'oscillation de la cavité en Z n'est permise que par l'utilisation d'un cristal traité anti-reflets, utilisé par conséquent en incidence normale. La Fig. 3.17 résume ces caractérisations en puissance pour une cavité en Z contenant le cristal Pi1 traité anti-reflets aux longueurs d'onde pompe et laser.

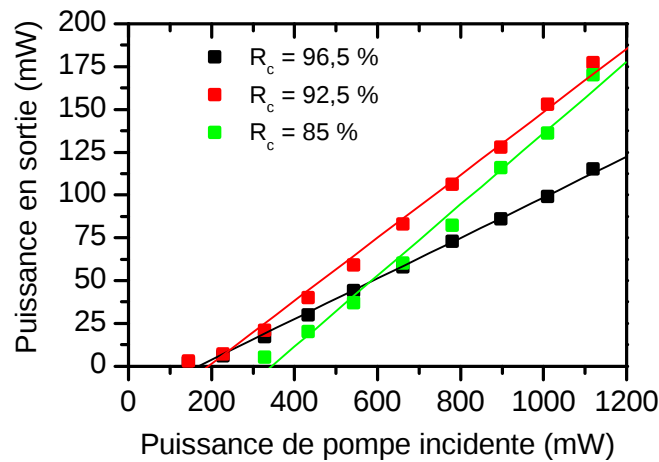


FIGURE 3.17: Caractérisation en puissance du laser avec le cristal de ZnSe:Cr²⁺ Pi1 traité AR placé en incidence normale dans une cavité en Z.

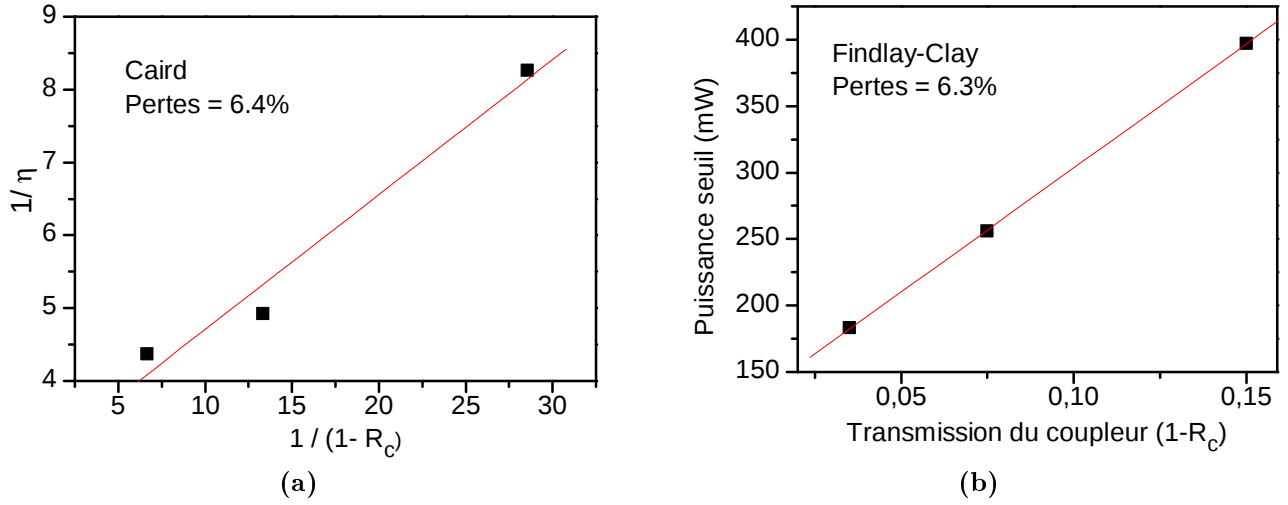


FIGURE 3.18: Analyse des pertes passives de la cavité selon les méthodes Caird et Findlay-Clay. (a) Méthode Caird. L'inverse de l'efficacité est une fonction affine de l'inverse de la transmission du coupleur: $\eta^{-1} = \eta_0^{-1} \times (1 + LC^{-1})$, où L est le coefficient de pertes et C la transmission du coupleur. (b) Méthode Findlay-Clay. Le seuil du laser est une fonction affine de la transmission du coupleur: $P_{\text{seuil}} = \alpha(L + C)$, où L est le coefficient de pertes et C la transmission du coupleur.

L'évaluation des pertes peut se faire selon deux méthodes : la méthode Caird [Cai86] qui repose sur l'évolution de l'efficacité en fonction du coupleur, et la méthode Findlay-Clay [Fin66] qui repose sur l'évolution du seuil en fonction du coupleur. Le résultat de l'analyse des pertes selon ces deux méthodes est résumé sur la Fig. 3.18. Les deux méthodes donnent des valeurs similaires pour les pertes passives qui sont de l'ordre de 6 % pour le cristal Pi1 traité anti-reflets utilisé dans une cavité de type Z. Ces pertes peuvent s'expliquer en grande partie par les traitements anti-reflets. La mesure au FTIR du spectre de transmission infrarouge de l'échantillon Pi1 traité antireflets indique que le traitement à 2,5 μm n'est pas totalement efficace, et présente une transmission d'environ 98 % du signal incident.

Mode spatial et polarisation

Dans cette partie, nous nous intéressons dans un premier temps à la qualité spatiale du faisceau laser émis par le laser ZnSe:Cr^{2+} . Nous verrons notamment que les inhomogénéités de performances constatées dans le Chap. 3.2.2, peuvent être corrélées à de fortes déformations du profil spatial transverse du faisceau laser. Dans un second temps, nous nous intéresserons aux propriétés de polarisation du laser.

Le montage expérimental utilisé pour réaliser ces caractérisations est schématisé sur la Fig. 3.19.

Les caractéristiques de sortie du laser sont mesurées par une caméra pyroélectrique pour le

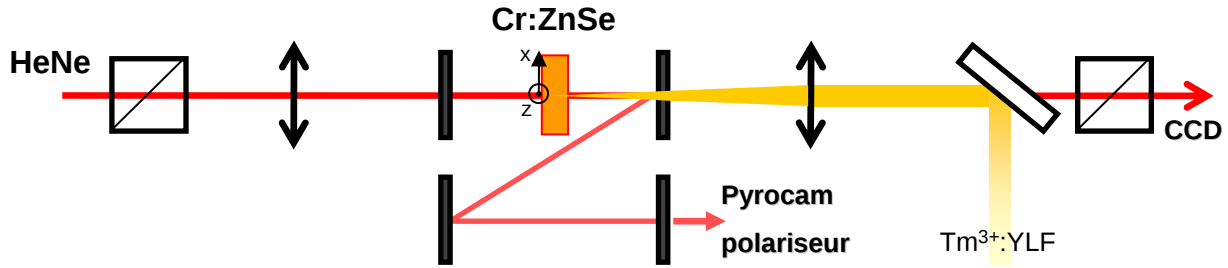


FIGURE 3.19: Schéma du montage de caractérisation du laser Pi1. Le cristal laser peut être translaté dans les directions x et z .

mode transverse, et par un polariseur à grille monté sur une rotation pour la polarisation. Par ailleurs, nous superposons au faisceau du ZnSe:Cr²⁺ un laser He-Ne polarisé dont nous pouvons mesurer les propriétés après avoir traversé le cristal laser de ZnSe:Cr²⁺. Le laser He-Ne est focalisé dans le cristal de ZnSe:Cr²⁺ de sorte que son rayon soit approximativement de la même taille que le mode laser, soit un rayon au waist d'environ 65 μm . Le cristal de ZnSe:Cr²⁺ est monté sur platines de translation afin d'étudier différents points de fonctionnement transverse.

Regardons dans un premier temps le profil transverse du faisceau laser ZnSe:Cr²⁺. La Fig. 3.20 donne quelques échantillons du profil spatial lorsque le cristal est translaté dans la direction x pour une cote z donnée. La figure donnée en référence coïncide avec un point de fonctionnement du laser où le mode transverse est de qualité correcte, en même temps que la puissance de sortie du laser est optimale.

Tout d'abord, il est à noter que les inhomogénéités de performance en termes de puissance de sortie évoquées au Chap. 3.2.2 coïncident exactement avec les sauts de mode transverse subis par le laser tels que ceux relevés sur la Fig. 3.20. Ces sauts de mode coïncident également tous avec de fortes déformations subies par le faisceau He-Ne. L'He-Ne étant parfaitement neutre pour le cristal de ZnSe:Cr²⁺, les inhomogénéités de performances relevées correspondent donc probablement à des défauts présents sur le trajet du faisceau laser lors de sa propagation dans le ZnSe:Cr²⁺. Parmi les cristaux que nous avons pu tester, le Pi1 est celui qui présente le moins d'inhomogénéités de ce type.

Nous nous sommes ensuite intéressés aux propriétés de polarisation du laser ZnSe:Cr²⁺. Nous avons d'abord vérifié la polarisation du laser. En l'absence de contrainte de polarisation, l'émission est non polarisée. Dans le cas où une lame de ZnSe à incidence de Brewster est insérée dans la cavité, alors la polarisation est rectiligne avec un taux de polarisation supérieur à 0,9. Ces propriétés semblent valables quel que soit le point de fonctionnement du laser. Cependant, nous avons pu constater des phénomènes de dépolarisation très légers sur le faisceau He-Ne. Pour cela nous avons placé le laser He-Ne entre deux polariseurs de Glan croisés comme indiqué sur la Fig. 3.19. Dans la plupart des cas, nous pouvons obtenir une extinction complète du spot

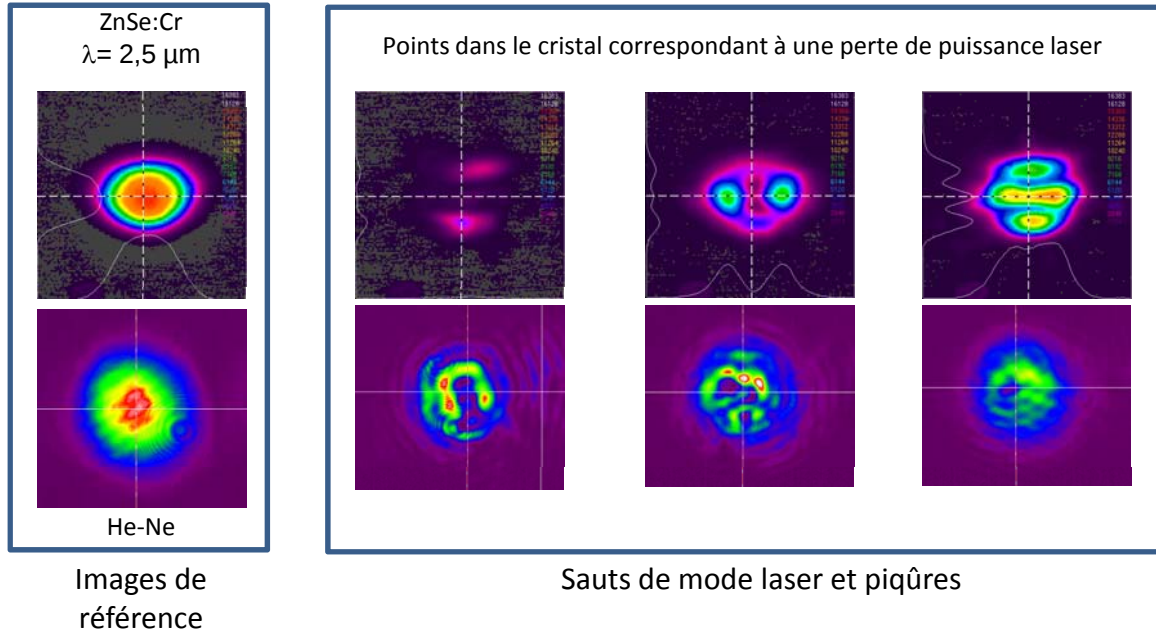


FIGURE 3.20: Échantillons de profil spatial du laser ZnSe:Cr²⁺ Pi1 pour différents points de fonctionnement dans le cristal. Les images du hauts correspondent au profil spatial du laser ZnSe:Cr²⁺, les images du bas correspondent au profil spatial de l'He - Ne après la traversée du cristal laser. Les différents points sont obtenus en translatant le cristal dans la direction x . Les sauts de mode transverse sont localisés en des points particuliers où le laser HeNe subit lui aussi de forte déformations.

He-Ne sur la caméra CCD de détection. Néanmoins, pour certaines positions du cristal de ZnSe:Cr²⁺, le laser He-Ne se dépolarise. Cet effet est illustré par la Fig. 3.21.

Cet effet de dépolarisation est très particulier. En effet, contrairement aux sauts de mode observés sur le laser (Fig. 3.20), la dépolarisation de l'HeNe ne se produit pas localement mais sur des plages de translation du cristal relativement grandes, de l'ordre du millimètre typiquement, et il n'y a aucune corrélation apparente entre les positions du cristal où le profil transverse est dégradé, et les zones où l'He-Ne est dépolarisé; les profils montrés sur la Fig. 3.21 correspondent à des points de fonctionnement où le laser ZnSe:Cr²⁺ fonctionne correctement sans déformation du mode transverse. D'autre part, cet effet de dépolarisation n'est pas modifié lorsque la pompe est arrêtée, ou lorsque l'émission laser seule est arrêtée. Ce dernier constat nous indique que l'effet de dépolarisation est bien une propriété intrinsèque du cristal de ZnSe:Cr²⁺ indépendante du fonctionnement laser. Enfin, la dépolarisation est très faible : la puissance de l'He-Ne résiduel après le second polariseur est typiquement de quelques microwatt, pour une puissance totale de 1,5 mW lorsque les deux polariseur sont alignés, soit un taux de dépolarisation de l'ordre de 1:1000. De tels effets de dépolarisation sont donc négligeables pour le fonctionnement laser. Une caractérisation plus complète de la dépolarisation par une expérience d'ombroscopie entre

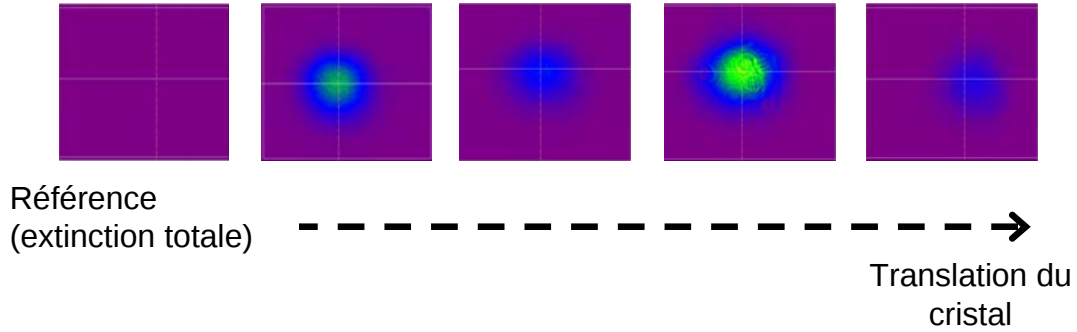


FIGURE 3.21: Dépolarisation de l'HeNe pour différents points de fonctionnement obtenus en tradant le cristal Pi1 dans la direction x .

analyseur et polariseur croisés est proposée en Annexe D.

3.2.4 Synthèse

L'étude et la caractérisation de différents types de cristaux se sont avérées être des étapes déterminantes dans la perspective de la réalisation d'une source continue robuste. La principale difficulté à surmonter s'est révélée être la grande dispersion de la qualité des échantillons de ZnSe:Cr²⁺ que nous avons à notre disposition, si bien qu'un nombre très limité de cristaux a pu être retenu comme susceptibles d'être utilisés de manière courante pour la suite des expériences.

D'une manière générale, la mise en œuvre d'une cavité laser contenant un cristal de ZnSe:Cr²⁺ à incidence de Brewster a posé problème. D'une part parce que l'inhomogénéité des cristaux limite les performances lorsque ceux-ci sont inclinés, et d'autre part du fait de la lentille thermique dans ZnSe:Cr²⁺. La lentille thermique est une limitation difficile à contourner lorsque des niveaux de pompage élevés sont visés. Son principal effet est de réduire considérablement la stabilité de l'oscillateur laser, effet largement amplifié lorsque le cristal laser est incliné à l'angle de Brewster. Afin de réduire la contrainte sur la stabilité de l'oscillateur laser, nous avons donc opté pour l'utilisation de traitements anti-reflets sur les faces du cristal de ZnSe:Cr²⁺. De cette manière le cristal laser peut être utilisé en incidence normale, ce qui nous a notamment permis de mettre en œuvre la configuration de cavité en Z, alors que cette même configuration n'a donné aucun résultat probant avec un cristal incliné à Brewster.

L'ensemble de ces travaux a donc convergé vers la réalisation d'une source laser ZnSe:Cr²⁺ continue dont les caractéristiques en puissance sont celles de la Fig. 3.17, avec une certaine robustesse étant donné que le cristal Pi1 utilisé fournit de nombreuses zones de fonctionnement comparables en termes de puissance et de qualité de faisceau. Dans la partie suivante, nous abordons le verrouillage en phase des modes de cette source laser par la technique du miroir non linéaire d'ordre deux.

3.3 Le MNL d'ordre 2 dans l'infrarouge moyen : Généralités

Nous avons rappelé le principe du miroir non linéaire d'ordre 2 au Chap. 3.1. Ici nous rappelons en préambule certains éléments de dimensionnement dont la justification a été effectuée numériquement lors de travaux antérieurs [Mel07].

Comme nous l'avons dit, le verrouillage de modes par miroir non linéaire d'ordre 2 a été appliqué avec succès sur les sources laser de l'infrarouge proche autour de $\lambda = 1 \mu\text{m}$. Étant donné que son principe repose sur de l'optique non linéaire d'ordre 2 non résonante, il est transposable à n'importe quelle longueur d'onde. Cependant, la transposition du concept vers l'infrarouge moyen nécessite de relever plusieurs défis. Le premier est celui de l'efficacité de doublage. Dans le cas du laser ZnSe:Cr^{2+} ($\lambda = 2,5 \mu\text{m}$), les photons émis sont 2,5 fois moins énergétiques que pour un laser néodyme, ce qui réduit l'efficacité de conversion pour une intensité équivalente. Par ailleurs, même si un gros effort de recherche est consacré à la montée en puissance des lasers ZnSe:Cr^{2+} [Mos08b], les puissances typiquement accessibles dans le cas de notre expérience, de l'ordre du watt moyen intracavité, restent très modestes par rapport aux puissances accessible avec les lasers néodyme. Ces deux facteurs limitants ne peuvent être compensés que par l'utilisation d'un cristal doubleur très efficace. Dans les précédents travaux de Jean-Michel Melkonian [Mel07] sur le verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr^{2+} par miroir non linéaire d'ordre 2, il a été mis en évidence un niveau de rendement de doublage minimal à atteindre en continu. Dans nos conditions expérimentales, où la transmission du coupleur de sortie à ω est de l'ordre de quelques pourcents, le seuil de doublage en dessous duquel le verrouillage de modes ne peut s'amorcer a été estimé à environ 0,1 % en simple passage dans le cristal doubleur. Une telle efficacité pour quelques watts de pompe en continu ne peut être atteinte en pratique que par le biais d'un cristal micro-structuré présentant un coefficient non linéaire effectif très élevé. Le choix du cristal s'est donc naturellement porté vers le niobate de lithium à domaines ferro-électriques périodiquement retournés (PPLN) dont le coefficient non linéaire ($d_{\text{eff}} = 16 \text{ pm/V}$) est le plus élevé parmi les matériaux non linéaires transparents dans la fenêtre spectrale utile pour notre expérience. Afin d'atteindre un rendement de l'ordre de 0,1 % pour environ 1 - 2 W de laser focalisé sur un waist d'environ $100 \mu\text{m}$ dans le doubleur, un cristal de 20 mm de longueur a été retenu.

Outre l'efficacité de conversion, l'acceptance spectrale de doublage est un critère de sélection important. En effet, dans un laser à modes verrouillés par miroir non linéaire, la durée des impulsions est limitée par l'inverse de la bande passante de l'ensemble du système. Dans le cas du laser ZnSe:Cr^{2+} , la bande de gain est extrêmement large, plusieurs centaines de nm à $2,5 \mu\text{m}$ soit plus de 10 THz, de sorte que le facteur limitant la bande passante du laser à

modes verrouillés sera généralement l'acceptance spectrale de doublage du cristal non linéaire. À titre de comparaison, l'acceptance d'un cristal de PPLN de 20 mm de longueur est de l'ordre de 1 THz à 2,5 μm , soit un rapport de 1/10 par rapport à la bande de gain du milieu laser. L'intérêt du PPLN est qu'il présente l'une des plus larges acceptances spectrales parmi les cristaux non linéaires de l'infrarouge moyen dans la fenêtre 1 - 3 μm . Plus précisément, le maximum d'acceptance se situe autour de 2,5 μm ³, soit typiquement dans la zone d'intérêt pour le laser ZnSe:Cr^{2+} . La Fig. 3.22 donne la courbe d'acceptance d'un cristal de 20 mm de longueur calculée d'après Fejer [Fej92] :

$$\delta\lambda_\omega = \frac{0,898}{L_{\text{PPLN}}} \left| \frac{n_{2\omega} - n_\omega}{\lambda_\omega} + \frac{\partial n_\omega}{\partial \lambda_\omega} - \frac{1}{2} \frac{\partial n_{2\omega}}{\partial \lambda_\omega} \right|^{-1}$$

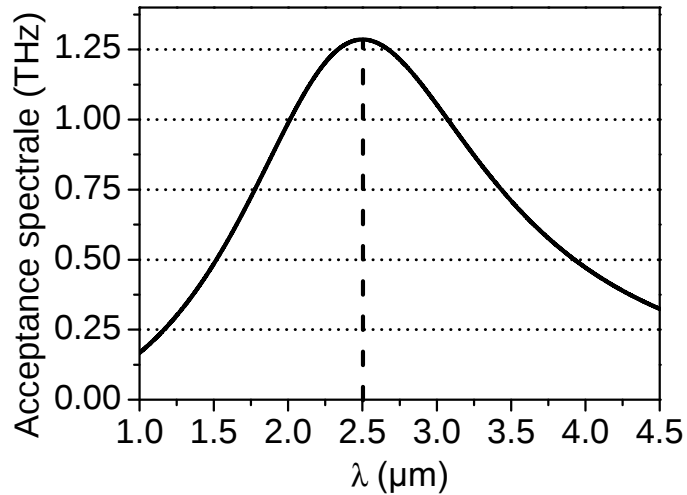


FIGURE 3.22: Acceptance spectrale de doublage d'un cristal de PPLN en quasi-accord de phase de type 0 de 20 mm de longueur en fonction de la longueur d'onde fondamentale. La convention considérée est la largeur totale à mi-hauteur.

Une autre problématique liée au domaine de l'infrarouge moyen est celui de la gestion de la phase. Comme nous l'avons évoqué Fig. 3.1, le principe du miroir non linéaire repose sur le retour des ondes à ω et 2ω avec une phase relative modifiée telle que $\Phi_{NL} = \Phi_{2\omega} - 2\Phi_\omega = -\frac{\pi}{2}$ contre $\Phi_{NL} = +\frac{\pi}{2}$ à l'aller, soit un déphasage de π , de sorte que le transfert d'énergie se fasse du second harmonique vers le fondamental. Pour cela, la dispersion de l'air sur une épaisseur de quelques centimètres suffit à obtenir le déphasage adéquat lorsque le fondamental se situe dans l'infrarouge proche autour de 1 μm . En revanche, à 2,5 μm , la dispersion de l'air devient insuffisante pour obtenir le déphasage nécessaire sur une distance réaliste comme le montre la

3. D'une manière générale, la position du maximum d'acceptance spectrale dépend de l'angle d'incidence dans le PPLN. Pour des longueurs d'onde différente de 2,5 μm , la technique du quasi-accord de phase angulaire peut donc être envisagée, afin de maximiser l'acceptance du processus de doublage de fréquence [Bra10].

Fig. 3.23; il est donc nécessaire d'insérer un élément dispersif entre le cristal non linéaire et le coupleur de sortie du laser.

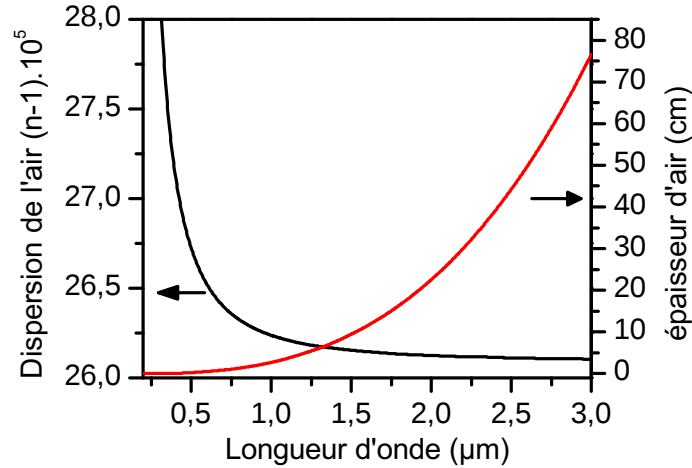


FIGURE 3.23: Dispersion de l'air en fonction de la longueur d'onde. La courbe rouge indique l'épaisseur d'air nécessaire pour obtenir un déphasage de π sur la phase non linéaire en fonction de la longueur d'onde du fondamental.

3.4 Modélisation et dimensionnement d'une expérience de démonstration sur ZnSe:Cr^{2+}

3.4.1 Réflectivité non linéaire en régime picoseconde

D'un point de vue qualitatif, le mécanisme du verrouillage de modes passif d'un laser peut se comprendre simplement par l'intermédiaire du facteur de rétrécissement d'une impulsion après réflexion sur le miroir non linéaire. Le facteur de rétrécissement se définit simplement comme étant le rapport entre la durée de l'impulsion après réflexion et la durée d'impulsion incidente sur le miroir non linéaire. Ce paramètre est particulièrement intéressant, puisqu'il donne une information sur le comportement "dynamique" du miroir non linéaire dans le sens où il nous renseigne sur la faculté du miroir à creuser temporellement une impulsion, le comportement "statique" pouvant être décrit par la valeur de la réflectivité non linéaire pour une impulsion donnée.

Afin d'illustrer ce propos, prenons l'exemple d'une impulsion gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 70 ps dont nous cherchons à calculer le rétrécissement après réflexion. Pour cela nous réalisons le calcul numérique schématiquement décrit sur la Fig. 3.24.

Le calcul du doublage de fréquence puis de la reconversion se fait par résolution numérique des équations non linéaires couplées tenant compte de la différence de vitesse de groupe entre

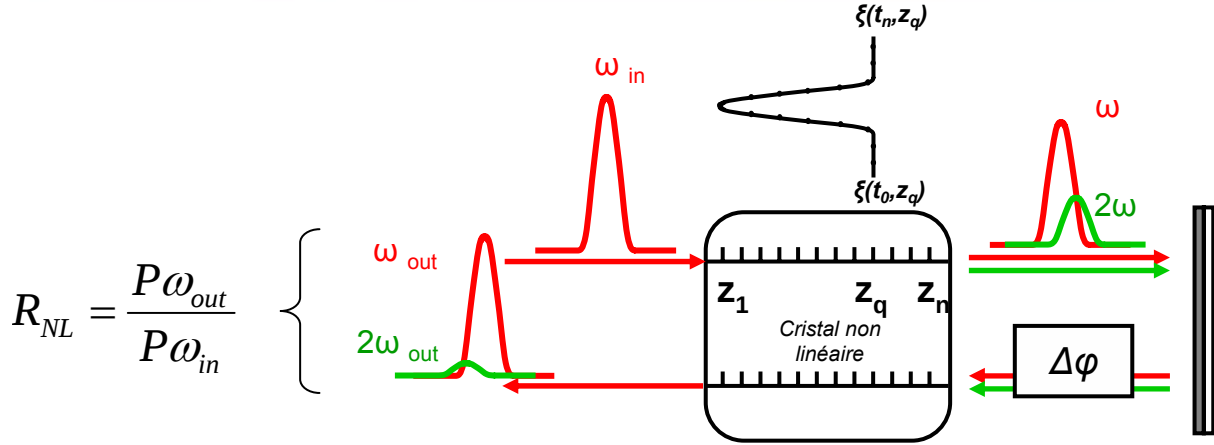


FIGURE 3.24: Simulation de la réflectivité non linéaire en régime picoseconde. L'impulsion incidente a une durée de 70 ps. Le cristal non linéaire est un PPLN à l'accord de phase de 20 mm de longueur dont le coefficient non linéaire vaut $d_{eff} = 16$ pm/V. Le modèle ne tient pas compte du profil spatial des faisceaux (ondes planes). Entre l'aller et le retour, le second harmonique est déphasé de $\Delta\varphi = -\pi$ de sorte qu'au retour le transfert d'énergie se fait du second harmonique vers le fondamental.

le fondamental et son second harmonique selon le schéma numérique décrit au Chap. 1. La simulation est menée pour un miroir dichroïque dont la réflectivité à ω vaut 0,9, et 1 à 2ω . La Fig. 3.25 donne la réflectivité non linéaire et le rétrécissement de l'impulsion fondamentale en fonction de l'intensité crête de l'impulsion.

Ce type de représentation permet de bien visualiser le rôle central joué par la saturation dans le miroir non linéaire. En effet, il existe une intensité optimale pour laquelle le rétrécissement de l'impulsion incidente est minimum. Les points de fonctionnement pour lesquels le pouvoir rétrécissant du miroir non linéaire est le plus fort se situent dans l'intervalle où la variation de la réflectivité avec la puissance incidente est la plus rapide, c'est-à-dire où la dérivée de la réflectivité avec la puissance moyenne $\frac{dR_{NL}}{dP_{moy}}$ approche sa valeur maximale. La puissance pour laquelle le rétrécissement est optimal définit la puissance de saturation du miroir non linéaire. Si la puissance moyenne incidente est trop importante, alors la réflectivité du miroir est saturée ($R \rightarrow 1$), et l'impulsion incidente n'est pas rétrécie, tandis que pour des puissances moyennes trop faibles, l'efficacité de la conversion / reconversion est trop faible, et l'impulsion ne subit que la réflexion linéaire à ω du miroir dichroïque.

Cette puissance de saturation dépend majoritairement des caractéristiques du miroir non linéaire, longueur du cristal et réflectivité à ω , et peut être considérée comme indépendante de la durée de l'impulsion incidente. La limite de cette propriété est dictée par la bande passante du cristal doubleur. En effet, du fait de la différence de vitesse de groupe entre le fondamental et son second harmonique, l'impulsion à ω et l'impulsion à 2ω sont séparées temporellement

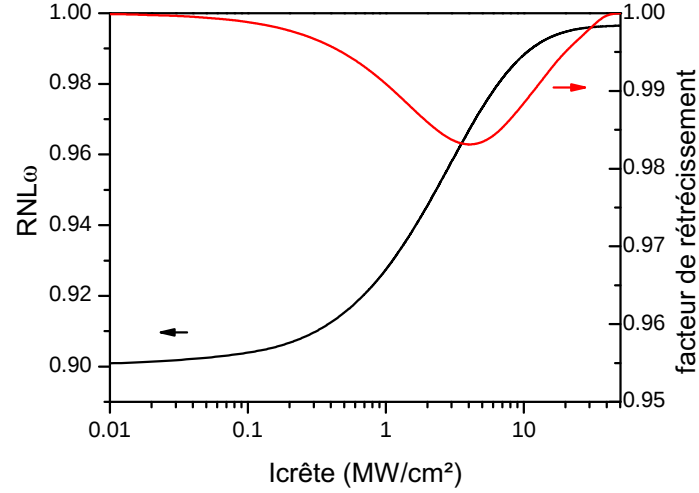


FIGURE 3.25: Rétrécissement d'une impulsion fondamentale de 70 ps et réflectivité non linéaire calculés après réflexion sur le miroir non linéaire en fonction de l'intensité crête. La réflectivité non linéaire à ω , $R_{NL\omega}$ correspond à un coefficient de réflexion en énergie.

d'une quantité $\Delta\tau = \left| 2L_{\text{cristal}} \left(\frac{1}{v_{g\omega}} - \frac{1}{v_{g2\omega}} \right) \right| \simeq 1,5$ ps après un aller retour dans un cristal de PPLN de 20 mm de long. Le rétrécissement de l'impulsion incidente sera donc efficace si le décalage temporel entre le fondamental et le second harmonique est faible devant la durée de l'impulsion. Notre miroir non linéaire conçu avec un cristal de PPLN de 20 mm de long est donc adapté à des durées d'impulsions de plusieurs dizaines de picosecondes.

Dans la perspective du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr^{2+} , il sera nécessaire que le laser fournisse une puissance moyenne de l'ordre de grandeur de la puissance de saturation du miroir non linéaire pour que le rétrécissement des impulsions soit efficace, et des durées d'impulsion de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes peuvent être prédites. Le calcul exact de la durée d'impulsion pour un verrouillage de modes passifs est complexe car le mécanisme d'interaction entre le laser et le miroir non linéaire est fortement... non linéaire, sans contrôle possible par un signal extérieur. En conséquence, une détermination précise du régime stationnaire et de la durée d'impulsion requiert un traitement numérique. Malgré cela, Il est possible de conduire un traitement analytique du mécanisme de mise en phase des modes laser par miroir non linéaire [Bar89a, Cou95]. Nous renvoyons le lecteur à la thèse de J.-M. Melkonian [Mel07] pour l'évaluation analytique du verrouillage de mode d'un laser ZnSe:Cr^{2+} . Dans le Chapitre qui suit, nous présentons uniquement les résultat d'analyses numériques.

3.4.2 Modélisation du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr²⁺ par miroir non linéaire

Principe du modèle

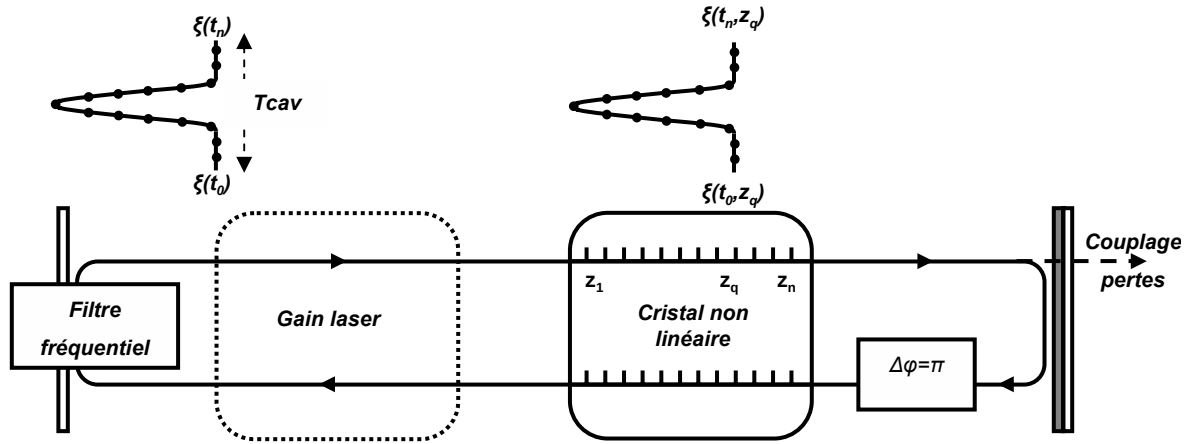


FIGURE 3.26: Principe du modèle du verrouillage de modes d'un laser par miroir non linéaire.

Le principe et les étapes essentielles du calcul numérique réalisé sous MATLAB sont représentés de manière schématique sur la Fig. 3.26. L'enveloppe du champ électrique est décrite par un tableau de valeurs complexes de taille N_{pts} (typiquement 2048 points), définissant une fenêtre temporelle allant de $-T_{cav}/2$ à $T_{cav}/2$, où T_{cav} est le temps d'aller-retour dans la cavité. La fréquence d'échantillonnage $f = N_{pts}/T_{cav}$ maximale définit donc la taille de la fenêtre spectrale dans laquelle est défini le spectre du signal. La fenêtre temporelle est synchrone avec l'impulsion laser de fréquence centrale ω_0 . Les effets transverses ne sont pas pris en compte (ondes planes). La cavité est linéaire, et les effets d'onde stationnaire existant en régime continu (*spatial hole burning*) sont négligés. Dans ces conditions le gain en amplitude dans le milieu laser pour un tour complet de cavité est

$$g(\omega) = \exp(\Delta N \sigma_g l_g f(\omega))$$

où ΔN est l'inversion de population moyenne du milieu laser, σ_g est la section efficace d'émission laser, l_g la longueur du milieu laser, et $f(\omega)$ la forme de la raie laser, supposée de profil Lorentzien et de largeur $\Delta\omega = \pi/T_2$, où T_2 le temps de décohérence de la transition. À chaque tour de cavité, l'inversion de population est mise à jour pour tenir compte de la saturation du milieu à gain. Ceci se fait en résolvant l'équation différentielle classique [Sie86] :

$$\frac{d\Delta N}{dt} = \frac{1}{T_1} \left(\Delta N_0 - \Delta N - 2 \Delta N \frac{\langle I \rangle}{I_{sat}} \right) \quad (3.8)$$

T_1 est le temps de vie effectif du niveau excité, ΔN_0 est la valeur qu'atteint ΔN en l'absence

d'oscillation, $I_{\text{sat}} = 1/T_1\sigma_g$ est l'intensité de saturation, et $\langle I \rangle$ est l'intensité laser en $\text{s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ dans la cavité, moyennée sur la fenêtre temporelle. Le facteur 2 provient du fait qu'il y a un aller-retour dans le milieu à gain. Le facteur 2^* , ou *bottleneck factor* introduit par Siegman, tient compte de la durée de vie du niveau inférieur de la transition laser, qui réduit l'inversion de population disponible. Il vaut 1 pour un laser à 4 niveaux idéal, et 2 pour un laser à trois niveaux. En pratique, il permet un ajustement du modèle aux résultats expérimentaux. Par la suite, nous prendrons la valeur $2^* = 1$. Par ailleurs, le temps de vie T_1 n'est pas forcément confondu avec le temps de vie de la transition laser, car il peut exister d'autres modes de relaxation pour le niveau excité. Néanmoins, pour simplifier l'analyse, nous confondrons T_1 avec le temps de fluorescence mesuré dans la littérature pour le ZnSe:Cr^{2+} [Sor04] (typiquement $T_1 = 5 \text{ ps}$).

Le fait de prendre une intensité moyenne revient à négliger l'épaisseur du cristal, ainsi que les effets de façonnage de l'impulsion par la saturation, ce qui est possible pour des lasers à gain modéré comme celui caractérisé au Chap. 3.2.3. Ceci est également justifié par le fait que le temps de vie de ce laser (5 ps) est très long devant le temps d'aller-retour de la cavité (4 ns) ou la durée d'impulsion attendue ($< 100 \text{ ps}$). La saturation du milieu laser se fait donc grâce à plusieurs impulsions successives, après plusieurs tours de cavité, et non par une impulsion individuelle.

L'interaction dans le cristal non linéaire est décrite par une résolution numérique des équations non linéaires couplées de la même manière que celle décrite Fig 3.24. Le calcul prend notamment en compte la bande passante du cristal par le biais de la différence de vitesse de groupe entre l'onde fondamentale et le second harmonique. De cette manière, nous serons en mesure de visualiser le façonnage des impulsions par le cristal doubleur.

Un filtre fréquentiel de type Fabry-Perot, de transmission en amplitude $t_{\text{FP}}(\omega)$, élevée au carré car la lumière passe deux fois dans le filtre par tour de cavité, est appliqué à la transformée de Fourier du signal à chaque tour de cavité. L'utilité de ce filtre est principalement numérique, afin d'éviter les problèmes d'*aliasing*⁴, et de couper les hautes fréquences selon le critère d'échantillonnage de Nyquist. D'un point de vue pratique, ce filtrage spectrale simule les éléments filtrants de la cavité.

Pour accélérer le temps de calcul, l'oscillation laser est démarrée avec les conditions initiales du régime continu, soit une intensité et une inversion de population correspondants à la solution stationnaire gain = pertes. Ces valeurs sont $I_{cw} = I_{\text{sat}}(r - 1)/(22^*)$ et $\Delta N_{cw} = p/2\sigma_g l_g$, où $p = q + p_{\text{passives}}$ sont les pertes totales de la cavité, somme des pertes du miroir non linéaire $q = \ln 1/R$ et des pertes passives p_{passives} , mesurées expérimentalement au Chap. 3.2.3, et

4. La bande passante du signal numérique est limitée par la fréquence d'échantillonnage $f = N_{\text{pts}}/T_{\text{cav}}$, en général très inférieur à $\Delta\omega$. Cette fenêtre joue le rôle d'un filtre aux flancs abrupts, ce qui provoque des oscillations non physiques dans le domaine temporel. Ces rebonds sont ceux du sinus cardinal, transformée de Fourier de la fonction carrée. Cet effet doit être prévenu par un filtre numérique, rôle joué ici par le filtre Fabry-Perot.

$r = \Delta N_0 / \Delta N_{cw}$ est le taux de pompage. Partant de ces conditions initiales, quelques milliers de tours de cavité sont nécessaires pour que l'oscillation se stabilise au niveau de la précision de calcul, selon le taux de pompage. Un pic de bruit, d'amplitude correspondant à celle de l'émission spontanée dans le mode laser, est ensuite injecté au milieu de la fenêtre temporelle pour initier le verrouillage de modes. Le régime stationnaire est ensuite évalué à l'issue d'un grand nombre de tours de cavité, typiquement 10^6 , ce qui correspond physiquement à environ 4 ms, afin d'évaluer le déclenchement du laser.

Résultats caractéristiques

Intéressons nous tout d'abord au laser seul sans miroir non linéaire, c'est-à-dire au régime continu servant d'initialisation au calcul du verrouillage de modes détaillé précédemment. Les paramètres servant à décrire le laser ZnSe:Cr²⁺ en continu sont rassemblés dans le Tab. 3.4.

Grandeur	Notation	Valeur
Longueur d'onde fondamentale	λ	2490 nm
Section efficace d'émission	σ_g	$0.8 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$
Section efficace d'absorption	σ_p	$0.6 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$
Épaisseur du cristal laser	L_g	5 mm
Dopage	n_t	$6 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$
Temps de vie	T_1	5 μ s
Paramètre Bottleneck [Sie86]	2^*	1 (laser 4 niveaux)
Pertes passives	p_{passives}	7 %
Réfectivité du coupleur à ω	R_ω	92,5 %
Rayon au waist laser	w_g	65 μ m
Puissance de saturation	$\frac{w_g^2 \pi}{2} \cdot \frac{\hbar \omega}{\sigma T_1}$	1,3 W

TABLE 3.4: Valeur des paramètres de modélisation du laser ZnSe:Cr²⁺

Comme nous l'avons détaillé précédemment, lors du calcul du gain laser l'épaisseur du cristal est négligée, l'inversion de population est donc considérée comme étant uniforme sur la longueur du cristal. Cette approximation se traduit donc par une surestimation du taux de pompage du laser en continu.

