

ADAPTATION DE TECHNIQUES ULTRARAPIDES AUX LASERS YTTERBIUM : COMPRESSION ET CARACTÉRISATION D'IMPULSIONS

Par
Adrien Longa

Thèse présentée pour l'obtention du grade de
Philosophiae Doctor (Ph.D.)
en sciences de l'Énergie et des Matériaux

Jury d'évaluation

Président du jury et
examineur interne

Tsuneyuki Ozaki
Professeur à l'INRS
Centre Énergie Matériaux Télécommuni-
cations

Examineur externe

Marc Hanna
Directeur de recherche au CNRS
Laboratoire Charles Fabry, IOGS

Examineur externe

François Blanchard
Professeur à l'ETS
Département de génie électrique

Directeur de recherche

François Légaré
Professeur à l'INRS
Directeur du Centre Énergie Matériaux
Télécommunications

REMERCIEMENTS

Je tenais à prendre un moment pour exprimer ma gratitude envers ceux qui ont joué un rôle essentiel dans l'élaboration de cette thèse.

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mon directeur de thèse, le Professeur François Légaré. Le fait de m'avoir fait confiance et lancé directement sur un projet ambitieux dans un laboratoire rempli de lasers et d'instruments complexes est une méthode qui à mon avis, a réussi avec moi. Cela m'a permis d'acquérir et de développer de nouvelles compétences en me confrontant à une série de nouveaux défis. Ça a vraiment été une super période d'apprentissage et de développement pour moi. Ton expertise, tes conseils éclairés et ton dévouement de toute heure ont été indispensables tout au long de mon doctorat.

Je désire aussi remercier tous les membres du groupe de recherche à l'INRS, qu'ils soient étudiants ou professionnels, tous ayant apporté leurs contributions au succès de ces travaux de différentes manières. Je tiens à mentionner spécifiquement, sans ordre particulier, quelques noms qui ont joué un rôle crucial. En premier lieu, Antoine Laramée et Philippe Lassonde, qui m'ont tout appris sur le fonctionnement du laboratoire. Mayank Kumar, avec qui j'ai partagé mon bureau pendant 4 ans, et qui a été de formidables conseils tout au long de ma thèse. Elissa Haddad, toujours disponible et de bonne humeur, qui a su me motiver à certains moments et me faire gagner un temps précieux d'en d'autres par son expertise. Loïc Arias, avec qui j'ai eu la chance de collaborer, toujours présent et motivé. Et enfin Gaëtan Jargot, d'une grande expertise dans le laboratoire et avec qui j'ai bu beaucoup trop de café.

Je souhaite exprimer ma gratitude envers ma famille et mes amis, qui ont été une source inépuisable d'encouragement, de compréhension et de soutien bien qu'ils ne puissent pas toujours en saisir tous les détails. Je n'aurais jamais pu finir ces longues études sans leur soutien. Je souhaite aussi remercier Julie, qui a toujours été là dans les périodes difficiles comme heureuses. Son support et son amour m'ont permis de traverser les périodes d'échecs et de doutes. Elle m'a aidé à rester ancré dans la réalité et à prendre conscience progressivement de l'ampleur de mon parcours. Je te serai éternellement reconnaissant.

À tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à cette thèse, je vous adresse mes plus sincères remerciements. Votre collaboration et votre soutien ont été des éléments essentiels de cette aventure scientifique, et je suis reconnaissant d'avoir eu le privilège de travailler et d'apprendre à vos côtés.

RÉSUMÉ

Les impulsions ultracourtes se révèlent être d'excellents instruments pour étudier les caractéristiques de la matière à des échelles de temps très courtes, particulièrement pour des systèmes atomiques et moléculaires. Elles offrent la possibilité d'observer des phénomènes tels que les réactions chimiques, les transitions de phase et les déplacements électroniques avec une résolution temporelle exceptionnelle.

Les lasers basés sur la technologie Titane-Saphir (Ti:Sa) furent les premiers à démocratiser l'utilisation d'impulsions femtosecondes. Cependant, la cadence de ces lasers n'est pas assez élevée pour des expériences nécessitant des études statistiques. Plus récemment, le développement de la technologie Ytterbium pour les lasers permet d'atteindre des cadences beaucoup plus élevées, rendant bon nombre d'expériences maintenant réalisables.