Afin de palier cette limitation, l'absorption de la pompe peut être prise en compte en calculant le taux de pompage à partir de la puissance moyenne absorbée plutôt qu'à partir de la puissance de pompe incidente afin de prendre en compte le fait que le gain est moins important en sortie de cristal qu'en entrée. Cette approximation consiste donc à multiplier l'intensité de la pompe incidente par un facteur correctif tel que :

$$I_{\text{effective}} = I_{\text{pompe effective}} \times \frac{L_g n_t \sigma_p}{1 - \exp(-L_g n_t \sigma_p)}. \quad (3.9)$$

La Fig. 3.27 illustre l'effet de cette correction sur la caractéristique en puissance simulée (courbe rouge) en prenant les paramètres du Tab. 3.4. De plus, l'effet du hole burning spatial peut être pris en compte par une correction a posteriori de la caractéristique en puissance en multipliant la pente par un facteur 2/3 [Sie86], ce qui réduit encore l'écart entre les points expérimentaux et la simulation. Néanmoins, dans les simulations du verrouillage de modes, l'effet de hole burning spatial ne sera pas pris en compte étant donné qu'il s'agit d'un effet d'onde stationnaire dans le cristal qui n'existe donc pas en régime pulsé.

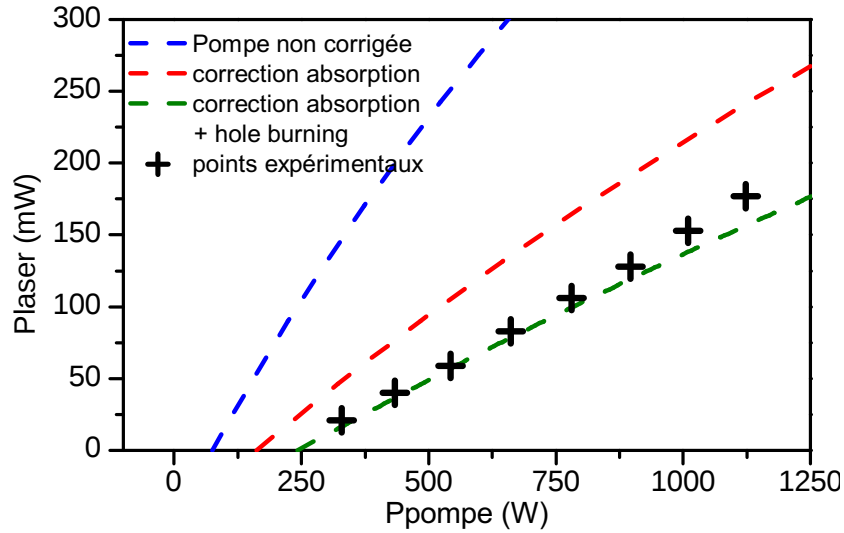


FIGURE 3.27: Caractéristique laser en continu calculée avec les paramètres du Tab. 3.4 et pour un coupleur de sortie $R_{c2} = 92,5\%$

Intéressons nous désormais à l'interaction entre le milieu laser ainsi modélisé et le miroir non linéaire, dont les paramètres sont décrits dans le Tab. 3.5 en même temps que les paramètres d'échantillonnage⁵.

Les principaux paramètres sur lesquels il est possible de jouer pour modifier le point de fonctionnement de l'ensemble {laser + miroir non linéaire} sont le taux de pompage et la

5. En pratique, pour le calcul de la conversion dans le cristal doubleur, l'impulsion fondamentale est échantillonnée sur une fenêtre temporelle de durée T_{extract} plus petite que le temps T_{cav} d'aller-retour dans la cavité afin d'augmenter le taux d'échantillonnage sans augmenter le temps de calcul de manière superflue.

Grandeur	Notation	Valeur
Temps d'aller-retour dans la cavité	T_{cav}	4 ns
LTMH du filtre spectral	$\Delta\nu_{FP}$	1 THz
Fenêtre temporelle effective	T_{extract}	500 ps
Nombre de points	N_{pts}	2048
Longueur du cristal non linéaire	L_{cri}	20 mm
Rayon au waist dans le cristal	w_{cri}	100 μm
Réfectivité du coupleur à ω	R_{ω}	90 % - 93 %
Non-linéarité du cristal	d_{eff}	14 pm/V

TABLE 3.5: Paramètres du miroir non linéaire.

valeur de la réfectivité du coupleur à ω , en d'autres termes, le gain et les pertes linéaires respectivement⁶. Dans les exemples développés ci-après, la puissance de pompe est maintenue constante, égale à 1,1 W en continu, ce qui correspond à une valeur pouvant être atteinte en pratique, tandis que la réfectivité du coupleur est de 93 % puis 90 %.

La Fig. 3.28 présente l'évolution de la puissance crête et la durée d'une impulsion lorsque la réfectivité du coupleur vaut 93 %. Dans ce cas, le laser est à modes verrouillés en régime quasi-continu. Le temps de construction du verrouillage de modes est d'environ 50 μs . Ce temps de construction n'a cependant pas de véritable sens pratique et dépend fortement de l'amplitude du bruit de fluorescence injecté en initialisation du calcul. La durée de l'impulsion diminue alors très rapidement pour atteindre une durée de 25 ps en régime stationnaire. Parallèlement la puissance crête en sortie de cavité passe d'environ 200 mW à près de 12 W. La Fig. 3.28b montre la forme de l'impulsion calculée en régime permanent. Sous l'effet de la différence des vitesses de groupe entre l'onde fondamentale et le second harmonique, la forme de l'impulsion est fortement asymétrique. En effet le second harmonique possède une vitesse de groupe inférieure à celle du fondamental. De ce fait, la conversion puis la reconversion dans le cristal non linéaire ont tendance à se produire du côté du front descendant de l'impulsion d'où un front montant de l'impulsion beaucoup plus long que le front descendant. Le fait que le front descendant de l'impulsion soit quasiment instantané est néanmoins peu réaliste. Cette propriété semble être le

6. L'étude paramétrique du régime de fonctionnement du laser en fonction des paramètres de gain et de pertes a fait l'objet de travaux antérieurs [Mel07]. Le principal apport de la thèse provient de la résolution numérique des équations de doublage autorisant la prise en compte des différences de vitesses de groupes entre le fondamental et le second harmonique. Nous rendons donc compte en priorité de l'influence de la conversion dans le cristal doubleur sur le façonnage des impulsions laser, tout en rappelant les résultats caractéristiques quant au comportement dynamique du laser.

résultat d'une limitation intrinsèque du modèle en ondes planes utilisé. En effet, augmenter la résolution temporelle en multipliant le nombre de points d'échantillonnage ou encore ajouter au calcul de la conversion non linéaire un terme de dispersion des vitesses de groupe, qui peut être considérée comme l'équivalent temporel de la diffraction, ne permettent pas d'obtenir un profil d'impulsion plus lissé. Quoi qu'il en soit, malgré cette limitation, la simulation du verrouillage de modes du ZnSe:Cr²⁺ indique que sous l'effet de la différence de vitesses de groupes dans le PPLN, le profil de l'impulsion doit présenter une forte asymétrie. Ce résultat est à rapprocher du profil d'impulsion calculé dans le cas du verrouillage de modes d'un laser par non-linéarités en cascades⁷ calculé dans [ZR98], et qui s'avère également fortement asymétrique en l'absence de compensation de la dispersion.

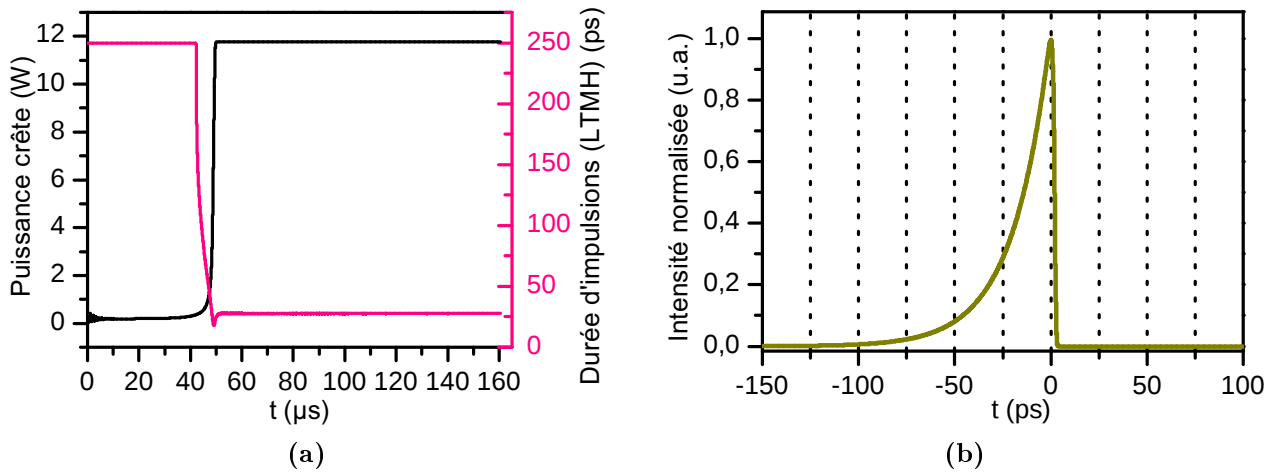


FIGURE 3.28: Évolution du verrouillage de modes dans le ZnSe:Cr²⁺ avec un miroir non linéaire d'ordre deux. Les paramètres sont ceux des Tab. 3.4 et Tab. 3.5 avec $R\omega = 93\%$ et un taux de pompage $r = 5,7$. (a) Évolutions de la durée d'impulsion à mi-hauteur et de la puissance crête en sortie de cavité. (b) Forme de l'impulsion calculée.

Nous nous sommes assurés de la stabilité du verrouillage de modes dans le cas décrit Fig. 3.28 en doublant le nombre d'itérations de 10^6 à $2 \cdot 10^6$ tours de cavité. La puissance et la durée des impulsions demeurent stables sur cette durée sans que la dynamique du laser ne soit modifiée.

En revanche, si la valeur de la réflectivité du coupleur passe de 0,93 à 0,9, alors la fonction de réflectivité non linéaire du laser est modifiée sans modification du gain. Il s'avère alors que le laser se déclenche passivement au bout d'un nombre restreint de tours de cavité. Ce cas est présenté sur la Fig. 3.29. Lorsque le laser est déclenché passivement, la puissance crête varie fortement dans le temps, contrairement au cas où le laser est en régime quasi-continu (Fig. 3.29b). La période des impulsions déclenchées est d'environ $1,45 \mu\text{s}$, ce qui est du même ordre de grandeur que le temps vie du ZnSe:Cr²⁺ ($T_1 = 5 \mu\text{s}$), et la durée des impulsions

7. Phénomène que nous aborderons plus en détail dans le Chap. 4.2.2

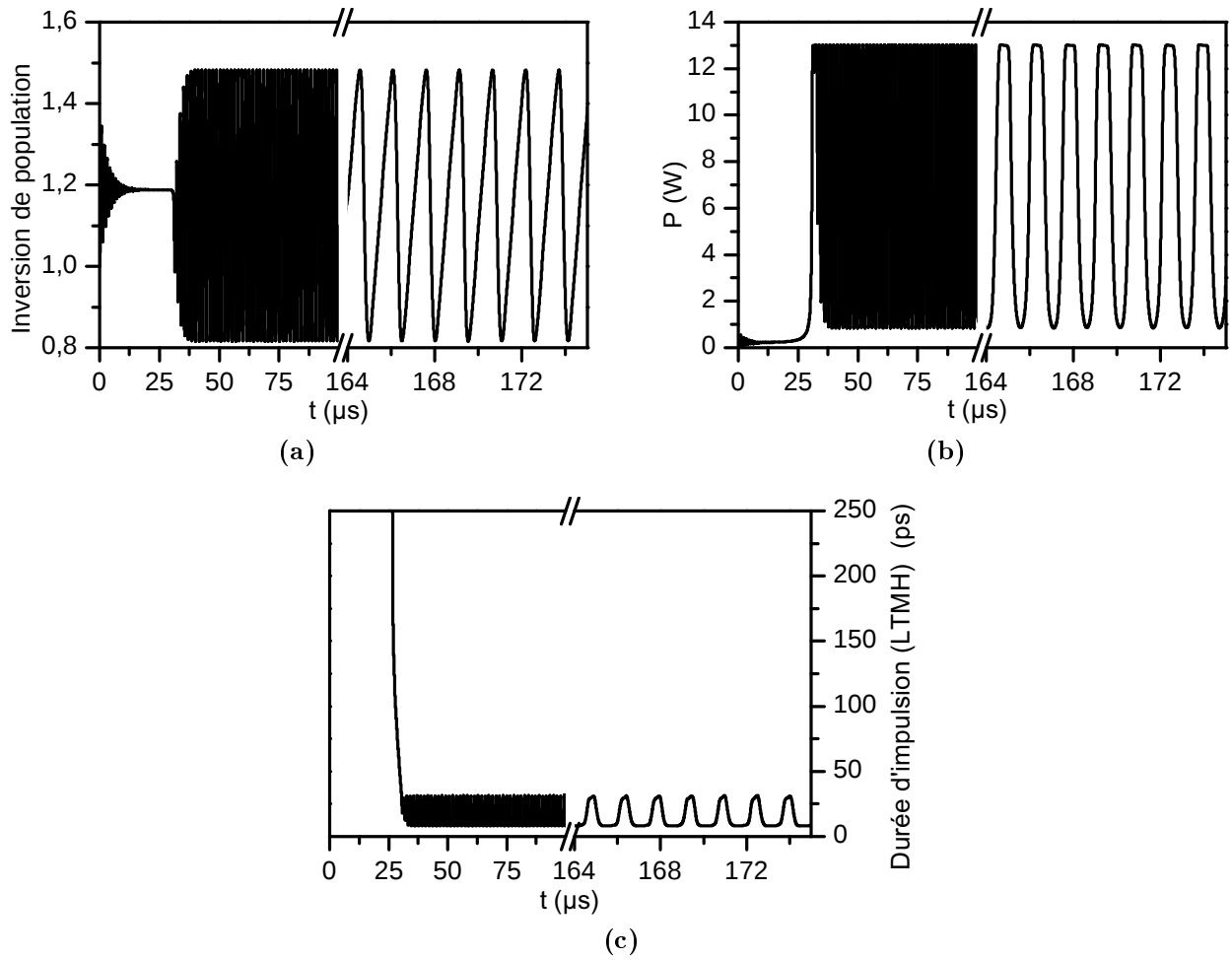


FIGURE 3.29: Évolution du déclenchement passif dans le ZnSe:Cr²⁺ avec un miroir non linéaire d'ordre 2. Les paramètres sont ceux des Tab. 3.4 et Tab. 3.5 avec $R\omega = 0,9$ et un taux de pompage $r = 4,7$. (a) Inversion de population normalisée. (b) Puissance crête. (c) Durée des impulsions.

déclenchées est de l'ordre de 600 ns. L'évolution de l'inversion de population en fonction du temps (Fig. 3.29a) confirme que le régime dynamique du ZnSe:Cr²⁺ est bien celui d'un laser déclenché où l'inversion de population oscille entre une valeur minimale, lorsque la puissance crête des impulsions déclenchée est maximale, et une valeur maximale, lorsque la puissance crête tombe quasiment à zéro. Néanmoins, les modes du laser sont toujours verrouillés en phase puisque la durée des impulsions oscille de manière régulière entre 8 ps et 30 ps (Fig. 3.29c). Le laser se trouve donc dans un régime dynamique hybride déclenché / verrouillage de modes qui apparaît classiquement pour les lasers ayant un temps de vie relativement long [Kel96].

La simulation du verrouillage de mode d'un laser ZnSe:Cr²⁺ par miroir non linéaire fait donc apparaître le rôle central joué par la saturation relative du laser et du miroir non linéaire. En

effet, le fait de modifier, même légèrement comme nous l'avons fait dans les exemples précédents, la réponse du miroir non linéaire en fonction de l'intensité incidente peut faire passer le laser d'un régime de pur verrouillage de modes à un régime déclenché hybride. Il a notamment été montré dans [Mel07, Kel96] que le régime déclenché était généralement favorisé par une augmentation de la non-linéarité des pertes, qui peut être vue comme une augmentation du produit $\frac{dR_{NL}}{dP_{moy}} \cdot P_{moy}$. En effet, augmenter la puissance moyenne aura tendance à rapprocher le laser de sa puissance de saturation, ce qui est favorable au régime déclenché, et une augmentation de la dérivée $\frac{dR_{NL}}{dP_{moy}}$ aura tendance à rendre très sensible la puissance moyenne intracavité aux moindres perturbations, ce qui est également favorable au déclenchement d'oscillations de relaxation du laser, et ce d'autant plus que le temps d'aller retour dans la cavité sera court.

Le verrouillage de modes de notre laser ZnSe:Cr²⁺ caractérisé en continu dans le Chap. 3.2 est donc possible d'après nos simulations. Le calcul prédit des impulsions de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, et un profil d'impulsion fortement asymétrique du fait de la différence des vitesses de groupe dans le PPLN entre le fondamental et le second harmonique. Le ZnSe:Cr²⁺ présente l'avantage d'avoir un temps de vie relativement long, ce qui permet d'atteindre une efficacité laser suffisante pour amorcer le verrouillage de modes, même avec des taux de pompage relativement faibles, moins de 4 fois le seuil d'oscillation. D'un point de vue qualitatif, il est attendu que le laser soit susceptible de fonctionner en régime déclenché pour certains paramètres de la réflectivité non linéaire. Ces paramètres doivent être étalonnés en fonction des résultats expérimentaux afin de donner un caractère quantitatif aux simulations.

3.5 Caractérisation expérimentale du miroir non linéaire en régime picoseconde

3.5.1 Dimensionnement du miroir non linéaire

Le miroir non linéaire est composé de trois éléments : un cristal doubleur, une lame dispersive pour assurer le déphasage entre le fondamental et le second harmonique au retour, et un miroir dichroïque. Le Chap. 3.4 sur la modélisation du verrouillage de modes a mis en évidence quelques caractéristiques fondamentales concernant le cristal non linéaire et la réflectivité du miroir dichroïque. Pour atteindre une efficacité non linéaire suffisante, un cristal de PPLN de 20 mm de long a été retenu. La réflectivité R_ω est le paramètre fondamental qui va définir la réflectivité non linéaire du miroir non linéaire. Comme nous l'avons vu, un contraste de réflectivité trop important entre R_ω et $R_{2\omega}$ est favorable au déclenchement passif du laser. Nous avons donc opté pour un jeu de miroirs diélectriques de forte réflectivité à ω : $R_{c1} = 96,5 \%$, $R_{c2} = 92,5 \%$, et $R_{c3} = 85 \%$.

Outre son efficacité et sa bande passante, le PPLN offre de nombreuses opportunités en termes d'ingénierie, puisqu'il est possible d'obtenir l'accord de phase sur de larges plages spectrales en modulant le pas du réseau d'inversion des domaines ferro-électriques. Cette modulation peut notamment se faire par le biais d'un réseau de pas variable à l'intérieur d'un même cristal. Cette géométrie de réseau d'inversion en éventail est communément désignée par le terme "fan-out". La Fig. 3.30 représente schématiquement le principe d'un cristal de PPLN fan-out. Le pas du réseau varie linéairement dans la direction transverse, de sorte que l'accord de phase peut être déplacé sur une large plage spectrale par simple translation du cristal sans nécessité de modifier sa température. Nous avons adopté une telle structure pour le cristal doubleur de notre miroir non linéaire afin de pouvoir accorder le dispositif de verrouillage de modes à la longueur d'onde d'émission du laser, l'objectif étant de pouvoir bénéficier d'une source laser à modes verrouillés largement accordable dans l'infrarouge moyen.

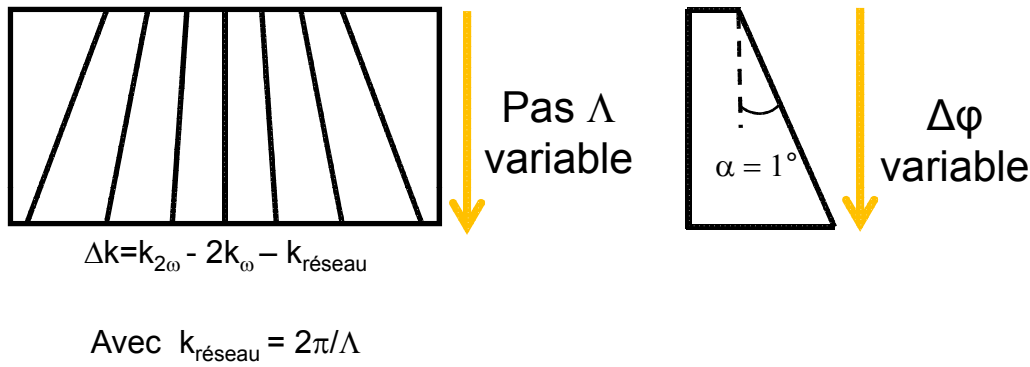


FIGURE 3.30: Représentation schématique du PPLN "fan-out" et de la lame de phase de YAG.

Le design du fan-out a été réalisé en tenant compte de plusieurs contraintes. L'intervalle dans lequel le pas du réseau varie doit tout d'abord couvrir la zone spectrale d'émission du laser. La Fig. 3.31 permet de visualiser la plage de pas de réseau utile pour notre laser ZnSe:Cr^{2+} . Sur cette figure est représentée la longueur d'onde fondamentale d'accord de phase pour le doublage de fréquence en fonction de la température du cristal pour différents pas de réseau. La fonction de variation de l'indice avec la température correspond à la fonction de Sellmeier mesurée dans [Jun97] que nous avons légèrement modifiée afin de faire correspondre les valeurs de pas de réseau aux longueurs d'onde d'accord de phase mesurées expérimentalement (voir Chap. 3.5.2). L'autre contrainte à respecter est celle de l'acceptance du fan-out sur la section du faisceau incident, de sorte que la variation du pas du réseau sur la section du faisceau incident induise un désaccord de phase négligeable.

Illustrons cet aspect par un calcul de tolérance. Considérons un faisceau de rayon au waist $w_0 = 100 \mu\text{m}$ dans un cristal doubleur de largeur D_{cri} dans la direction où le pas varie. Le pas du réseau évolue linéairement avec la position transverse avec un angle θ entre deux valeurs

$\Lambda_{\min}$ et $\Lambda_{\max}$, et supposons que l'accord de phase est réalisé au centre du faisceau pour un pas de réseau Λ . Entre le centre du faisceau et la périphérie, le pas varie donc d'une quantité :

$$\delta\Lambda = \tan\theta w_0 \sim \theta w_0$$

où

$$\theta = \text{Arctan}\left(\frac{\Lambda_{\max} - \Lambda_{\min}}{D_{\text{cri}}}\right) \sim \frac{\Delta\Lambda}{D_{\text{cri}}}$$

Si nous prenons comme critère sur le désaccord de phase

$$\left|\frac{\Delta k L}{2}\right| \leq 0,22\pi \iff \text{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \geq 85 \%,$$

sachant que

$$\Delta k(\Lambda) \sim \delta\Lambda \cdot \frac{\partial k}{\partial \Lambda} = \delta\Lambda \cdot \frac{2\pi}{\Lambda^2},$$

alors la contrainte sur l'intervalle de variation du pas devient :

$$\left|\frac{\Delta k L}{2}\right| \leq 0,22\pi \iff \Delta\Lambda \leq \frac{0,22\Lambda^2}{Lw_0} D_{\text{cri}}. \quad (3.10)$$

Pour un cristal de 20 mm de long et 10 mm de large, un rayon au waist de 100 μm , et un pas central de 35,3 μm , la condition sur le désaccord de phase se traduit par la condition $\Delta\Lambda \leq 1,37 \mu\text{m}$ sur l'intervalle de variation du pas d'inversion. Par sécurité, nous avons appliqué un facteur 2 à cette contrainte en choisissant un pas variant sur 0,7 μm entre 35 μm et 35,7 μm . Un tel dimensionnement autorise théoriquement une accordabilité du miroir non linéaire entre $\lambda = 2,45 \mu\text{m}$ et $\lambda = 2,55 \mu\text{m}$ à $T = 74^\circ\text{C}$.

La lame de phase doit être dimensionnée selon des contraintes d'acceptance similaires, la variation de la phase, après un aller-retour, sur la section transverse du faisceau devant être négligeable devant l'acceptance du cristal doubleur. Cette contrainte se traduit par une condition sur l'angle du prisme qui doit être inférieur à une certaine valeur. Le dispositif final retenu est une lame de YAG prismatique de 12,7 mm de diamètre traitée anti-reflets et présentant un angle de 1° . En calculant la variation de la phase non linéaire $\Delta\varphi$, où :

$$\Delta\varphi = 2\pi\left(\frac{n_{\text{YAG}}(2\omega)}{\lambda_{2\omega}} - 2\frac{n_{\text{YAG}}(\omega)}{\lambda_{\omega}}\right)L_{\text{lame}}, \quad (3.11)$$

sur une section de 12,7 mm et pour un aller-retour dans la lame de phase, alors $\Delta\varphi$ varie entre 0 et 10π . Par conséquent, il existe théoriquement au maximum 5 positions de la lame périodiquement réparties qui donnent le déphasage adéquat entre le fondamental et le second harmonique pour assurer la reconversion au retour dans le cristal non linéaire. Par ailleurs, sur

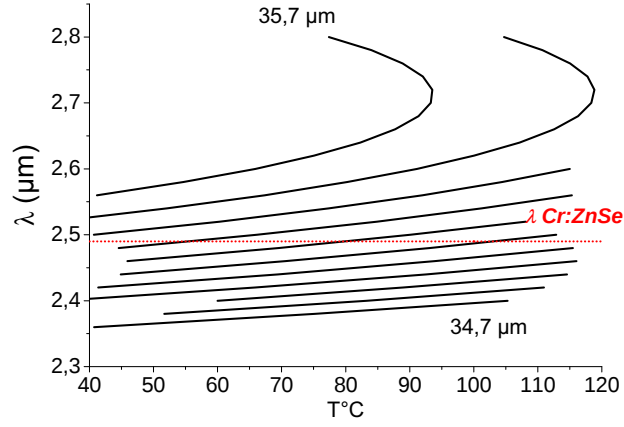


FIGURE 3.31: Longueur d'onde d'accord de phase pour différents pas d'inversion. L'écart entre deux courbes est de 0,1 μm sur le pas de réseau à température ambiante.

une section de faisceau de 100 μm de diamètre, la phase non linéaire varie de $0,1\pi$, ce qui est équivalent à un désaccord de phase $\frac{\Delta k L}{2} = 0,05\pi$, ce qui est négligeable.

En conclusion, avec le PPLN fan-out couplé à la lame prismatique de YAG, nous disposons d'un miroir non linéaire dont nous pouvons paramétrer précisément l'accord de phase et la phase non linéaire au retour sans désalignement. Ces propriétés sont illustrées par les caractérisations expérimentales présentées ci-après.

3.5.2 Expériences de caractérisation du miroir non linéaire

Afin de vérifier le comportement du miroir non linéaire avant son utilisation en cavité, nous avons dans un premier temps mené une expérience de caractérisation extra-cavité. Le montage expérimental utilisé est décrit Fig. 3.32. Il s'agit d'une expérience similaire à celle menée dans [Ime98], à la différence que nous sommes en régime picoseconde, et que l'utilisation d'un cristal fan-out autorise un degré supplémentaire dans l'exploration du rendement de doublage en double passage.

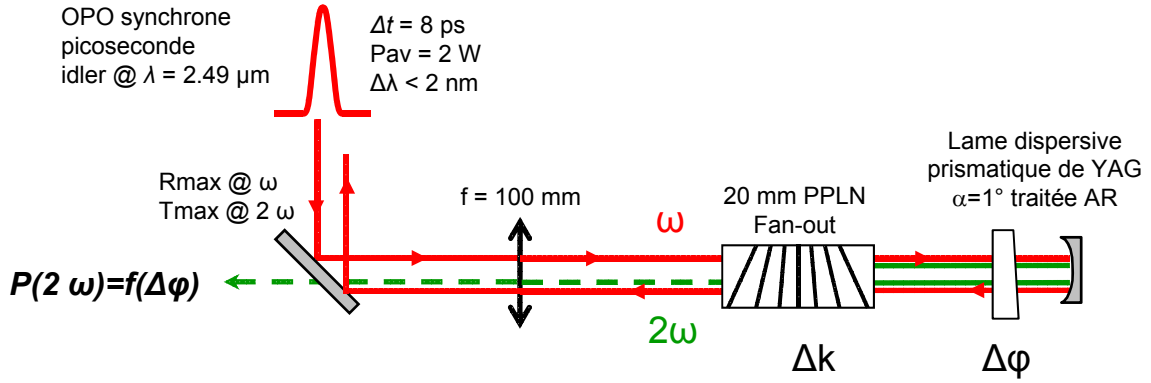


FIGURE 3.32: Schéma du montage de caractérisation de la réflectivité non linéaire en régime picoseconde.

La source de pompe utilisée est le faisceau complémentaire du SP-OPO PPLN étudié au Chap. 2. Les impulsions de 8 ps sont envoyées vers le miroir non linéaire au moyen d'une lentille de 100 mm de focale, le rayon au waist du fondamental dans le cristal étant d'environ 100 μm . Cette focalisation reproduit approximativement les conditions existant dans la cavité laser $\text{ZnSe}:\text{Cr}^{2+}$ en Z étudiée au Chap. 3.2. La réflectivité non linéaire est étudiée de manière indirecte par l'analyse de la puissance à 2ω renvoyée par le miroir non linéaire en fonction des paramètres modulables du miroir non linéaire Δk et $\Delta\varphi$. Les points de fonctionnement où la puissance à 2ω en double passage s'annule correspondent aux points où le second harmonique est reconverti en fondamental, c'est-à-dire aux points de fonctionnement du miroir non linéaire adaptés au verrouillage de modes du laser $\text{ZnSe}:\text{Cr}^{2+}$.

Nous étudions dans un premier temps le rendement de doublage en simple passage dans le cristal PPLN fan-out. La Fig. 3.33 donne le rendement de doublage en simple passage en fonction de la position transverse du cristal doubleur, pour une puissance de pompe moyenne de 1,9 W à longueur d'onde fixée $\lambda = 2,46 \mu\text{m}$.

Cette figure montre que le rendement de doublage en simple passage à l'accord de phase est de 40 %, et que l'acceptance géométrique en translation du cristal fan-out est de 0,6 mm, ce qui est très largement supérieur à la taille transverse du faisceau de pompe ($w_0 \sim 100 \mu\text{m}$) confirmant ainsi que la pente du réseau fan-out a été correctement dimensionnée (Eq. 3.10).

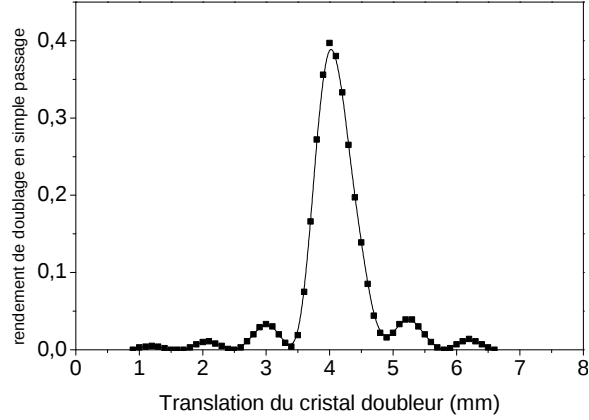


FIGURE 3.33: Rendement de doublage en simple passage en fonction du déplacement du cristal. Le désaccord de phase est proportionnel au déplacement : $\Delta k \sim 2\pi\alpha\Delta x/\Lambda_0^2$ où α est la pente du réseau fan-out, Λ_0 la valeur du pas en $\Delta k = 0$, et Δx le déplacement relatif du cristal par rapport à la position absolue où $\Delta k = 0$ (ici environ 4 mm).

Par ailleurs, afin de vérifier les propriétés d'accordabilité du cristal fan-out, nous avons mesuré la position de l'accord de phase, en fonction de la longueur d'onde du complémentaire émis par l'OPO synchrone. La courbe d'accordabilité est représentée Fig. 3.34. Comme attendu, la position de l'accord de phase dans le cristal fan-out évolue linéairement avec la longueur d'onde incidente. L'ensemble de la dimension transverse du cristal n'a cependant pas pu être testé étant donné que la puissance du complémentaire émis par le SP-OPO chute très rapidement au-delà de 2,5 μm .

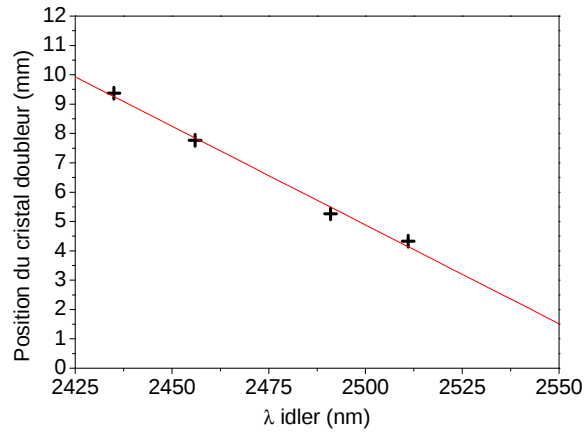


FIGURE 3.34: Accordabilité du doublage par translation du cristal dans la direction transverse.

Nous nous sommes ensuite intéressés au rendement de doublage en double passage. Pour cela un miroir de renvoi de 100 mm de rayon de courbure est placé derrière le cristal doubleur. Le second harmonique est analysé une fois séparé du faisceau fondamental par le biais d'une lame dichroïque (voir Fig. 3.32). En l'absence de lame de phase, la courbe expérimentale de rendement de doublage en double passage en fonction de la position transverse du fan-out est représentée Fig. 3.35.

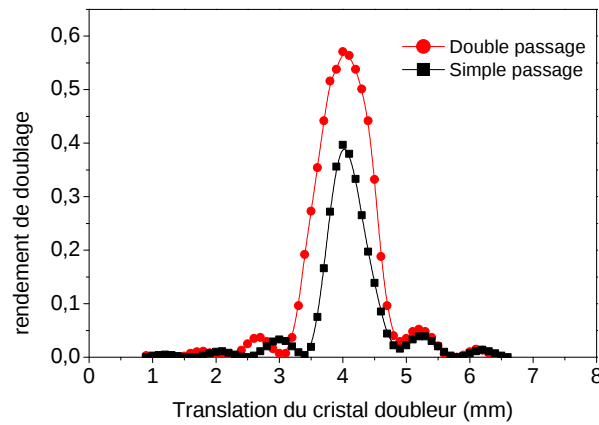


FIGURE 3.35: Rendement de doublage en double passage en fonction de Δk .

Les conditions expérimentales sont les mêmes que pour la mesure du rendement en simple passage. Le rendement de doublage à l'accord de phase est donc augmenté, de 40 % à 57 %. Le rendement en simple passage étant déjà relativement élevé, le rendement en double passage est probablement saturé d'où un écart relativement faible entre le simple et le double passage, alors que la longueur effective de cristal est multipliée par deux. Il est d'ailleurs intéressant de noter que l'acceptance de doublage en double passage est légèrement plus importante qu'en simple passage, typiquement 1 mm, ce qui confirme l'hypothèse de saturation.

Nous avons ensuite étudié l'influence de la lame de phase sur le rendement de doublage en double passage afin de visualiser les zones de reconversion du second harmonique vers le fondamental au retour. Pour cela nous insérons la lame prismatique de YAG entre le cristal doubleur et le miroir de renvoi, et relevons le rendement de doublage en double passage en fonction de la position transverse de la lame de phase. Le résultat de l'expérience est représenté Fig. 3.36. Les conditions expérimentales sont légèrement différentes par rapport à précédemment, la longueur d'onde du complémentaire est $\lambda = 2,49 \mu\text{m}$, et la puissance moyenne de pompe est 1,6 W; les rendements de conversion sont donc légèrement inférieurs à ceux décrit précédemment.

Le fonctionnement du miroir non linéaire est bien celui attendu, avec au moins quatre positions de la lame périodiquement réparties pour lesquelles le rendement de doublage s'annule, correspondant aux points de fonctionnement pour lesquels le second harmonique est reconverti.

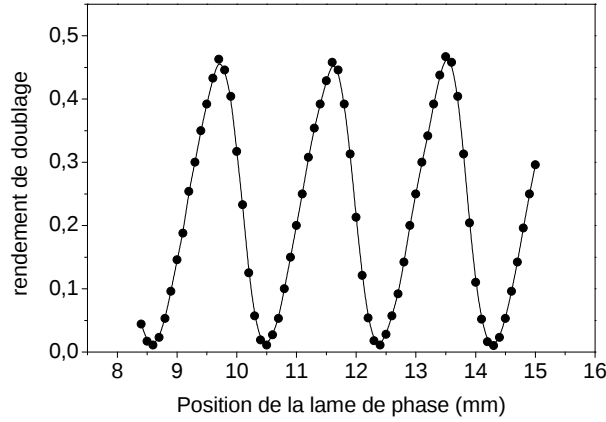


FIGURE 3.36: Rendement de doublage en double passage en fonction de la position de la lame.

Afin de bien comprendre l'influence du réglage des paramètres Δk , ajustable par la position du fan-out et $\Delta\varphi$, ajustable par la position de la lame prismatique, sur la fonction de rendement de doublage, et donc indirectement de la fonction de réflectivité du fondamental, nous avons mené des simulations de doublage en double passage dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$. Pour cela, nous avons repris le code de calcul de la réflectivité non linéaire en régime picoseconde décrit Fig. 3.24. Pour reproduire au mieux les conditions expérimentales, nous avons pris comme critère de dimensionnement du calcul le rendement de doublage en simple passage. En effet, dans les simulations, l'efficacité de doublage est nettement supérieure à la pratique puisque nous utilisons un modèle ondes planes. En particulier pour les fortes intensités, le rendement de doublage peut saturer à 100 % dans les simulations, alors qu'en pratique le rendement saturé est nettement inférieur, de l'ordre de 60 % en double passage d'après la Fig. 3.35. La simulation est donc réalisée avec des impulsions pompe de 8 ps à mi-hauteur, dont l'intensité crête vaut 2 MW/cm^2 . Dans ces conditions, le rendement de doublage en simple passage à l'accord de phase est de 37 %, et le rendement en double passage monte à près de 75 %. Le calcul prend en compte le désaccord de phase⁸ Δk et la phase variable au retour $\Delta\varphi$.

Le résultat de la simulation est présenté Fig. 3.37. Une telle représentation du rendement de doublage peut être vue comme une courbe d'acceptance du cristal en double passage en trois dimensions.

La Fig. 3.37b indique que la courbe expérimentale de rendement en fonction de la position de la lame de phase présente une certaine asymétrie contrairement à la courbe théorique représentée lorsque $\Delta kL = 0$. Cette propriété provient du fait que le cristal n'est pas exactement à l'accord

8. Le désaccord de phase est supposé être le même à l'aller et au retour. En pratique cette condition n'est pas simple à remplir, car elle suppose notamment que les faisceaux retour sont exactement superposés aux faisceaux aller, c'est-à-dire un alignement parfait.

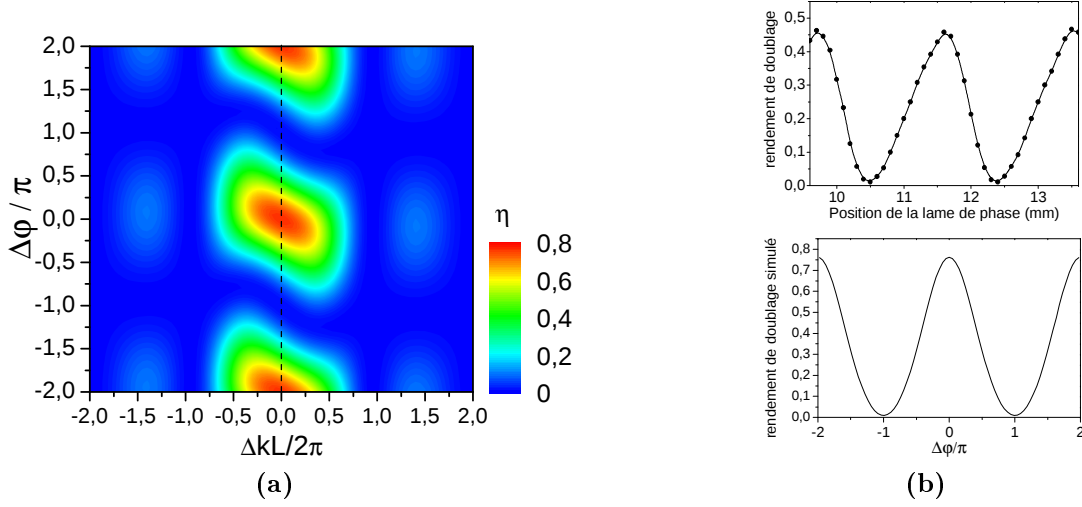


FIGURE 3.37: (a) Cartographie simulée dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$ du rendement de doublage en double passage dans un cristal de PPLN de 20 mm de long, et des impulsions pompe de durée 8 ps et d'intensité crête 2 MW/cm^2 . (b) Rendement en fonction de $\Delta\varphi$ pour $\Delta k = 0$ (ligne pointillée sur (a)). Comparaison expérience / simulation.

de phase sur l'aller-retour complet. En effet, si expérimentalement il est relativement aisé de régler l'accord de phase du cristal en simple passage en maximisant le rendement de conversion, le retour dans le cristal dépend de paramètres supplémentaires tels que l'alignement du miroir de retour et la valeur de la phase non linéaire $\Delta\varphi$, dont la valeur absolue est a priori inconnue, si bien qu'il n'existe pas de procédure simple d'optimisation du rendement en double passage. Par exemple, un léger désalignement au retour induit un désaccord de phase qui se traduit par une dégradation asymétrique de la courbe de rendement en double passage en fonction de la position de la lame. La méthode d'alignement que nous avons utilisé en pratique a été de maximiser le contraste de la fonction de rendement en double passage en fonction de la position de la lame de phase. Comme le révèle la cartographie Fig. 3.37, une méthode plus rigoureuse consisterait à maximiser le contraste en même temps que la symétrie de la figure de rendement en fonction de $\Delta\varphi$. Néanmoins cette méthode s'avère fastidieuse et superflue, puisque le problème de l'alignement ne se pose plus lorsque le miroir est inséré dans la cavité laser, celui-ci étant imposé par la cavité à l'aller comme au retour. Le réglage du doubleur à l'accord de phase peut alors se faire plus simplement en maximisant le rendement de doublage en double passage.

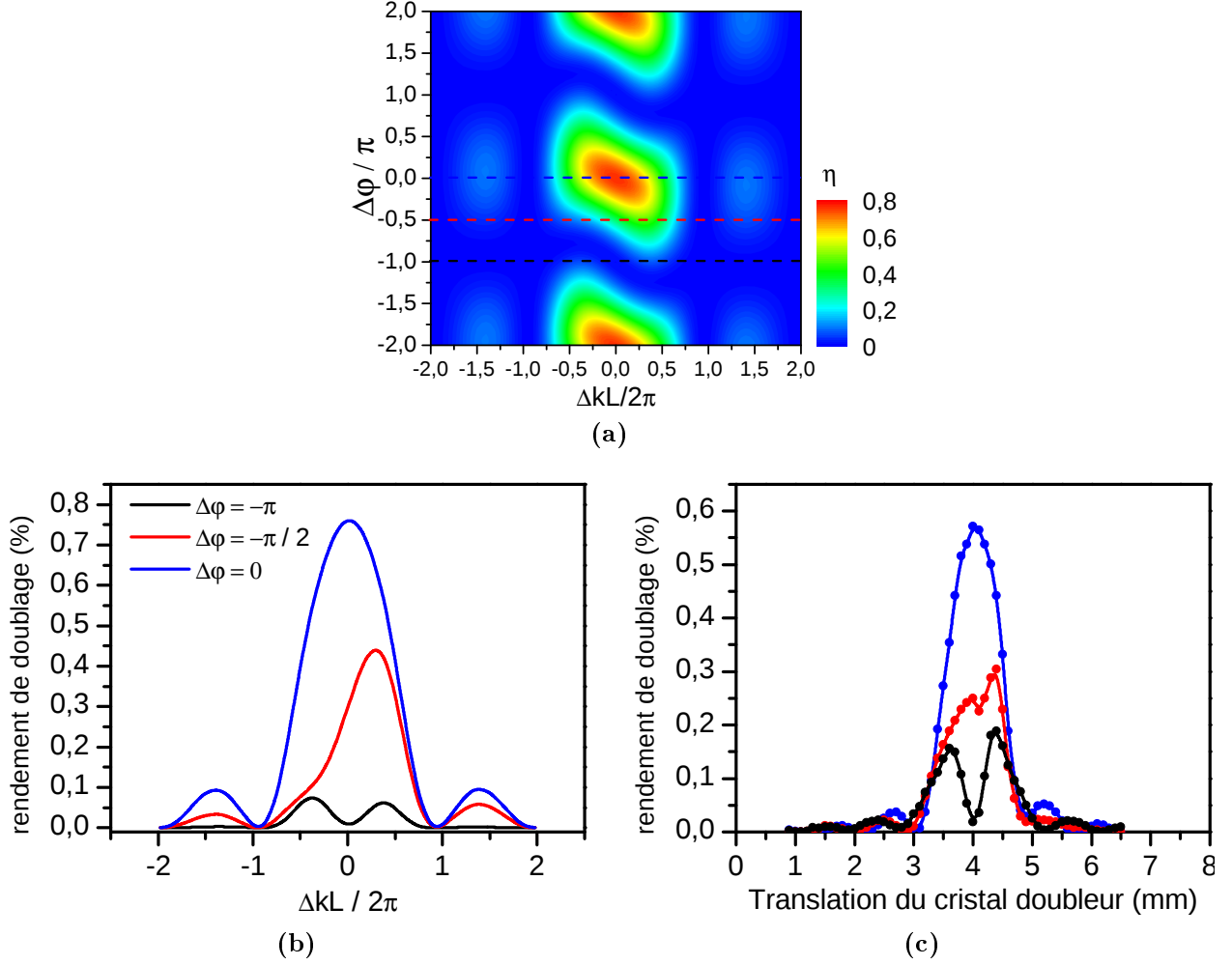


FIGURE 3.38: (a) Cartographie du rendement de doublage en double passage dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$. (b) Rendement en fonction de Δk pour différentes valeurs de $\Delta\varphi$ (lignes pointillées sur (a)), d'après la simulation du doublage en double passage. (c) Rendement de doublage en double passage expérimental en fonction de la position du cristal fan-out pour différentes positions de la lame de phase (correspondant aux lignes pointillées sur (a)).

Nous nous sommes ensuite intéressés à l'évolution de la courbe d'acceptance de doublage en double passage pour différentes positions de la lame de phase. Le résultat de la modélisation comparé aux mesures expérimentales est présenté sur la Fig. 3.38. Il faut noter qu'en faisant varier $\Delta\varphi$, la courbe d'acceptance du doubleur en double passage évolue progressivement d'une structure à un lobe principal vers une structure à deux lobes. Il est particulièrement intéressant de remarquer que lorsque la phase non linéaire au retour est réglée à $\Delta\varphi = -\pi$, le rendement de doublage tombe bien à 0 lorsque le cristal doubleur est parfaitement à l'accord de phase, mais qu'en dehors du point $\Delta k = 0$ la courbe d'acceptance présente deux lobes où le rendement de doublage n'est pas nul. Cette propriété peut avoir son importance lorsque le miroir non linéaire

est inséré dans une cavité laser, puisque contrairement à l'expérience hors cavité réalisée ici où le spectre de la source de pompe est fixé, le spectre du laser à modes verrouillés peut évoluer ou être suffisamment large pour occuper tout ou partie de la courbe d'acceptance de doublage : un intervalle spectral de 3 nm autour de $\lambda = 2,5 \mu\text{m}$ correspond à une variation de $\frac{\Delta k L}{2}$ de 2π dans le cas d'un PPLN de 20 mm de long. Il est donc envisageable que pour un spectre laser large, la réponse du miroir non linéaire soit modifiée car dans ce cas, toute la puissance à 2ω ne participe pas nécessairement à la reconversion.

En conclusion, l'étude paramétrique complète du miroir non linéaire dans l'espace $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$ nous a permis de vérifier le bon fonctionnement du dispositif en régime picoseconde. Il ressort de cette étude que le réglage de l'accord de phase dans le cristal doubleur est une étape critique dans l'optimisation du point de fonctionnement recherché pour le miroir non linéaire en cavité laser qui est $\{\Delta k = 0, \Delta\varphi = -\pi\}$.

3.6 Expériences de verrouillage de modes

3.6.1 Accord de phase et rendement de doublage

Le montage utilisé pour la réalisation et l'étude du verrouillage de modes de notre laser ZnSe:Cr²⁺ par le miroir non linéaire étudié en détail précédemment est décrit Fig. 3.39. Nous utilisons le cristal Pi1 traité anti-reflets qui a donné les meilleurs résultats lors de l'étude en régime continu au Chap. 3.2.3, et nous avons repris la géométrie de cavité en Z avec quelques modifications. Une modification majeure est le changement de la source de pompe. En effet le laser Tm³⁺:YLF utilisé initialement lors des premières expériences a été remplacé par un laser thulium fibré. La nouvelle source de pompe fibrée est nettement moins bruitée, plus stable et plus robuste vis-à-vis des perturbations extérieures que ne l'est le laser solide Tm³⁺:YLF. Elle présente en outre l'avantage d'être plus puissante, jusqu'à 7 W en continu. Les deux bras focalisés de la cavité accueillent le cristal laser et le miroir non linéaire. Les miroirs diélectriques traités M₁, M₂, et M₃ sont hautement réfléchissants à la longueur d'onde laser et transparents à la longueur d'onde pompe. M₁ a pour rayon de courbure 50 mm, tandis que M₂, M₃ et le coupleur ont pour courbure 100 mm. La cavité est dimensionnée de sorte que le rayons au waist dans le cristal laser soit de 65 μm , le rayon du laser dans le cristal doubleur étant égal à 100 μm .

Une lame de ZnSe à incidence de Brewster est placée dans le bras collimaté de la cavité afin d'assurer une polarisation rectiligne, de même qu'un filtre fréquentiel est utilisé pour contraindre la longueur d'onde d'émission du laser. Le filtre fréquentiel est une lame de quartz biréfringente (filtre de Lyot) dimensionnée de sorte que sa bande passante spectrale soit équivalente à l'acceptance spectrale théorique du PPLN, soit environ $\Delta\nu = 1 \text{ THz}$ à 2,5 μm . En tournant la lame de quartz dans son propre plan, le laser peut être accordé entre 2,35 μm et 2,6 μm [Mel07].

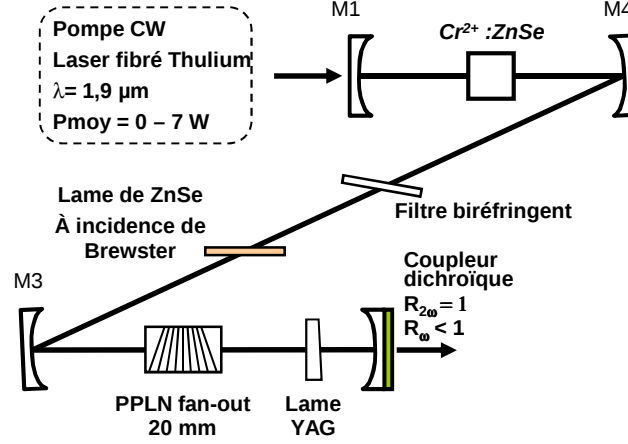


FIGURE 3.39: Schéma du montage utilisé pour le verrouillage en phase des modes longitudinaux d'un laser ZnSe:Cr^{2+} .

Procédure de réglage du miroir non linéaire

Au préalable, nous avons voulu mesurer le rendement de doublage en simple passage, afin notamment de vérifier que l'efficacité de doublage en continu dépasse le seuil théoriquement évalué pour le déclenchement du verrouillage de modes (Chap. 3.4). Pour cela, nous avons remplacé la lame de YAG de la Fig. 3.39 par une lame dichroïque à 45° hautement réfléchissante au second harmonique et transparente au fondamental, de sorte que tout le 2ω généré en simple passage soit extrait de la cavité laser. La Fig. 3.40 représente la courbe de rendement de doublage en simple passage lorsque le laser fonctionne en continu. La longueur d'onde d'émission alors imposée par le filtre de Lyot est $\lambda = 2,55 \mu\text{m}$. Le rendement de doublage en simple passage est de l'ordre de $\eta_{2\omega} \sim 0,25\%$ pour une puissance moyenne fondamentale de l'ordre de 2 W intracavité; pour cette expérience, la puissance de pompe est typiquement de 4.5 W et la puissance de sortie de 200 mW en continu pour un coupleur de sortie $R_{c2} = 92,5\%$. Cette valeur de rendement de doublage est donc bien de l'ordre de grandeur du rendement minimum estimé à environ $\eta_{2\omega th} \sim 0,1\%$ d'après l'étude théorique du verrouillage de modes effectuée dans [Mel07]. L'acceptance géométrique du quasi-accord de phase est d'environ 0,6 mm, ce qui est cohérent avec la mesure effectuée lors de l'étude extracavité.

Une fois l'efficacité de doublage vérifiée, il s'agit d'insérer entre le cristal doubleur et le miroir dichroïque la lame de YAG qui doit gérer la phase au retour entre fondamental et second harmonique. La méthode de réglage consiste alors à jouer sur les paramètres Δk (translation du cristal doubleur) et $\Delta\varphi$ (translation de la lame de phase) afin de maximiser le rendement de doublage en double passage. L'efficacité de doublage en double passage peut être évaluée à la photodiode derrière le miroir M3 partiellement transparent à 2ω . L'oscillogramme de la Fig. 3.41 représente le signal typiquement relevé derrière le miroir M3. Pour faciliter la détection

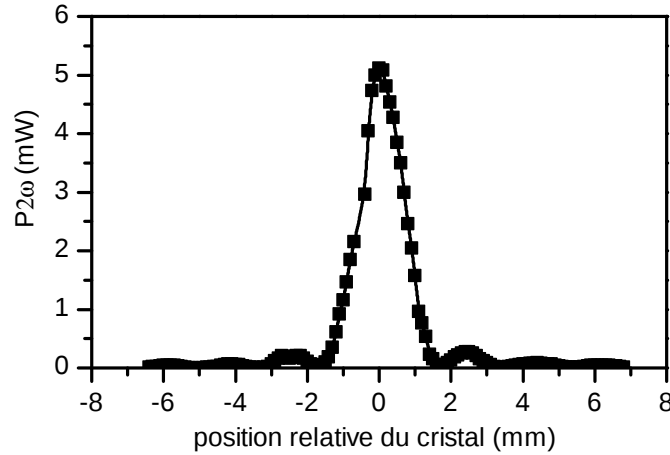


FIGURE 3.40: Puissance de doublage intracavité en continu et en simple passage en fonction de la position transverse relative du cristal doubleur. La puissance moyenne du laser intracavité est estimée à environ 2 W au moment de la mesure.

et l'optimisation du signal à 2ω sur la photodiode, un chopper est installé sur le trajet du faisceau de pompe afin de moduler la puissance. Le signal à ω est simplement relevé en sortie de laser. Le signal à 2ω mesuré à la photodiode est perturbé, et ne suit pas rigoureusement la puissance du laser. Il est difficile d'interpréter a priori l'origine de ces variations dans le temps de la puissance du second harmonique en double passage, mais il est probable que malgré la contrainte spectrale imposée par le filtre biréfringent, le laser cherche à sortir de l'acceptance du doubleur en modifiant sa longueur d'onde, ce qui expliquerait que la puissance à 2ω n'est pas continue.

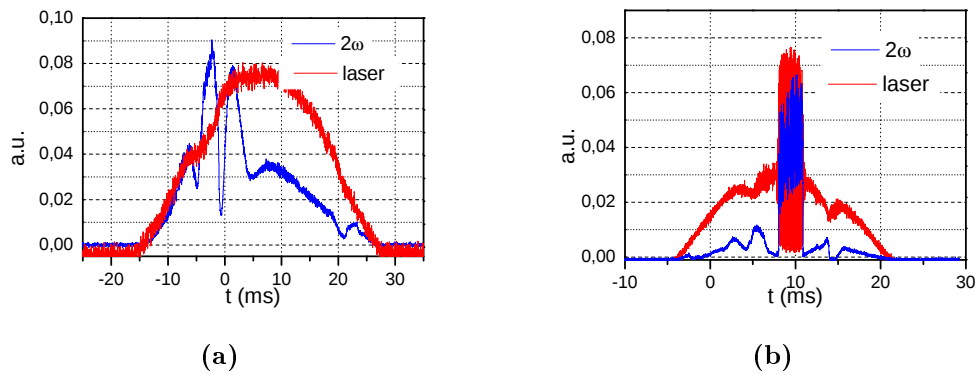


FIGURE 3.41: Optimisation du rendement de doublage en double passage dans la cavité laser et régime impulsionnel obtenu par translation de la lame de YAG à partir du point continu. La puissance de pompe est modulée par un chopper ouvert périodiquement. (a) Laser et second harmonique optimisé après un double passage dans le cristal doubleur. (b) Verrouillage de modes du laser et second harmonique une fois la reconversion du second harmonique optimisée.

Une fois le signal à 2ω maximisé en double passage, le réglage du miroir non linéaire peut être considéré comme étant très proche du point de fonctionnement $\{\Delta kL = 0, \Delta\varphi = 0\}$ il suffit donc, à partir de ce point, de translater la lame prismatique de sorte que la phase non linéaire au retour prenne la valeur $-\pi$ afin d'optimiser la reconversion. Cette procédure nous a permis d'obtenir le verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr²⁺ en différents points du spectre d'émission du laser. Lorsque le laser entre dans le régime impulsionnel, nous obtenons le type de signal représenté Fig. 3.41b pour le fondamental et le second harmonique. Cet oscillogramme montre qu'au maximum, l'émission du laser devient pulsée sur environ 5 ms. Par ailleurs, le second harmonique n'est pas complètement éteint après un aller-retour dans le cristal doubleur, ce qui laisse supposer que le cristal non linéaire n'est pas nécessairement réglé à l'accord de phase exact. Nous reviendrons en détail sur ce point particulier dans le Chap. 4.

Sensibilité du verrouillage de modes aux réglages du miroir non linéaire

Nous nous sommes intéressés à l'évolution du verrouillage de modes en fonction des différents paramètres du miroir non linéaire, à savoir le désaccord de phase et la phase non linéaire au retour.

Dans un premier temps, nous avons voulu vérifier la périodicité du réglage du miroir non linéaire avec la position transverse de la lame prismatique de YAG. Pour cela, nous nous sommes placés en un point de fonctionnement pour lequel le laser ZnSe:Cr²⁺ est dans un régime de verrouillage de modes stable. Nous relèvons les impulsions laser au détecteur HgCdTe, et nous observons à l'oscilloscope la présence du verrouillage de modes en fonction de la position transverse de la lame de phase. Nous observons alors qu'il existe plusieurs positionnements transverses de la lame de phase espacés périodiquement d'environ 2 mm, pour lesquels le laser est à modes verrouillés. Cette observation est cohérente avec la périodicité du doublage de fréquence en double passage avec la position de la lame de phase mesurée en extracavité Fig. 3.37. Dans un second temps, nous faisons la même expérience en translatant cette fois-ci le cristal non linéaire à partir d'un réglage où le verrouillage de modes est stable. Le positionnement transverse du PPLN fan-out présente alors une acceptation de l'ordre de 1 mm, en dehors de laquelle le laser est continu, ce qui correspond approximativement à l'acceptation de doublage mesurée en simple passage Fig. 3.40. D'après ces deux tests, il est possible de conclure que le verrouillage de modes du laser résulte d'un effet de réflectivité non linéaire, pour lequel il existe un optimum de réglage du couple $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$.

3.6.2 Propriétés du verrouillage de modes

Caractéristiques temporelles

La plupart des caractérisations expérimentales sont effectuées en modulant la puissance de pompe par un chopper afin de réduire la puissance moyenne et donc la lentille thermique dans le cristal laser. La Fig. 3.42a représente un train d'impulsions en sortie de laser sur des périodes de 400 ms. La Fig. 3.42 représente des oscillogrammes du train d'impulsions enregistrés à différentes échelles de temps. Les mesures sont effectuées à l'aide d'un détecteur HgCdTe rapide, dont le temps de montée est de l'ordre de la nanoseconde. Ces enregistrements indiquent que le laser émet des impulsions à 220 MHz, ce qui correspond au taux de répétition de la cavité, nous sommes donc bien en présence d'un laser à modes verrouillés en phase.

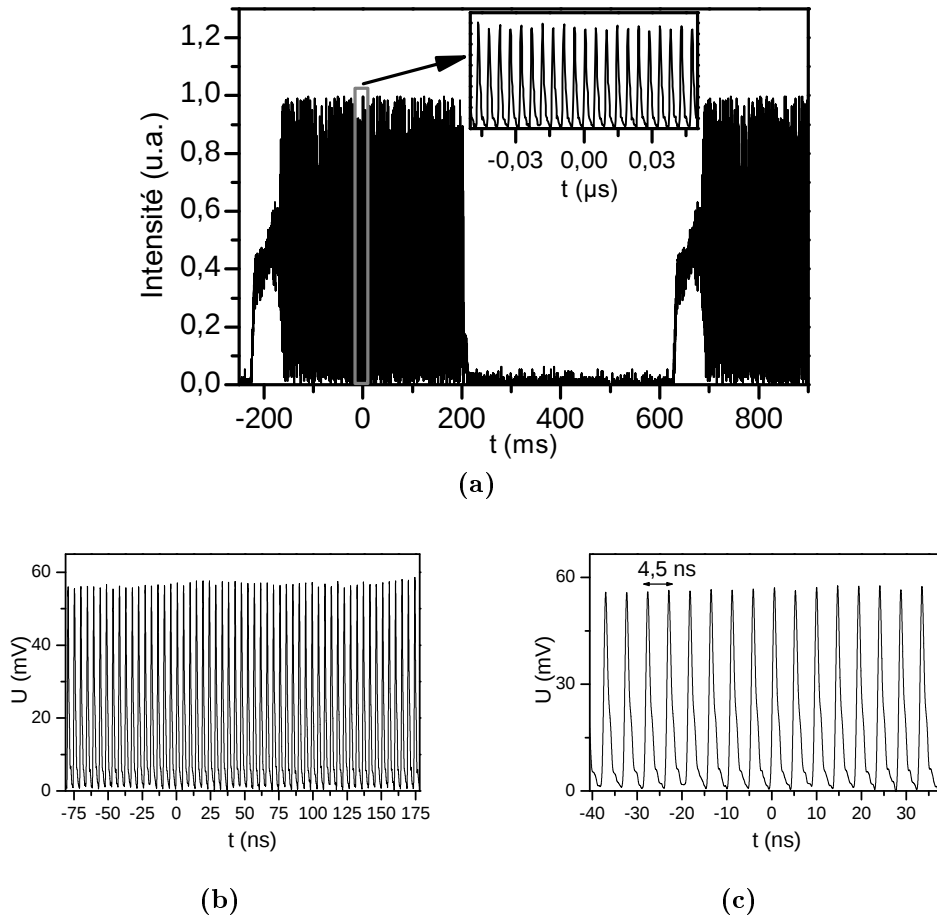


FIGURE 3.42: Train d'impulsion à différentes échelles. Le taux de répétition des impulsions est de 220 MHz. (a) Train d'impulsions laser. La pompe est modulée par un chopper de cycle régulier d'environ 400 ms. (b) Train d'impulsions sur 250 ns. Les fluctuations du train de verrouillage de modes sont dues à un sous-échantillonnage de l'oscilloscope (c) Zoom de (b) sur 80 ns.

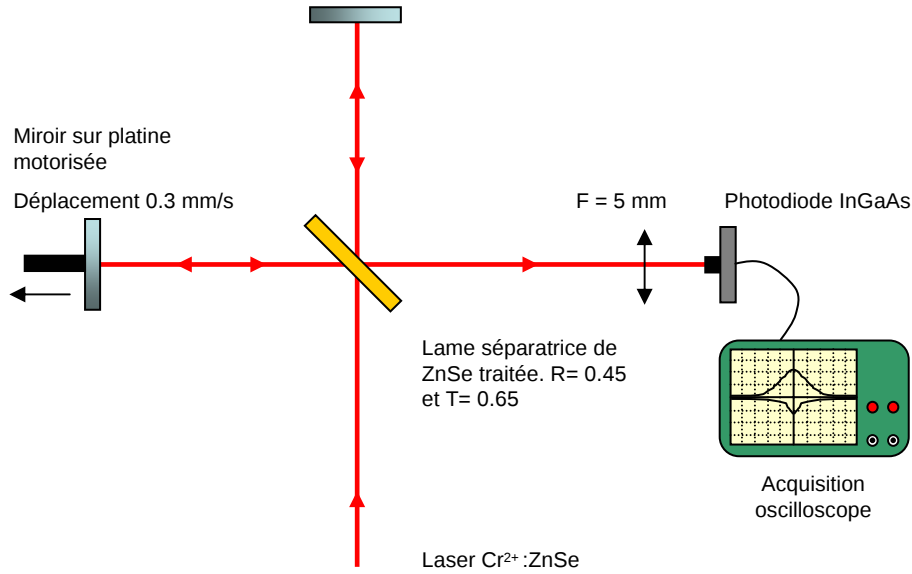


FIGURE 3.43: Schéma de montage de l'autocorrélateur.

La durée des impulsions étant théoriquement de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, il n'est pas envisageable d'en faire une mesure directe; les détecteurs les plus rapides dans l'infrarouge moyen ayant au mieux un temps de montée de quelques dizaines de picoseconde. La mesure de la durée d'impulsion nécessite donc une mesure optique par autocorrélation. Pour effectuer cette mesure, nous avons monté un autocorrélateur optique basé sur un interféromètre de Michelson et une détection à deux photons [Boi10] représentés schématiquement sur la Fig. 3.43.

Le détecteur employé est une photodiode InGaAs de longueur d'onde de coupure $\lambda_c = 1,8\mu\text{m}$, sur laquelle est focalisée la recombinaison des deux bras de l'interféromètre par une lentille de très courte focale ($f = 5\text{ mm}$). L'intérêt de la détection à deux photons est qu'elle repose sur une transition électronique non résonnante directement dans le détecteur utilisé, ce qui autorise une très large bande spectrale de détection⁹. La mesure de la trace d'autocorrélation a posé plusieurs problèmes pratiques. Il a en effet tout d'abord été nécessaire de pouvoir stabiliser l'émission pulsée du laser pendant une durée supérieure au temps de l'acquisition (30 secondes). Ceci a pu être réalisé au meilleur point de fonctionnement obtenu pour $\lambda_{\text{laser}} = 2,55\mu\text{m}$ (voir Fig. 3.45) pour lequel nous avons pu enregistrer le verrouillage de modes du laser sur plusieurs minutes. Dans un second temps, il s'est avéré que l'interféromètre n'était pas neutre pour le laser. En effet, l'alignement de l'autocorrélateur impose que les bras de l'interféromètre soient en autocollimation sur le faisceau laser incident. Cette autocollimation s'accompagne de retours, qui, même très atténués en intensité par des densités optiques, ont pour effet de perturber le

9. Contrairement au doublage de fréquence fréquemment utilisé dans les dispositifs de mesure de durée d'impulsion par autocorrélation, limité spectralement par l'acceptance de doublage du cristal.

laser et le train d'impulsions à mesurer. Ainsi, pour éviter d'éteindre l'émission impulsionnelle du laser, nous avons dû désaligner légèrement l'interféromètre de sorte que le laser ne sorte pas de son régime impulsionnel pendant la durée de la mesure. La trace d'autocorrélation mesurée dans ces conditions est représentée sur la Fig. 3.44.

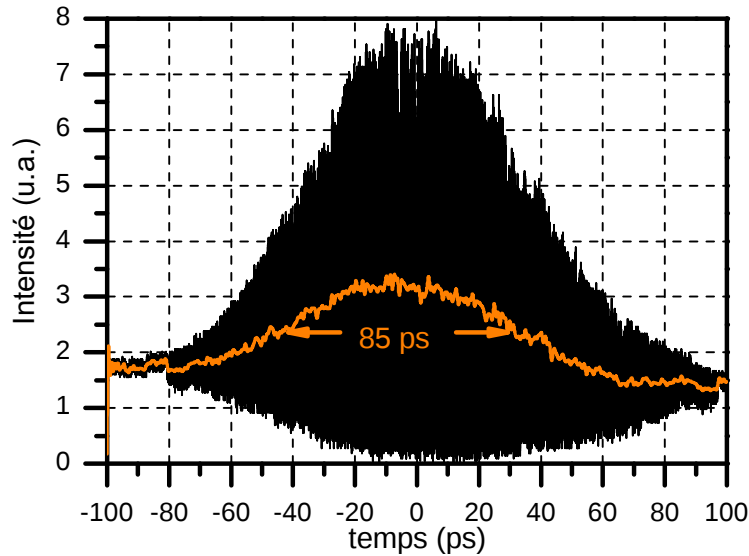


FIGURE 3.44: Trace d'autocorrélation (orange) enregistrée par détection à deux photons en sortie d'un interféromètre de Michelson.

L'interférogramme relevé n'est pas complètement contrasté, en partie du fait du léger désalignement imposé sur les bras de l'interféromètre. Par ailleurs, la trace d'autocorrélation n'est pas parfaitement symétrique, ce qui est dû à la dérive en puissance du laser (voir Fig. 3.47) pendant le temps de l'acquisition. Malgré toutes ces contraintes expérimentales, nous sommes en mesure d'évaluer la durée des impulsions émises par le laser. La trace d'impulsion est tirée de l'interférogramme en filtrant les hautes fréquences afin d'extraire la partie utile du signal, à savoir la trace d'autocorrélation en intensité des impulsions. La durée à mi-hauteur de l'enveloppe d'autocorrélation en intensité est de 85 ps. Les impulsions émises par le laser à modes verrouillés ont par conséquent une durée inférieure à 85 ps. Néanmoins, comme nous l'avons vu au Chap. 3.4 sur la modélisation numérique du verrouillage de modes, nous nous attendons à avoir un profil d'impulsion très asymétrique. Il est donc difficile de supposer un profil d'impulsion pour remonter à une mesure de la largeur à mi-hauteur à partir de la trace d'autocorrélation.

Plusieurs remarques peuvent être formulées concernant la mesure de la trace d'autocorrélation :

- L'interférogramme, et par conséquent la trace d'autocorrélation, ne sont pas parfaitement contrastés. Ce manque de contraste provient en partie du léger désalignement imposé sur les bras de l'interféromètre dans le but d'annuler les retours de lumière dans le laser. Cette

imperfection pose problème, puisqu'il n'est pas possible d'affirmer que le verrouillage de mode est complètement construit (i.e. tous les modes sont bien en phase).

- Par ailleurs, la durée des impulsions (> 50 ps si l'on supposait un profil d'impulsion gaussien) est très importante par rapport à ce que l'on pouvait attendre. En effet, le facteur limitant théoriquement la durée des impulsions est l'acceptance spectrale du cristal doubleur qui est dans notre cas de l'ordre du THz. Dans la littérature, la durée des impulsions obtenues expérimentalement sont généralement supérieur à l'inverse de cette acceptance spectral d'un facteur 3 à 4. Néanmoins, dans notre cas, la durée des impulsions est près de 60 fois supérieure à l'inverse de la bande passante du cristal doubleur, et plus de deux fois supérieure à la valeur numérique calculée dans le Chap. 3.4.2. Cet écart peut avoir diverses origines. Une hypothèse intéressante consiste à dire que le rendement de doublage est trop important en régime pulsé, ce qui peut se traduire par un rallongement de la durée d'impulsion en sortie de laser du fait de la saturation de la SHG au pic de l'impulsion. De tels effets ont été étudiés à la fois théoriquement et expérimentalement [Buc94, Agn99]. Il est également possible d'envisager que la modulation d'amplitude soit insuffisante pour mettre tous les modes de cavité en phase, ce qui se traduirait par l'existence d'un fond continu dans le train d'impulsions du laser. Cette hypothèse serait cohérente avec la remarque précédente sur le manque de contraste de la trace d'autocorrélation expérimentale

Accordabilité

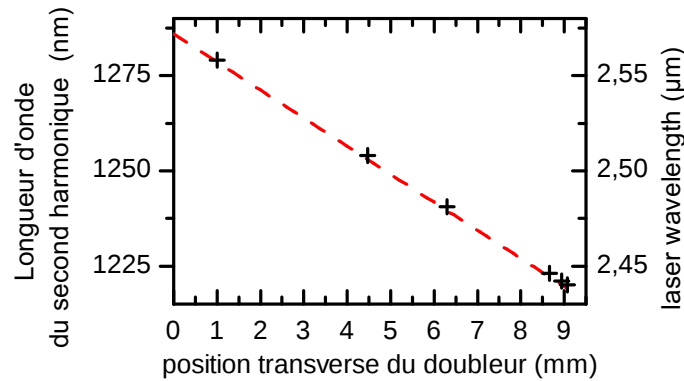


FIGURE 3.45: Accordabilité du laser ZnSe:Cr^{2+} à modes verrouillés en phase par miroir non linéaire en fonction de la position transverse du cristal fan-out.

L'un des résultats expérimentaux importants de ce travail de thèse est la réalisation d'un verrouillage de modes largement accordable dans l'infrarouge moyen. Cette large accordabilité est permise à la fois par la large bande de gain du ZnSe:Cr^{2+} , et par la possibilité d'accorder en longueur d'onde le miroir non linéaire par l'utilisation d'un cristal fan-out. La sélection en longueur d'onde est réalisée par le filtre biréfringent inséré dans la cavité. Une fois que nous

avons sélectionné une longueur d'onde où le laser est efficace en puissance, le miroir non linéaire peut être réglé simplement selon la procédure décrite précédemment.

La Fig. 3.45 donne les points de fonctionnement en longueur d'onde pour lesquels nous avons pu mettre en oeuvre le verrouillage de modes du laser. La température du cristal doubleur est maintenue constante à 74 °C, et l'accordabilité a pu être démontrée entre $\lambda = 2,43 \mu\text{m}$ et $\lambda = 2,55 \mu\text{m}$. Cette propriété montre le fort potentiel d'un tel dispositif par rapport au verrouillage de modes passif par miroir à absorbant saturable (SESAM), l'absorption saturée étant, dans le cas d'un SESAM, optimisée pour une longueur d'onde donnée. Dans notre cas, la gamme spectrale accessible n'est en fait limitée que par la gamme de pas du réseau dans le cristal de PPLN; une accordabilité encore plus large est donc envisageable sur plusieurs centaines de nanomètres autour de la longueur d'onde d'émission naturelle du ZnSe:Cr^{2+} ($\lambda = 2,49 \mu\text{m}$), simplement en augmentant la dimension transverse du cristal.

Stabilité du verrouillage de modes, caractéristique en puissance, profil spatial, et lentille thermique

La plupart des mesures et caractérisation du verrouillage de modes ont été réalisées lorsque le miroir non linéaire est monté avec le coupleur de sortie $R_{c2} = 92,5 \%$. En pratique, le verrouillage de modes a pu être obtenu avec les deux autres coupleurs à notre disposition, mais le régime pulsé le plus stable a été obtenu avec le coupleur R_{c2} . La principale caractéristique du verrouillage de modes est que pour atteindre le régime impulsionnel, le gain dans le laser doit être important. Ceci nécessite donc un niveau de puissance de pompe élevée : en pratique $P_{\text{pompe}} \geq 5 \text{ W}$. Pour de tels niveaux de puissance, la lentille thermique qui s'installe dans le cristal laser devient trop importante pour que l'émission soit stable sur le long terme.

La Fig. 3.46 représente la puissance de sortie du laser ZnSe:Cr^{2+} en fonction de la puissance de pompe incidente pour le coupleur $R_{c2} = 92,5 \%$. Pour faire cette mesure, nous n'utilisons pas le chopper. Le laser est démarré en régime impulsionnel. La puissance moyenne dérive alors lentement en diminuant, du fait de l'installation de la lentille thermique dans le cristal laser, puis le laser passe en régime continu. La puissance de sortie en régime pulsé est donc mesurée avant que la lentille thermique ne déstabilise l'émission du laser.

La caractéristique en continu est différente de celle relevée dans le Chap. 3.2.3 pour le même coupleur de sortie. En particulier le seuil d'oscillation est nettement plus élevé. Cette propriété provient du fait qu'entre les deux expériences, de nombreux éléments ont été introduits dans la cavité du laser : la lame de ZnSe à Brewster, le filtre de Lyot, et le miroir non linéaire.

Par ailleurs, en continu, la puissance de sortie sature puis diminue lorsque la puissance de pompe dépasse les 5 W. Cette saturation de la puissance est due aux instabilités de mode spatial induites par la lentille thermique dans la cavité. Et c'est typiquement pour ces niveaux

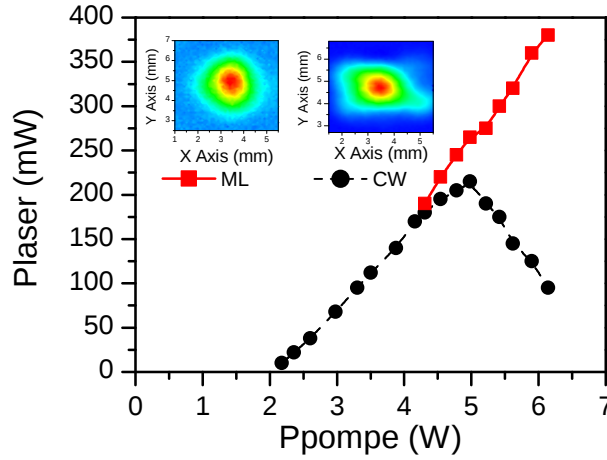


FIGURE 3.46: Caractéristique en puissance du laser ZnSe:Cr^{2+} à modes verrouillés comparée à la caractéristique en continu. Le coupleur de sortie est $R_{c2} = 92,5\%$. La puissance en régime pulsé est relevée en l'absence de modulation par le chopper pendant le laps de temps (en général de l'ordre de la minute) pendant lequel l'émission laser est pulsée avant de retomber au régime continu.

de puissance que le verrouillage en phase des modes du laser a pu être obtenu. Cette propriété est la principale limite rencontrée durant les expériences de verrouillage de modes.

En ce qui concerne le profil spatial du mode laser émis par le ZnSe:Cr^{2+} , il y a une nette différence entre le régime impulsionnel pour lequel le profil spatial est circulaire, et le régime continu pour lequel le profil spatial est dégradé. Cette observation confirme que l'instabilité du verrouillage de modes est à mettre en relation avec la dégradation progressive du profil spatial du faisceau laser du fait de l'installation de la lentille thermique dans le cristal.

Pour mieux visualiser la dynamique temporelle de la lentille thermique dans le cristal laser, nous avons repris le schéma de montage Fig. 3.4, dans lequel un laser He-Ne vient sonder la lentille thermique dans le cristal laser. Après le passage de l'He-Ne dans le ZnSe:Cr^{2+} , nous focalisons le faisceau sur un diaphragme, et relevons l'évolution de l'intensité transmise en fonction du temps sur une photodiode. De cette manière, lorsque la lentille thermique s'installe, la taille du faisceau He-Ne sur le diaphragme varie, et par conséquent, l'intensité relevée sur la photodiode suit les variations de la lentille thermique dans le cristal laser. Nous relevons en parallèle de ce signal le train d'impulsions émis par le laser en sortie. Le résultat de cette expérience est représenté Fig. 3.47.

La Fig. 3.47 donne l'évolution du verrouillage de modes et de la lentille thermique dans le temps. En premier lieu, la focale thermique oscille dans le temps avec une période qui s'allonge au fur et à mesure : de quelques dizaines de ms à quelques secondes. En pratique, l'intensité de l'He-Ne sur la photodiode de détection atteint un niveau continu au bout de quelques minutes. Ce que nous observons ici est donc un régime transitoire thermique. Pendant ce temps, le laser

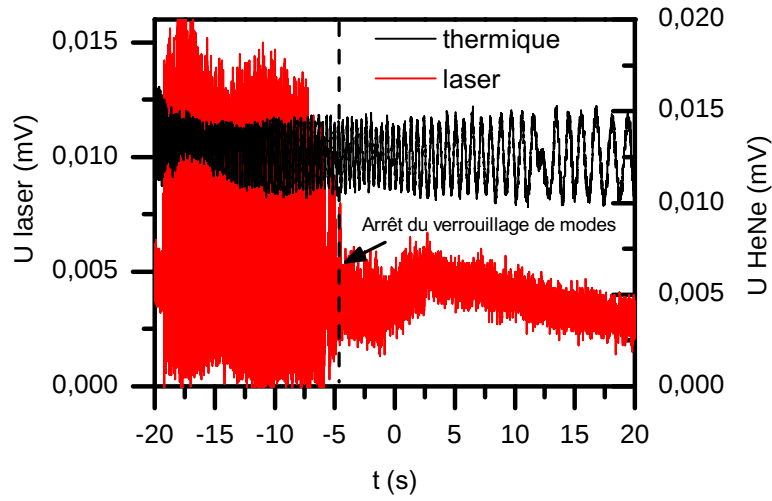


FIGURE 3.47: Visualisation des variations de la lentille thermique dans le ZnSe:Cr^{2+} (courbe noire) et de l'évolution du train d'impulsion (courbes rouges) avec un pompage en continu.

ZnSe:Cr^{2+} est à modes verrouillés sur une durée de quelques dizaines de seconde, environ 25 s, avant de repasser en régime continu sous l'effet de la thermique sur la stabilité de la cavité. Ensuite, la puissance de sortie en continue diminue progressivement. En définitive, la puissance du laser en continu diminue jusqu'à ce que la thermique trouve son régime stationnaire dans le cristal. La puissance en continue donnée sur la Fig. 3.46 correspond au niveau atteint par le laser une fois que la thermique s'est stabilisée, alors que la puissance de verrouillage de modes relevée correspond à la puissance de sortie au démarrage du laser lorsque le cristal est encore "froid", et que l'émission est pulsée.

Lors de nos expériences, la principale limitation qu'il sera nécessaire de surmonter à l'avenir, est donc l'installation d'une forte lentille thermique, de quelques centimètres de focale, dans le cristal laser, lorsque de forts taux de pompage sont recherchés. Réduire l'impact de la lentille thermique sur la stabilité de la cavité n'est pas aisé. En règle générale, refroidir le cristal n'apporte pas beaucoup d'améliorations, car comme nous l'avons abordé au Chap. 3.2.1, en régime stationnaire la focale thermique dépend uniquement du gradient de température entre le centre et les bords du faisceau laser, et non de la température moyenne. L'air étant un mauvais conducteur de chaleur, une première solution consiste à améliorer le contact thermique entre le cristal et l'extérieur, en adoptant une monture métallique pour le cristal. Néanmoins, le principal point sur lequel il est possible d'apporter une optimisation significative, est la stabilité de la cavité. À cet égard, nous avons notamment vu dans le Chap. 3.2.1 que l'utilisation de traitements anti-reflets sur les faces du cristal laser diminuait considérablement les contraintes sur la cavité laser. Un redimensionnement plus complet de la cavité serait néanmoins nécessaire

avec pour objectif de grandir la taille du rayon au waist laser dans le cristal si l'on veut pouvoir atteindre sans perturbation les niveaux de gain laser pour lesquels le verrouillage de modes a pu être mis en évidence.