Néanmoins, beaucoup de techniques développées autour des lasers Ti:Sa doivent être adaptées aux lasers Ytterbium. Cette thèse se concentrera sur l'adaptation de plusieurs techniques initialement conçues pour les lasers Ti:Sa aux lasers Ytterbium. La différence de cadence entre ces deux technologies engendre plusieurs effets additionnels qu'il faudra comprendre et maîtriser pour l'adaptation de ces techniques.

Nous présentons la compression d'impulsions ultracourtes de 300 *fs* à 17 *fs* à un taux de répétition de 20 *kHz* en utilisant les états solitoniques multidimensionnels (MDSS) dans une fibre creuse de 1 mètre (HCF) remplie de N₂O. Conçu initialement pour la technologie Ti:Sa, des limitations thermiques apparaissent à haute cadence et annihilent l'effet MDSS qui se traduit par suppression de l'élargissement spectral. Les résultats obtenus en pression différentielle atténuent les effets thermiques et augmentent de manière significative la cadence à laquelle le MDSS peut être utilisé pour compresser des impulsions laser subpicosecondes.

Nous présentons aussi la technique de commutation optique résolue en fréquences (FROSt) qui peut être utilisée pour caractériser des impulsions à très large bande à des taux de répétition élevés allant jusqu'à 500 *kHz*. Plus précisément, nous présentons la caractérisation temporelle complète d'un amplificateur paramétrique optique (OPA), du supercontinuum (SC) jusqu'au deuxième étage d'amplification. La caractérisation simultanée des impulsions de signal et d'idler copropagés permet d'avoir accès à leur retard de groupe, ainsi que leur phase temporelle et leur intensité. Notre étude se concentre sur une gamme de fréquences étendue couvrant la région infrarouge (1,2 à 2,4 μm) et confirme la force du FROSt en tant qu'outil unique pour la caractérisation d'une large gamme d'impulsions à un taux de répétition élevé.

Enfin, nous présentons la conception d'une source laser permettant de faire de la spectroscopie de photoémission résolue en angle et en temps (TR-ARPES). La source laser repose sur une sonde UV (6 *eV*) avec une largeur de bande de 10 *meV*, permettant des études complètes de la dynamique électronique induite dans l'infrarouge moyen. Des impulsions optiques intenses servant de pompe sont générées dans le proche et le moyen infrarouge par un amplificateur paramétrique optique (OPA) à trois étages d'amplifications, suivi d'une génération par différence de fréquences (DFG).

Mots-clés Caractérisation d'impulsions ultracourtes; expérience pompe-sonde; infrarouge moyen; états solitoniques multidimensionnels; compression d'impulsions; amplification paramétrique; optique non linéaire; fibre creuse.

ABSTRACT

Ultrashort pulses are proving to be excellent instruments for exploring the characteristics of matter on very short time scales, particularly for the atomic and molecular systems. They offer the possibility of observing phenomena such as chemical reactions, phase transitions and electronic displacements with exceptional temporal resolution.

Lasers based on Titane-Sapphir (Ti:Sa) technology were the first to democratize the use of femtosecond pulses. However, the repetition rate of these lasers is not high enough for experiments requiring statistical studies. More recently, the development of Ytterbium technology for lasers has made it possible to reach much higher repetition rates, making many experiments possible.

Nevertheless, all the techniques developed around Ti:Sa lasers now need to be adapted to Ytterbium lasers. This thesis will focus on adapting several techniques originally designed for Ti:Sa lasers to Ytterbium lasers. The difference in repetition rate between these two technologies generates several additional effects that need to be understood and mastered in order to adapt these techniques.

We present the compression of ultrashort pulses from 300 *fs* to 17 *fs* at a repetition rate of 20 *kHz* using multidimensional solitary states (MDSS) in a 1-meter hollow core fiber (HCF) filled with N₂O. Initially designed for Ti:Sa technology, thermal limitations appear at high repetition rate and annihilate the MDSS effect, which results in suppression of the spectral broadening. The results obtained with differential pressure mitigate thermal effects and significantly increase the repetition rate at which MDSS can be used to compress sub-picosecond laser pulses.