Synthèse

Après un important travail préparatoire, une expérience de démonstration du verrouillage de modes d'un laser ZnSe:Cr^{2+} par miroir non linéaire d'ordre 2 a pu être démontrée. Pour cela, nous avons dû étudier la faisabilité du verrouillage de modes par le biais de simulations numériques modélisant l'interaction couplée entre le milieu laser et le miroir non linéaire. Il nous a également fallu étudier en profondeur le laser ZnSe:Cr^{2+} en continu, étape préalable nécessaire à la réalisation de la source finale. Cette étude s'est avérée d'autant plus nécessaire que le ZnSe:Cr^{2+} est un matériau récent dont la maturation est encore l'objet d'un important travail, d'où une certaine dispersion dans la qualité des échantillons que nous avons pu collecter. Par ailleurs, du fait de la forte lentille thermique dans le ZnSe:Cr^{2+} pompé en continu, nous avons été amenés à évaluer la stabilité relative de différentes configurations de cavités. L'utilisation de traitements anti-reflets sur le cristal laser a permis d'assouplir ces contraintes thermiques en autorisant l'utilisation du cristal en incidence normale. Une fois ces étapes franchies, l'étude expérimentale du miroir non linéaire a été l'occasion d'identifier et d'éliminer progressivement les degrés de liberté du système afin d'avoir le maximum de contrôle sur le réglage de la réflectivité non linéaire. L'étude de la réflectivité non linéaire sur les impulsions infrarouges picoseconde d'un OPO synchrone en dehors de la cavité laser s'est donc avérée être un outil de caractérisation précieux. Ce travail a constitué une bonne introduction aux subtilités du doublage de fréquence en double passage avant l'introduction du miroir non linéaire dans la cavité du laser ZnSe:Cr^{2+} . Le verrouillage de modes a ainsi pu être obtenu, et une caractérisation complète de la source ZnSe:Cr^{2+} impulsionnelle a révélé des propriétés tout à fait prometteuses. Grâce à l'utilisation d'un cristal de PPLN fan-out, une large accordabilité de l'ensemble du système {laser + miroir non linéaire} a été démontrée, et les caractéristiques de sortie du laser, notamment en termes de durée d'impulsions, sont cohérentes avec les simulation numériques menées initialement. Malgré les précautions prises, les effets thermiques dans le ZnSe:Cr^{2+} se sont révélés être la principale limitation du verrouillage de modes en continu, et les développements futurs devront se concentrer principalement sur un redimensionnement de la cavité afin de réduire l'impact de la thermique. Enfin, lors du réglage du verrouillage de modes, nous avons constaté que le second harmonique n'était pas intégralement reconverti. Cette propriété, de même que la possibilité de régler avec précision le désaccord de phase dans le PPLN ainsi que la valeur de la phase non linéaire au retour, nous a amenés à considérer plus en détail l'influence des paramètres du miroir non linéaire sur le fonctionnement du laser en régime impulsionnel. Les travaux relatifs à cette étude font l'objet du chapitre qui suit.

Chapitre 4

Miroir non linéaire généralisé

Objectifs

Nous avons vu au Chap. 3 que le design original de notre miroir non linéaire pour le verrouillage de modes d'un laser ZnS:Cr^{2+} offrait la possibilité de naviguer dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$ par translation du cristal de PPLN fan-out, et par translation de la lame prismatique de YAG. En particulier, la possibilité de modifier largement la condition d'accord de phase dans le PPLN nous a permis de mettre en évidence l'accordabilité du système laser à modes verrouillés. Nous avons également pu constater que le réglage du verrouillage de modes pouvait être obtenu pour différentes positions transverses de la lame de phase espacées régulièrement, avec la même période que la période d'oscillation du doublage de fréquence mesurée au Chap. 3.5.2, ce qui prouve que le processus de conversion puis reconversion du fondamental est bien à l'origine du régime impulsif. Dans ce chapitre, nous proposons une exploration plus détaillée de l'influence des paramètres du miroir non linéaire sur la dynamique de notre laser ZnSe:Cr^{2+} . Sur la base de nos observations expérimentales, nous avons été amenés à revisiter la notion de réflectivité non linéaire. Pour cela, nous avons mené une étude numérique de la réflectivité non linéaire dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$, afin d'illustrer la plausibilité de scénarii de verrouillage de modes différents de celui envisagé en introduction du Chap. 3, à savoir la conversion puis la reconversion à l'accord de phase exact de l'onde laser fondamentale. Nous verrons notamment comment le miroir non linéaire peut jouer le rôle de modulateur d'amplitude en dehors de l'accord de phase parfait. Nous aborderons la possibilité d'utiliser le miroir non linéaire en tant que modulateur de phase, en introduisant en particulier le phénomène de non-linéarités en cascade, et nous expliciterons enfin les conditions dans lesquelles le miroir non linéaire peut jouer à la fois le rôle de modulateur de phase et d'amplitude, pour aboutir à la notion de miroir non linéaire généralisé.

4.1 Influence des paramètres du miroir non linéaire sur la dynamique du laser ZnSe:Cr²⁺ - Approche expérimentale

4.1.1 Influence du désaccord de phase et du déphasage au retour sur le verrouillage de modes

Au Chap. 3.6.2 nous avons observé que le verrouillage de modes était périodique avec le positionnement transverse de la lame de phase.

En parallèle de la visualisation du verrouillage de modes, nous relevons la puissance à 2ω émise en double passage derrière le miroir de cavité M₃, dans des conditions similaires à la Fig. 3.41b. Le résultat de ce test est représenté sur la Fig. 4.1. Les conditions expérimentales sont les suivantes : la puissance de pompe est $P_{\text{pompe}} = 5 \text{ W}$, la puissance de sortie du laser ZnSe:Cr²⁺ est alors typiquement de 150 mW ¹.

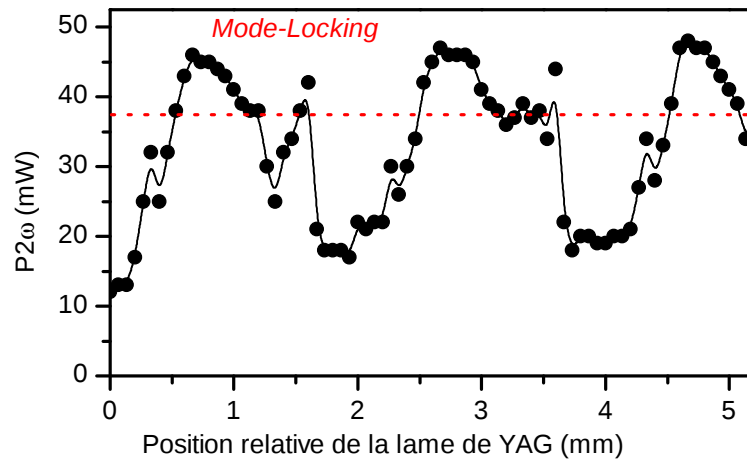


FIGURE 4.1: Puissance à 2ω extraite de la cavité derrière M₃ en fonction de la position relative de la lame de phase. La limite rouge pointillée indique la zone de puissance pour laquelle le laser est dans un régime de verrouillage de modes stable avec des impulsions nettement contrastées pendant les cycles d'ouverture du chopper. La puissance moyenne est mesurée lorsque le faisceau de pompe est haché, ce qui signifie que la puissance moyenne pendant un cycle d'ouverture du chopper est deux fois plus importante.

Lorsque le laser est en régime impulsionnel, la puissance du second harmonique est élevée ($\gtrsim 35 \text{ mW}$ ²) derrière le miroir M₃. En dessous de cette limite, les impulsions apparaissent instables

1. Avec le faisceau de pompe haché, ce qui signifie que la puissance moyenne pendant le cycle d'ouverture du chopper est d'environ 300 mW. Pour le coupleur $R_{c2} = 92,5 \%$, la puissance laser moyenne intracavité pendant un cycle d'ouverture du chopper est donc de l'ordre de 4 W.

2. Quasiment 100 mW en moyenne en tenant compte de l'ouverture du chopper. Ce niveau de puissance

pendant la période d'ouverture du chopper, ou présentent un fond continu. L'interprétation physique de cette courbe est complexe et dépend d'un grand nombre de paramètres. La forte puissance de second harmonique après le double passage des ondes dans le miroir non linéaire indique que la reconversion vers le fondamental n'est pas intégrale lorsque le laser est à modes verrouillés. Cet effet peut sembler en contradiction avec le concept de modulation d'amplitude par conversion puis reconversion du fondamental³, puisque la présence de second harmonique au retour indique l'existence d'un désaccord de phase dans le cristal ou d'un décalage de la phase non linéaire qui ne soit pas exactement égal à π au retour. Nous allons voir dans ce chapitre que l'existence de légers désaccords de phase n'est pas en contradiction avec l'établissement d'un verrouillage de modes efficace, et qu'il est même envisageable que le réglage optimum du miroir non linéaire se situe en dehors de l'accord de phase exact pour les processus de conversion et de reconversion. Par conséquent la puissance à 2ω peut servir d'indicateur de l'efficacité du verrouillage de modes, puisque l'efficacité avec laquelle le second harmonique est généré dépend de l'intensité crête du fondamental. Cette assertion est cohérente avec l'observation expérimentale, puisque le régime impulsif le plus stable pour le laser⁴ coïncide avec les puissances de second harmonique les plus élevées. Par ailleurs, autour des maxima principaux de puissance à 2ω , situés sur la Fig. 4.1 en 0,75 mm, 2,75 mm, et 4,75 mm, il existe une certaine acceptation sur la position de la lame de phase pour laquelle le laser est toujours en régime de verrouillage de modes stable. Cette acceptation est de l'ordre de 0,3 mm, ce qui correspond théoriquement à un intervalle de déphasage important sur la phase non linéaire de l'ordre de $\Delta\varphi \sim \pi/3$. Plus surprenant, en dehors des positions principales de la lame pour lesquelles le laser est en régime pulsé, il existe des positions, que nous qualifierons de secondaires, en ce sens qu'elles sont beaucoup plus sensibles au positionnement de la lame donc moins intéressantes du point de vue robustesse du verrouillage de modes, situées aux abscisses 1,6 mm et 3,6 mm sur la Fig. 4.1. Ainsi, même si nous ne pouvons pas connaître de manière absolue la valeur de la phase non linéaire en fonction de la position de la lame de phase, les deux propriétés expérimentales que nous venons de relever indiquent qu'il existe une gamme de points de fonctionnement correspondant à une gamme de déphasage de la phase non linéaire $\Delta\varphi$ pour laquelle le verrouillage de modes est possible. En conclusion, le déphasage au retour ne doit pas nécessairement prendre la valeur $\Delta\varphi = -\pi$ pour que le laser soit verrouillé en phase.

En revanche, si le même type d'expérience est effectué en translatant non plus la lame

moyenne est très nettement supérieur à ce qui est mesuré lorsque le laser fonctionne en continu, et que le maximum de rendement de doublage est recherché.

3. Principe sur lequel a reposé le dimensionnement et l'analyse du miroir non linéaire d'ordre 2 avant sa mise en œuvre expérimentale.

4. La qualité du verrouillage de modes est jugée par la présence ou non d'un fond continu visible par le détecteur rapide, et par la stabilité du train d'impulsion sur les périodes d'ouverture du chopper mécanique qui module la pompe.

de phase, mais le cristal doubleur fan-out, le verrouillage de modes apparaît très sensible à la position transverse du cristal, c'est-à-dire à la condition d'accord de phase, avec une acceptation sur la position d'environ 1 mm en dehors de laquelle le laser est purement continu. Cette valeur est très proche de l'acceptance géométrique de doublage mesurée en simple passage. Le verrouillage de modes n'est donc permis que lorsque le cristal doubleur est réglé proche de l'accord de phase.

4.1.2 Régime déclenché

Par ailleurs, nous avons pu mettre en évidence un régime de fonctionnement impulsionnel très différent du verrouillage de modes décrit précédemment. Les principales caractéristiques de ce régime sont représentées sur le Fig. 4.2. Sur ces oscillogrammes des impulsions longues d'environ 200 ns répétées à une cadence de 1,5 MHz ($T = 0,7 \mu\text{s}$) sont relevées.

La Fig. 4.2c montre que les macro-impulsions nanoseconde contiennent des impulsions de verrouillage de modes à la fréquence de cavité, 220 MHz, qui ne sont pas très bien contrastées. La cadence des impulsions nanosecondes est cohérente avec les constantes temporelle de la cavité. En effet, l'inverse de la moyenne quadratique du temps de vie du niveau excité dans ZnSe:Cr²⁺ et du temps d'aller-retour dans la cavité est $1/\sqrt{\tau_1 \cdot T_{cav}} = 4 \text{ MHz}$ [Sie86], ce qui est de l'ordre de grandeur de la cadence observée $f = 1,5 \text{ MHz}$, et les impulsions peuvent être entretenues indéfiniment. Contrairement au pur verrouillage de modes, ce régime nanoseconde a pu être obtenu en continu dans le temps pour des puissances de pompe inférieures au seuil de saturation thermique et sans l'utilisation d'un chopper. Il s'agit donc bien d'un régime déclenché passivement, et non d'oscillations de relaxations. Ce régime de fonctionnement a d'abord été interprété comme étant un régime hybride de verrouillage de modes / déclenchement passif théoriquement accessible avec le miroir non linéaire (Chap. 3.4), également prévu par [Mel07], et décrit dans [Kel96]. Cependant, il a été constaté que la dépendance aux paramètres du miroir non linéaire de ce régime temporel est très faible. Ainsi, lorsque le laser atteint ce régime de fonctionnement, il est possible de translater la lame de phase de manière indifférente sans induire la moindre modification. En translatant le cristal non linéaire, les impulsions nanoseconde disparaissent au profit du régime continu, mais la sensibilité est beaucoup moins importante, plusieurs mm de translation sont autorisés, que pour le régime de verrouillage de modes pur, sensible à des décalages de moins de 1 mm par rapport à la position optimale. Ce régime déclenché est donc très peu sensible aux paramètres $\Delta\varphi$, et Δk , ce qui exclut que le miroir non linéaire ait besoin d'être réglé précisément au voisinage du point $\{\Delta k, \Delta\varphi\} = \{0, -\pi\}$ ⁵.

5. La faible dépendance du régime déclenché aux réglages du miroir non linéaire nous a dans un premier temps amenés à considérer l'éventualité d'une modulation d'amplitude par lentille de Kerr dans le cristal de ZnSe:Cr²⁺. Cependant les intensités crêtes mises en jeu dans la cavité laser rendent une telle hypothèse peu probable. Plus de précisions sur l'effet Kerr dans ZnSe:Cr²⁺ sont apportées dans l'Annexe B.

Compte tenu de ces observations, diverses hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce régime temporel très particulier, hypothèses que nous explicitons plus en détails dans la suite de ce chapitre.

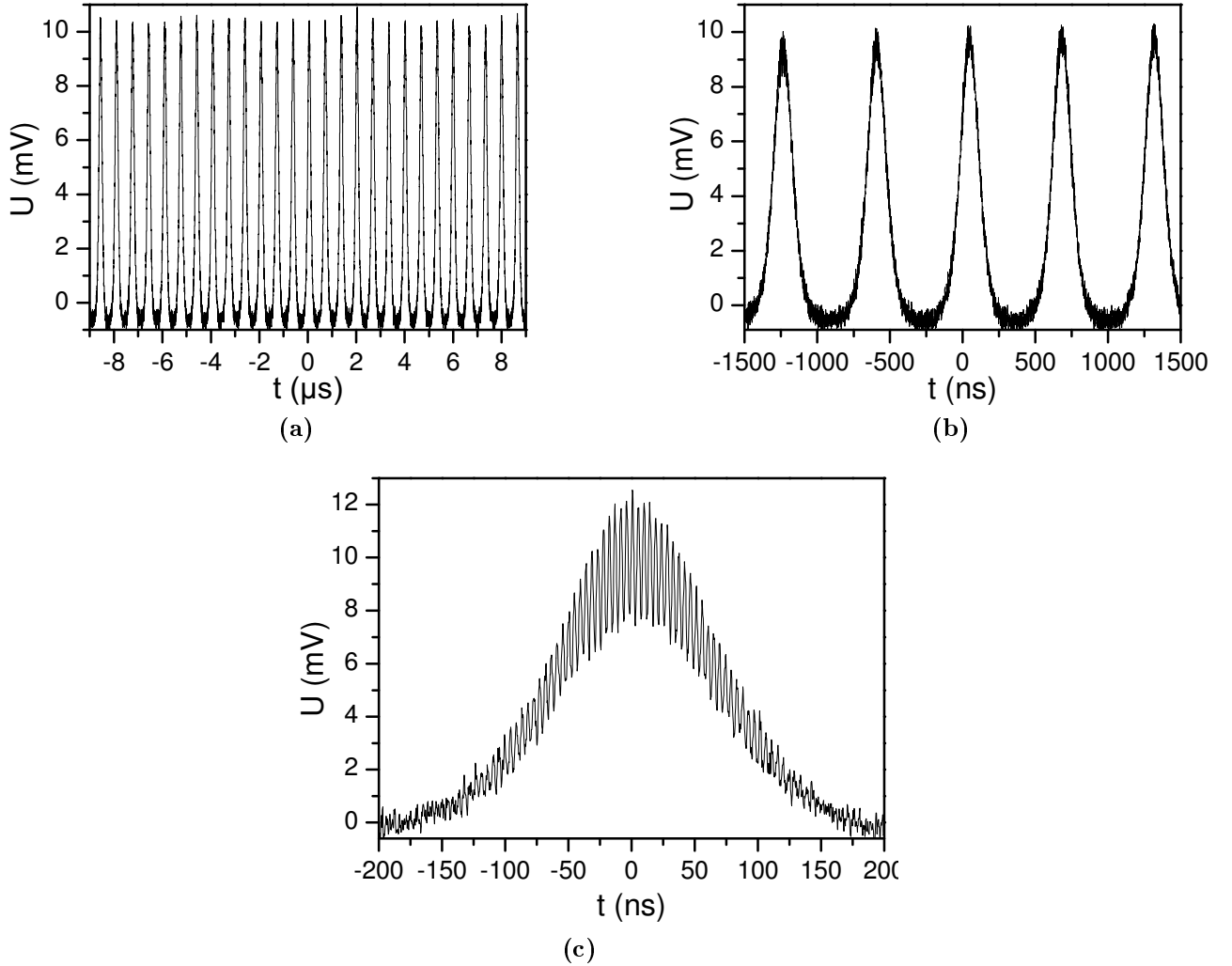


FIGURE 4.2: Oscillogramme du régime déclenché du laser ZnSe:Cr^{2+} . Le coupleur de sortie à ω a une réflectivité $R_{c2} = 92,5\%$, et la puissance moyenne de sortie est de 150 mW (avec la pompe hachée) soit une puissance moyenne effective d'environ 300 mW. (a) Train d'impulsions de relaxation. (b) zoom de (a). (c) zoom de (b).

Conclusion

Nous avons pu évaluer expérimentalement la sensibilité du verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr^{2+} aux variations des paramètres $\Delta\varphi$ et Δk . Il est très intéressant de remarquer que

le verrouillage de modes admet une certaine acceptation quant au réglage de ces paramètres. L'acceptation sur le réglage de l'accord de phase dans le cristal correspond approximativement à l'acceptation de doublage en simple passage. Ainsi, même si nous ne sommes pas en mesure de faire une mesure absolue de la valeur de Δk , nous pouvons conclure que le cristal doubleur doit être réglé proche de l'accord de phase. L'acceptation sur le réglage de la lame de phase semble plus complexe à cerner. En effet, si nous avons pu mettre en évidence des positions de la lame espacées périodiquement pour lesquelles le laser est à modes verrouillés avec une acceptation non négligeable de 0,3 mm sur la position de la lame, l'expérience a révélé l'existence de positions secondaires moins tolérantes mais distinctes des positions principales. Enfin, nous avons pu mettre en évidence un régime déclenché pour notre laser ZnSe:Cr^{2+} , mais contrairement au verrouillage de modes, ce régime est très peu dépendant des paramètres du miroir non linéaire. Ces observations nous invitent donc à explorer plus en détail les différents modes de fonctionnement possibles du miroir non linéaire en dehors de la condition $\{\Delta k, \Delta\varphi\} = \{0, -\pi\}$.

4.2 Différents modes de fonctionnement du miroir non linéaire

Dans la plupart des expériences de verrouillage de modes laser par réflectivité non linéaire d'ordre 2, l'effet d'absorption saturée équivalente est expliqué par la dépendance en intensité de la conversion / reconversion qui s'opère dans le dispositif [Sta88b, Sta88a, Sta91b, Dat04b, Ham91, Dan94]. Cette interprétation repose principalement sur l'hypothèse que lors du réglage expérimental du miroir non linéaire, le désaccord de phase Δk est nul dans le cristal non linéaire et le déphasage introduit entre l'aller et le retour dans le doubleur par la lame de phase $\Delta\varphi$ vaut $\pm\pi$. Dans ce cas le miroir non linéaire se comporte comme un pur modulateur d'amplitude dans le temps. C'est également principalement sous cet angle que le verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr^{2+} a été abordé au cours de ce travail. Néanmoins, comme nous l'avons vu expérimentalement, les paramètres Δk et $\Delta\varphi$ peuvent être ajustés et sont généralement optimisés afin d'obtenir le train d'impulsions le plus stable et la durée d'impulsion la plus courte possibles. Cet ajustement se fait sans pouvoir rigoureusement connaître la valeur absolue de ces deux paramètres, et comme nous le verrons, il est tout à fait envisageable que le fonctionnement du laser à modes verrouillés en phase se situe en dehors du point $\{\Delta k, \Delta\varphi\} = \{0, \pm\pi\}$ que nous nommerons point "Stankov", en référence au concept de réflectivité non linéaire initialement proposé par Stankov [Sta88b]. L'idée générale de cette partie est de montrer que le miroir non linéaire peut encore jouer le rôle d'une fonction de modulation de l'amplitude par la réflectivité en dehors du point $\{\Delta k, \Delta\varphi\} = \{0, -\pi\}$. Nous verrons notamment que cette propriété est compatible avec les observations expérimentales, en particulier, pour un faible désaccord de

phase, la périodicité des points de fonctionnement avec la phase au retour $\Delta\varphi$ est conservée. Le fait que le miroir non linéaire puisse être a priori réglé en dehors de l'accord de phase exact, va nous permettre d'introduire un phénomène supplémentaire pouvant intervenir dans le cristal : la modulation de phase par non-linéarités en cascades. Ce phénomène sera étudié dans un second temps.

4.2.1 Le miroir non linéaire en tant que modulateur d'amplitude

Dans cette partie, nous reproduisons le type de simulations décrites au paragraphe 3.5. Le principe est le suivant : nous injectons dans le miroir non linéaire une impulsion picoseconde, et nous mesurons la réflectivité non linéaire en énergie de l'onde fondamentale en fonction des paramètres Δk et $\Delta\varphi$ afin de définir une cartographie théorique de la réflectivité non linéaire. En parallèle de la réflectivité non linéaire, nous mesurons le facteur de rétrécissement de l'impulsion fondamentale, $\rho = \frac{\tau_{\text{réfléchié}}}{\tau_0}$ est le rapport entre la durée à mi-hauteur de l'impulsion réfléchié sur la durée à mi-hauteur de l'impulsion incidente, afin de visualiser les zones où l'impulsion est effectivement comprimée après réflexion (les zones où $\rho < 1$ sont a priori favorables au verrouillage de modes dans le laser), et de les superposer à la cartographie de la réflectivité non linéaire. Afin d'approcher notre cas expérimental d'un laser ZnSe:Cr²⁺ à modes verrouillés, nous choisissons le jeu de paramètres décrits dans le Tab. 4.1.

Grandeur	Notation	Valeur
Durée d'impulsion (LTMH)	τ_0	50 ps
Intensité crête	$I_{\text{crête}}$	0,1 - 20 MW/cm ²
Puissance laser moyenne intracavité "équivalente"	P_{las}	~0,1 - 20 W
Réflectivité du fondamental	R_{ω}	0,9
Réflectivité du second harmonique	$R_{2\omega}$	1
Longueur du cristal de PPLN	L_{cri}	20 mm

TABLE 4.1: Valeurs des paramètres de l'étude théorique de la réflectivité non linéaire. La puissance laser "équivalente" correspond à l'ordre de grandeur de la puissance moyenne intracavité dans le laser ZnSe:Cr²⁺ que nous aurions pour une durée d'impulsion de 50 ps, une cadence de 200 MHz, et un rayon au waist de 100 μm dans le cristal doubleur. Les valeurs de puissance moyenne données ici ne sont qu'indicatives, et dépendent de la durée d'impulsion. Dans notre expérience, la puissance moyenne intracavité est d'environ 3 W lorsque le laser est en régime impulsionnel.

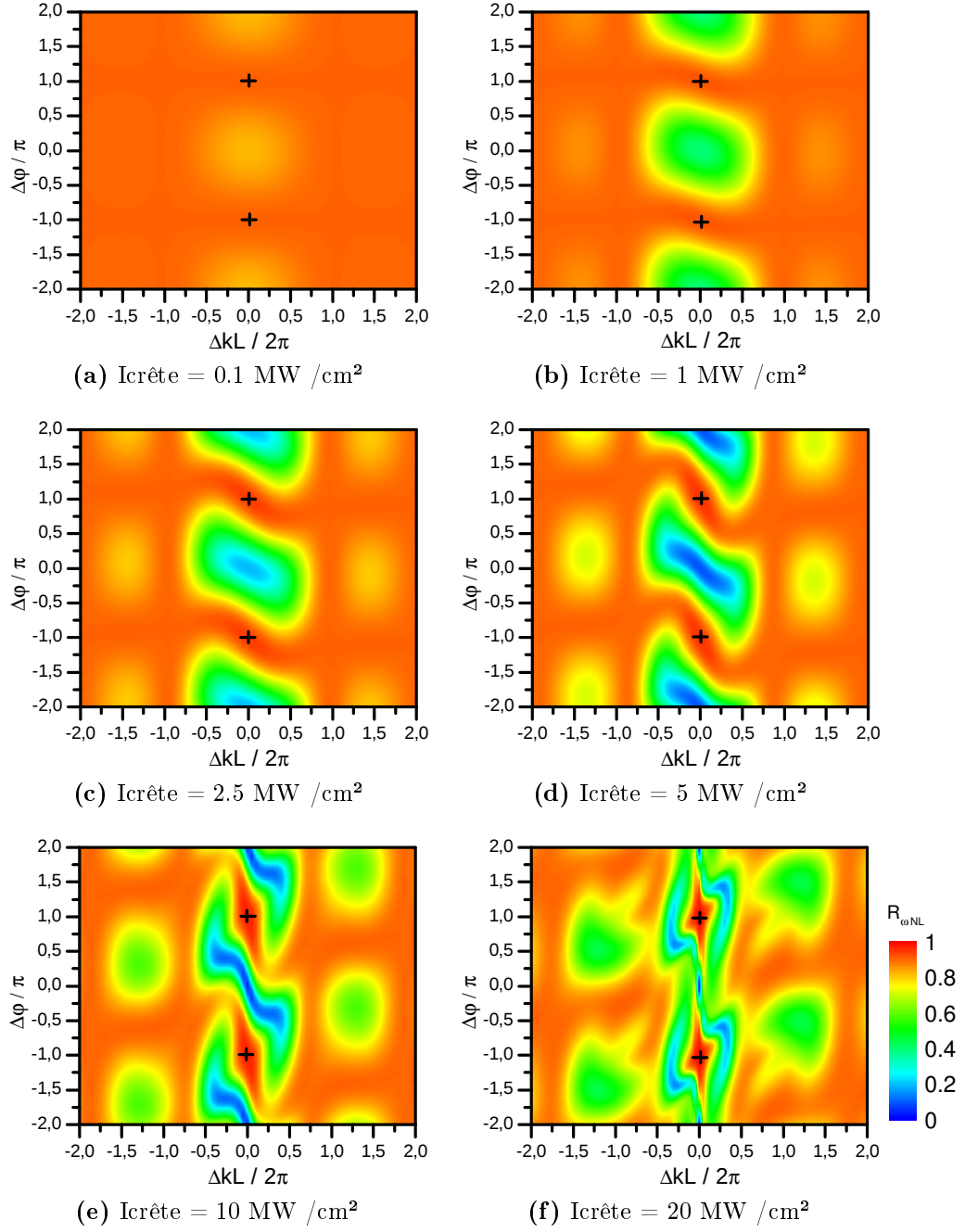


FIGURE 4.3: Cartographie de la réflectivité non linéaire moyenne en fonction de Δk et $\Delta\phi$, pour les paramètres du Tab. 4.1 et différentes intensités crêtes du fondamental en entrée. L'échelle de couleurs est la même pour toutes les figures. Le point Stankov, repéré par une croix noire, correspond aux coordonnées $\{0; \pm 1\}$.

Cette étude numérique de la réflectivité non linéaire et du facteur de rétrécissement est inspirée par les travaux expérimentaux de Chekhlov [Che98] sur l'optimisation du verrouillage de mode d'un laser à 1 μm par miroir non linéaire. Dans ces travaux, le laser est initialement verrouillé en phase par une modulation d'amplitude active (indépendante du miroir non linéaire), puis, il est expérimentalement démontré que le rétrécissement des impulsions du laser est d'autant plus efficace que le miroir non linéaire est réglé légèrement en dehors du point Stankov. L'analyse du facteur de rétrécissement permet donc de juger de la possibilité d'obtenir un verrouillage de modes efficace à condition de se placer en régime permanent. En particulier, le facteur de rétrécissement seul ne permet pas de discuter du mécanisme de démarrage du régime impulsif.

Sur la Fig. 4.3 nous retrouvons le même type de courbe que dans le Chap. 3.5.2 avec une simple inversion du code couleur. L'analyse de ces figures doit rester qualitative car le modèle utilisé est en ondes planes et exagère la saturation⁶, mais l'interprétation qualitative reste correcte.

La réflectivité maximale est obtenue lorsque $\{\frac{\Delta k L}{2}, \Delta\varphi\} = \{0, \pm\pi\}$ et est comprise entre 0,9 et 1 selon l'intensité crête incidente du fondamental. Pour les faibles intensités, l'efficacité de conversion est faible et la réflectivité non linéaire maximale tend vers $R_\omega = 0,9$ (Fig. 4.3a), tandis que pour les fortes intensités, l'efficacité de conversion augmente, et la réflectivité non linéaire tend vers $R_{2\omega} = 1$. Ce point correspond au cas du miroir de Stankov.

Il est ensuite intéressant de réaliser le même type de cartographie du facteur de rétrécissement de l'impulsion incidente après réflexion sur le miroir non linéaire, afin de visualiser les zones de fonctionnement du miroir non linéaire favorables à une diminution de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion incidente. Comme nous l'avons vu au Chap. 3.3, un facteur de rétrécissement inférieur à 1 est une condition nécessaire, mais non suffisante, au verrouillage de modes pour le système couplé {laser + miroir non linéaire}.

Pour les faibles intensités, le miroir non linéaire ne rétrécit pas ou peu la durée de l'impulsion fondamentale du fait de la faible efficacité de conversion à l'aller comme au retour dans le cristal. Le facteur de rétrécissement commence à prendre des valeurs significatives lorsque l'intensité crête du fondamental est supérieure à 1 MW/cm². Les lignes de niveau correspondant au cas $I_{\text{crête}} = 2,5 \text{ MW/cm}^2$ sont reportées sur la Fig. 4.4a. Dans ce cas de figure, les zones favorables au verrouillage de modes se situent à proximité du point de fonctionnement Stankov $\{\frac{\Delta k L}{2}, \Delta\varphi\} = \{0, \pm\pi\}$ où la réflectivité non linéaire prend sa valeur maximale. Il est cependant remarquable que les rétrécissements les plus importants se situent légèrement en dehors de ce point. Il est donc tout à fait légitime de faire l'hypothèse que le verrouillage de modes du laser puisse exister en dehors du point Stankov. À noter également que le motif des lignes de niveau se répète

6. notamment autour des points extrêmes comme $\{\Delta k, \Delta\varphi\} = \{0,0\}$ où le rendement de doublage peut atteindre 100 %.

de manière périodique avec la valeur du déphasage $\Delta\varphi$. Ainsi, en supposant que le point de fonctionnement du laser à modes verrouillés par miroir non linéaire se situe en un point proche de l'accord de phase mais différent de $\Delta k = 0$, il est possible de retrouver périodiquement ce point en variant la phase au retour, c'est-à-dire, expérimentalement, en translatant la lame de phase prismatique. Tous les points de fonctionnement décrits par les lignes de niveau de la figure ne sont néanmoins pas adaptés au verrouillage de modes en cavité laser, puisque les zones où la réflectivité non linéaire est faible, en bleu sur la figure Fig. 4.4a, correspondent à des pertes moyennes trop importantes pour un laser tel que celui décrit dans le chapitre expérimental. Afin de mieux cerner les zones utiles de la figure, nous éliminons les valeurs de réflectivité qui sont inférieures à 80 %. Ce choix n'est pas complètement arbitraire puisque nous avons pu faire osciller et verrouiller en phase notre laser ZnSe:Cr^{2+} en continu avec un coupleur de 85 %, tout en étant largement au dessus du seuil; il est donc possible de considérer qu'une perte moyenne de 20 % est acceptable du point de vue laser. Puis nous zoomons la fenêtre autour du point Stankov $\{\frac{\Delta k L}{2}, \Delta\varphi\} = \{0, \pm\pi\}$. Cette figure indique qu'il est à la fois possible d'obtenir un facteur de rétrécissement inférieur à 1 ainsi qu'une réflectivité non linéaire supérieure à $R_\omega = 0,9$ dans des régions légèrement décalées par rapport au point de fonctionnement Stankov.

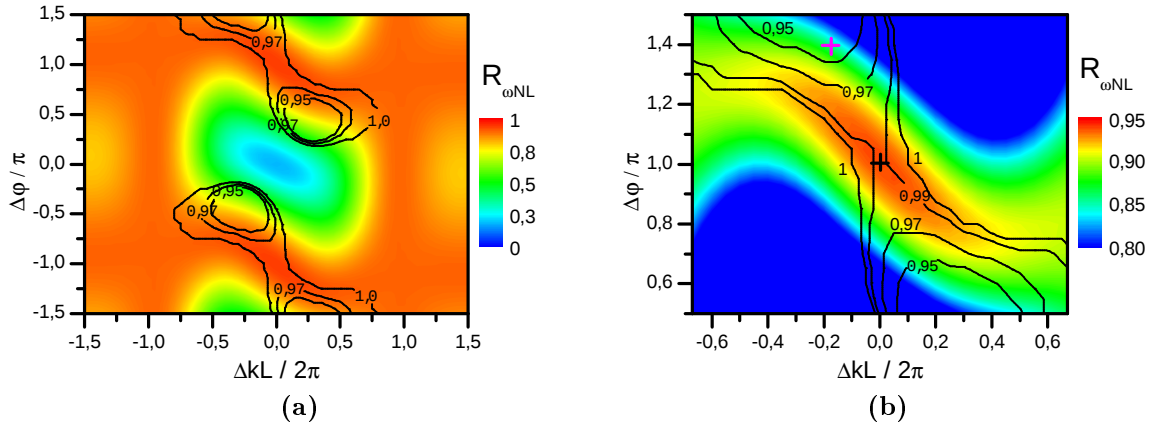


FIGURE 4.4: Cartographie de la réflectivité non linéaire en énergie et facteur de rétrécissement (lignes de niveaux) pour $I_{crête} = 2,5 \text{ MW/cm}^2$. Sur la Fig. (b), le point Stankov est repéré par une croix noire, et le point particulier $\{-0,18; 1,4\}$ est repéré par une croix rose. (a) Figure globale. (b) Zoom de (a) + suppression des réflectivités inférieures à 80 %.

Afin de mieux comprendre cet effet de décalage entre les zones de compression de l'impulsion et les zones de fortes réflectivité, observons ce qui se passe en un point particulier de la carte en fonction de l'intensité. Pour cela, fixons arbitrairement la valeur du couple $\{\frac{\Delta k L}{2\pi}, \frac{\Delta\varphi}{\pi}\} = \{-0,18; 1,4\}$, et relevons la réflectivité non linéaire en fonction de l'intensité crête. La figure Fig. 4.5 donne cette réflectivité en fonction de l'intensité pour le point de fonctionnement $\{-0,18; 1,4\}$ que nous comparons à la même courbe pour le point de fonction-

nement Stankov $\{0; 1\}$. Les caractéristiques du miroir non linéaire sont toujours celles décrites au tableau Tab. 4.1.

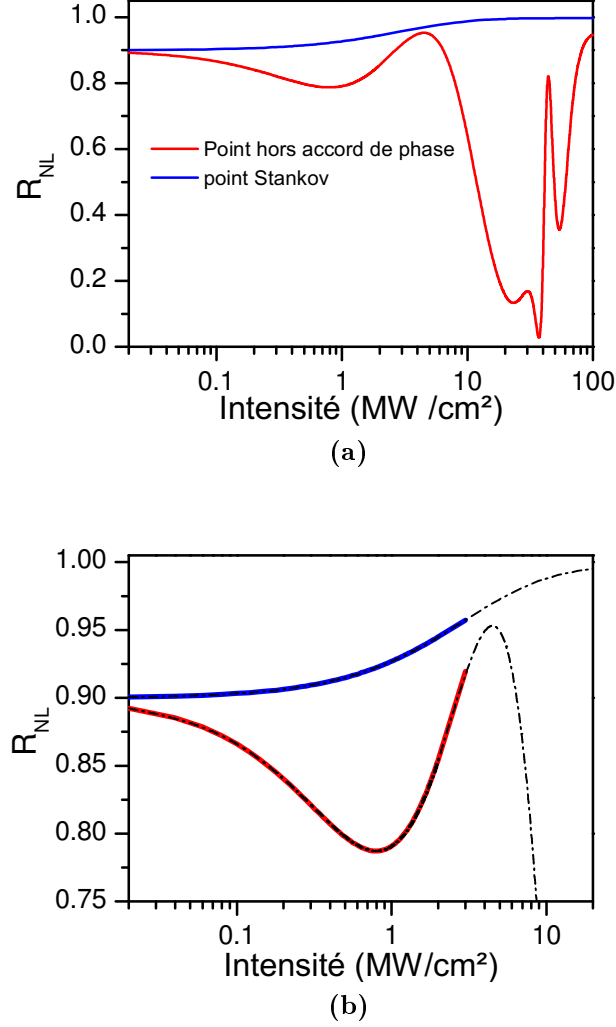


FIGURE 4.5: Réflectivité non linéaire comparée entre le point Stankov $\left\{\frac{\Delta k L}{2\pi}; \frac{\Delta \varphi}{\pi}\right\} = \{0; 1\}$, et un point hors accord de phase $\left\{\frac{\Delta k L}{2\pi}; \frac{\Delta \varphi}{\pi}\right\} = \{-0,18; 1,4\}$. (a) Figure globale. (b) Zoom autour de $I = 2.5 \text{ MW/cm}^2$.

Pour le point Stankov, la courbe de réflectivité prend une forme de porte optique du type absorbant saturable, qui favorise les intensités élevées : $R_{NL} \rightarrow R_{2\omega} = 1$ quand $I \rightarrow \infty$, et $R_{NL} \rightarrow R_{\omega} = 0,9$ quand $I \rightarrow 0$. La courbe correspondant au point choisi hors accord de phase est plus complexe, mais présente elle aussi de fortes non-linéarités avec l'intensité. D'après cette courbe, la réflectivité atteint un maximum entre 2 MW/cm^2 et 5 MW/cm^2 , il est donc envisageable qu'une impulsion dont l'intensité crête se situe dans cette zone subisse un

rétrécissement puisque la réflectivité non linéaire va favoriser la crête de l'impulsion. Cet effet est illustré par le cas d'une impulsion dont l'intensité crête vaut $2,5 \text{ MW/cm}^2$ (partie rouge de la courbe sur la figure Fig. 4.5b) : le miroir non linéaire favorise la crête de l'impulsion avec une réflectivité supérieure à 0,9 pour $I = 2,5 \text{ MW/cm}^2$, mais il inflige aussi des pertes aux faibles intensités qui sont, pour certaines, relativement plus importantes qu'au point Stankov. En effet, au point Stankov, la réflectivité maximale (pour $I = 2,5 \text{ MW/cm}^2$) est de 0,95 et la réflectivité minimale est de 0,90 (pour $I \rightarrow 0 \text{ MW/cm}^2$), tandis qu'au point hors accord de phase, la réflectivité maximale est d'environ 0,90 à $I = 2,5 \text{ MW/cm}^2$ et la réflectivité minimale est de 0,79 (pour $I = 0,8 \text{ MW/cm}^2$), d'où un meilleur contraste et un meilleur rétrécissement à mi-hauteur de l'impulsion.

Remarque

Nous rappelons que ces interprétations reposent sur une analyse en régime permanent du verrouillage de modes, c'est-à-dire indépendamment du phénomène de construction du régime impulsionnel. La Fig. 4.5b indique que la réflectivité non linéaire est une fonction décroissante de l'intensité pour les faibles intensités ($I < 0,8 \text{ MW/cm}^2$) dans le cas du point hors accord de phase. Par conséquent, un laser qui démarrerait en continu n'aurait pas tendance à favoriser le régime impulsionnel, puisqu'une légère augmentation de son intensité se traduirait par une augmentation des pertes de la cavité. Il est donc à première vue nécessaire d'envisager des effets de modulation supplémentaires en dehors de la pure modulation d'amplitude par réflectivité non linéaire. Nous verrons dans le Chap. 4.3 qu'en dehors de l'accord de phase exact, le miroir non linéaire peut également jouer le rôle de modulateur de phase. La combinaison de la modulation de phase et de la modulation d'amplitude permet alors d'envisager un mécanisme de verrouillage de modes entièrement passif.

Importance de la puissance moyenne

Les figures de réflectivité en fonction de l'intensité indiquent que les meilleurs facteurs de rétrécissement correspondent en fait à des zones dans l'espace $\{\frac{\Delta k L}{2}, \Delta\varphi\}$ où la réflectivité non linéaire varie fortement en fonction de l'intensité, tout en opérant une sélection favorable à l'intensité crête par rapport aux intensités inférieures. Ces deux conditions doivent en effet être réunies : par exemple dans la zone située entre $I = 10 \text{ MW/cm}^2$ et $I = 40 \text{ MW/cm}^2$ sur la courbe de la figure Fig. 4.5, la réflectivité varie rapidement avec l'intensité, mais elle est défavorable aux fortes intensités. Ainsi, en injectant dans le miroir non linéaire une impulsion d'intensité crête $I = 10 \text{ MW/cm}^2$, la crête de l'impulsion sera plus atténuée que les bords, et il en resultera non pas un effet de compression de l'impulsion mais un effet d'élargissement. Cette conséquence est illustrées sur la figure Fig. 4.6, où les cartographies du rétrécissement de l'impulsion pour

L'icrête égale à 10 MW/cm² et 2,5 MW/cm² sont comparées. Sur ces figures, il est clair que le point $\{\frac{\Delta k L}{2\pi}; \frac{\Delta \varphi}{\pi}\} = \{-0,18; 1,4\}$, représenté en mauve, permet à une impulsion dont l'intensité crête vaut 2,5 MW/cm² de se rétrécir après réflexion, tandis que pour une impulsion d'intensité crête égale à 10 MW/cm², ce même point de fonctionnement sort complètement des zones de compression.

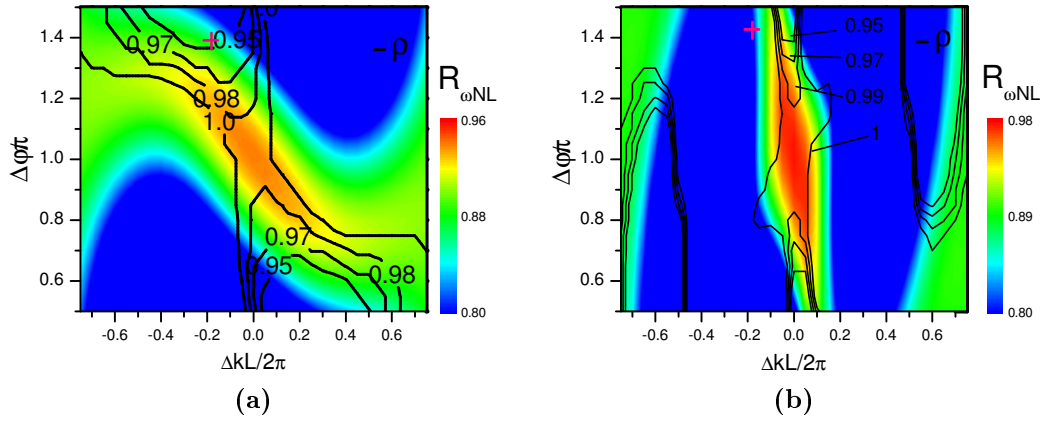


FIGURE 4.6: Réflectivité non linéaire et facteur de rétrécissement pour différentes intensités. Le point indiqué par une croix rose correspond au point particulier étudié en $\{\frac{\Delta k L}{2\pi}; \frac{\Delta \varphi}{\pi}\} = \{-0.18, 1.4\}$. (a) Icrête = 2,5 MW /cm². (b) Icrête = 10 MW /cm².

Toutes ces informations sur la réflectivité non linéaire convergent donc vers le fait que le point de fonctionnement effectif du verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr²⁺ peut se situer en dehors de l'accord de phase parfait $\{\frac{\Delta k L}{2\pi}; \frac{\Delta \varphi}{\pi}\} = \{-0; 1\}$. En effet, il existe pour le laser une certaine tolérance sur le réglage du miroir non linéaire vis-à-vis à la fois des pertes, et de la fonction de transmission. Cette propriété est illustrée par les cartographies de réflectivité non linéaire présentées dans ce chapitre. Ces cartes montrent qu'à proximité de l'accord de phase, il existe des zones où la réflectivité moyenne peut être supérieure à R_{ω} , et où le facteur de rétrécissement est inférieur à 1. Cette conclusion est cohérente avec le fait que le verrouillage de modes a pu être mesuré dans une certaine acceptation de réglage du désaccord de phase Δk , et du décalage de phase non linéaire $\Delta \varphi$. Enfin, la possibilité d'être réglé légèrement à côté de l'accord de phase parfait reste cohérent avec la périodicité du régime impulsionnel selon la position de la lame de phase constatée expérimentalement (Chap. 3.6), puisque les motifs de réflectivité et les lignes de niveau du facteur de rétrécissement sont périodiques avec $\Delta \varphi$.

4.2.2 Modulation de phase par non-linéarités en cascade dans un cristal doubleur

Origine physique des non-linéarités en cascade

Dans le cas général d'un processus de doublage de fréquence où il existe un désaccord de phase entre les ondes à ω et 2ω , l'onde fondamentale subit une succession de conversions/reconversions, d'où l'appellation de non-linéarités en cascades⁷, au cours de sa propagation à l'intérieur du cristal doubleur (voir Fig. 4.7), dont l'efficacité dépend directement de la valeur de Δk . Cette succession de conversions / reconversions imprime sur le champ fondamental un déphasage qui s'accumule au fur et à mesure de la propagation dans le cristal [Sal99, Ste96]. Ainsi, en simple passage, l'efficacité de conversion diminue et l'onde fondamentale subit un déphasage supplémentaire noté $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ (pour "nonlinear phase shift") qui dépend directement de Δk et de l'intensité laser. L'origine et les conséquences de ce déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ seront détaillées dans le paragraphe suivant.

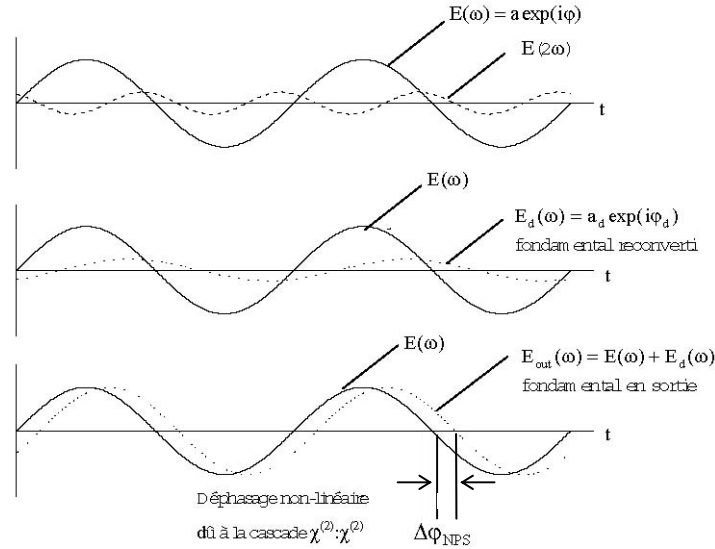


FIGURE 4.7: Origine physique du déphasage non linéaire d'après [Sal99]. L'onde à ω issue de la reconversion (deuxième ligne) est déphasée par rapport à l'onde d'origine. L'onde totale a donc un déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$.

En double passage, le désaccord de phase introduit de la même manière un déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ sur l'onde fondamentale à l'aller et au retour, mais le déphasage global cumulé va en plus dépendre du déphasage fixe introduit entre l'aller et le retour. Dans cette situation

7. Derrière cette dénomination se trouve un phénomène connu depuis longtemps [Arm62b], mais dont les propriétés n'ont été mises en évidences et appliquées au verrouillage de modes laser que plus récemment [Ste96, Sal99, DeS92].

le miroir non linéaire se comporte à la fois comme un modulateur d'intensité, l'intensité du fondamental réfléchi dépend des paramètres Δk , $\Delta\varphi$, I_{laser} , et de la réflectivité du miroir de retour R_ω , et comme un modulateur de phase, par le biais de la phase $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ imprimée sur l'onde fondamentale. Comme nous le verrons par la suite, le déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ dépend directement de l'intensité lumineuse. Par conséquent, un faisceau gaussien va subir un déphasage inhomogène, plus important au centre du faisceau qu'à la périphérie, qui se traduira par un effet d'autofocalisation similaire à de l'effet Kerr optique (voir Annexe. B). Le miroir de Stankov correspondant à $\{\Delta k; \Delta\varphi\} = \{0; \pm\pi\}$ est donc un cas particulier dans un espace de paramètres où peuvent a priori exister différents régimes de fonctionnement du verrouillage de modes du laser.

Analogue avec l'effet Kerr optique

Dans un premier temps, nous considérons la modulation de phase introduite par un cristal doubleur de fréquence réglé hors accord de phase en simple passage. À partir des équations de propagation d'une onde plane monochromatique dans un cristal doubleur hors accord de phase, il est possible de dégager une expression approchée du décalage de phase de l'onde fondamentale. Moyennant une hypothèse de faible dépeuplement de l'onde fondamentale⁸, l'expression du déphasage induite par cascading est, d'après [DeS92] :

$$\Delta\phi_{\text{NPS}} \simeq \frac{\Delta k L_{\text{cri}}}{2} \left\{ 1 - [1 + (2\Gamma/\Delta k)^2]^{1/2} \right\} \quad (4.1)$$

$E_1(L_{\text{cri}}) = |E_0| \times \exp(-i\Delta\phi_{\text{NPS}}(L_{\text{cri}}))$ est le champ fondamental en sortie de cristal, E_0 est le champ fondamental incident, et $\Gamma = \frac{\omega d_{\text{eff}} |E_0|}{c \sqrt{n_{2\omega} n_\omega}}$. En supposant de plus que le désaccord de phase est important ($\Gamma \ll |\Delta k|$), le déphasage non linéaire devient :

$$\Delta\phi_{\text{NPS}} \simeq -\frac{\Gamma^2 L_{\text{cri}}^2}{\Delta k L_{\text{cri}}} \quad (4.2)$$

D'après ces expressions, le déphasage non linéaire peut physiquement s'interpréter de la manière suivante : le fondamental est converti en second harmonique qui est lui-même reconverti en fondamental sous l'effet du désaccord de phase; la phase $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ est donc proportionnelle à Δk . Mais l'efficacité de conversion est proportionnelle à $\frac{\Gamma^2}{\Delta k^2}$, de sorte qu'il en résulte un déphasage proportionnel à $\frac{1}{\Delta k}$. En outre, dans l'hypothèse $\Gamma \ll |\Delta k|$, le champ en sortie de cristal peut s'écrire sous la forme :

8. En dehors de l'acceptance de doublage, le rendement de conversion est faible, ce qui justifie l'hypothèse.

$$E_1(L_{\text{cri}}) = |E_0| \times \exp(-i \frac{\omega}{c} \cdot n_{2\text{eff}} \cdot I_0 \cdot L_{\text{cri}}), \quad (4.3)$$

avec

$$n_{2\text{eff}} = -\frac{4\pi}{c\varepsilon_0} \frac{L}{\lambda} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_{2\omega} n_{\omega}^2} \frac{1}{\Delta k L} \quad (4.4)$$

Tout se passe donc comme si l'onde fondamentale avait traversé un milieu supplémentaire d'épaisseur optique $n_{2\text{eff}} \cdot I_0 \cdot L_{\text{cri}}$. Cet effet est similaire à de l'effet Kerr optique puisque le chemin optique traversé dépend de l'intensité, et l'indice effectif $n_{2\text{eff}}$ est l'analogue de l'indice non linéaire n_2 introduit dans le Chap. B.1, Éq B.7. Ainsi, un faisceau gaussien traversera une épaisseur optique plus importante en son centre qu'en périphérie, et va donc subir un effet d'autofocalisation analogue à la focalisation par lentille de Kerr. Dans le cas de l'effet Kerr optique, l'indice non linéaire responsable de l'autofocalisation dépend uniquement de la non-linéarité d'ordre trois $\chi^{(3)}$ du matériau. Dans le cas du $\chi^{(2)}$ en cascade, l'indice non linéaire équivalent dépend d'un grand nombre de paramètres, et notamment du désaccord de phase, il est donc possible d'obtenir un effet équivalent Kerr largement variable en ajustant la valeur de Δk . Il est même possible d'envisager des effets de défocalisation lorsque Δk prend des valeurs positives, puisque $n_{2\text{eff}}$ prend alors des valeurs négatives. Par ailleurs, la valeur absolue de $n_{2\text{eff}}$ permet d'atteindre des indices non linéaires souvent bien plus importants que par l'effet Kerr optique. D'après la formule approchée Éq. 4.4, qui est valable pour les grandes valeurs de $\Delta k L$, pour notre cristal de PPLN et un désaccord de phase $\Delta k L = -10$ rad, la valeur de l'indice non linéaire équivalent est de l'ordre de $10^{-12} \text{ cm}^2/\text{W}$, c'est-à-dire deux ordres de grandeur supérieure à celle de l'indice non linéaire du cristal laser de ZnSe:Cr²⁺ (voir Annexe.B). Cet effet d'autofocalisation paramétrable par l'intermédiaire du désaccord de phase est potentiellement très intéressant puisqu'il suffit d'adapter les techniques de KLM décrites au chapitre Chap. B.3, pour réaliser le verrouillage des modes d'un laser [ZR98].

4.2.3 Le miroir non linéaire en tant que modulateur de phase

Depuis leur mise en évidence expérimentale [DeS92], les non-linéarités en cascade sont la plupart du temps considérées dans des configurations où le doubleur est utilisé en simple passage [Ass93]. Dans ce cas le décalage non linéaire de la phase du fondamental dépend uniquement du désaccord de phase et de l'intensité. Cependant, dans une configuration en double passage, le phénomène de non-linéarités en cascade existe toujours, et peut même être exalté lorsque le

second harmonique est renvoyé avec le fondamental⁹. Dans ce cas, le déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ après l'aller-retour dépend du désaccord de phase Δk , de l'intensité du fondamental, mais aussi du déphasage $\Delta\varphi$ de la phase non linéaire au retour [Ste96]. Dans cette partie, nous proposons de développer en détail la fonction de modulation de phase dans un cristal doubleur utilisé en double passage en fonction des paramètres $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$ du miroir non linéaire, lorsqu'il y a à la fois rétro-action du fondamental et du second harmonique.

Étude paramétrique théorique de la phase non linéaire induite en double passage par les non linéarités $\chi^{(2)}$ en cascade

Nous reprenons exactement les simulations de réflectivité non linéaire présentées dans le Chap. 4.2.1 avec les paramètres du Tab. 4.1, en relevant le déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ imprimé sur l'onde fondamentale après réflexion en fonction des paramètres de réglage $\{\Delta k, \Delta\varphi\}$ du miroir non linéaire. La figure Fig. 4.8a montre le décalage de phase accumulée après réflexion sur le miroir non linéaire par une impulsion d'intensité crête $I_{\text{crête}} = 2,5 \text{ MW/cm}^2$ en fonction des paramètres Δk et $\Delta\varphi$. À proximité de l'accord de phase exact, le déphasage non linéaire varie le plus fortement, et dépend largement du paramètre de phase au retour $\Delta\varphi$. Au point de fonctionnement Stankov, le décalage de phase non linéaire est nul. En dehors de ce point, le décalage de phase varie rapidement et atteint des valeurs maximales importantes. Dans le cas décrit ici, $I_{\text{crête}} = 2,5 \text{ MW/cm}^2$, on atteint environ $|\Delta\phi_{\text{NPS}}|_{\text{max}} \sim \frac{\pi}{3}$. Il est également à noter que la structure de la cartographie est périodique avec $\Delta\varphi$ lorsque Δk est proche de 0.

9. En supposant que seul le fondamental est renvoyé dans le doubleur, alors le déphasage non linéaire sur l'aller-retour vaut environ le double du déphasage non linéaire sur un aller simple. Lorsqu'une rétro-action du second harmonique est ajoutée, les décalages de phase non linéaire peuvent atteindre des valeurs encore supérieures pour certaines valeurs de $\Delta\varphi$. Dans l'exemple développé au paragraphe suivant, il est possible d'obtenir jusqu'à 4 fois le déphasage non linéaire en simple passage.

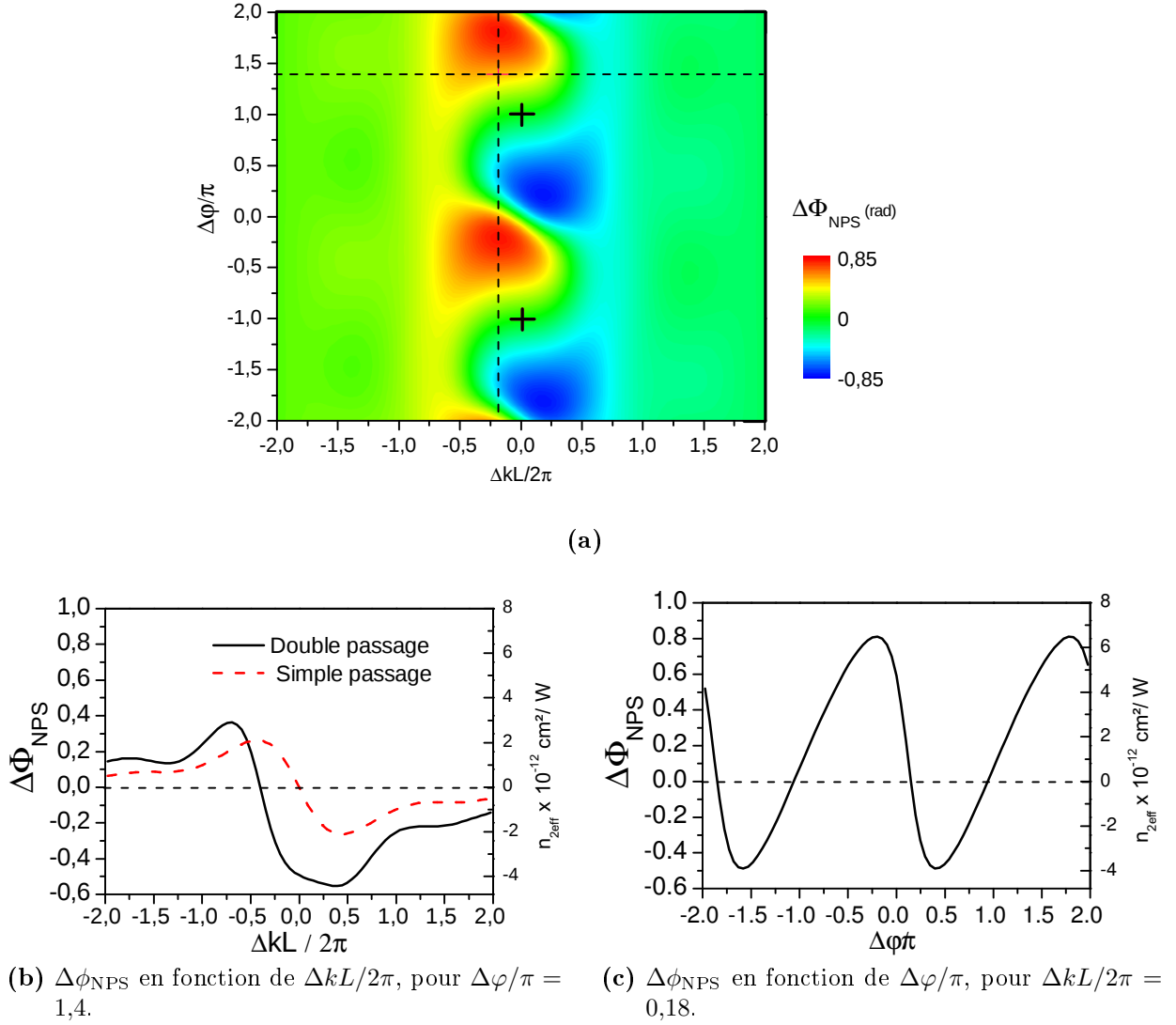


FIGURE 4.8: $\Delta\phi_{NPS}$ en fonction du désaccord de phase Δk et du déphasage au retour $\Delta\varphi$ en un point particulier. (a) Décalage de phase non linéaire en fonction de Δk et $\Delta\varphi$ pour $I_{crête} = 2,5 \text{ MW/cm}^2$. Les lignes pointillées localisent le point $\left\{\frac{\Delta kL}{2\pi}, \frac{\Delta\varphi}{\pi}\right\} = \{0,18; 0,6\}$. Les croix indiquent les positions du point Stankov. (b) $\Delta\phi_{NPS}$ en fonction de $\Delta kL/2\pi$, pour $\Delta\varphi/\pi = 1,4$. (c) $\Delta\phi_{NPS}$ en fonction de $\Delta\varphi/\pi$, pour $\Delta kL/2\pi = 0,18$.

Plaçons nous de nouveau au point particulier $\left\{\frac{\Delta kL}{2\pi}, \frac{\Delta\varphi}{\pi}\right\} = \{-0,18; 1,4\}$ étudié au Chap. 4.2.1. Les Fig. 4.8b, et Fig. 4.8c montrent que le décalage de phase non linéaire varie fortement avec les paramètres Δk et $\Delta\varphi$. De ces graphes nous pouvons tirer plusieurs informations. La première est que le décalage de phase $\Delta\phi_{NPS}$ dépend fortement du déphasage au retour entre le fondamental et le second harmonique $\Delta\varphi$ lorsque le désaccord de phase est proche de 0. Typiquement lorsque $\Delta kL/2$ est compris entre $-\pi$ et $+\pi$, $\Delta\phi_{NPS}$ est une fonction périodique de $\Delta\varphi$ à Δk

fixé (voir Fig. 4.8c). Dans cette zone les non-linéarités en cascades sont donc modulables par simple variation du paramètre $\Delta\varphi$ et peuvent donner lieu à des indices effectifs très importants. Par exemple, pour la ligne $\frac{\Delta k L}{2\pi} = -0,18$, le déphasage induit a pour valeur maximale $\Delta\phi_{NPS \max} = 0,81$ rad, ce qui correspond à un indice non linéaire effectif $n_{2\text{eff}} = 6,5 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{W}$, plus de 60 fois l'indice non linéaire du ZnSe:Cr^{2+} . En revanche, pour les désaccords de phase important, le décalage de phase est quasiment invariant avec $\Delta\varphi$, et ne dépend plus que de Δk , pour atteindre des valeurs analogues à ce qui serait obtenu en simple passage dans le cristal doubleur (Fig. 4.8b).

Dans le cadre du verrouillage de modes d'un laser, plusieurs conclusions peuvent être tirées :

- Dans l'hypothèse où seule la possibilité de verrouiller les modes par effet Kerr équivalent est considérée, les plus forts effets d'autofocalisation peuvent être obtenues pour Δk proche de 0. Ceci est vrai en simple passage, mais également en double passage. En double passage, l'effet Kerr équivalent peut même être fortement exalté si le second harmonique est réutilisé en même temps que l'onde fondamentale, et pour un choix judicieux des paramètres Δk et $\Delta\varphi$. Dans ce cas de figure, les plus fortes non-linéarités en cascade se situent dans une gamme de paramètres $\{\Delta k; \Delta\varphi\}$ qui est la même que pour le verrouillage de modes par modulation en amplitude de la réflectivité non linéaire, là où le facteur de rétrécissement est inférieur à 1 Fig. 4.4b.
- Pour les valeurs de Δk importantes, le déphasage au retour n'a quasiment plus d'effet sur le déphasage non linéaire, et c'est principalement le désaccord de phase qui détermine l'effet d'autofocalisation puisque l'indice $n_{2\text{eff}}$ varie alors linéairement en fonction de $1/\Delta k$ de manière équivalente à la configuration simple passage (Éq. 4.4). Dans cette situation, pour une valeur donnée de Δk , l'autofocalisation dépend principalement de l'intensité crête des impulsions laser; pour les grandes valeurs de Δk , $\Delta\phi_{NPS}$ devient même une fonction linéaire de l'intensité (voir Éq. 4.2). Cette situation est donc très proche du KLM, puisque la phase relative des ondes n'a quasiment plus d'importance, et seule l'intensité crête compte. Ce cas de figure permet d'envisager la réalisation d'un laser à modes verrouillés en phase sans la moindre gestion du second harmonique, en utilisant uniquement l'effet Kerr équivalent obtenu pour les grandes valeurs de Δk , et pour les fortes intensités.

4.3 Miroir non linéaire généralisé - Bilan

Si nous considérons l'ensemble des possibilités de verrouillage de modes par l'utilisation d'un miroir non linéaire, c'est-à-dire si nous tenons compte à la fois de l'effet de réflectivité non linéaire en amplitude et de l'effet équivalent Kerr, il y a un très grand nombre de configurations, et potentiellement des fonctionnements hybrides. Dans cette partie, nous proposons un récapitulatif de ces configurations, et proposons les hypothèses les plus probables permettant d'interpréter les phénomènes observés expérimentalement et présentés en introduction de ce chapitre.

Dans un premier temps, nous avons passé en revue les différentes configurations rencontrées dans la littérature sur le verrouillage de modes par miroir non linéaire. Nous verrons que les effets de modulation d'amplitude ou de phase sont considérés de manière indépendante. Dans un second temps, nous revenons sur la notion de miroir non linéaire généralisé en nous basant sur l'analyse du cas expérimental de notre laser ZnSe:Cr^{2+} , et des simulations de réflectivité non linéaire que nous avons exposées précédemment.

4.3.1 Étude bibliographique

Le Tab. 4.2 regroupe l'ensemble des conditions d'utilisation d'un doubleur intracavité pour le verrouillage de modes. Dans l'immense majorité des cas, le doubleur est utilisé en double passage dans une cavité laser linéaire. Nous avons donc réalisé cette classification en distinguant les conditions de la rétro-action, c'est-à-dire la réflectivité aux différentes longueur d'onde du miroir de renvoi, et en distinguant les conditions d'accord de phase selon les paramètres Δk , et $\Delta\varphi$. La majorité des techniques présentées reposent sur de la modulation d'amplitude pure (miroir de Stankov), ou sur de la modulation par effet Kerr équivalent (Cascading). Nous avons également inclu quelques références concernant le verrouillage de modes par rotation de polarisation. Cette technique, bien que différente du miroir non linéaire, repose sur un principe similaire d'introduction intracavité d'un doubleur de fréquence induisant des pertes non linéaires avec l'intensité du laser¹⁰.

Plusieurs remarques concernant ce tableau :

1. La valeur optimale de $\Delta\varphi$ dans les cas différents du miroir de Stankov varie d'une expérience à l'autre d'où l'indication générale $|\Delta\varphi| \in [0, 2\pi]$
2. Seuls les travaux relatifs au verrouillage de modes de laser ont été pris en compte dans ce tableau. En réalité de nombreuses autres applications du miroir non linéaire, ou plus généralement du doublage intracavité, et des non linéarités en cascades sont envisageables,

10. Cette technique nécessite un accord de phase de type I ou II, et ne peut donc s'appliquer à notre situation puisque nous travaillons en type 0.

	$\Delta kL = 0$		$ \Delta kL > 0$
	$ \Delta\varphi = \pi$	$ \Delta\varphi \in [0,2\pi]$	$ \Delta\varphi \in [0,2\pi]$
$R_\omega = 1$ $R_{2\omega} = 1$	- -		Cascading [Cer95b, Cer95a, ZR98, Toc98]
$R_\omega = 1$ $R_{2\omega} = 0$	Rotation de polarisation [Cou03, Lou01b]		Rotation de polarisation [Sal99, Lou01a] Cascading [Ili10, Hol05, Sch06] Cascading + APM [Car90]
$R_\omega < 1$ $R_{2\omega} = 0$	Rotation de polarisation [Lou01a]		
$R_\omega < 1$ $R_{2\omega} = 1$	Stankov [Bar89b, Bar89a, Bar91, Buc91a, Buc91b, Buc94, Dan94, Ili10, Cer95a, Dat04b, Dat04a, Ham91, Sta88b, Sta88a, Sta89a, Sta89b, Sta89c, Sta91b, Sta91c, Sta91d, Sta91a, Sta92, Sta93, Tzo91, Sai03, Man99, Tho10, Lin05, Agn97, Agn99]	Modulation de phase [Ste96, Zha92]	Stankov optimisé [Che98, Agn99]

TABLE 4.2: Regroupement des principaux cas de figure rencontrés dans la littérature dans l'utilisation du miroir non linéaire ou tout dispositif semblable. La présence d'une même référence dans plusieurs cases signifie que différents cas sont traités, envisagés, ou simplement suggérés par les auteurs.

comme notamment le développement d'interrupteurs optique [Ass93], ou plus simplement l'optimisation de SHG intracavité en régime continu [Pea99], ou encore la stabilisation de l'intensité intracavité afin d'éviter les oscillations de relaxation du laser [Agn04, Sto10].

3. Le miroir de Stankov est largement majoritaire dans ce tableau. D'abord pour des raisons historiques, le cascading ayant été mis en évidence expérimentalement postérieurement aux travaux de Stankov : [DeS92]. Et ensuite pour des raisons expérimentales, car comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la limite entre la modulation d'amplitude par réflectivité non linéaire à $\Delta k L = 0$ et $|\Delta\varphi| = \pi$ et la modulation d'amplitude par cascading n'est pas nettement marquée; les deux effets pouvant éventuellement contribuer en même temps au verrouillage de modes. Ce phénomène est bien illustré dans les récents travaux d'Iliev [Ili10] dans lesquels les deux effets sont identifiés. En définitive, il est possible d'attribuer le verrouillage de modes au cascading seul lorsque $R_\omega = R_{2\omega} = 1$ ou lorsque $R_\omega \leq 1$ et $R_{2\omega} = 0$. En revanche, en configuration Stankov, à moins de connaître précisément les valeurs de Δk , $\Delta\varphi$, et $I_{\text{crête}}$, et de coupler les valeurs expérimentales avec un calcul quantitatif de la réflectivité, il est difficile de conclure a priori. Ceci semble être notre cas.
4. L'utilisation d'un coupleur totalement réfléchissant aux deux longueurs d'onde permet d'obtenir un effet Kerr équivalent maximal, puisqu'il y a exaltation du déphasage non linéaire grâce au retour du second harmonique, et que les pertes en intensité sont nulles pour le fondamental.
5. Certains travaux comportent des particularités tout à fait notables : dans [ZR98] l'effet envisagé est le $\chi^{(2)}$ cascading puisque $R_\omega = R_{2\omega} = 1$. Cependant le réglage du cristal doubleur se fait d'abord par maximisation de la SHG en double passage, puis par l'adaptation de la phase au retour $\Delta\varphi$ afin d'obtenir le verrouillage de modes. Cette procédure de réglage est identique à celle envisagée pour notre laser ZnSe:Cr²⁺. La différence réside dans le fait que le faisceau laser dans [ZR98] est très fortement focalisé dans le cristal doubleur, de sorte que l'optimum de SHG se situe non pas en $\Delta k = 0$ mais légèrement en dehors, ce qui est donc bien favorable à du $\chi^{(2)}$ cascading. Le cas [Car90] dénommé "cascading + APM" (APM pour Additive Pulse Mode-locking) est également particulier. Dans ce travail, l'impulsion laser est séparée puis recombinaison par un système interférométrique. Les deux impulsions, après séparation, traversent de manière contra-propagative un cristal doubleur hors accord de phase pour acquérir un déphasage dépendant de l'intensité, puis sont recombinaison en sortie d'interféromètre. Le rétrécissement de l'impulsion se fait alors par recombinaison interférométrique constructive au centre de l'impulsion et destructrice aux pieds, d'où l'appellation APM.
6. Comme reporté dans le tableau, le verrouillage de modes par modulation de phase pure

a été envisagé, de manière théorique dans les références citées, mais elle suppose que le cristal non linéaire soit hors accord de phase. La modulation de phase s'accompagne donc nécessairement d'un effet Kerr équivalent, il n'est donc a priori pas possible de dissocier les deux effets (voir [Zha92]).

7. Le “Stankov optimisé” désigne les travaux dans lesquels il a été constaté que le meilleur fonctionnement du verrouillage de modes se situait légèrement en dehors du point Stankov, sans pour autant mentionner la possible influence du $\chi^{(2)}$ cascading qui peut apparaître dans de telles conditions.

En définitive, dans la plupart des travaux sur le miroir non linéaire, la modulation d'amplitude par réflectivité non linéaire et par effet Kerr équivalent sont généralement dissociés. De plus, en dehors du cas $R_\omega = R_{2\omega} = 1$ où seules les non-linéarités en cascade peuvent être considérées, les cas où il y a réflexion du second harmonique sont très largement considérés comme uniquement favorable à la modulation d'amplitude par miroir de Stankov ou miroir de Stankov optimisé alors qu'il s'agit d'une situation également favorable aux non-linéarités en cascade. Seuls quelques travaux proposent une interprétation plus nuancée du mécanisme de verrouillage de modes. C'est notamment le cas des travaux d'Iliev [Ili10], dans lesquels l'expérience montre qu'un système initialement dimensionné pour faire du verrouillage de modes par miroir de Stankov s'avère être plus efficace en dehors de l'accord de phase¹¹, mais là aussi le verrouillage de modes par miroir de Stankov et par non-linéarités en cascade sont considérés séparément¹².

4.3.2 Interprétation des observations expérimentales sur le laser ZnSe:Cr²⁺

En conséquence de ce que nous venons de voir, il nous paraît donc intéressant de faire la proposition que le verrouillage de modes par miroir non linéaire le plus efficace puisse résulter d'une combinaison constructive de deux mécanismes passifs lorsque le cristal doubleur est réglé hors accord de phase : la modulation d'amplitude par réflectivité non linéaire et la modulation d'amplitude par effet Kerr équivalent. Cette assertion est cohérente avec nos observations expérimentales, et avec les simulations décrites tout au long de ce chapitre.

11. La durée des impulsions augmente lorsque le désaccord de phase s'approche de 0.

12. Une méthode de discrimination des deux effets consistant à remplacer le miroir de renvoi par un miroir transparent au second harmonique, ce qui supprime la rétro-action à 2ω . Comme le laser est toujours à modes verrouillés dans ces conditions, l'effet Kerr équivalent est considéré comme prépondérant. La combinaison de la modulation d'amplitude par la réflectivité et par effet Kerr n'est pas envisagée.

Périodicité du verrouillage de modes avec la lame de phase et puissance à 2ω .

Si le cristal doubleur est réglé proche de l'accord de phase ($\Delta kL/2$ compris entre $-\pi$ et π), la réflectivité des impulsions conserve des propriétés non linéaires avec l'intensité pour une certaine gamme de valeurs du déphasage $\Delta\varphi$, ce qui permet de contribuer au rétrécissement des impulsions sans être nécessairement au point Stankov. De plus, dans ce même intervalle de désaccord de phase, la rétroaction du miroir de renvoi à 2ω donne lieu à une exaltation du déphasage $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ du fondamental par cascading. En supposant que les deux effets participent au verrouillage de modes, il est raisonnable de s'attendre à ce que le réglage de l'accord de phase et de la phase non linéaire au retour admettent une certaine tolérance. En outre, si le point de fonctionnement n'est pas exactement le point Stankov, alors le second harmonique n'est pas intégralement reconverti au retour dans le cristal non linéaire. Enfin, dans l'intervalle de désaccord de phase considéré, les simulations montrent que la réflectivité non linéaire et le déphasage non linéaire $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ sont périodiques en fonction de $\Delta\varphi$. Ces trois conséquences sont cohérentes avec l'observation expérimentale, et la mesure de la puissance à 2ω mesurée en double passage (Fig. 4.1).

Ordre de grandeur de la modulation d'amplitude par effet Kerr équivalent dans le laser ZnSe:Cr^{2+} à modes verrouillés par miroir non linéaire.

Afin d'étayer la possibilité de moduler l'amplitude laser par effet Kerr équivalent dans le PPLN, nous avons calculé les variations théoriques du rayon au waist laser au centre du cristal de ZnSe:Cr^{2+} . La modulation est le résultat de la variation du recouvrement entre le mode laser et le mode de pompe¹³. Le calcul rigoureux des pertes non linéaires résultant des variations du diamètre d'un faisceau laser dans une fonction de gain non uniforme¹⁴ est un problème complexe [Her94]. Notre objectif est ici de donner quelques ordres de grandeur significatifs. Nous faisons donc un certain nombre d'hypothèses simplificatrices. Nous allons tout d'abord supposer que la répartition spatiale de l'intensité de pompe (et donc du gain) est uniforme à l'intérieur d'un cylindre de section $S_{\text{pompe}} = \frac{\pi}{2}w_{\text{pompe}}^0$, où w_{pompe}^0 est le rayon à $1/e^2$ au waist du faisceau pompe dans le cristal laser. Nous supposons que la répartition de l'intensité est gaussienne, mais nous négligeons la diffraction à l'intérieur du cristal. En d'autres termes, nous négligeons l'épaisseur du cristal laser, ainsi que la non-uniformité du gain, et supposons que la modulation résulte du recouvrement entre le mode laser et un diaphragme circulaire qui aurait pour section S_{pompe} . Dans cette situation, la fonction de modulation d'amplitude, pour de faibles variations transverses du faisceau laser au niveau du diaphragme, est donnée par la

13. La cavité ne contient pas d'élément diaphragmant : les diamètres des miroirs sont très supérieurs au diamètre du faisceau laser, et le cristal de PPLN est suffisamment épais pour ne pas introduire d'effet d'obturation.

14. L'intensité de pompe étant répartie dans un mode de propagation gaussien.

fonction [Geo92, Her94]:

$$T(\Delta w_{\text{laser}}) = 1 - q_l - q_{nl} \frac{\Delta w_{\text{laser}}}{w_{\text{laser}}^0}$$

où w_{laser}^0 est le rayon du mode laser lorsque l'effet Kerr est nul, Δw_{laser} est la variation du rayon à $1/e^2$ du mode laser sur le diaphragme lorsque l'effet Kerr est non nul, q_l et q_{nl} les facteurs de perte linéaire et non linéaire respectivement. Pour une ouverture circulaire, les facteurs de perte ont pour expression :

$$q_l = \exp \left[-2 \left(\frac{w_{\text{pompe}}}{w_{\text{laser}}^0} \right)^2 \right] \quad (4.5)$$

$$q_{nl} = 4 \left(\frac{w_{\text{pompe}}}{w_{\text{laser}}^0} \right)^2 \exp \left[-2 \left(\frac{w_{\text{pompe}}}{w_{\text{laser}}^0} \right)^2 \right] \quad (4.6)$$

Ensuite nous calculons les variations de mode Δw_{laser} en fonction de l'effet Kerr équivalent dans le cristal de PPLN. Pour cela, nous calculons par la méthode des matrices ABCD (Annexe. A) le mode gaussien théorique résonnant dans une cavité dont les propriétés géométriques sont proches de notre situation expérimentale (Fig. 4.9) et résumés dans le Tab. 4.3. Pour ce calcul, nous supposons que la cavité est linéaire, l'astigmatisme des miroirs concaves inclinés n'est donc pas pris en compte. Le ZnSe:Cr²⁺ est décrit comme un milieu épais présentant une lentille thermique, de focale équivalente d'environ 1,7 cm. Les paramètres géométriques de la cavités sont tels que le rayon à $1/e^2$ du mode laser fondamental au waist est situé au centre du cristal laser lorsque l'effet Kerr équivalent dans le PPLN est nul¹⁵, et lorsque le paramètre de réglage Δz est également nul. Nous relevons ensuite la taille du mode au centre du cristal pour différentes lentilles de Kerr équivalentes. Pour une lentille de Kerr donnée, la puissance de la focale de Kerr équivalente dépend directement de l'intensité lumineuse (voir Annexe. B sur l'effet Kerr), il est donc possible de remonter à une variation de taille de mode en fonction de l'intensité lumineuse¹⁶. Pour cette dernière étape de calcul, l'indice non linéaire équivalent dans le PPLN est choisi égal à $n_{2\text{eq PPLN}} = -0,4 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2/\text{W}$. Du fait des conjugaisons imposées par la géométrie de la cavité, il faut en réalité de l'auto-défocalisation dans le PPLN pour obtenir de la focalisation dans le milieu laser, d'où un indice non linéaire équivalent négatif¹⁷.

15. La position du waist est légèrement modifiée lorsque l'effet Kerr varie. Les simulations montrent que le waist se décale au maximum de 2,2 mm par rapport au centre du cristal.

16. L'intensité est supposée uniforme sur une section $S_{\text{PPLN}} = \frac{\pi}{2} w_{\text{PPLN}}^2$.

17. Nous avons vu au Chap. 4.2.3 que l'indice non linéaire pouvait être négatif du fait de la dépendance du déphasage non linéaire avec le signe du désaccord de phase dans le cristal non linéaire. Le signe de l'indice non linéaire est opposé au signe du désaccord de phase Δk .

La puissance critique d'autofocalisation pour un indice non linéaire équivalent de l'ordre de $10^{-16} \text{ m}^2/\text{W}$ est de l'ordre de $5 \text{ MW}/\text{cm}^2$, ce sera donc la gamme de travail¹⁸.

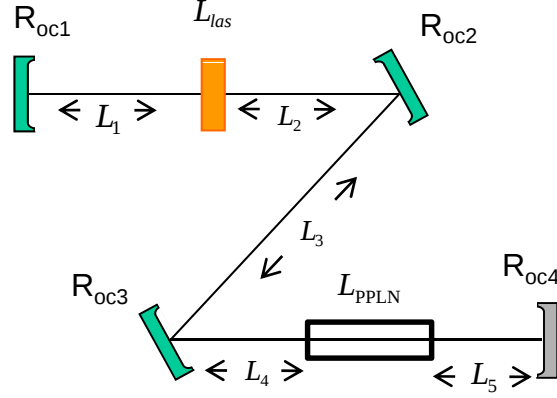


FIGURE 4.9: Paramètres de la cavité laser ZnSe:Cr^{2+} .

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
L_1	$48 \text{ mm} + \Delta z/2$	R_{oc1}	50 mm
L_2	$60 \text{ mm} + \Delta z/2$	$R_{oc2} = R_{oc3} = R_{oc4}$	100 mm
L_3	390 mm	L_{laser}	5 mm
L_4	60 mm	L_{PPLN}	20 mm
L_5	95 mm	$n_{2\text{eq PPLN}}$	$-4.10^{-16} \text{ m}^2/\text{W}$

TABLE 4.3: Paramètres de calcul du mode laser au centre du cristal de ZnSe:Cr^{2+} . Δz est un paramètre variable qui permet d'évaluer les variations de la taille du waist pour différents réglages de cavité.

Dans un premier temps, nous évaluons la taille du faisceau gaussien au centre du cristal laser en fonction du paramètre de réglage de la cavité Δz , et pour différentes lentilles de Kerr équivalentes (Fig. 4.10a). La taille du spot dans le cristal varie rapidement avec Δz . Cet effet s'explique en grande partie par la présence de la lentille thermique qui rend la taille du faisceau très sensible aux tirages Δz des miroirs qui entourent le cristal laser. De ce fait, lorsque Δz est différent de 0, la position du waist n'est plus exactement au centre du cristal.

À partir de ces données, nous choisissons de calculer la fonction de modulation autour de $\Delta z = -1,33 \text{ mm}$, là où les variations du rayon du spot laser selon l'intensité encadrent

18. Cet ordre de grandeur correspond à la gamme de puissance accessible avec notre laser ZnSe:Cr^{2+} . Nous rappelons que les impulsions sont typiquement de l'ordre de 50 ps, pour une puissance moyenne intracavité de l'ordre de quelques watts, une cadence de 220 MHz, et un rayon au waist dans le PPLN de l'ordre de 100 μm , ce qui donne une intensité crête de l'ordre de $1 \text{ MW}/\text{cm}^2$ dans le cristal.

la taille du spot de pompe ($w_{\text{pompe}} = 65 \mu\text{m}$), c'est-à-dire là où la modulation d'amplitude est potentiellement la plus profonde. Un paramètre caractéristique intéressant est la variation relative du spot laser au centre du cristal pour les faibles puissance : $\delta = \left(\frac{1}{w_{\text{laser}}} \frac{dw_{\text{laser}}}{dp} \right)_{p=0}$ (voir Annexe. B). En prenant pour p la définition normalisée suivante : $p = P_{\text{crête}}/P_{\text{crit}}$, où P_{crit} est la puissance d'autofocalisation dans le PPLN, alors $\delta \sim -2$, ce qui est cohérent avec les valeurs généralement recherchées pour l'optimisation du verrouillage de modes par lentille de Kerr dans le Ti:Saphire [Mag93b].