We also present that frequency-resolved optical switching (FROSt) can be used to characterize very broadband pulses at high repetition rates up to 500 *kHz*. More specifically, we present the complete temporal characterization of an optical parametric amplifier (OPA), from the supercontinuum (SC) to the second amplification stage. Simultaneous characterization of copropagated signal and idler pulses provides access to their group delay, as well as their temporal phase and intensity. Our study focuses on an extended frequency range covering the infrared region (1.2 to 2.4 *nm*), and confirms the strength of FROSt as a unique tool for characterizing a wide range of pulses at high repetition rates.

Finally, we present the design of a laser source for angle- and time-resolved photoemission spectroscopy (TR-ARPES). The laser source is based on a UV probe (6 *eV*) with a bandwidth of 10 *meV*, enabling comprehensive studies of induced electronic dynamics in the mid-infrared. Intense optical pump pulses are generated in the near and mid-infrared by a three-stage optical parametric amplifier (OPA), followed by difference frequency generation (DFG).

Keywords Ultrashort pulse characterization; pump-probe experiment; mid-infrared; multidimensional solitary states; pulse compression; optical parametric amplification; nonlinear optics; hollow core fiber.

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements	iii
Résumé	v
Abstract	vii
Table des matières	xxxvii
Liste des figures	xxxix
Liste des tableaux	xliv
Liste des abréviations	xlvii
1 Introduction	1
1.1 Impulsion femtoseconde	1
1.1.1 Description de l'impulsion	1
1.1.2 Domaine temporel et fréquentiel	3
1.1.3 L'importance de la source laser	4
1.2 Objectifs & réalisations	6
1.3 Chronologie	7
1.4 Division des chapitres	8
2 Propagation d'impulsions femtosecondes	11
2.1 Équation de propagation linéaire dans un matériau anisotrope	11
2.2 Dispersion chromatique	16
2.3 Phase spectrale	18
2.4 Gestion de la dispersion	20
2.5 Équation de propagation non linéaire	24
3 Amplification paramétrique optique	27
3.1 Relations de Manley-Rowe	27
3.2 Interaction à trois ondes	29
3.3 Accord de phase	30
3.3.1 Accord de phase biréfringent	32
3.3.2 Walk-off spatial and temporel	35
3.3.3 Accord de phase non colinéaire	37
3.3.4 Quasi-accord de phase	37

3.4	Cristaux non linéaires	39
3.4.1	Choix du cristal non linéaires	39
3.4.2	Cristaux non linéaires couramment utilisés	40
3.4.3	Cristaux à retournement de périodes périodiques	41
3.5	Application d'un système d'amplification paramétrique.	42
3.5.1	Le principe de la mesure ARPES	43
3.5.2	La mesure ARPES résolue dans le temps : TR-ARPES	44
3.5.3	Résumé français de <i>Longa et al. OE 2024</i> - Source MIR accordable et sonde à 6.0 eV pour des expériences TR-ARPES	46
4	Article - ARPES résolu en temps avec une sonde à 6.0 eV et une pompe MIR accordable à 250 kHz	49
4.1	Introduction	50
4.2	Optical Setup	51
4.2.1	Tunability	53
4.2.2	Long-term measurement and beam profile	54
4.2.3	Duration measurement.	54
4.3	TR-ARPES	55
4.4	Conclusion	57
5	Post-compression d'impulsion ultra-courte	59
5.1	L'effet Kerr.	59
5.1.1	Origine physique de l'indice de réfraction non linéaire	60
5.1.2	Auto-modulation de phase	61
5.1.3	Auto-focalisation	63
5.2	Diffusion Raman	65
5.2.1	Diffusion Raman dans des gaz moléculaires.	66
5.2.2	États solitoniques multidimensionnels (MDSS)	69
5.2.3	Résumé français de <i>Arias, Longa et al. OL 2022</i> - MDSS à haute cadence . . .	70
6	Article - Post-compression dans une fibre creuse à 20 kHz en utilisant des états solitoniques multidimensionnels	73
6.1	Introduction	74
6.2	Results	75
6.3	Conclusion	80