Une autre donnée intéressante est la distance entre le centre du cristal et la position du waist pour $\Delta z = -1,33 \text{ mm}$ (Fig. 4.10b). Cette figure montre que le waist du faisceau est toujours à l'intérieur du cristal puisque la distance entre le centre du cristal et la position du waist est toujours inférieure à la demi-longueur du cristal laser ($L_{\text{laser}}/2 = 2,5 \text{ mm}$). La longueur de Rayleigh du faisceau dans le milieu laser est d'environ 16 mm. Par conséquent l'écart de taille entre le spot laser au centre du cristal et le spot au waist est relativement important par rapport au rayon au waist : une différence d'environ $5 \mu\text{m}$ pour rayon au un waist de typiquement $65 \mu\text{m}$. Néanmoins les variations de taille Δw au centre ou au waist sont relativement identiques, d'environ $10 \mu\text{m}$ d'après le calcul. En conclusion le choix de la taille du spot laser pour calculer la fonction de modulation va influencer sur la forme de la modulation, mais ne changera pas qualitativement l'interprétation.

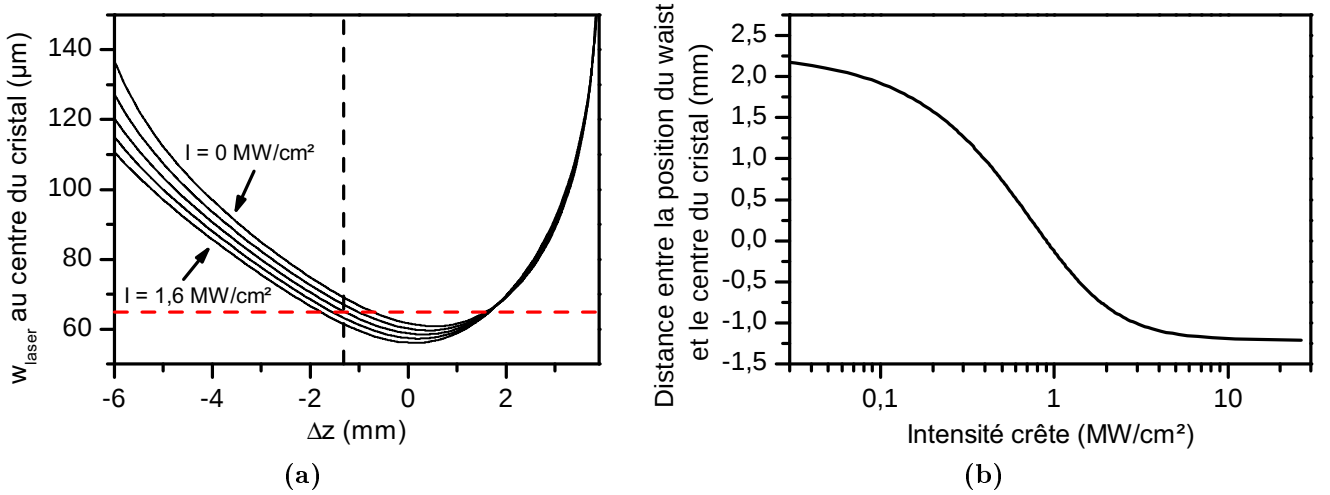


FIGURE 4.10: (a) Évolution du rayon à $1/e^2$ au centre du cristal laser en fonction de l'écartement des miroirs M_1 et M_2 . La ligne pointillée rouge indique le rayon du faisceau pompe au waist ($w_{\text{pompe}}^0 = 65 \mu\text{m}$). (b) Distance entre waist et centre du cristal pour $\Delta z = -1,33 \text{ mm}$ en fonction de l'intensité crête.

En choisissant comme taille de faisceau référence le rayon à $1/e^2$ au centre du cristal laser, la fonction de modulation en intensité, avec les hypothèses décrites précédemment, prend alors la

forme représentée Fig. 4.11. À titre de comparaison, nous avons tracé la modulation d'amplitude théorique par réflectivité non linéaire du miroir de Stankov en même temps que la modulation d'amplitude par effet Kerr équivalent.

Le modèle proposé étant très simplifié pour le calcul de la transmission non linéaire, l'efficacité de la modulation est probablement très surestimée. Néanmoins nous pouvons conclure qualitativement que dans nos conditions expérimentales, les ordres de grandeurs de puissance crête, de tailles de faisceaux, et de géométrie de cavité peuvent conduire à des modulations par le gain de l'amplitude du lase ZnSe:Cr^{2+} du même ordre de grandeur que la modulation théorique du miroir non linéaire au point Stankov. Cette analyse numérique simplifiée corrobore donc l'hypothèse d'un fonctionnement hybride du miroir non linéaire où la modulation d'amplitude est à la fois assurée par la réflectivité non linéaire et l'effet Kerr équivalent.

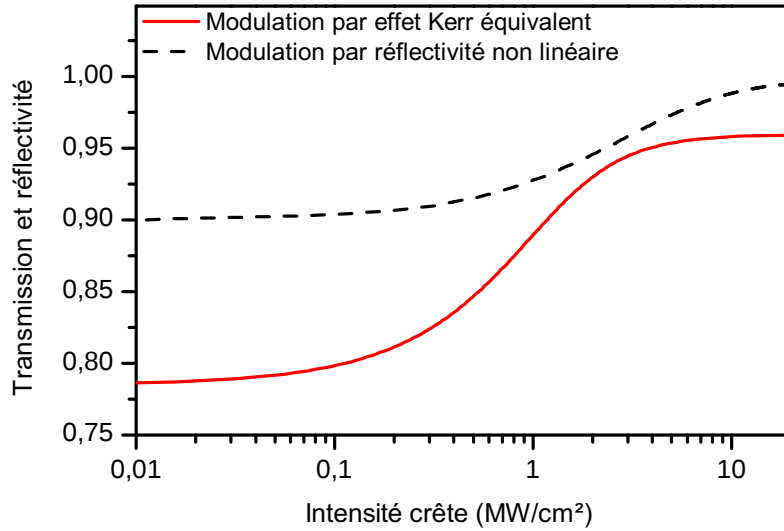


FIGURE 4.11: Fonction de modulation d'amplitude avec l'intensité par effet Kerr équivalent comparée à la fonction de modulation du miroir de Stankov pour un cristal de PPLN de 20 mm de longueur, et un coupleur tel que $R_{\omega} = 0,9$ et $R_{2\omega} = 1$.

Méthode expérimentale de vérification

La vérification expérimentale de l'hypothèse de fonctionnement hybride n'est pas simple à première vue. Une première méthode consisterait à remplacer le coupleur de sortie dichroïque par un miroir de renvoi transparent au second harmonique. Si le laser est toujours à modes verrouillés, alors l'effet prédominant est l'effet Kerr équivalent. Cependant, si le laser n'est plus impulsif, il n'est pas possible de conclure, puisque le renvoi du second harmonique exalte le déphasage non linéaire $\Delta\phi_{\text{NPS}}$; de ce fait, le changement de miroir supprime la modulation d'amplitude par la réflectivité non linéaire mais diminue en même temps l'effet Kerr équivalent. Une seconde méthode consiste à remplacer le coupleur par un miroir totalement réfléchissant

aux deux longueurs d'onde. Dans ce cas la modulation par la réflectivité est supprimée, tout en conservant la possibilité de faire du cascading avec une rétro-action à 2ω . Néanmoins, avec une telle méthode, il y aura modification du couplage, et donc de la dynamique du laser. Une troisième méthode plus générale consisterait à évaluer l'efficacité du verrouillage de modes, en mesurant la durée des impulsions, en fonction des paramètres Δk et $\Delta\varphi$. Notre montage permet théoriquement une telle étude, et nécessite une connaissance absolue des paramètres du miroir non linéaire, de même qu'une émission laser impulsionnelle en continu. Enfin, il peut être envisagé de visualiser l'effet Kerr équivalent dans le PPLN par le biais d'une étude à la caméra pyroélectrique du phénomène d'auto-(dé)focalisation, en comparant le mode laser en continu avec le mode laser en régime impulsionnel. Une telle étude nécessite également une stabilisation préalable de l'émission impulsionnelle du laser vis-à-vis des effets thermiques.

Régime déclenché

Considérons maintenant que le cristal doubleur est réglé loin de l'accord de phase ($|\Delta k L/2| > \pi$), alors la réflectivité des impulsions devient quasiment linéaire, et le seul effet susceptible de moduler l'amplitude du laser devient l'effet Kerr équivalent. Dans ce cas, le déphasage non linéaire $\Delta\phi_{\text{NPS}}$ à l'origine de l'effet Kerr équivalent, devient quasiment indépendant du déphasage au retour $\Delta\varphi$. Une telle configuration pourrait donc être à l'origine du régime hybride déclenché / verrouillage de modes observé Fig. 4.2, puisque nous avons pu constater qu'il était largement indépendant du positionnement transverse de la lame de phase. Ce régime de fonctionnement est néanmoins peu relaté dans la littérature. Seule la référence [ZR98] sur le verrouillage de modes par $\chi^{(2)}$ cascading mentionne la possibilité de faire entrer le laser dans un régime hybride verrouillage de modes / déclenché lorsque la lentille de Kerr est mal optimisée, ce qui se traduit par de faibles non linéarités sur les pertes du laser.

Synthèse

En conclusion, nous avons mis en évidence que l'insertion d'un cristal doubleur dans une cavité laser est un problème riche. En particulier, le verrouillage de modes d'un laser par miroir non linéaire est un processus faisant intervenir de très nombreux paramètres. La répartition spatiale de l'intensité dans le mode laser peut notamment être à l'origine d'effets d'autofocalisation lorsque le cristal non linéaire est légèrement en dehors de l'accord de phase par le biais des non-linéarités en cascade. Sans pour autant en avoir pu faire la démonstration expérimentale, ces non-linéarités sont fortement suspectées d'induire de l'autofocalisation lorsque le laser est à modes verrouillés en phase. Expérimentalement, nous avons démontré la forte dépendance du verrouillage de modes avec les paramètres du miroir non linéaires, en particulier la périodicité du verrouillage de modes avec la position de la lame de phase, démontrant ainsi que le réglage du miroir non linéaire se situe à proximité du point Stankov dans l'espace des paramètres $\{\Delta k, \Delta \varphi\}$, de sorte que la présence de non-linéarités en cascade soit envisageable. Il est également fort probable que ces non-linéarités soient à l'origine du régime hybride verrouillage de modes / déclenché observé sur notre laser ZnSe:Cr²⁺. Ce régime étant très indépendant de l'accord de phase et de la phase au retour, il est probable que cet effet corresponde à un verrouillage de modes par $\chi^{(2)}$ cascading sous optimisé lorsque le cristal non linéaire est très largement hors accord de phase. L'observation de ces phénomènes nous a amené à une étude plus approfondie des effets potentiellement autorisés par les grandes puissances crête atteintes lorsque le laser est en régime picoseconde, ce qui nous a amené à proposer une généralisation du principe de verrouillage de modes par miroir non linéaire. Le miroir non linéaire généralisé consiste en l'association d'un cristal doubleur, d'un dispositif de modulation de la phase au retour, et d'un miroir dichroïque totalement réfléchissant au second harmonique et partiellement réfléchissant au fondamental. Dans un tel dispositif, il est possible d'envisager la combinaison de la modulation d'amplitude par réflectivité, et par effet Kerr équivalent lorsque le cristal est réglé légèrement hors accord de phase. Dans ces conditions, la rétroaction du second harmonique avec le fondamental permet à la fois d'avoir une réflectivité non linéaire avec l'intensité, et une modulation de phase exaltée par rapport au phénomène de non-linéarités en cascade en simple passage. Des expériences complémentaires devront donc être menées afin de déterminer rigoureusement l'importance relative des deux phénomènes sur le verrouillage de modes du laser ZnSe:Cr²⁺.

Conclusion et perspectives

Au cours de ce travail, nous avons exploré quelques pistes mettant à profit les processus non linéaires pour la génération d'impulsions picosecondes largement accordables dans l'infrarouge moyen. Les principes essentiels communs aux différentes parties de la thèse sont le verrouillage en phase des modes longitudinaux dans les cavités optiques pour la génération d'impulsions courtes, et l'utilisation des spécificités de l'optique non linéaire pour la mise en œuvre de dispositifs largement accordables dans l'infrarouge moyen.

Afin de comprendre et prévoir le comportement de ces dispositifs, nous nous sommes tout d'abord dotés d'outils de calcul permettant de résoudre les équations de propagation du champ électrique dans un milieu diélectrique non linéaire en régime d'impulsions courtes et à spectre large. En régime picoseconde ou sub-picoseconde, la dispersion des composantes spectrales de ces ondes n'est pas négligeable, et nécessite l'écriture de termes de dérivée temporelle du champ d'ordre supérieur ou égal à 1. Le premier ordre permet de prendre en compte la vitesse de groupe de chaque paquet d'onde, et le second ordre permet de prendre en compte la dispersion des vitesses de groupe. La résolution des équations de propagation nécessite alors un traitement numérique. Nous avons par conséquent développé un code de résolution numérique en nous appuyant sur deux méthodes : par split-steps, et par différences finies. Afin de déterminer l'efficacité vis-à-vis du temps de calcul, ainsi que la précision de ces deux méthodes, nous avons réalisé plusieurs tests comparatifs en prenant un exemple de calcul d'amplification paramétrique d'impulsions femtosecondes. Cette étude comparative nous a permis de mettre en évidence que le schéma numérique par différences finies est plus rapide que la méthode par split-steps pour une précision équivalente. Nous avons enfin souligné l'importance des différences de vitesse de groupe entre les trois ondes, ainsi que celle de la saturation, sur le façonnage des impulsions par l'interaction non linéaire.

Par la suite, nous avons mis à profit l'instantanéité du gain paramétrique pour la réalisation expérimentale de sources OPO à pompage synchrone picosecondes. Le développement d'une source SP-OPO ZGP émettant à $3,9\,\mu\text{m} < \lambda_{\text{signal}} < 4,6\,\mu\text{m}$ et $\lambda_{\text{complémentaire}} \sim 5,6\,\mu\text{m}$ pompée à $\lambda_{\text{complémentaire}} \sim 2,3\,\mu\text{m}$ par un SP-OPO PPLN simplement résonnant proche de la dégénérescence, nous a permis de mettre en évidence l'immense potentiel de l'optique non linéaire pour

le développement de sources d'impulsions courtes, de forte puissance moyenne, et largement accordables, dans des régions du spectre infrarouge où les alternatives sont rares. Dans un OPO synchrone, le façonnage spectro-temporel des impulsions est complexe, et dépend fortement des paramètres de la cavité OPO tels que le couplage, le synchronisme, et le caractère faible ou large bande. Afin de mieux cerner les propriétés physiques du pompage synchrone, nous avons étudié de manière approfondie, à la fois expérimentalement et numériquement, le comportement du SP-OPO PPLN en fonction de différentes configurations de cavité. Nous avons notamment pu mettre en évidence que dans un OPO large bande, l'émission s'adapte spectralement et temporellement à la saturation, ainsi qu'au désynchronisme. En revanche, lorsque l'OPO est contraint spectralement, les degrés de liberté sont réduits, et les propriétés spectro-temporelles sont par conséquent plus homogènes. Expérimentalement, le dernier degré de liberté pour un OPO synchrone contenant un réseau de diffraction en configuration Littrow est la possibilité d'adapter spatialement le faisceau de l'onde oscillante.

Dans le Chap. 3, nous avons vu que les non-linéarités d'ordre 2 étaient particulièrement intéressantes lorsqu'elles étaient associées à un milieu à gain stockant de l'énergie, c'est-à-dire un milieu laser. Dans ce contexte, elles permettent de créer des fonctions optiques inédites. Nous avons illustré cet aspect par un miroir non linéaire d'ordre 2 permettant le déclenchement passif ou le verrouillage des modes d'un laser ZnSe:Cr²⁺ à 2,5 μm , pompé par un laser thulium à 1,9 μm . Ce miroir non-linéaire est constitué d'un cristal doubleur de fréquence en PPLN:MgO fan-out permettant de modifier la condition d'accord de phase, d'une lame prismatique permettant de faire varier la phase non linéaire au retour, et d'un miroir dichroïque partiellement réfléchissant à la longueur d'onde laser et hautement réfléchissant à la seconde harmonique. Nous avons montré que ce miroir non linéaire était très bien adapté à la production d'impulsions picosecondes dans l'infrarouge moyen, et qu'il pouvait être accordé à la longueur d'onde centrale du laser. Pour cela, il a fallu modéliser numériquement le miroir non linéaire dans le cas du laser ZnSe:Cr²⁺. Les premières expériences ont permis de démontrer la possibilité d'obtenir une source laser à modes verrouillés largement accordable dans l'infrarouge moyen, émettant plusieurs centaines de mW moyen, et des impulsions de durée inférieure à 85 ps cadencées à 220 MHz. La forte lentille thermique du cristal laser en pompage continu a été identifiée comme le principal facteur limitant la stabilité du verrouillage de modes dans le temps.

Enfin, l'étude du régime impulsionnel en fonction des paramètres de réglage du miroir non linéaire nous a amené à généraliser le concept de verrouillage de modes par miroir non linéaire en intégrant dans la Chap. 4 les effets de non-linéarités en cascade en double passage. La proposition d'un miroir non linéaire généralisé repose sur l'observation expérimentale de la tolérance du régime impulsionnel aux paramètres de désaccord de phase Δk et de déphasage au retour $\Delta\varphi$, ainsi que sur des considérations théoriques par le biais de simulations numériques de la réflectivité non linéaire dans l'espace des paramètres $\{\Delta k; \Delta\varphi\}$. Grâce à cette étude,

nous avons proposé quelques éléments d'interprétation et de compréhension du problème de l'interaction entre un milieu laser et un milieu non linéaire intracavité.

La plupart des voies explorées au cours de la thèse ont donc permis de développer de nouvelles source cohérentes d'impulsions ultrabrèves et largement accordables dans l'infrarouge moyen. Ces pistes peuvent encore largement être explorées.

L'architecture du SP-OPO ZGP devra être optimisée afin d'étendre la plage d'accordabilité à tout le spectre de transmission du ZGP qui s'étend jusqu'à près de 10 μm . Il serait également avantageux de recourir à une source laser picoseconde puissante et accordable (ZnSe:Cr^{2+} par exemple) pour remplacer la source de pompe actuelle composée d'un SP-OPO PPLN lui-même pompé par un laser primaire, et gagner ainsi en compacité et robustesse. D'une manière générale, le pompage synchrone devra être appliqué à d'autres types de cristaux tels que le OPGaAs afin d'élargir encore le spectre couvert par les sources paramétriques picosecondes. De manière plus particulière, le comportement spectro-temporel d'un OPO à pompage synchrone monté avec un réseau de diffraction requiert certains éclaircissements en ce qui concerne la tolérance vis-à-vis de la désynchronisation.

Le miroir non linéaire d'ordre 2 appliqué au laser ZnSe:Cr^{2+} a prouvé qu'il était un dispositif efficace pour produire des impulsions picosecondes dans l'infrarouge moyen. De nombreuses améliorations devront être apportées afin de réduire les limitations liées aux conséquences de la thermique sur la stabilité de la cavité et du verrouillage de modes. Une étude originale du verrouillage de modes en fonction des réglages du miroir non linéaire est également envisageable grâce au design du doubleur et de la lame de phase, qui permettent de paramétrer avec agilité les processus non linéaires de conversions / reconversions. Elle permettrait de vérifier et quantifier la contribution des non-linéarités en cascade dans le verrouillage de modes, ce qui n'a encore jamais été proposé.

Annexe A

Matrices ABCD

Avant-propos

Cette annexe rassemble les matrices ABCD utiles au calcul de stabilité d'une cavité laser contenant des éléments astigmatiques ainsi que des éléments d'indice variable avec l'intensité (lentille thermique ou lentille de Kerr). Ces matrices sont utilisées pour les calculs de stabilité du Chap. 3.2.1, les calculs de modulation d'amplitude par effet Kerr équivalent du Chap. 4.3.

$$\text{Plan sagittal} \quad \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{-2 \cos \theta}{R} & 1 \end{pmatrix} \quad \text{Plan tangentiel} \quad \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{-2}{R \cos \theta} & 1 \end{pmatrix}$$

TABLE A.1: Miroir sphérique incliné. L'angle d'incidence vaut θ , et le rayon de courbure R .

Plan sagittal	$\begin{pmatrix} 1 & \frac{L_{\text{cri}}}{n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$	Plan sagittal	$\begin{pmatrix} 1 & \frac{L_{\text{cri}}}{n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$
Plan tangentiel	$\begin{pmatrix} 1 & \frac{L_{\text{cri}}}{n} \left(\frac{\cos(i)}{\cos(r)} \right)^2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$	Plan tangentiel	$\begin{pmatrix} 1 & \frac{L_{\text{cri}}}{n^3} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$
(a) Incidence quelconque		(b) Incidence de Brewster	

TABLE A.2: Cristal d'épaisseur L_{cri} et d'indice n . L'angle d'incidence est noté i et l'angle de réfraction dans le cristal est noté r . Pour un cristal en incidence normale, la matrice devient unique et égale à la matrice dans le plan sagittal.

Plan sagittal	$\begin{pmatrix} \cos(\beta L_{\text{cri}}) & \frac{1}{n\beta} \sin(\beta L_{\text{cri}}) \\ -n\beta \sin(\beta L_{\text{cri}}) & \cos(\beta L_{\text{cri}}) \end{pmatrix}$
Plan tangentiel	$\begin{pmatrix} \cos(\beta L_{\text{cri}}) & \frac{1}{n^3\beta} \sin(\beta L_{\text{cri}}) \\ -n^3\beta \sin(\beta L_{\text{cri}}) & \cos(\beta L_{\text{cri}}) \end{pmatrix}$

TABLE A.3: Cristal d'épaisseur L_{cri} et d'indice n autofocalisant. La force de l'autofocalisation est déterminée par le paramètre p tel que $\beta = p/\sqrt{nL_{\text{cri}}}$. Par exemple pour une lentille thermique faible, la focale thermique est $f_{\text{therm}} \sim 1/p$. Pour un cristal en incidence normale, la matrice devient unique et égale à la matrice dans le plan sagittal.

Annexe B

Verrouillage de modes par effet Kerr.

Avant-propos

Dans cette partie notre objectif sera de donner quelques éléments de compréhension et ordres de grandeurs caractéristiques de l'effet Kerr dans ZnSe:Cr^{2+} . L'étude de l'effet Kerr dans ZnSe:Cr^{2+} ne fait pas directement partie des objectifs de cette thèse puisqu'il a déjà largement été utilisé pour générer des impulsions femtoseconde dans la région du spectre infrarouge située autour de $\lambda = 2500$ nm. Il y a dans la littérature de nombreux développements expérimentaux de verrouillage de modes par effet Kerr (Kerr Lens Mode-locking ou KLM) concernant le Ti : Sapphire et plus récemment le ZnSe:Cr^{2+} , ainsi que de nombreux traitements analytiques et/ou numériques de l'optimisation de la géométrie d'une cavité laser pour favoriser l'auto-déclenchement passif par lentille de Kerr. Il nous paraît cependant important d'introduire quelques éléments de réflexion sur l'effet d'auto-focalisation dans ZnSe:Cr^{2+} qui peut se produire aux fortes puissances crêtes. Nous verrons qu'à première vue, dans nos conditions expérimentales, la cavité laser n'est pas adaptée au KLM, et que le verrouillage de modes par miroir non linéaire produit des puissances crêtes trop faibles pour induire de l'auto-focalisation dans ZnSe:Cr^{2+} . Par ailleurs, le formalisme de l'auto-focalisation par effet Kerr est utile pour aborder les effets de non-linéarités en cascade qui peuvent avoir lieu dans un cristal non linéaire dans lequel l'onde fondamentale est doublée puis reconvertie.

B.1 Origine de l'effet lentille de Kerr

En l'absence de terme d'ordre 2, ce qui est le cas pour les matériaux centro-symétriques comme le ZnSe:Cr^{2+} , la partie de la polarisation non linéaire qui influence la propagation d'un faisceau de fréquence ω est

$$P_{NL}(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega = \omega + \omega - \omega) |E(\omega)|^2 E(\omega). \quad (\text{B.1})$$

Le terme $\chi^{(3)}$ est un tenseur de rang 4 décrit par une matrice de 81 coefficients indépendants dans le cas général. Ce nombre est diminué et varie en fonction de la symétrie d'orientation du milieu considéré [Bou06, Boy92]. En supposant de plus que le champ électrique est polarisé linéairement, la polarisation du milieu se simplifie et peut s'écrire sous la forme scalaire :

$$P_{\text{tot}} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} E(\omega) + \chi^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega)) = \chi_{\text{eff}} E(\omega), \quad (\text{B.2})$$

où la susceptibilité effective dépendant de l'intensité du champ électrique local est introduite :

$$\chi_{\text{eff}} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} + \chi^{(3)} |E(\omega)|^2). \quad (\text{B.3})$$

Il est alors possible d'introduire d'un indice de réfraction effectif défini par :

$$n = \sqrt{1 + 4\pi\chi_{\text{eff}}}, \quad (\text{B.4})$$

Avec un développement limité à l'ordre 1 de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité du champ :

$$n = n_0 + n_2 I. \quad (\text{B.5})$$

En identifiant le terme de gauche de B.4, et en négligeant les termes d'ordre 2 en intensité, il vient :

$$n_0^2 + 2n_0 n_2 I = 1 + 4\pi\varepsilon_0 \chi^{(1)} + 4\pi\varepsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega)|^2, \quad (\text{B.6})$$

Ce qui donne une expression approchée de l'indice de réfraction :

$$\begin{cases} n &= n_0 + n_2 I \\ n_0 &= \sqrt{1 + 4\pi\varepsilon_0 \chi^{(1)}} \\ n_2 &= \frac{\pi\varepsilon_0 \chi^{(3)}}{n_0} \end{cases} \quad (\text{B.7})$$

Dans un résonateur laser, un élément auto-focalisant (barreau laser par effet Kerr, ou cristal doubleur par non linéarités en cascades) va avoir pour conséquence de moduler les zones de stabilité de la cavité. En effet, pour un faisceau laser dont l'intensité est répartie de manière non uniforme dans l'espace, l'effet Kerr va imposer une variation du front d'onde non uniforme. Par exemple, dans le cas d'un faisceau à profil spatial gaussien, le centre du faisceau plus intense voit son front d'onde subir un déphasage plus important qu'à la périphérie du faisceau, ce qui est équivalent à dire que le centre du faisceau traverse une longueur optique plus grande que sa périphérie. Si ce phénomène est intégré sur l'ensemble du faisceau et sur toute la longueur du milieu Kerr, tout se passe comme si le faisceau laser traversait une lentille de focale variable avec l'intensité laser. Pour traduire l'effet d'autofocalisation d'un faisceau gaussien à l'intérieur d'un matériau Kerr, le formalisme des matrices ABCD permet de mettre en évidence l'équivalence entre milieu Kerr et lentille mince. Au centre du faisceau, l'intensité d'un faisceau gaussien peut-être approximée par une parabole :

$$I(r) = \frac{2P}{\pi w_0^2} \exp \left[-2 \left(\frac{r}{w_0} \right)^2 \right] \quad (\text{B.8})$$

$$\approx \frac{2P}{\pi w_0^2} \left(1 - 2 \left(\frac{r}{w_0} \right)^2 \right), \quad (\text{B.9})$$

P est la puissance laser et w_0 la taille du faisceau au waist. Une expression approchée de l'indice en fonction de la coordonnée radiale r peut alors être déduite :

$$n(r) = n_0 + n_2 I \quad (\text{B.10})$$

$$= n_0 + \frac{2n_2 P}{\pi w_0^2} - \frac{4n_2 P}{\pi w_0^2} \left(\frac{r}{w_0} \right)^2 \quad (\text{B.11})$$

$$= n'_0 - \frac{4n_2 P}{\pi w_0^2} \left(\frac{r}{w_0} \right)^2 \quad (\text{B.12})$$

$$= n'_0 \left(1 - \frac{\gamma^2 r^2}{2} \right), \quad (\text{B.13})$$

avec $\gamma = \frac{1}{w_0} \sqrt{\frac{8n_2 P}{n'_0 \pi}}$ et $n'_0 = n_0 + \frac{2n_2 P}{\pi w_0^2}$. En règle générale, le terme constant $\frac{2n_2 P}{\pi w_0^2}$ est négligeable devant n_0 ; dans le cas du ZnSe:Cr²⁺, $n_2 = 16 \text{ cm}^2/\text{PW}$, et pour une intensité crête dans le cristal de $100 \text{ MW}/\text{cm}^2$ le terme $\frac{2n_2 P}{\pi w_0^2} \sim 3.10^{-6}$ donc $n'_0 \simeq n_0$. Dans l'approximation parabolique du profil spatial du faisceau laser, l'indice de réfraction est donc lui aussi de forme parabolique en fonction de r . Dans ces conditions, l'intégration de la déviation d'un rayon lumineux par un milieu Kerr d'épaisseur L se conclut par l'obtention d'une matrice de transfert de la forme

[Sie86] :

$$\begin{pmatrix} \cos(\gamma L) & \frac{1}{n_0 \gamma} \sin(\gamma L) \\ -n_0 \gamma \sin(\gamma L) & \cos(\gamma L) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.14})$$

Cette formulation est analogue à l'expression de la matrice de transfert d'un élément contenant une lentille thermique. Lorsque $\gamma L \ll 1$, la matrice de transfert du milieu Kerr se simplifie à l'ordre 2 en :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \cos(\gamma L) & \frac{1}{n_0 \gamma} \sin(\gamma L) \\ -n_0 \gamma \sin(\gamma L) & \cos(\gamma L) \end{pmatrix} &\simeq \begin{pmatrix} 1 - \frac{\gamma^2 L^2}{2} & \frac{L}{n_0} \\ -n_0' \gamma^2 L & 1 - \frac{\gamma^2 L^2}{2} \end{pmatrix} \\ &\simeq \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n_0} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -n_0 \gamma^2 L & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n_0} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Ainsi la matrice de transfert d'un milieu Kerr est équivalente au produit de trois matrices décrivant une lentille mince de focale $\frac{1}{f} = n_0 \gamma^2 L$ placée entre deux lames d'épaisseur optique $\frac{L}{2}$, d'où la notion de "lentille de Kerr". Il est alors possible d'évaluer la stabilité d'une cavité laser contenant un milieu Kerr ainsi que l'évolution de la taille du mode en fonction de l'intensité par l'intermédiaire du formalisme des matrices ABCD.

B.2 Puissance critique d'auto-focalisation

L'étude analytique de la propagation d'un faisceau gaussien à travers un milieu Kerr dans l'approximation parabolique de l'indice fait apparaître une puissance critique d'auto-focalisation P_{crit} [Boy92, Hua92, Fib00], qui peut être physiquement interprétée comme la puissance à partir de laquelle l'autofocalisation due à l'effet Kerr compense la diffraction¹. Cette puissance critique s'exprime de la manière suivante :

$$P_{\text{crit}} = \frac{\alpha \lambda^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (\text{B.15})$$

Le paramètre α est un facteur de correction supérieur ou égal à 1 dépendant des conditions expérimentales. D'après l'étude théorique [Fib00], ce paramètre peut varier entre 1.86 et 6.58 en fonction de la répartition spatiale de l'énergie incidente à l'entrée du milieu Kerr. Le calcul de

1. Le régime particulier de la compensation exacte correspondant au phénomène de filamentation [Bra95].

la valeur de P_{crit} n'est donc qu'indicatif de l'ordre de grandeur de la puissance crête nécessaire pour obtenir l'autofocalisation. Rappelons en outre que cette valeur ne correspond pas à un seuil de déclenchement du KLM, ce dernier dépendant d'un éventail plus large de paramètres tels que la puissance laser, et les paramètres géométriques de la cavité. Dans le cas du ZnSe:Cr^{2+} , pour $\alpha \gtrsim 2$, et $\lambda = 2,5 \mu\text{m}$, la puissance critique d'auto-focalisation est de l'ordre de $P_{\text{crit}} \gtrsim 100 \text{ kW}$. Si nous nous réfèrons aux études récentes d'expériences de KLM sur ZnSe:Cr^{2+} [Ciz09, Mos08a, Sor09], les puissances crêtes intracavité sont de cet ordre de grandeur². Dans le cas de nos expériences, les ordres de grandeur sont les suivants : une puissance moyenne intracavité typique de 3 W, une cadence de 200 MHz, et une durée d'impulsion de l'ordre de quelques dizaines de picoseconde. Ces valeurs donnent donc une puissance crête intracavité de l'ordre de 1 kW, ce qui est à première vue très insuffisant pour induire de l'autofocalisation dans notre cristal de ZnSe:Cr^{2+} . En conclusion, vu les puissances crêtes atteintes par notre dispositif expérimental, il est raisonnable d'exclure la présence d'effet Kerr optique dans le ZnSe:Cr^{2+} .

B.3 Verrouillage de modes passif par effet Kerr (Kerr Lens Mode-locking ou KLM)

Le principe du verrouillage de modes par effet de lentille de Kerr est relativement simple. En effet lorsqu'une impulsion laser se propage dans un milieu Kerr, sa puissance varie rapidement au cours du temps avec une forte amplitude. La focalisation du milieu Kerr va donc varier, et par conséquent les zones de stabilité de la cavité vont se déplacer, en même temps que le mode laser verra son diamètre varier dans le temps. Connaissant les variations du mode laser en fonction de la puissance, il est alors possible de moduler en amplitude les pertes de la cavité en y insérant un diaphragme ("hard-aperture" KLM) d'ouverture plus faible que la taille du mode laser en régime continu : Fig. B.1 et Fig. B.2. Toute la stratégie consiste ensuite à choisir judicieusement le diamètre de l'ouverture, ainsi que son emplacement dans la cavité de sorte que la transmission du diaphragme en fonction de la taille du mode laser soit la plus non linéaire possible. Ces phénomènes étant liés à une non linéarité de la polarisation électronique dans le cristal laser, la modulation d'amplitude par lentille de Kerr est quasi-instantanée, ce qui en fait un outils particulièrement adapté aux impulsions ultra-brèves. De nombreuses études donnent les outils théoriques du design et de l'optimisation des paramètres de cavité laser pour l'obtention d'un auto-verrouillage de modes par lentille de Kerr [Her94, Geo92]; le cas du Ti:Sapphire a été approfondi à la fois théoriquement et expérimentalement dans les travaux de

2. Dans le cas du travail de Cizmeciyan [Ciz09], la puissance moyenne de sortie est de 40 mW, pour un coupleur de 99 %, une durée d'impulsion d'environ 100 fs, et une cadence d'environ 100 MHz, ce qui donne une intensité crête intracavité de l'ordre de 400 kW.

Cerullo et Magni [Cer94, Mag93a, Mag93b, Mag96], de même que le ZnSe:Cr²⁺ [Kal95, Kal03]. Ces travaux mettent en evidence le rôle critique que joue le paramètre $\delta = \left(\frac{1}{w} \frac{dw}{dp} \right)_{p=0}$ (variation relative du waist laser sur le diaphragme obturateur en fonction de la puissance laser crête) sur les conditions d'obtention du KLM.

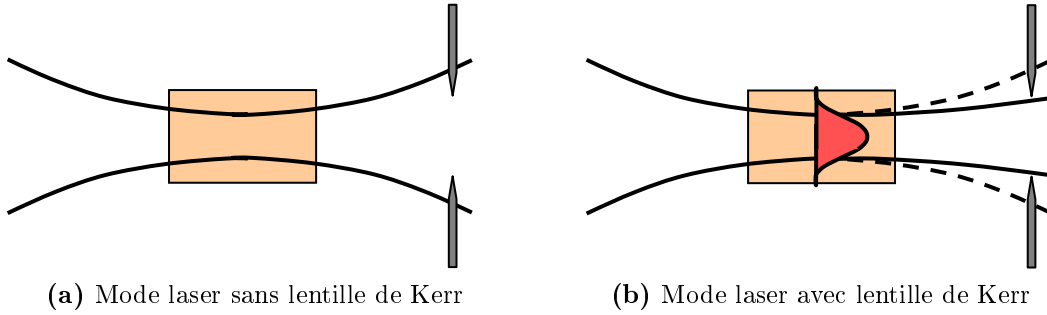


FIGURE B.1: À faible puissance l'effet Kerr est absent, et le diaphragme obstrue une partie du faisceau B.1a. À forte puissance le faisceau laser s'autofocalise, le mode laser change de diamètre et n'est plus diaphragmé B.1b. Dans une telle configuration, le diaphragme favorise le fonctionnement impulsif du laser par rapport au fonctionnement en continu par modulation des pertes subies par le faisceau.

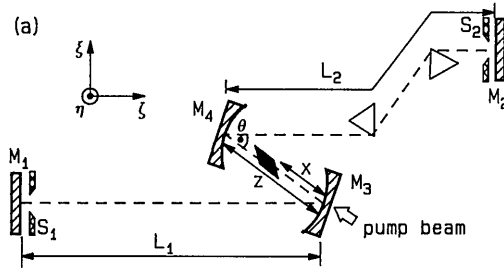


FIGURE B.2: Configuration standard d'un résonateur pour l'obtention de KLM (d'après [Cer94]). Pour une configuration donnée, le paramètre $\delta = \left(\frac{1}{w} \frac{dw}{dp} \right)_{p=0}$ est maximum sur les miroirs plan M₁ et M₂ [Mag93b] d'où le positionnement des obturateurs S₁ et S₂. Dans une telle configuration, les paramètres critiques expérimentalement ajustables du KLM sont la distance z entre les miroirs concaves M₃ et M₄, et la position x du cristal laser.

Expérimentalement, il est possible d'obtenir l'auto-déclenchement passif du KLM sans même l'utilisation d'un diaphragme solide à l'intérieur de la cavité³. Dans ce cas, la modulation d'amplitude ne se fait pas par l'intermédiaire d'une transmission variable et non linéaire à travers un diaphragme, mais par la non-linéarité du recouvrement spatial entre le mode laser et le faisceau de pompe en fonction de la puissance laser. Le formalisme théorique associé à ce phénomène est nettement plus complexe, puisqu'il s'agit d'intégrer sur la longueur du cristal

3. Pour le ZnSe:Cr²⁺ les travaux expérimentaux suivants l'ont montré : [Mos08a, Sor09, Ciz09].

laser le recouvrement entre le faisceau laser et une fonction de gain variable spatialement, et éventuellement temporellement. En la matière, les travaux de Herrmann [Her94] proposent un formalisme théorique lié au recouvrement spatial entre le mode laser et le faisceau pompe. Dans ce cas, le faisceau de pompe joue un double rôle : transversalement le faisceau de pompe peut être vu comme un diaphragme (en dehors du faisceau de pompe, pas de gain, la pompe joue alors le même rôle qu'une ouverture dont la transmission serait gaussienne avec des pertes augmentant radialement), et longitudinalement, laser et pompe ne diffractent pas de la même manière, le gain variant en conséquence avec le recouvrement des faisceaux.

L'obtention d'une émission pulsée par KLM requiert donc un dimensionnement et une optimisation des paramètres de cavité en vue d'obtenir une transmission équivalente du système {milieu Kerr + diaphragme} ou {milieu Kerr + zone de pompage} la plus non linéaire possible en fonction de l'intensité laser. Sans entrer dans les détails d'un tel dimensionnement, les conditions favorables au KLM sont résumées ci-dessous :

1. Régler le tirage des différents éléments du laser (miroirs, cristal ...) de sorte que la cavité soit en bordure d'une zone de stabilité en continu. Cette condition favorise de larges variations relatives de taille du faisceau : il s'agit de maximiser le paramètre $\delta = \left(\frac{1}{w} \frac{dw}{dp} \right)_{p=0}$ en valeur absolue.
2. Se rapprocher d'une configuration de cavité symétrique [Cer94, Mag93b]. Cette condition a pour effet de maximiser la tolérance sur la condition précédente, et de favoriser l'auto-déclenchement du KLM. En effet, se placer en bordure de zone de stabilité requiert une certaine tolérance sur les paramètres géométriques de la cavité, celle-ci devant être à la fois stable en continu et en régime de KLM.
3. Travailler avec des tailles de waist très petites, afin de maximiser l'effet Kerr.

Dans le cas de la cavité laser que nous avons utilisée, s'il est toujours possible de se placer en bordure de stabilité, les conditions 2. et 3. ne sont pas remplies. En effet notre cavité n'est pas symétrique, et notre taille de waist dans le cristal laser est relativement importante par rapport aux expériences de KLM reportées dans la littérature : 65 μm de waist contre 32 μm par exemple dans [Ciz09]. Expérimentalement, lors de nos très nombreux essais en continu sur différentes configurations de cavité et différents cristaux, nous n'avons pas observé de verrouillage de modes par la simple présence d'un cristal laser de ZnSe:Cr^{2+} .

Annexe C

Laser en incidence normale

Le fait de mettre un cristal non traité en incidence normale ou quasi-normale peut avoir des effets négatifs. Parmi ces effets nous pouvons citer l'apparition de sous cavités qui peuvent rendre l'émission laser multimode, ou encore l'augmentation des pertes de cavité par le biais des pertes de Fresnel aux interfaces. Notre objectif n'est donc pas directement la réalisation d'un laser contenant un cristal en incidence normale, mais de nous mettre dans un premier temps dans des conditions favorables du point de vue stabilité.

Le fait d'utiliser un cristal en incidence normale a une autre conséquence très particulière. Comme nous l'avons dit dans le Chap. 3.2.2 concernant le laser de pompe, le $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ est un très bon absorbant saturable pour le laser $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$. Par ailleurs, le fait de mettre le cristal de $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ non traité en incidence normale au waist du faisceau de pompe va se traduire par un retour de lumière à la fois intense (du fait de l'indice élevé du ZnSe $n = 2,45$ correspondant à un coefficient de reflexion de Fresnel d'environ 18 %), adapté spatialement, et variable, du fait de la dépendance de l'absorption du $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ avec l'intensité de pompe. Ce retour de lumière a alors pour effet de déclencher passivement le laser de pompe $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$. Dans un tel régime couplé entre le laser et la pompe, le $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ oscille donc en Gain-Switch et non en continu. La Fig. C.1 donne les caractéristiques temporelles de ce régime couplé.

L'exemple montré ici est celui du cristal Ge1. La largeur à mi-hauteur des impulsions du laser $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$ déclenché est typiquement de 350 ns, et celle des impulsions Gain-Switch du $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ d'environ 90 ns avec un taux de répétition variant entre 5 kHz et 10 kHz. En réalité l'émission du laser de pompe dans ce régime est très instable, la durée des impulsions ainsi que la période des impulsions variant très fortement dans le temps. L'émission du $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ suit donc ces instabilités de cadence et de durée d'impulsion. Afin d'éviter ce régime de fonctionnement, nous avons dans un premier temps légèrement incliné le cristal laser de sorte que le retour de pompe ne soit plus dans l'alignement du laser $\text{Tm}^{3+}:\text{YLF}$. De cette manière, le laser de

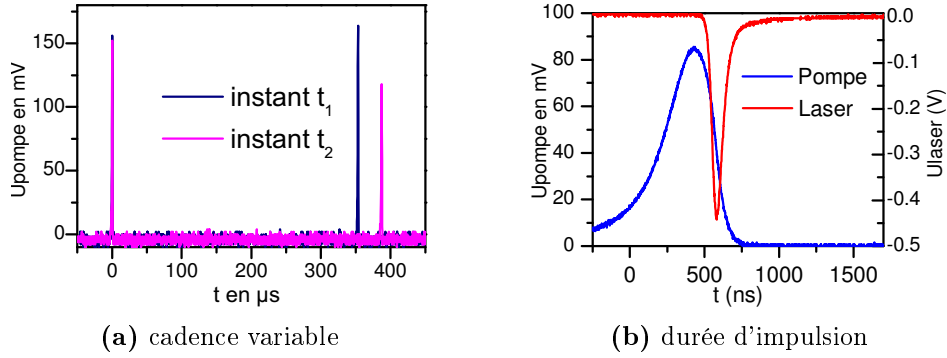


FIGURE C.1: Premiers essais de cavité $Cr^{2+}:ZnSe$. Résultats de Gain-Switch sur le cristal Ge1

pompe n'est plus perturbé par le retour, et l'émission du $Cr^{2+}:ZnSe$ peut se faire en continu. La Fig. C.2 illustre la différence entre le régime Gain-Switch et le régime CW en termes de puissance de sortie. En régime purement continu, le seuil du laser est légèrement augmenté, et que l'efficacité passe à 8%, au lieu de 12 % en régime de Gain-Switch.

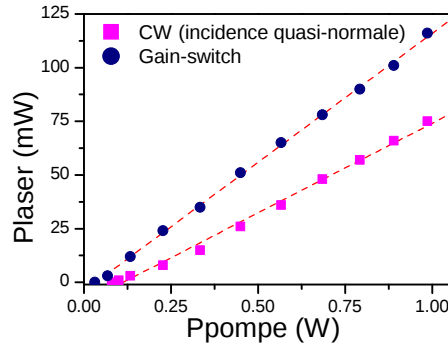


FIGURE C.2: Caractéristique en puissance en incidence normale et quasi-normale. Cristal Ge1. Dans les deux cas le coupleur de sortie est $OC_2 = 0.925$. L'incidence quasi-normale correspond à un décalage du cristal laser de 1° par rapport à l'incidence normale.

Annexe D

Ombroscopie

Afin de mieux visualiser les zones du cristal où s'opère l'effet de dépolariation présenté au Chap. 3.2.3, nous avons mené une expérience d'ombroscopie du cristal placé entre analyseur et polariseur croisés. Cette expérience a été réalisée à l'Institut Néel de Grenoble. Le schéma expérimental utilisé est représenté Fig. D.1. L'ombroscopie consiste à éclairer le cristal étudié par un faisceau laser polarisé et uniforme en intensité. Le cristal est placé entre polariseur et analyseur croisés, réglés avant insertion de l'échantillon, afin de pouvoir mesurer d'éventuels effets de dépolariation ou de biréfringence. La face de sortie du cristal est ensuite imagée sur une caméra CCD pour acquisition.

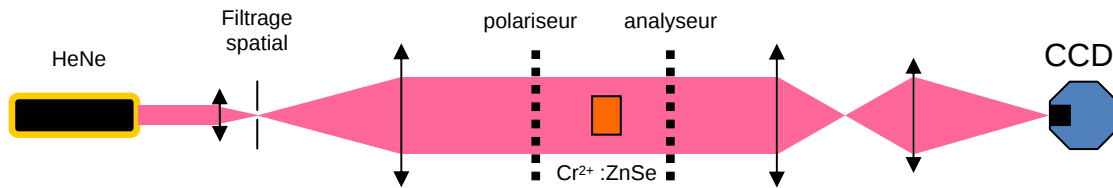
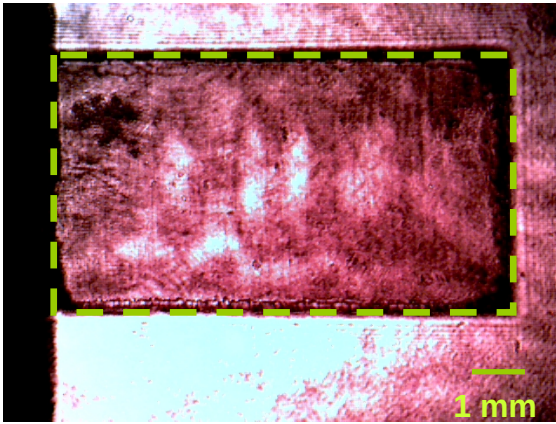


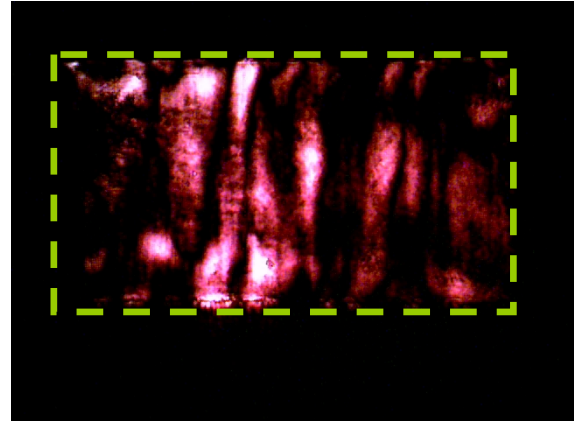
FIGURE D.1: Schéma de l'expérience d'ombroscopie. Le laser HeNe est filtré spatialement par un système lentille {convergente + diaphragme} afin d'éliminer les hautes fréquences spatiales et d'obtenir un éclairage homogène du cristal étudié.

La Fig. D.2 donne la figure d'ombroscopie obtenue pour le cristal Pi1 lorsque polariseur et analyseur sont alignés (Fig. D.2a) puis croisés (Fig. D.2b).

Sur l'ombroscopie de référence, les défauts présents sur la face arrière du cristal Pi1 apparaissent. Dans le coin supérieur gauche, par exemple, se situe une zone noircie qui correspond à un endommagement du cristal rendant cette zone inutilisable pour l'oscillation laser. La présence de nombreux petits endommagements locaux laisse penser que les sauts de mode observés



(a) Référence. Polariseur et analyseur alignés



(b) Polariseur et analyseur croisés

FIGURE D.2: Ombroscopie du cristal Pi1. Les pointillés verts délimitent les bords du cristal. Les niveaux de coloration entre les deux figures ne sont pas comparables. L'ombroscopie de référence étant beaucoup plus intense, il est nécessaire d'atténuer le flux avant acquisition sur la caméra.

expérimentalement en sortie du laser correspondent à des défauts de polissage. La figure d'ombroscopie en polariseur et analyseur croisés est très particulière puisqu'il y a de larges zones où l'He-Ne n'est pas éteint par l'analyseur après avoir traversé le cristal. La taille de ces zones est cohérente avec l'expérience précédemment réalisée avec le faisceau HeNe focalisé illustrée Fig. 3.21, où des zones de changement de polarisation de l'ordre du millimètre ont pu être mesurées. La présence de ces zones suggère que la polarisation de l'He-Ne a localement été modifiée sous l'effet d'une biréfringence parasite.

Nous avons par ailleurs enregistré la figure d'ombroscopie entre polariseur et analyseur croisés pour différentes orientation du système {polariseur + analyseur}. Les résultats obtenus lors de l'expérience sur le cristal Pi1 sont compilés sur la Fig. D.3.

Il existe bien une structure orientée de la biréfringence dans le cristal étant donné que sur toutes les acquisitions, les zones de dépolarisation apparaissent toujours dans une direction parallèle aux arêtes verticales du cristal de $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$. Par ailleurs, lorsque la polarisation de la lumière est modifiée, la figure d'ombroscopie est elle-même modifiée. Il semble également se dégager une certaine structure dans la succession des figures d'ombroscopie comme suggéré sur la Fig. D.3 où les mêmes motifs se répètent après une rotation de 80° .

L'origine de cette biréfringence résiduelle n'a pas pu être complètement caractérisée, mais le fait que les zones de dépolarisation apparaissent majoritairement dans la même direction (lignes verticales sur la Fig. D.2b) suggère que cette biréfringence est le résultat d'une contrainte exercée sur le cristal. Il est par exemple possible que les contraintes mécaniques exercées sur le cristal au moment de la croissance, de la découpe ou encore du polissage aient induit une

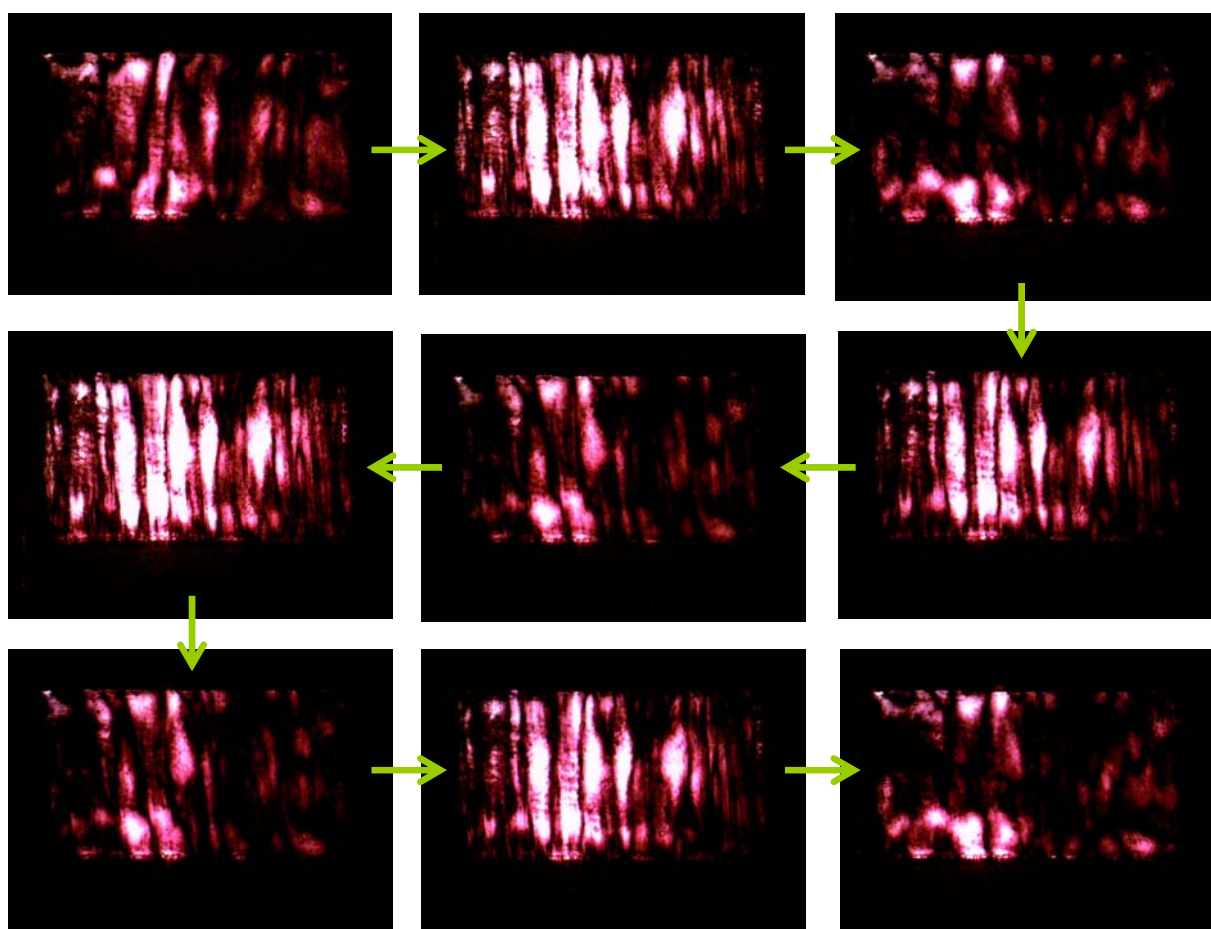


FIGURE D.3: Images d'ombroscopie du cristal Pi1 pour différentes orientations du système {polariseur + analyseur croisés}. Chaque acquisition est séparée de la précédente d'une rotation de 40° .

biréfringence de surface sur les faces du cristal de ZnSe:Cr^{2+} .

Ainsi, l'expérience d'ombroscopie entre polariseur et analyseur croisés nous a permis de confirmer macroscopiquement l'observation faite sur le changement de polarisation d'un faisceau He-Ne focalisé après avoir traversé notre cristal laser Pi1. L'effet moyen sur la polarisation est cependant minime vu la faible portion du flux HeNe qui n'est pas éteinte par l'analyseur (de l'ordre de 0.1 %). Cette biréfringence de contrainte acquise par le cristal laser ne constitue donc pas un inconvénient pour la source laser.

Annexe E

Procédures d'alignement

Cette annexe à caractère pratique donne quelques éléments de procédure utilisés lors des alignements des différents dispositifs présentés dans ce manuscrit de thèse.

Cavités OPO synchrones

Parmi les montages expérimentaux étudiés dans ce manuscrit, les cavités OPO synchrones sont sans doute les plus “simples” à aligner. En effet, à partir du moment où le trajet des faisceaux est bien matérialisé, le fait que les cavités soient grandes¹ rend l'alignement rapidement convergent. Dans ce type de cavité, le seul véritable point critique est l'adaptation de la longueur de la cavité OPO au taux de répétition de la pompe (condition de synchronisme).

Pour la cavité SP-OPO PPLN, la matérialisation du trajet est directement réalisée grâce au doublage de fréquence (parasite) de la pompe qui fournit un faisceau vert à 532 nm d'intensité suffisante pour être visible sur l'ensemble du trajet aller-retour dans la cavité.

Pour la cavité SP-OPO ZGP, la matérialisation du trajet est réalisée à l'aide d'un laser d'alignement He-Ne. La première étape consiste à superposer au mieux le faisceau pompe (complémentaire du SP-OPO PPLN autour de 2,35 μm) sur le faisceau He-Ne. Cette étape peut être faite d'abord grossièrement, à l'aide du résidu de vert à 532 nm qui sort de la cavité PPLN, et dont la propagation peut être considérée comme voisine du complémentaire de l'OPO, puis de manière plus précise en utilisant une caméra pyroélectrique². La seconde étape consiste

1. Le taux de répétition de 76 MHz correspond à une longueur optique d'environ 4 m.

2. Cette étape de superposition de la pompe sur l'HeNe est faite dans les conditions de focalisation de la pompe dans l'OPO. On notera que du fait de la taille importante des cavités, il est nécessaire d'adapter, même grossièrement, la taille du faisceau HeNe à celle du faisceau pompe. Pour cela différentes méthodes peuvent être mises en œuvre : soit l'HeNe est injecté dans la cavité par l'un des bras collimatés de la cavité OPO, dans ces conditions on utilise directement les focalisations par les miroirs concaves, soit on utilise une lentille de focalisation de l'HeNe (qui peut être directement la lentille de la pompe) pour entrer par le bras focalisé de l'OPO contenant le cristal non linéaire.

à aligner la cavité ZGP par autocollimation sur l'He-Ne sans le ZGP, qui absorbe tout le rouge. Une fois les miroir positionnés, le ZGP est placé par autocollimation sur l'He-Ne sur une des faces du cristal. En supposant que les face du cristal sont parallèles, on considère alors que la cavité est alignée. L'intérêt de l'accord de phase angulaire en type II, et pour $\theta = 90^\circ$, est que l'angle de walk-off est nul. La méthode d'alignement décrite précédemment est alors relativement précise.

Cavité laser ZnSe:Cr²⁺

L'alignement de la cavité ZnSe:Cr²⁺ se fait de la même manière que celui de la cavité SP-OPO ZGP, à la différence que l'alignement complet peut se faire en présence du cristal laser, ce dernier étant suffisamment transparent dans le rouge. La difficulté de l'alignement provient de la présence de nombreuses réflexions secondaires de l'He-Ne sur les différents éléments de cavité, qu'il s'agit d'identifier au mieux. De plus, le trajet principal qui matérialise l'aller-retour du faisceau laser n'est pas nécessairement le plus intense (pour l'He-Ne).

Annexe F

Détection en régime de comptage de photons dans l'infrarouge par détection à deux photons non-dégénérée dans l'arsenure de gallium (article)

Avant-propos

L'article qui suit est le fruit d'un travail annexe effectué à l'ONERA en collaboration avec Fabien Boitier dans le cadre de son travail de thèse [Boi10]. Il porte sur la réalisation et l'étude d'une détection infrarouge large bande dans le domaine Télécom ($1.3\ \mu\text{m}$ - $1.55\ \mu\text{m}$) en régime de comptage de photons, basée sur une absorption à deux photons non dégénérée dans un photomultiplicateur GaAs. L'objectif est de proposer une méthode de détection simple et très large bande pour des flux de photons faibles (comptage de photons). Le travail présenté ici illustre quelques propriétés très intéressantes du GaAs : sa forte efficacité quantique, son coefficient d'absorption à deux photons élevé et un gap direct, en font un outils particulièrement adapté à la détection à deux photons en régime quantique. Par ailleurs son large gap électronique autorise une large bande de détection (démontrée ici entre 1520 nm et 1600 nm) contrairement aux techniques d'up-conversion par non-linéarités d'ordre deux limitées par la bande passante des matériaux non linéaires utilisés.

Infrared quantum counting by nondegenerate two photon conductivity in GaAs

Fabien Boitier,¹ Jean-Baptiste Dherbecourt,¹ Antoine Godard,¹ and Emmanuel Rosencher^{1,2,a)}

¹Onera, the French Aerospace Lab, Chemin de la Hunière, Palaiseau 91761, France

²Department of Physics, Ecole Polytechnique, Palaiseau 91763, France

(Received 3 December 2008; accepted 1 February 2009; published online 24 February 2009)

We report on infrared quantum counting of photons at optical communication wavelengths based on nondegenerate two-photon absorption in a GaAs photomultiplier tube. The detected photon energy is lower than the GaAs band gap and the energy difference is complemented by a high intensity pump field. This detection setup is simple, compact, has a broad spectral bandwidth, and benefits from the intrinsic low noise and dark counts of large band gap semiconductor junctions. © 2009 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.3089380]

There is a strong interest to develop quantum information applications, such as quantum cryptography,¹ at optical communication wavelengths (1.3–1.55 μm) in order to ease their incorporation in existing optical fiber network.² Current detectors at such wavelengths are based on InGaAs/InP avalanche photodiodes (APDs) (quantum efficiency $>15\%$) and still suffer from high dark count rates (up to $10^5/\text{s}$ at room temperature), partly due to the narrow semiconductor band gap.³ Silicon and GaAs based detectors display higher quantum efficiencies ($>60\%$ for Si at its responsivity peak) and lower dark count rates due to their higher band gap, but remain unable to directly detect photons at optical communication wavelengths. This limitation has recently been circumvented by use of frequency upconversion in a quadratic nonlinear crystal, followed by detection in a Si APD.⁴ This technique displays high quantum efficiencies ($>40\%$) but suffers from a number of intrinsic drawbacks. For instance, the detection optical bandwidth is very small because of the stringent phase matching conditions imposed by quadratic parametric interactions.

Revisiting a proposition of *infrared quantum counters* (IRQCs) made by Bloembergen in the late fifties,⁵ it has been recently proposed to use a third order nonlinear process, i.e., nondegenerate (ND) two-photon absorption (TPA),⁶ for infrared photon detection in Si APD at room temperature.⁷ ND-TPA involves an allowed second order quantum excitation of energy $\hbar\omega_s + \hbar\omega_p$, while first order excitations of energies $\hbar\omega_s$ (signal photon) and $\hbar\omega_p$ (pump photon) are forbidden, e.g., for energy conservation considerations. In an illustrative way, ND-TPA in semiconductors can be figured out as a transition of an electron from a valence band state to a “virtual” state within the gap of energy E_g , at an energy $\hbar\omega_p$ above the initial state ($\hbar\omega_p < E_g$). It is then followed by a transition of energy $\hbar\omega_s < E_g$ to a final real state in the conduction band [Fig. 1(a)], in so much as $\hbar\omega_s + \hbar\omega_p > E_g$. Electron-hole pairs are thus created by TPA and give rise to a photocurrent. In IRQCs, the noise is hopefully determined by the large band gap materials, through a thermally activated dark current $e^{-E_g/kT}$ instead of $e^{-\hbar\omega_s/kT}$. The advantages of this detection scheme are potentially many, such as (i) the experimental setup is simple and compact and (ii) no phase

matching schemes are necessary since the process does not involve parametric interactions of propagating fields.

In the original Bloembergen’s suggestion, the intermediate level is an excited level of a transition group ion,^{4,8} i.e., not a virtual state. As a consequence, this scheme involves a doubly resonant condition on the intermediate and the final states, resulting in a limited detection bandwidth. No such resonance conditions are required in our scheme since the intermediate level is virtual, while the initial and final states are distributed over energy bands. Moreover, the thermal oc-

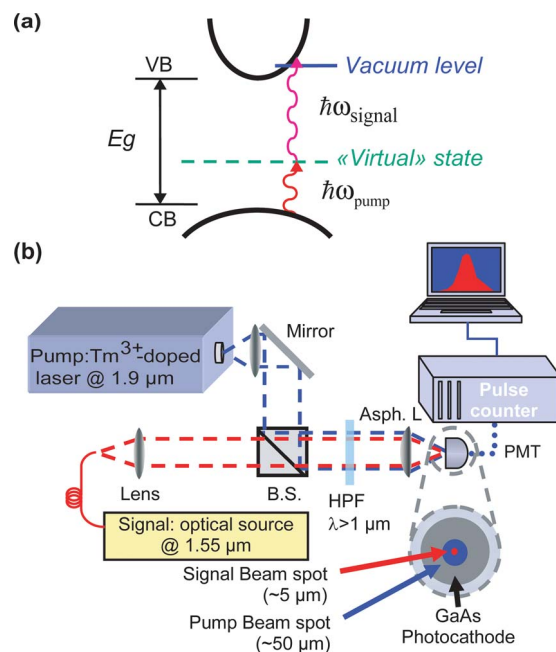


FIG. 1. (Color online) (a) Infrared quantum counting by ND-TPA. A pump photon from a high intensity beam promotes a valence band electron to a virtual state in the semiconductor gap. A second photon (signal) completes the transition to a real conduction band state. The electron is then accelerated in the space charge region, emitted above the vacuum energy level and induces a photocurrent. (b) Experimental setup: two nearly collimated beams are combined using a B.S. Parasitic high energy (short wavelength) photons are filtered out by a high pass filter. Beams are focused through an aspheric lens (Asph. L) on a GaAs photocathode. The pump beam area on the GaAs detector is chosen far larger than the signal one in order to (i) minimize nonlinear absorption effects due to the pump beam and to (ii) stabilize the overlap between the two beams against vibrations.

a)Electronic mail: emmanuel.rosencher@onera.fr.

cupancy of the real intermediate level in Bloembergen's IRQC should lead to a detrimental $e^{-\hbar\omega_s/kT}$ thermally activated dark current under optical pumping.⁹

An important condition for an efficient detection scheme is that the pump photon energy $\hbar\omega_p$ has to be lower than the semiconductor midgap so that no degenerate (D)-TPA is expected in spite of the high pump intensity. Three photon absorption process being far less likely than TPA, no photocurrent is expected to be induced by the pump field in the semiconductor device.¹⁰ Consequently, ND-TPA is desired with $\omega_s > \omega_p$. Thorough theoretical derivations can be found in Ref. 11, for instance. In this letter, infrared quantum counting using ND-TPA has been implemented in GaAs, which is a good candidate for TPA, being a direct band gap material with a higher TPA coefficient than Si.¹² Signal photons at 1.55 μm are detected in a GaAs photocounting module, the supplementary photon energy being provided by a 1.9 μm laser pump source.

The experiment set up is described in Fig. 1(b). The low intensity signal beam originates from an Er³⁺ doped fiber amplified spontaneous emission source (20 nm FWHM-BT1200 Photonetics). The high intensity 1.9 μm pump laser is provided by a 6 nm full width at half maximum (FWHM) Tm³⁺ laser. The beams are combined on a 50/50 beam splitter (BS). A thick (4 mm) Si wafer is used to filter out any parasitic radiation at wavelengths shorter than 900 nm in order to eliminate any direct absorption in the GaAs phototube. Beams are then focused on a H7421-50 Hamamatsu GaAs phototube, as suggested in Ref. 13. In such a device, the electrons created by TPA are captured and accelerated by the GaAs space charge region, emitted into vacuum and amplified through electron multiplication. This mechanism results in a very low dark count rate (40 dark counts/s). These dark counts will be subtracted in the following experiments. In order to (i) minimize unwanted nonlinear absorption effects due to the pump beam (e.g., three photon absorption) and (ii) stabilize the ND-TPA signal against vibrations, the signal beam is tightly focused on the GaAs photocathode with a 5 μm diameter spot, while the pump spot is larger (50 μm in diameter), largely enclosing the signal one. Each measurement was done by averaging 200 points accumulated during 100 ms.

In a semiclassical approach, the mean number of photoelectrons $\langle n \rangle$ emitted from the GaAs space charge region is given by⁵

$$\langle n \rangle = \langle n_{s,s} \rangle + \langle n_{p,p} \rangle + \langle n_{s,p} \rangle = \eta_s P_s^2 + \eta_p P_p^2 + \eta_{s,p} P_s P_p, \quad (1)$$

where $\langle n_{s,s} \rangle$ and $\langle n_{p,p} \rangle$ are photocounts due to D-TPA from the signal and pump beams, respectively, while $\langle n_{s,p} \rangle$ is the one due to ND-TPA. P and η represent power and efficiency associated with their sources in the subscript. The D and ND efficiencies are linked to TPA quantum coefficient β and spot size area by¹¹

$$\eta_s \propto \frac{\beta_s}{(S_s)_{\text{GaAs}}} \quad \text{and} \quad \eta_{s,p} \propto \frac{\beta_{s,p}}{(S_s \cap S_p)_{\text{GaAs}}}, \quad (2)$$

where S_s and $S_s \cap S_p$ designate the signal and pump-signal beam intersection areas on the GaAs detector, respectively.

Figure 2 explores experimentally the different behaviors predicted by Eq. (1). First, Fig. 2(a) displays the count rate as a function of the pump beam power when no signal beam is present ($P_s = 0$ W). The quadratic behavior indicates residual

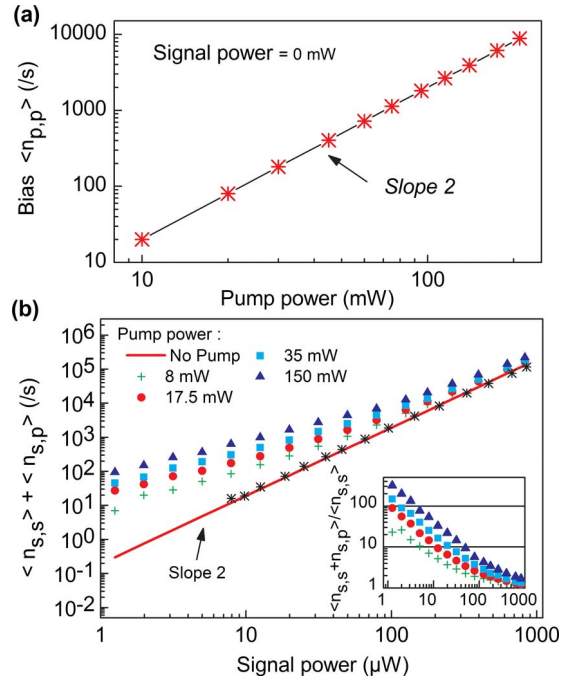


FIG. 2. (Color online) (a) D pump TPA count rate $\langle n_{p,p} \rangle$ as a function of the pump power (subtracted on the following graphs). (b) Measured D- and ND-TPA photocounts $\langle n_{s,p} + n_{s,s} \rangle$ due to signal photons at various fixed pump powers as a function of the signal power: the black star (solid red line) represents experimental photocounts (extrapolated fitted) when no pump is used (i.e., D-TPA). The inset shows the amplification due to ND-TPA effect compared to the D-TPA signal alone.

D-TPA. This is unexpected since the pump photon energy is supposedly too small (0.65 eV) to induce TPA in GaAs ($E_g/2 = 0.71$ eV). However, compared to D-TPA at 1.55 μm [red solid line in Fig. 2(b)], the efficiency of the former effect is far smaller than the latter one, indicating a parasitic TPA mechanism at 1.9 μm on real defect states in the GaAs band gap (deep levels, Urbach tails, etc.) Second, Fig. 2(b) displays the count rates as a function of the signal power for different pump powers. On this figure, the count rates due to the pump beam alone ($\eta_p P_p^2$) as determined on Fig. 2(a) has been subtracted so that this figure shows the signal contribution to the D (red curve) and ND-TPA ($\langle n \rangle - \langle n_{p,p} \rangle = (\langle n_{s,s} \rangle + \langle n_{s,p} \rangle)$). Clearly, the presence of the pump amplifies greatly the TPA count rate (up to a factor of 300), which is evidenced in the inset of Fig. 2(b). This enhancement gradually decreases with increasing signal beam power when D-TPA outperforms ND-TPA count rate.

The ND-TPA contribution to the global counting rate is thus determined by subtracting the 1.55 μm D-TPA one [red solid line in Fig. 2(b)], yielding $\langle n_{s,p} \rangle = \langle n \rangle - (\langle n_{s,s} \rangle + \langle n_{p,p} \rangle)$. The result is displayed in Fig. 3(a), which thus shows the variation in the ND-TPA count rate as a function of the signal power and for different pump powers. The variation is indeed linear, as expected from Eq. (1). Moreover, the evolution of the ND-TPA count rate as a function of the signal wavelength is investigated over more than 80 nm [see inset of Fig. 3(a)]. The smooth evolution of the ND-TPA count rate follows the variation in the TPA coefficient β when $\hbar\omega_s + \hbar\omega_p$ approaches the band gap energy and indicates a broadband detection mechanism, i.e., no phase matching condition has to be fulfilled. Then the value of the ND-TPA efficiency $\eta_{s,p}$ is determined by calculating the experimental

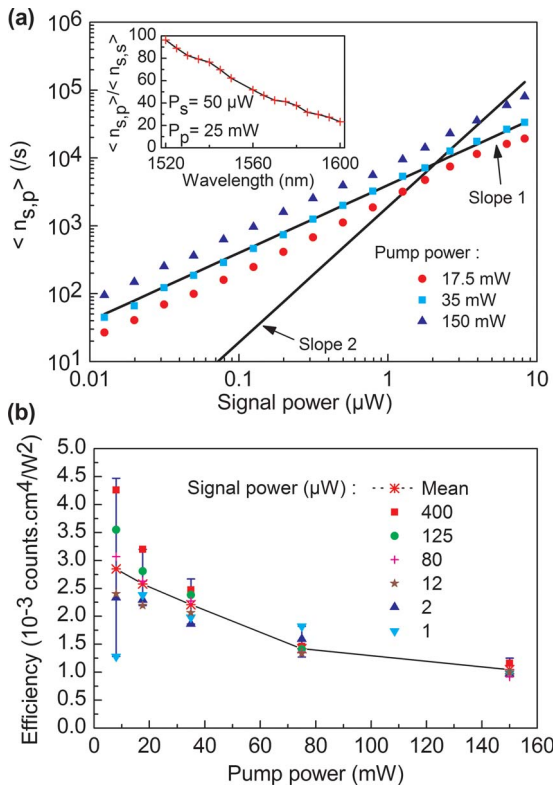


FIG. 3. (Color online) (a) ND-TPA photocounts $\langle n_{s,p} \rangle$ as a function of the signal power for different pump intensities. The two solid lines represent a linear (slope 1) and a quadratic (slope 2) evolution profile. The inset displays the ratio $\langle n_{s,p} \rangle / \langle n_{s,s} \rangle$ at fixed pump and signal power for different signal wavelengths. (b) ND-TPA normalized efficiency for different pump and signal intensities.

values of $\eta_{s,p} = (\langle n \rangle - \langle n_{s,s} \rangle - \langle n_{p,p} \rangle) / P_s P_p$. The Gaussian distribution of the beams is taken into account in the overlap calculation. The results are shown in Fig. 3(b) for different values of pump and signal beam powers. The quantum efficiency is found to be $10^{-10}\%$ in our experimental conditions. This corresponds to a roughly constant TPA quantum efficiency in the $\eta_{s,p} \approx 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^4 / \text{W}^2$ for pump power up to $3.5 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$ and decreases for higher pump power, most probably because of thermal heating effects occurring within the detector.

This efficiency is quite low for this proof-of-principle experiment but there is a huge potential of improvement for this technique. First, the effective interaction length where the TPA electron-hole pairs are collected and emitted is very small (few micrometers). This interaction distance can be easily enhanced by at least three orders of magnitude in a waveguide detector.¹⁴ Second, the pump field intensity is low in our experiment. It can be enhanced by at least three orders of magnitude in a waveguide geometry (typically few 10^6 W/cm^2)¹³ or microcavities,¹⁵ even more for ps pulses. Finally, the ND-TPA coefficient $\eta_{s,p}$ can be enhanced in a

great way, using resonant three-level quantum well infrared detectors, but at the expense of the optical bandwidth.¹⁶

In summary, we have demonstrated IRQC in the optical communication wavelength range in a large band gap material such as GaAs. The complementary amount of energy necessary for infrared photon absorption in GaAs is provided by a high-power pump beam, yielding a ND-TPA photocurrent. It is thus possible to capitalize on the low noise property of large band gap materials (such as GaAs or Si) for detecting low energy photons. Quadratic upconversion schemes are still providing much higher quantum efficiencies. However, this ND-TPA technique offers great potential capabilities. First, the virtue of this technique is that the conversion detection is performed in a single semiconductor device rather than in a bulky nonlinear crystal-detector scheme. Second, the mechanism offers a large detection optical bandwidth since the detection mechanism does not involve stringent phase matching conditions. Finally, the detection efficiency can be largely enhanced using guided wave or microcavity structures as well as quantum engineered two photon resonant structures.

¹N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).

²G. Ribordy, J. Brendel, J.-D. Gautier, N. Gisin, and H. Zbinden, *Phys. Rev. A* **63**, 012309 (2000).

³G. Ribordy, J.-D. Gautier, H. Zbinden, and N. Gisin, *Appl. Opt.* **37**, 2272 (1998).

⁴C. Langrock, E. Diamanti, R. V. Roussev, Y. Yamamoto, M. M. Fejer, and H. Takesue, *Opt. Lett.* **30**, 1725 (2005).

⁵N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* **2**, 84 (1959).

⁶D. C. Hutchings and E. W. Stryland, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 2065 (1992).

⁷A. Hayat, P. Ginzburg, and M. Orenstein, *Phys. Rev. B* **77**, 125219 (2008).

⁸L. Esterowitz, A. Schnitzler, J. Noonan, and J. Bahler, *Appl. Opt.* **7**, 2053 (1968).

⁹R. J. Keyes, in *Topics in Applied Physics: Optical and Infrared Detectors*, edited by R. J. Keyes (Springer, Berlin, 1980), Vol. 19.

¹⁰W. C. Hurlbut, Y.-S. Lee, K. L. Vodopyanov, P. S. Kuo, and M. M. Fejer, *Opt. Lett.* **32**, 668 (2007).

¹¹C. Aversa, J. E. Sipe, M. Sheik-Bahae, and E. W. Van Stryland, *Phys. Rev. B* **50**, 18073 (1994); M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, *IEEE J. Quantum Electron.* **27**, 1296 (1991); V. Nathan, A. H. Guenther, and S. S. Mitra, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 294 (1985).

¹²M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, *Opt. Lett.* **17**, 258 (1992).

¹³J. M. Roth, T. E. Murphy, and C. Xu, *Opt. Lett.* **27**, 2076 (2002).

¹⁴F. R. Laughton, J. H. Marsh, D. A. Barrow, and E. L. Portnoi, *IEEE J. Quantum Electron.* **30**, 838 (1994).

¹⁵H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan, L. P. Barry, J. S. Roberts, and G. Hill, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1328 (2002); H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, T. Krug, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan, and L. P. Barry, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2396 (2002).

¹⁶H. Schneider, H. C. Liu, S. Winnert, O. Drachenko, M. Helm, and J. Fiast, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 101114 (2008); E. Rosencher, B. Vinter, V. Berger, and N. Laurent, *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Sci. Technol., Sect. B: Nonlinear Opt.* **11**, 115 (1995).

Bibliographie

- [Agn97] A. Agnesi, E. Piccinini, G. C. Reali et C. Solcia, “All-solid-state picosecond tunable source of near-infrared radiation”, *Opt. Lett.* **22**(18), 1415–1417 (1997).
- [Agn99] A. Agnesi, S. Dell’Acqua et G. Reali, “Nonlinear mirror mode-locking of efficiently diode-pumped pulsed neodymium lasers”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(8), 1236–1242 (1999).
- [Agn04] A. Agnesi, A. Guandalini, A. Tomaselli, E. Sani, A. Toncelli et M. Tonelli, “Diode-pumped passively mode-locked and passively stabilized Nd³⁺:BaY₂F₈ laser”, *Opt. Lett.* **29**(14), 1638–1640 (2004).
- [Akh68] S. Akhmanov, A. Chirkin, K. Drabovich, A. Kovrigin, R. Khokhlov et A. Sukhorukov, “Nonstationary nonlinear optical effects and ultrashort light pulse formation”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **4**(10), 598 – 605 (1968).
- [Anc00] G. Ancil, N. McCarthy et M. Piché, “Sensitivity of a Three-Mirror Cavity to Thermal and Nonlinear Lensing: Gaussian-Beam Analysis”, *Appl. Opt.* **39**(36), 6787–6798 (2000).
- [Ari99] G. Arisholm, “Quantum noise initiation and macroscopic fluctuations in optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(1), 117–127 (1999).
- [Ari07] G. Arisholm, “General analysis of group velocity effects in collinear optical parametric amplifiers and generators”, *Opt. Express* **15**(10), 6513–6527 (2007).
- [Arm62a] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P. S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric”, *Phys. Rev.* **127**(6), 1918–1939 (1962).
- [Arm62b] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P. S. Pershan, “Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric”, *Phys. Rev.* **127**(6), 1918–1939 (1962).
- [Ass93] G. Assanto, G. Stegeman, M. Sheik-Bahae et E. V. Stryland, “All-optical switching devices based on large nonlinear phase shifts from second harmonic generation”, *Applied Physics Letters* **62**(12), 1323–1325 (1993).

- [Bak89] H. J. Bakker, P. C. M. Planken et H. G. Muller, “Numerical calculation of optical frequency-conversion processes: a new approach”, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**(9), 1665–1672 (1989).
- [Bar89a] J. Barr, “Modelocking using mirrors with intensity dependent reflection coefficients”, *Optics Communications* **70**(3), 229 – 233 (1989).
- [Bar89b] J. R. M. Barr et D. W. Hughes, “Coupled cavity modelocking of a Nd:YAG laser using second-harmonic generation”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **49**, 323–325 (1989).
- [Bar91] J. Barr, “Numerical simulation of a modelocked laser with an intracavity nonlinear mirror based on second harmonic generation”, *Optics Communications* **81**(3-4), 215 – 221 (1991).
- [Bar09] A. Baron, A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, Q. V. Tran, S. Combrié, A. de Rossi, R. Frey et G. Roosen, “Light localization induced enhancement of third order nonlinearities in a GaAs photonic crystal waveguide”, *Opt. Express* **17**(2), 552–557 (2009).
- [Bec82] M. Becker, Y. Kim, S. Gautam et E. Powers, “Three-wave nonlinear optical interactions in dispersive media”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **18**(1), 113 – 123 (1982).
- [Ber08] A. Berrou, F. Marnas, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “Mid-IR Photoacoustic Spectroscopy by Use of an Entangled-Cavity Doubly Resonant OPO”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, p. CTuII6 (Optical Society of America, 2008).
- [Ber10a] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard et M. Lefebvre, “High-resolution photoacoustic and direct absorption spectroscopy of main greenhouse gases by use of a pulsed entangled cavity doubly resonant OPO”, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **98**(1), 217–230 (2010).
- [Ber10b] P. A. Berry et K. L. Schepler, “High-power, widely-tunable Cr²⁺:ZnSe master oscillator power amplifier systems”, *Opt. Express* **18**(14), 15062–15072 (2010).
- [Bhu09] K. V. Bhupathiraju, J. D. Rowley et F. Ganikhanov, “Efficient picosecond optical parametric oscillator based on periodically poled lithium tantalate”, *Applied Physics Letters* **95**(8), 081111 (2009).
- [Blo10] G. Bloom, A. Grisard, E. Lallier, C. Larat, M. Carras et X. Marcadet, “Optical parametric amplification of a distributed-feedback quantum-cascade laser in orientation-patterned GaAs”, *Opt. Lett.* **35**(4), 505–507 (2010).