7	Caractérisation d’impulsions ultracourtes	83
7.1	Autocorrélation	84
7.1.1	Autocorrélateur en intensité.	84
7.1.2	Autocorrélateur à balayage ou à tir unique	86
7.1.3	Choix du cristal non linéaire et accord de phase.	86
7.1.4	Limites de la méthode d’autocorrélation	87
7.2	Gating optique résolu en fréquences (FROG).	88
7.2.1	Exemple du SHG-FROG	89
7.2.2	Variantes du FROG	90
7.2.3	Limitations	91
7.3	Commutation optique à résolution de fréquences	92
7.3.1	Absorption transitoire dans les solides.	93
7.3.2	Versatilité de la technique FROSt	94
7.3.3	Résumé Français de <i>Longa et al. OE 2022</i> - Précision du FROSt	96
7.3.4	Résumé Français de <i>Haddad, Longa et al. OE 2023</i> - FROSt à haute cadence.	97
7.3.5	Article supplémentaire 1 - Caractérisation temporelle d’impulsions infrarouges à deux octaves.	99
8	Article - Précision de la technique FROSt	101
8.1	Introduction	102
8.2	Methods	103
8.2.1	Experimental setup.	103
8.2.2	Results	105
8.3	Conclusion	108
9	Article - Caractérisation complète d’un amplificateur paramétrique optique	111
9.1	Introduction	112
9.2	Methods	113
9.3	Semiconductor relaxation dynamics	115
9.4	Supercontinuum characterization	117
9.5	Signal and idler characterization	118
9.6	Conclusion	120
10	Conclusion	123
	Bibliographie	125

LISTE DES FIGURES

1.1	Largeur Totale à Mi-Hauteur (FWHM).	3
2.1	Indices d'un cristal uniaxial.	13
2.2	Effet de la dispersion en fonction de la durée de l'impulsion	19
2.3	Compresseurs	21
2.4	Exemple de fonctionnement d'un miroir chirpé.	22
2.5	Exemple de fonctionnement d'un modulateur d'impulsion basé sur un modulateur spatial de lumière.	23
3.1	Diagrammes d'énergie à 3 ondes	29
3.2	Interactions à 3 ondes	31
3.3	Intensité en fonction de la condition d'accord de phase.	32
3.4	Accord de phase dans des matériaux isotrope et anisotrope.	33
3.5	Angle de walk-off spatial α	35
3.6	Walk-off temporel	36
3.7	Accord de phase non colinéaire.	37
3.8	Quasi-accord de phase.	38
3.9	Schéma de différentes variantes de PPLN	42
3.10	Schéma de la technique ARPES.	43
3.11	Principes de fonctionnement de la technique TR-ARPES.	45
4.1	Optical setup. BS: beam splitter. SC: supercontinuum generation in Yttrium Aluminium Garnet (YAG) crystal. OPA1: 1 mm long Periodically Poled MgO:LiNbO ₃ crystal. OPA2 and OPA3: 1.5 mm long MgO:LiNbO ₃ crystals. DFG: difference frequency generation. LGS: La ₃ Ga ₅ SiO ₁₄ crystal. WP: waveplate. BBO: BaB ₂ O ₄ crystal.	52
4.2	(a) Tunability of the OPA system for three different signal and idler couples (blue, orange and green). (b) Tunability of the DFG between 4 μm and 8 μm for the three different couples. The blue curve represents the average power.	53
4.3	(a) Long-term power measurement for the signal (1640 nm) and idler (2770 nm) pair generating 4 μm of DFG light. The measured far-field beam profiles at the LGS crystal are shown in the insets (b) Long term measurement for the DFG light at 4 μm and 8 μm . The 8 μm far-field beam profile is shown in the inset.	55