-
- [Boi10] F. Boitier, *Absorption à deux photons et effets de corrélations quantiques dans les semi-conducteurs*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2010).
- [Bon10] A. M. Bonnefois, R. Bierent, M. Raybaut, A. Godard, S. Derelle, A. Durecu, V. Michau, M. Lefebvre, N. Vedrenne et M.-T. Velluet, “SCALPEL: a long range free-space optical communication system with adaptive optics in the MIR bandwidth”, in *Proc. SPIE, Vol. 7828*, v. 7828, édité par K. Stein et J. D. Gonglewski, p. 78280L (SPIE, 2010).
- [Bou06] B. Boulanger et J. Zyss, “Nonlinear optical properties”, in *International Tables for Crystallography Volume D: Physical properties of crystals*, v. D de *International Tables for Crystallography*, édité par H. Fuess, T. Hahn, H. Wondratschek, U. MÄELler, U. Shmueli, E. Prince, A. Authier, V. KopskÄœ, D. Litvin, M. Rossmann, E. Arnold, S. Hall, B. McMahon et A. Authier, p. 178–219 (Springer Netherlands, 2006). 10.1107/97809553602060000634.
- [Boy92] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 1992).
- [Bra95] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier et G. Mourou, “Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air”, *Opt. Lett.* **20**(1), 73–75 (1995).
- [Bra10] P. Brand, *Study of 5generation*, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier (2010).
- [Buc91a] I. Buchvarov, S. Saltiel, K. Stankov et D. Georgiev, “Extremely long train of ultra short pulses from an actively mode-locked pulsed Nd: YAG laser”, *Optics Communications* **83**(1-2), 65 – 70 (1991).
- [Buc91b] I. Buchvarov, K. Stankov et S. Saltiel, “Pulse shortening in an actively mode-locked laser with a frequency-doubling nonlinear mirror”, *Optics Communications* **83**(3-4), 241 – 245 (1991).
- [Buc94] I. Buchvarov, G. Christov et S. Saltiel, “Transient behaviour of frequency doubling mode-locker. Numerical analysis”, *Optics Communications* **107**(3-4), 281 – 286 (1994).
- [Bud00] P. A. Budni, L. A. Pomeranz, M. L. Lemons, C. A. Miller, J. R. Mosto et E. P. Chicklis, “Efficient mid-infrared laser using 1.9-µm-pumped Ho:YAG and ZnGeP2 optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **17**(5), 723–728 (2000).
- [Cai86] J. A. Caird, M. D. Shinn, T. A. Kirchoff, L. K. Smith et R. E. Wilder, “Measurements of losses and lasing efficiency in GSGG:Cr, Nd and YAG:Nd laser rods”, *Appl. Opt.* **25**(23), 4294–4305 (1986).
- [Can08] H. Cankaya, U. Demirbas, A. K. Erdamar et A. Sennaroglu, “Absorption saturation analysis of Cr²⁺:ZnSe and Fe²⁺:ZnSe”, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**(5), 794–800 (2008).

- [Car90] T. F. Carruthers et I. N. D. III, “Passive laser mode locking with an antiresonant nonlinear mirror”, *Opt. Lett.* **15**(14), 804–806 (1990).
- [Car00] T. J. Carrig, G. J. Wagner, A. Sennaroglu, J. Y. Jeong et C. R. Pollock, “Mode-locked Cr²⁺:ZnSe laser”, *Opt. Lett.* **25**(3), 168–170 (2000).
- [Cer94] G. Cerullo, S. D. Silvestri, V. Magni et L. Pallaro, “Resonators for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:sapphire lasers”, *Opt. Lett.* **19**(11), 807–809 (1994).
- [Cer95a] G. Cerullo, V. Magni et A. Monguzzi, “Group-velocity mismatch compensation in continuous-wave lasers mode locked by second-order nonlinearities”, *Opt. Lett.* **20**(17), 1785–1787 (1995).
- [Cer95b] G. Cerullo, S. D. Silvestri, A. Monguzzi, D. Segala et V. Magni, “Self-starting mode locking of a cw Nd:YAG laser using cascaded second-order nonlinearities”, *Opt. Lett.* **20**(7), 746–748 (1995).
- [Che94] E. C. Cheung, K. Koch et G. T. Moore, “Silver thiogallate, singly resonant optical parametric oscillator pumped by a continuous-wave mode-locked Nd:YAG laser”, *Opt. Lett.* **19**(9), 631–633 (1994).
- [Che98] O. V. Chekhlov et V. A. Zaporozhchenko, “Mapping of the second-harmonic nonlinear mirror characteristics for laser mode locking and pulse shortening”, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**(1), 210–215 (1998).
- [Che02] S. Chenais, *Nouveaux matériaux laser dopés à l’ytterbium : performances en pompage par diode et étude des effets thermiques*, Thèse de doctorat, Université Paris Sud - Paris XI (2002).
- [Ciz09] M. N. Cizmeciyan, H. Cankaya, A. Kurt et A. Sennaroglu, “Kerr-lens mode-locked femtosecond Cr²⁺:ZnSe laser at 2420 nm”, *Opt. Lett.* **34**(20), 3056–3058 (2009).
- [Cou92] A. Cousins, “Temperature and thermal stress scaling in finite-length end-pumped laser rods”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **28**(4), 1057–1069 (1992).
- [Cou95] V. Courderc, *Laser Nd : YAG pompés par diode lasers : - Optimisation du rendement en régime continu ; - Fonctionnement en régime modes bloqués par miroir non linéaire à cristal doubleur*, Thèse de doctorat, Université de Limoges (1995).
- [Cou03] V. Couderc, A. Albert et A. Barthélémy, “Low repetition rate of a mode locked Nd:YAG laser using quadratic polarization switching”, *Optics Communications* **220**(4-6), 413 – 417 (2003).
- [Dan94] M. B. Danailov, G. Cerullo, V. Magni, D. Segala et S. D. Silvestri, “Nonlinear mirror mode locking of a cw Nd:YLF laser”, *Opt. Lett.* **19**(11), 792–794 (1994).

-
- [Das03] S. Das, G. C. Bhar, S. Gangopadhyay et C. Ghosh, “Linear and Nonlinear Optical Properties of ZnGeP₂ Crystal for Infrared Laser Device Applications: Revisited”, *Appl. Opt.* **42**(21), 4335–4340 (2003).
- [Dat04a] P. K. Datta, S. Mukhopadhyay et A. Agnesi, “Stability regime study of a nonlinear mirror mode-locked laser”, *Optics Communications* **230**(4-6), 411 – 418 (2004).
- [Dat04b] P. K. Datta, Shivanand, S. Mukhopadhyay, A. Agnesi et A. Lucca, “Picosecond Pulse Generation and its Simulation in a Nonlinear Optical Mirror Mode-Locked Laser”, *Appl. Opt.* **43**(11), 2347–2352 (2004).
- [DeL96] L. DeLoach, R. Page, G. Wilke, S. Payne et W. Krupke, “Transition metal-doped zinc chalcogenides: spectroscopy and laser demonstration of a new class of gain media”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **32**(6), 885 –895 (1996).
- [DeS92] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. V. Stryland et H. Vanherzeele, “Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP”, *Opt. Lett.* **17**(1), 28–30 (1992).
- [Dhe10] J.-B. Dherbecourt, J.-M. Melkonian, M. Raybaut, A. Godard, M. Lefebvre, J. Ryan et E. Rosencher, “Mode-Locking of a Cr²⁺: ZnSe Laser Using a PPLN Nonlinear Mirror: Theoretical Modelling and Cavity Design”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, p. JThE97 (Optical Society of America, 2010).
- [Fal95] C. Fallnich, B. Ruffing, T. Herrmann, A. Nebel, R. Beigang et R. Wallenstein, “Experimental investigation and numerical simulation of the influence of resonator-length detuning on the output power, pulse duration and spectral width of a cw mode-locked picosecond optical parametric oscillator”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **60**, 427–436 (1995).
- [Fej92] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt et R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances”, *IEEE J. Quantum Electron.* **28**(11), 2631–2654 (1992).
- [Fib00] G. Fibich et A. L. Gaeta, “Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides”, *Opt. Lett.* **25**(5), 335–337 (2000).
- [Fin66] D. Findlay et R. Clay, “The measurement of internal losses in 4-level lasers”, *Physics Letters* **20**(3), 277 – 278 (1966).
- [Fos72] J. D. Foster, “Mode-locked frequency doubled laser”, (1972).
- [Geo92] D. Georgiev, J. Herrmann et U. Stamm, “Cavity design for optimum nonlinear absorption in Kerr-lens mode-locked solid-state lasers”, *Optics Communications* **92**(4-6), 368 – 375 (1992).

- [God10] A. Godard, M. Raybaut, T. Schmid, M. Lefebvre, A.-M. Michel, C. Oudart, S. Teixeira et M. Pealat, “Development of a compact frequency conversion module for airborne countermeasures”, in *Proc. SPIE, Vol. 7836*, v. 7836, édité par D. H. Titterton et M. A. Richardson, p. 78360G (SPIE, 2010).
- [Gra96] D. E. Gragson, B. M. McCarty, G. L. Richmond et D. S. Alavi, “High-power broadly tunable picosecond IR laser system for use in nonlinear spectroscopic applications”, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**(9), 2075–2083 (1996).
- [Ham91] K. Hamal, K. A. Stankov, H. Jelinkova, I. Prochazka et M. Koselja, “Mode-locking of a flashlamp pumped Ti:sapphire laser using the frequency doubling nonlinear mirror”, in *International Symposium on Ultrafast Processes in Spectroscopy*, v. 126 de *Inst. Phys. Conf. Ser.*, p. 59–62 (IOP Publishing, Ltd, 1991).
- [Han01] D. C. Hanna, M. V. O’Connor, M. A. Watson et D. P. Shepherd, “Synchronously pumped optical parametric oscillator with diffraction-grating tuning”, *Journal of Physics D: Applied Physics* **34**(16), 2440 (2001).
- [Har77] R. J. Harris, G. T. Johnston, G. A. Kepple, P. C. Krok et H. Mukai, “Infrared thermooptic coefficient measurement of polycrystalline ZnSe, ZnS, CdTe, CaF₂, and BaF₂, single crystal KCl, and TI-20 glass”, *Appl. Opt.* **16**(2), 436–438 (1977).
- [Hei92] F. Heine, E. Heumann, G. Huber et K. L. Schepler, “Mode locking of room-temperature cw thulium and holmium lasers”, *Applied Physics Letters* **60**(10), 1161–1162 (1992).
- [Hen10] M. Henriksson, *Tandem optical parametric oscillators using volume Bragg grating spectral control*, Thèse de doctorat, Royal Institute of Technology (2010).
- [Her94] J. Herrmann, “Theory of Kerr-lens mode locking: role of self-focusing and radially varying gain”, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**(3), 498–512 (1994).
- [Hol05] S. Holmgren, V. Pasiskevicius et F. Laurell, “Generation of 2.8 ps pulses by mode-locking a Nd:GdVO₄ laser with defocusing cascaded Kerr lensing in periodically poled KTP”, *Opt. Express* **13**(14), 5270–5278 (2005).
- [Hua92] D. Huang, M. Ulman, L. H. Acioli, H. A. Haus et J. G. Fujimoto, “Self-focusing-induced saturable loss for laser mode locking”, *Opt. Lett.* **17**(7), 511–513 (1992).
- [Hua96] X. G. Huang, W. K. Lee, S. P. Wong, J. Y. Zhou et Z. X. Yu, “Effects of thermal lensing on stability and astigmatic compensation of a Z-fold laser cavity”, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**(12), 2863–2868 (1996).
- [Ili10] H. Iliiev, I. Buchvarov, S. Kurimura et V. Petrov, “High-power picosecond Nd:GdVO₄ laser mode locked by SHG in periodically poled stoichiometric lithium tantalate”, *Opt. Lett.* **35**(7), 1016–1018 (2010).

-
- [Ime98] G. Imeshev, M. Proctor et M. M. Fejer, “Phase correction in double-pass quasi-phase-matched second-harmonic generation with a wedged crystal”, *Opt. Lett.* **23**(3), 165–167 (1998).
- [ISO99] “Norme NF EN ISO 11146”, (1999).
- [Jae09] J. Jaeck, *Emission infrarouge sous champ électrique dans le cristal de ZnSe dopée chrome*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2009).
- [Jun97] D. H. Jundt, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate”, *Opt. Lett.* **22**(20), 1553–1555 (1997).
- [Kal95] V. L. Kalashnikov, V. P. Kalosha, V. P. Mikhailov et I. G. Poloyko, “Self-mode locking of four-mirror-cavity solid-state lasers by Kerr self-focusing”, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**(3), 462–467 (1995).
- [Kal03] V. Kalashnikov, E. Sorokin et I. Sorokina, “Multipulse operation and limits of the Kerr-lens mode-locking stability”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **39**(2), 323 – 336 (2003).
- [Küc02] S. Kück, “Spectroscopy and laser characteristics of Cr²⁺-doped chalcogenide crystals – overview and recent results”, *Journal of Alloys and Compounds* **341**(1-2), 28 – 33 (2002).
- [Kel96] U. Keller, K. J. Weingarten, F. X. Kartner, D. Kopf, B. Braun, I. D. Jung, R. Fluck, C. Honninger, N. Matuschek et J. A. der Au, “Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM’s) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers”, *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* **2**(3), 435–453 (1996).
- [Ken98] G. T. Kennedy, D. T. Reid, A. Miller, M. Ebrahimzadeh, H. Karlsson, G. Arvidsson et F. Laurell, “Near- to mid-infrared picosecond optical parametric oscillator based on periodically poled RbTiOAsO₄”, *Opt. Lett.* **23**(7), 503–505 (1998).
- [Kha94] J. D. V. Khaydarov, J. H. Andrews et K. D. Singer, “Pulse compression in a synchronously pumped optical parametric oscillator from group-velocity mismatch”, *Opt. Lett.* **19**(11), 831–833 (1994).
- [Kha95] J. D. V. Khaydarov, J. H. Andrews et K. D. Singer, “Pulse-compression mechanism in a synchronously pumped optical parametric oscillator”, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**(11), 2199–2208 (1995).
- [Kie10] F. Kienle, K. K. Chen, S. ul Alam, C. B. E. Gawith, J. I. Mackenzie, D. C. Hanna, D. J. Richardson et D. P. Shepherd, “High-power, variable repetition rate, picosecond optical parametric oscillator pumped by an amplified gain-switched diode”, *Opt. Express* **18**(8), 7602–7610 (2010).

- [Kis04] V. E. Kisel, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. I. Konstantinov, L. I. Postnova, V. I. Levchenko, E. Sorokin et I. Sorokina, “Emission lifetime measurements and laser performance of Cr:ZnSe under diode pumping at 1770 nm”, in *Advanced Solid-State Photonics*, p. WB16 (Optical Society of America, 2004).
- [Koe70] W. Koechner, “Thermal Lensing in a Nd:YAG Laser Rod”, *Appl. Opt.* **9**(11), 2548–2553 (1970).
- [Kog72] H. Kogelnik, E. Ippen, A. Dienes et C. Shank, “Astigmatically compensated cavities for CW dye lasers”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **8**(3), 373 – 379 (1972).
- [Kok09] O. Kokabee, A. Esteban-Martin et M. Ebrahim-Zadeh, “Extended-cavity, tunable, GHz-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator pumped at 76 MHz”, *Opt. Express* **17**(18), 15635–15640 (2009).
- [Kok10] O. Kokabee, A. Esteban-Martin et M. Ebrahim-Zadeh, “Efficient, high-power, ytterbium-fiber-laser-pumped picosecond optical parametric oscillator”, *Opt. Lett.* **35**(19), 3210–3212 (2010).
- [Lag10] A. A. Lagatsky, X. Han, M. D. Serrano, C. Cascales, C. Zaldo, S. Calvez, M. D. Dawson, J. A. Gupta, C. T. A. Brown et W. Sibbett, “Femtosecond (191 fs) NaY(WO₄)₂ Tm,Ho-codoped laser at 2060 nm”, *Opt. Lett.* **35**(18), 3027–3029 (2010).
- [Lef98] L. Lefort, K. Puech, G. W. Ross, Y. P. Svirko et D. C. Hanna, “Optical parametric oscillation out to 6.3 μ m in periodically poled lithium niobate under strong idler absorption”, *Applied Physics Letters* **73**(12), 1610–1612 (1998).
- [Lin95] K.-H. Lin, Y. Lai et W.-F. Hsieh, “Simple analytical method of cavity design for astigmatism-compensated Kerr-lens mode-locked ring lasers and its applications”, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**(3), 468–475 (1995).
- [Lin05] J.-H. Lin, W.-H. Yang, W.-F. Hsieh et K.-H. Lin, “Low threshold and high power output of a diode-pumped nonlinear mirror mode-locked Nd:GdVO₄ laser”, *Opt. Express* **13**(17), 6323–6329 (2005).
- [Lou01a] S. Louis, V. Couderc, F. Louradour, P. Faugeras et A. Barthelemy, “Nonlinear polarization evolution in type I and type II second-harmonic-generation crystals applied to the mode locking of a pulsed Nd:YAG laser”, *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **3**(2), 139 (2001).
- [Lou01b] F. Louradour, A. Mugnier, A. Albert, V. Couderc et A. Barthelemy, “Numerical study of quadratic polarization switching mode locking applied to femtosecond pulse generation”, *Optics Communications* **188**(5-6), 333 – 344 (2001).

-
- [Mag93a] V. Magni, G. Cerullo et S. D. Silvestri, “ABCD matrix analysis of propagation of gaussian beams through Kerr media”, *Optics Communications* **96**(4-6), 348 – 355 (1993).
- [Mag93b] V. Magni, G. Cerullo et S. D. Silvestri, “Closed form gaussian beam analysis of resonators containing a Kerr medium for femtosecond lasers”, *Optics Communications* **101**(5-6), 365 – 370 (1993).
- [Mag96] V. Magni, “Perturbation theory of nonlinear resonators with an application to Kerr-lens mode locking”, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**(11), 2498–2507 (1996).
- [Man99] A. A. Mani, P. Hollander, P. A. Thiry et A. Peremans, “All-solid-state 12 ps actively passively mode-locked pulsed Nd:YAG laser using a nonlinear mirror”, *Applied Physics Letters* **75**(20), 3066–3068 (1999).
- [Mar00] S. Marzenell, R. Beigang et R. Wallenstein, “Limitations and guidelines for measuring the spectral width of ultrashort light pulses with a scanning Fabry-Pérot interferometer”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **71**, 185–191 (2000).
- [Mas66] K. Masumoto, S. Isomura et W. Goto, “The preparation and properties of ZnSiAs₂, ZnGeP₂ and CdGeP₂ semiconducting compounds”, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **27**(11-12), 1939 – 1947 (1966).
- [Mau09] R. Maulini, I. Dunayevskiy, A. Lyakh, A. Tsekoun, C. Patel, L. Diehl, C. Pflügl et F. Capasso, “Widely tunable high-power external cavity quantum cascade laser operating in continuous-wave at room temperature”, *Electron. Lett* **45**(2), 107–108 (2009).
- [McC10] T. S. McComb, R. A. Sims, C. C. C. Willis, P. Kadwani, V. Sudesh, L. Shah et M. Richardson, “High-power widely tunable thulium fiber lasers”, *Appl. Opt.* **49**(32), 6236–6242 (2010).
- [McE98] K. J. McEwan, “High-power synchronously pumped AgGaS₂ optical parametric oscillator”, *Opt. Lett.* **23**(9), 667–669 (1998).
- [Mel07] J.-M. Melkonian, *Mise en forme spectrale et temporelle de sources optiques infrarouges par mélange non-linéaire à trois ondes*, Thèse de doctorat, Ecole polytechnique (2007).
- [Men00] G. Mennerat, *Conception, modélisation et réalisation d’une source cohérente de forte énergie accordable dans le moyen infrarouge*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg (2000).
- [Mir07] S. Mirov, V. Fedorov, I. Moskalev et D. Martyshkin, “Recent Progress in Transition-Metal-Doped II–VI Mid-IR Lasers”, *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **13**(3), 810 –822 (2007).

- [Mir10] S. Mirov, V. Fedorov, I. Moskalev, D. Martyshkin et C. Kim, “Progress in Cr²⁺ and Fe²⁺ doped mid-IR laser materials”, *Laser & Photon. Rev.* **4**(1), 21–41 (2010).
- [Mon02] M. Mond, D. Albrecht, E. Heumann, G. Huber, S. Kück, V. I. Levchenko, V. N. Yakimovich, V. G. Shcherbitsky, V. E. Kisel, N. V. Kuleshov, M. Rattunde, J. Schmitz, R. Kiefer et J. Wagner, “1.9- μ m and 2.0- μ m laser diode pumping of Cr²⁺:ZnSe and Cr²⁺:CdMnTe”, *Opt. Lett.* **27**(12), 1034–1036 (2002).
- [Mos08a] I. Moskalev, V. Fedorov et S. Mirov, “Self-starting Kerr-mode-locked polycrystalline Cr²⁺:ZnSe laser”, in *Lasers and Electro-Optics, 2008 and 2008 Conference on Quantum Electronics and Laser Science. CLEO/QELS 2008. Conference on*, p. 1–2 (2008).
- [Mos08b] I. S. Moskalev, V. V. Fedorov et S. B. Mirov, “Tunable, Single-Frequency, and Multi-Watt Continuous-Wave Cr²⁺:ZnSe Lasers”, *Opt. Express* **16**(6), 4145–4153 (2008).
- [Mos09a] I. S. Moskalev, V. V. Fedorov et S. B. Mirov, “10-Watt, pure continuous-wave, polycrystalline Cr²⁺:ZnS laser”, *Opt. Express* **17**(4), 2048–2056 (2009).
- [Mos09b] I. S. Moskalev, V. V. Fedorov, S. B. Mirov, P. A. Berry et K. L. Schepler, “12-Watt CW Polycrystalline Cr²⁺:ZnSe Laser Pumped by Tm-Fiber Laser”, in *Advanced Solid-State Photonics*, OSA Technical Digest Series (CD), p. WB30 (Optical Society of America, 2009). TY - CONF.
- [Mos10] I. S. Moskalev, V. V. Fedorov et S. B. Mirov, “Highly-Efficient, Widely-Tunable, Mid-IR Cr:ZnS and Cr:ZnSe CW Lasers Pumped by 1685 nm InP Laser Diode”, in *Advanced Solid-State Photonics*, p. ATuA11 (Optical Society of America, 2010).
- [Mye95] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg et J. W. Pierce, “Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃”, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**(11), 2102–2116 (1995).
- [NH97] H. W. N. Hodgson, *Optical Resonators Fundamentals, advanced concepts and Applications* (Springer Berlin / Heidelberg, 1997).
- [Nou10] R. Nouroozi, H. Suche, A. Hellwig, R. Ricken, V. Quiring et W. Sohler, “Phase control of double-pass cascaded SHG/DFG wavelength conversion in Ti:PPLN channel waveguides”, *Opt. Express* **18**(13), 14225–14231 (2010).
- [Pag97] R. H. Page, K. I. Schaffers, L. D. DeLoach, G. D. Wilke, F. D. Patel, J. John B. Tassano, S. A. Payne, W. F. Krupke, K.-T. Chen et A. Burger, “Cr²⁺-doped zinc chalcogenides as efficient, widelytunable mid-infrared lasers”, *IEEE J. Quantum Electron.* **33**(4), 609–619 (1997).

- [Pea99] S. Pearl, H. Lotem, Y. Shimony et S. Rosenwaks, “Optimization of laser intracavity second-harmonic generation by a linear dispersion element”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(10), 1705–1711 (1999).
- [PeI94] B. PeIz, M. K. Schott et M. H. Niemz, “Electro-optic mode locking of an erbium:YAG laser with a rf resonance transformer”, *Appl. Opt.* **33**(3), 364–367 (1994).
- [Per09] A. Peremans, D. Lis, F. Cecchet, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski et V. Petrov, “Noncritical singly resonant synchronously pumped OPO for generation of picosecond pulses in the mid-infrared near $6.4\ \mu\text{m}$ ”, *Opt. Lett.* **34**(20), 3053–3055 (2009).
- [Pol05] C. Pollock, N. Brilliant, D. Gwin, T. J. Carrig, W. J. A. an J. B. Heroux, W. I. Wang, I. Vurgaftman et J. R. Meyer, “Mode Locked and Q-Switched Cr:ZnSe Laser Using a Semiconductor Saturable Absorbing Mirror (SESAM)”, in *Advanced Solid-State Photonics*, OSA Technical Digest Series, p. TuA6 (Optical Society of America, Washington DC, USA, 2005).
- [Pre93] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky et W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in C* (Cambridge University Press, New York, 1993).
- [Pue99] K. Puech, L. Lefort et D. C. Hanna, “Broad tuning around degeneracy in a singly resonant synchronously pumped parametric oscillator by means of a diffraction grating”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(9), 1533–1538 (1999).
- [Rab99] C. Rablau, *Photoluminescence and Optical Absorption Spectroscopy of Infrared Materials $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ and ZnGeP_2* , Thèse de doctorat, West Virginia University (1999).
- [Ray09] M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A. K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser et P. Kaspersen, “High-energy single-longitudinal mode nearly diffraction-limited optical parametric source with 3 MHz frequency stability for CO₂ DIAL”, *Opt. Lett.* **34**(13), 2069–2071 (2009).
- [Raz09] M. Razeghi, S. Slivken, Y. Bai, B. Gokden et S. R. Darvish, “High power quantum cascade lasers”, *New Journal of Physics* **11**(12), 125017 (13pp) (2009).
- [Rya08] A. Ryasnyanskiy, “Fourier transformed picosecond synchronously pumped optical parametric oscillator without spectral filtering element”, *Journal of the European Optical Society* **3**, 08037 (2008).
- [Saa09] B. G. Saar, G. R. Holtom, C. W. Freudiger, C. Ackermann, W. Hill et X. S. Xie, “Intracavity wavelength modulation of an optical parametric oscillator for coherent Raman microscopy”, *Opt. Express* **17**(15), 12532–12539 (2009).
- [Sai03] J. Saikawa et T. Taira, “Second-Harmonic Nonlinear Mirror CW Mode Locking in Yb:YAG Microchip Lasers”, *Japanese Journal of Applied Physics* **42**(Part 2, No. 6B), L649–L651 (2003).

- [Sal99] S. Saltiel, I. Buchvarov et K. Koynov, “Control of laser light parameters by $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ nonlinear optical devices”, in *Advanced photonics with second-order nonlinear processes*, édité par A. Boardman, p. 89–112 (Kluwer Academic, Dordrecht, Netherlands, 1999).
- [Sch06] S. L. Schieffer, D. Brajkovic, A. I. Cornea et W. A. Schroeder, “Low-threshold, dual-passive mode locking of a large mode area Nd:GdVO₄ laser”, *Opt. Express* **14**(15), 6694–6704 (2006).
- [Sch07] J. E. Schaar, K. L. Vodopyanov et M. M. Fejer, “Intracavity terahertz-wave generation in a synchronously pumped optical parametric oscillator using quasi-phase-matched GaAs”, *Opt. Lett.* **32**(10), 1284–1286 (2007).
- [Seg10] M. Segura, X. Mateos, M. C. Pujol, J. J. Carvajal, M. Aguiló, F. Díaz, V. Panyutin, U. Griebner et V. Petrov, “Diode-Pumped Passively Q-Switched Tm:KLuW Laser with a Cr²⁺:ZnSe Saturable Absorber”, in *Advanced Solid-State Photonics*, p. ATuA6 (Optical Society of America, 2010).
- [Sen00] A. Sennaroglu, A. Konca et C. Pollock, “Continuous-wave power performance of a 2.47- μ m Cr²⁺:ZnSe laser: experiment and modeling”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **36**(10), 1199 –1205 (2000).
- [Sen07] A. Sennaroglu, U. Demirbas, A. Kurt et M. Somer, “Direct Experimental Determination of the Optimum Chromium Concentration in Continuous-Wave Cr²⁺:ZnSe Lasers”, *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **13**(3), 823 –830 (2007).
- [Ser00] J. Seres et J. Hebling, “Nonstationary theory of synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **17**(5), 741–750 (2000).
- [Sha96] R. C. Sharp, D. E. Spock, N. Pan et J. Elliot, “190-fs passively mode-locked thulium fiber laser with a low threshold”, *Opt. Lett.* **21**(12), 881–883 (1996).
- [Sie86] A. E. Siegman, *Lasers* (University Science Books, 1986).
- [Smi99] A. V. Smith, R. J. Gehr et M. S. Bowers, “Numerical models of broad-bandwidth nanosecond optical parametric oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**(4), 609–619 (1999).
- [Smi00] A. V. Smith, “How to select nonlinear crystals and model their performance using SNLO software”, in *Proc. SPIE 3928 web* : <http://www.as-photonics.com/SNLO.html> (2000).
- [Smi05] A. V. Smith, “Bandwidth and group-velocity effects in nanosecond optical parametric amplifiers and oscillators”, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**(9), 1953–1965 (2005).

-
- [Sol08] M. A. Solodyankin, E. D. Obraztsova, A. S. Lobach, A. I. Chernov, A. V. Tausenev, V. I. Konov et E. M. Dianov, “Mode-locked $1.93\ \mu\text{m}$ thulium fiber laser with a carbon nanotube absorber”, *Opt. Lett.* **33**(12), 1336–1338 (2008).
 - [Sor01] I. Sorokina, E. Sorokin, A. D. Lieto, M. Tonelli, R. H. Page et K. I. Schaff, “Active and passive mode-locking of $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser”, in *Advanced Solid-State Lasers*, p. MC2 (Optical Society of America, 2001).
 - [Sor02a] E. Sorokin et I. T. Sorokina, “Tunable diode-pumped continuous-wave $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser”, *Applied Physics Letters* **80**(18), 3289–3291 (2002).
 - [Sor02b] I. T. Sorokina, E. Sorokin, S. Mirov, V. Fedorov, V. Badikov, V. Panyutin et K. I. Schaffers, “Broadly tunable compact continuous-wave $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnS}$ laser”, *Opt. Lett.* **27**(12), 1040–1042 (2002).
 - [Sor04] I. T. Sorokina, “ Cr^{2+} -doped II-VI materials for lasers and nonlinear optics”, *Optical Materials* **26**(4), 395 – 412 (2004). Third International Symposium on Lasers and Nonlinear Optical Materials (ISLNOM-3).
 - [Sor05] E. Sorokin, S. Naumov et I. Sorokina, “Ultrabroadband infrared solid-state lasers”, *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of* **11**(3), 690 – 712 (2005).
 - [Sor06] I. T. Sorokina, E. Sorokin, T. J. Carrig et K. I. Schaffers, “A SESAM Passively Mode-Locked $\text{Cr}:\text{ZnS}$ Laser”, in *Advanced Solid-State Photonics*, p. TuA4 (Optical Society of America, 2006).
 - [Sor07] I. T. Sorokina et E. Sorokin, “Chirped-Mirror Dispersion Controlled Femtosecond $\text{Cr}:\text{ZnSe}$ Laser”, in *Advanced Solid-State Photonics*, p. WA7 (Optical Society of America, 2007).
 - [Sor09] E. Sorokin et I. Sorokina, “Ultrashort-pulsed Kerr-lens modelocked $\text{Cr}:\text{ZnSe}$ laser”, in *Lasers and Electro-Optics 2009 and the European Quantum Electronics Conference. CLEO Europe - EQEC 2009. European Conference on*, p. 1 –1 (2009).
 - [Sta88a] K. Stankov et J. Jethwa, “A new mode-locking technique using a nonlinear mirror”, *Optics Communications* **66**(1), 41 – 46 (1988).
 - [Sta88b] K. A. Stankov, “A mirror with an intensity-dependent reflection coefficient”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **45**, 191–195 (1988).
 - [Sta89a] K. Stankov, “Methods of passive and active mode locking using intracavity optical frequency mixing”, *Opt. Lett.* **14**(1), 51–53 (1989).
 - [Sta89b] K. Stankov, “Mode locking by a frequency-doubling crystal: generation of transform-limited ultrashort light pulses”, *Opt. Lett.* **14**(7), 359–361 (1989).
 - [Sta89c] K. Stankov, “Pulse shortening by a nonlinear mirror mode locker”, *Appl. Opt.* **28**(5), 942–945 (1989).

- [Sta91a] K. Stankov, V. Kubecek et K. Hamal, “Mode locking of a Nd:YAlO₃ laser at 1.08 and 1.34 μm wavelengths using a single LiIO₃ crystal”, *Quantum Electronics, IEEE Journal of* **27**(9), 2135–2141 (1991).
- [Sta91b] K. A. Stankov, V. Kubecek et K. Hamal, “Mode locking of a Nd:YAlO₃ laser at the 1.34- μm transition by a second-harmonic nonlinear mirror”, *Opt. Lett.* **16**(7), 505–507 (1991).
- [Sta91c] K. A. Stankov, V. P. Tzolov et M. G. Mirkov, “Frequency-domain analysis of the mode-locking process in a laser with a second-harmonic nonlinear mirror”, *Opt. Lett.* **16**(9), 639–641 (1991).
- [Sta91d] K. A. Stankov, V. P. Tzolov et M. G. Mirkov, “Frequency-doubling mode locker: the influence of group-velocity mismatch”, *Opt. Lett.* **16**(14), 1119–1121 (1991).
- [Sta92] K. A. Stankov, V. P. Tzolov et M. G. Mirkov, “Nonreciprocal optical device based on second-harmonic generation”, *Appl. Opt.* **31**(24), 5003–5009 (1992).
- [Sta93] K. Stankov, K. Hamal, H. Jelinkova et I. Prochazka, “Mode-locking of the 1.66 μm transition of an Er: YAlO₃ laser”, *Optics Communications* **95**(1-3), 85 – 86 (1993).
- [Ste96] G. I. Stegeman, D. J. Hagan et L. Torner, “ $\chi^{(2)}$ cascading phenomena and their applications to all-optical signal processing, mode-locking, pulse compression and solitons”, *Opt. Quantum Electron.* **28**(12), 1691–1740 (1996).
- [Sto10] D. J. M. Stothard et M. H. Dunn, “Relaxation oscillation suppression in continuous-wave intracavity optical parametric oscillators”, *Opt. Express* **18**(2), 1336–1348 (2010).
- [Tho10] G. M. Thomas, A. Bäuerle, D. J. Farrell et M. J. Damzen, “Nonlinear mirror mode-locking of a bounce geometry laser”, *Opt. Express* **18**(12), 12663–12668 (2010).
- [Tit03] F. Tittel, D. Richter et A. Fried, “Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy”, in *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, v. 89 de *Topics in Applied Physics*, édité par I. Sorokina et K. Vodopyanov, p. 458–529 (Springer Berlin / Heidelberg, 2003).
- [Toc98] G. Toci, M. Vannini et R. Salimbeni, “Perturbative model for nonstationary second-order cascaded effects”, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**(1), 103–117 (1998).
- [Tzo91] V. Tzolov, M. Mirkov et K. Stankov, “Analysis of a frequency-doubling nonlinear mirror with enhanced nonlinearity”, *Optics Communications* **84**(1-2), 95 – 98 (1991).
- [Vel10] A. Velten, A. Zavadilova, V. Kubecek et J.-C. Diels, “Instabilities in intracavity pumped optical parametric oscillators and methods of stabilization”, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **98**, 13–25 (2010).

-
- [Ver00] G. A. Verozubova, A. I. Gribenyukov, V. V. Korotkova, O. Semchinova et D. Uffmann, “Synthesis and growth of ZnGeP₂ crystals for nonlinear optical applications”, *Journal of Crystal Growth* **213**(3-4), 334 – 339 (2000).
- [Vod91] K. L. Vodopyanov, A. V. Lukashev, C. C. Phillips et I. T. Ferguson, “Passive mode locking and Q switching of an erbium 3 μ m laser using thin InAs epilayers grown by molecular beam epitaxy”, *Applied Physics Letters* **59**(14), 1658–1660 (1991).
- [Vod03] K. L. Vodopyanov et P. G. Schunemann, “Broadly tunable noncritically phase-matched ZnGeP₂ optical parametric oscillator with a 2- μ J pump threshold”, *Opt. Lett.* **28**(6), 441–443 (2003).
- [Wag99] G. J. Wagner, T. J. Carrig, R. H. Page, K. I. Schaffers, J.-O. Ndap, X. Ma et A. Burger, “Continuous-wave broadly tunable Cr²⁺:ZnSe laser”, *Opt. Lett.* **24**(1), 19–21 (1999).
- [Wan09a] C. Y. Wang, L. Kuznetsova, V. M. Gkortsas, L. Diehl, F. X. Kärtner, M. A. Belkin, A. Belyanin, X. Li, D. Ham, H. Schneider, P. Grant, C. Y. Song, S. Haffouz, Z. R. Wasilewski, H. Liu et F. Capasso, “Mode-locked pulses from mid-infrared Quantum Cascade Lasers”, *Opt. Express* **17**(15), 12929–12943 (2009).
- [Wan09b] Q. Wang, J. Geng, T. Luo et S. Jiang, “Mode-locked 2 μ m laser with highly thulium-doped silicate fiber”, *Opt. Lett.* **34**(23), 3616–3618 (2009).
- [Wat02] M. A. Watson, M. V. O’Connor, P. S. Lloyd, D. P. Shepherd, D. C. Hanna, C. B. E. Gawith, L. Ming, P. G. R. Smith et O. Balachninaite, “Extended operation of synchronously pumped optical parametric oscillators to longer idler wavelengths”, *Opt. Lett.* **27**(23), 2106–2108 (2002).
- [Wat03] M. A. Watson, M. V. O’Connor, D. P. Shepherd et D. C. Hanna, “Synchronously pumped CdSe optical parametric oscillator in the 9–10 μ m region”, *Opt. Lett.* **28**(20), 1957 (2003).
- [Wil10] J. E. Williams, V. V. Fedorov, D. V. Martyshkin, I. S. Moskalev, R. P. Camata et S. B. Mirov, “Mid-IR laser oscillation in Cr²⁺:ZnSe planar waveguide”, *Opt. Express* **18**(25), 25999–26006 (2010).
- [Wit06] A. Wittmann, M. Giovannini, J. Faist, L. Hvozdar, S. Blaser, D. Hofstetter et E. Gini, “Room temperature, continuous wave operation of distributed feedback quantum cascade lasers with widely spaced operation frequencies”, *Applied Physics Letters* **89**(14), 141116 (2006).
- [Wya81] R. Wyatt et D. Cotter, “A tunable picosecond IR laser generating multi-megawatt pulses in the range 3-8 μ m”, *Optics Communications* **37**(6), 421 – 425 (1981).

- [Zaw06] K. T. Zawilski, S. D. Setzler, P. G. Schunemann et T. M. Pollak, “Increasing the laser-induced damage threshold of single-crystal ZnGeP₂”, J. Opt. Soc. Am. B **23**(11), 2310–2316 (2006).
- [Zel01] D. E. Zelmon, E. A. Hanning et P. G. Schunemann, “Refractive-index measurements and Sellmeier coefficients for zinc germanium phosphide from 2 to 9 μm with implications for phase matching in optical frequency-conversion devices”, J. Opt. Soc. Am. B **18**(9), 1307–1310 (2001).
- [Zha92] X. Zhao et D. McGraw, “Parametric mode locking”, Quantum Electronics, IEEE Journal of **28**(4), 930 –939 (1992).
- [ZR98] M. Zavelani-Rossi, G. Cerullo et V. Magni, “Mode locking by cascading of second-order nonlinearities”, Quantum Electronics, IEEE Journal of **34**(1), 61 –70 (1998).

Jean-Baptiste Dherbecourt

**Processus non linéaires pour la génération d'impulsions picosecondes largement
accordables dans l'infrarouge moyen**

Résumé : De nombreuses applications, telles que la spectroscopie résolue en temps, requièrent de développer de nouvelles sources laser, qui émettent des impulsions courtes et accordables dans l'infrarouge moyen. Dans ce domaine, l'optique non linéaire apporte un grand nombre de solutions. D'une part les processus de conversion de fréquence permettent d'envisager l'extension du domaine spectral couvert par les sources laser. D'autre part les spécificités des processus non linéaires permettent d'envisager la création de fonctions optiques rapides. Dans ces travaux, nous mettons à profit ces deux aspects à travers la réalisation de dispositifs originaux de génération d'impulsions picosecondes. La première contribution de la thèse est la réalisation d'une source OPO à pompage synchrone basée sur un cristal de ZGP émettant des impulsions picosecondes dans la bande 3,8 μm - 5,6 μm . Les performances des différents étages de conversion sont discutées à la fois par des considérations expérimentales et numériques. La seconde contribution est le développement d'une source laser ZnSe:Cr²⁺ à modes verrouillés par un dispositif de miroir non linéaire d'ordre 2 à base de PPLN, accordable dans la bande 2,45 μm - 2,55 μm . Le miroir non linéaire est tout d'abord caractérisé en dehors de la cavité laser, puis le verrouillage de mode du laser est expérimentalement réalisé. Nous proposons enfin de généraliser la fonction miroir non linéaire en donnant les conditions d'obtention d'un verrouillage de modes par la modulation combinée de l'amplitude et de la phase de l'onde laser.

Mots-clés : laser; oscillateur paramétrique optique; infrarouge; picoseconde; verrouillage de modes; miroir non linéaire; doublage de fréquence; effet Kerr optique; non-linéarités en cascade; PPLN; ZGP; ZnSe:Cr²⁺.

Nonlinear processes for mid-infrared widely tunable picosecond pulses generation

Abstract: Many applications, like time-resolved spectroscopy, require the development of new coherent light sources emitting tunable short pulses in the mid-infrared. In this field, nonlinear optics offer particularly attractive solutions. First of all, the parametric generation process allows extension of the spectral coverage of conventional laser sources. Secondly, nonlinear processes display specific properties, which can be controlled in order to create original fast optical functions. In this work, we use these properties to realize picosecond pulses generation devices. We begin with the realization of a synchronously pumped OPO based on a ZGP crystal, emitting tunable picosecond pulses in the 3,8 μm - 5,6 μm spectral range. The performances of the different conversion stages are discussed from experimental and numerical considerations. Then we address optical sources including a laser medium and a nonlinear crystal. We build a nonlinear mirror using a PPLN crystal and insert it in a Cr²⁺:ZnSe laser to produce tunable picosecond pulses by passive modelocking in the 2,45 μm - 2,55 μm range. The nonlinear mirror is designed and characterized in an extracavity experiment, then we detail the mode-locking experiment. Finally, we generalize the nonlinear mirror concept, by proposing means of getting passive mode-locking by combination of amplitude and phase modulation in the laser cavity.

Keywords: laser; optical parametric oscillator; infrared; picosecond; modelocking; nonlinear mirror; second harmonic generation; optical kerr effect; $\chi^{(2)}$ cascading; PPLN; ZGP; Cr²⁺:ZnSe.

Office National d'Études et de Recherches Aéronautiques

BP 72 - 29 avenue de la Division Leclerc

92322 CHATILLON CEDEX

Tel. : + 33 (0) 1 46 73 40 40 - Fax : + 33 (0) 1 46 73 41 41

<http://www.onera.fr>