4.4	(a-d) Signal FROSt reconstruction (1640 nm). (e-h) Idler FROSt reconstruction (2770 nm). (i-l) DFG FROSt reconstruction (4000 nm). (a,e,i) Experimental FROSt trace. (b,f,j) Retrieved FROSt trace. (c,g,k) Reconstructed time-dependent intensity (blue lines) and temporal phase (orange lines). (d,h,j) Reconstructed spectrum (blue lines) and spectral phase (orange lines).	56
4.5	Preliminary time- and angle-resolved photoemission spectroscopy results on prototypical 3D topological insulator, Bi_2Te_3 . (a) ARPES mapping of the photoemission intensity as a function of the electronic binding energy and in-plane momentum acquired at a pump-probe delay of $\Delta t = 0$, i.e., when both light pulses are perfectly overlapped temporally. An electrostatic grid was used in front of the detector in order to minimize the secondary electron background and the data are presented in logarithmic scale in order to emphasize the orders of magnitude weaker pump effect above the Fermi level ($E_F = 0$ eV). (b) Fit of the dynamics upon pump excitation within an electronic band replica to determine the temporal resolution of the ARPES system and beamline. The region of integration is illustrated as a purple box in panel (a). (c) Electronic dynamics and thermalization at different positions within the topological surface state. The corresponding regions of integration are depicted as color-coded boxes in panel (a).	57
5.1	Variation de la fréquence instantanée en fonction de l'intensité.	62
5.2	Élargissement spectral d'impulsions gaussiennes	62
5.3	Effet de la lentille Kerr.	64
5.4	L'efflorescence thermique dans l'eau d'un laser continu à grande puissance.	65
5.5	Comparaison de l'efficacité de l'élargissement spectral dans (en haut) Ar et (en bas) N_2 pour une durée d'impulsion de 230 fs à 760 Torr	68
5.6	Gain Raman	68
5.7	Principe du MDSS	69
6.1	Spectral broadening in static pressure configuration	76
6.2	Spectral broadening in differential pressure configuration	76
6.3	Influence of the repetition rate on the spectral broadening	78
6.4	Compressed pulses characterized by SHG-FROG	79
7.1	Schéma expérimental d'un autocorrélateur en intensité de seconde harmonique.	85
7.2	Mesure expérimentale d'une autocorrélation en intensité.	85
7.3	Autocorrélateur à tir unique.	87
7.4	Trace FROG expérimentale.	88
7.5	Principe de la technique FROSt.	94
8.1	Layout of the experimental setup	104
8.2	Experimental and reconstructed FROSt traces	106
8.3	Experimental and theoretical spectral phases	107

9.1	Schematic of the experimental setup of the two-stage OPA	114
9.2	Relaxation time of silicon	116
9.3	FROSt characterization of SC pulses	118
9.4	FROSt characterization of two signal-idler pairs	119

LISTE DES TABLEAUX

1.1	Comparaison des caractéristiques typiques des technologies lasers Ti:Sa et Yb	5
8.1	Theoretical (column 2) and retrieved (column 3) GDD are presented for each thickness of FS, the error for each thickness is shown in column 4.	108
9.1	Pulse duration of each signal and idler pulse with the corresponding Fourier transform limit (FTL)	120

LISTE DES ABRÉVIATIONS

ALLS	Advanced Laser Light Source
ARPES	Angle-resolved photoemission spectroscopy
CEP	Carrier Envelope Phase
CFI	Canada Foundation for Innovation
CPA	Chirped Pulse Amplification
D-scan	Dispersion scan
EOS	Electro-optic sampling
eV	Électronvolt
FROG	Frequency-resolved optical gating
FROSt	Frequency-resolved optical switching
FRQNT	Fonds de Recherche du Québec sur la Nature et les Technologies
FS	Fused silica
FTL	Fourier transform-limited
FWHM	Full Width at Half Maximum
GDD	Group Delay Dispersion
GVD	Group Velocity Dispersion
HCF	Hollow-core fiber
IFWM	Intermodal Four-Waves Mixing
INRS	Institut national de la recherche scientifique
IR	Infrarouge
MIR	Moyen infrarouge
NSERC	Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada
OPA	Optical Parametric Amplifier
OPCPA	Optical Parametric Chirp Pulse Amplification
OPF	Optical Parametric Fluorescence
QPM	Quasi-Phase Matching
SC	Supercontinuum

SHG	Second Harmonic Generation
SHG-FROG	Second harmonic generation frequency-resolved optical gating
SLM	Spatial Light Modulator
SOD	Second order dispersion
SRS	Stimulated Raman Scattering
THG-FROG	Third harmonic generation frequency-resolved optical gating
Ti:Sa	Titane:Saphir
TIPTOE	Tunneling Ionization with a Perturbation for the Time-Domain Observation of an Electric field
TOD	Third order dispersion
TR-ARPES	Time- and angle-resolved photoemission spectroscopy
Yb	Ytterbium
ZnSe	Zinc selenide

1 Introduction

La recherche en physique des lasers ultra-rapides a connu des avancées considérables au cours des dernières décennies, stimulée par la nécessité de sonder et de comprendre des processus à l'échelle moléculaire et sub-picoseconde. Les lasers titane-saphir (Ti:Sa) ont longtemps été la technologie la plus utilisée dans cette quête en offrant une source lumineuse générant des impulsions ultracourtes et permettant l'exploration de phénomènes ultra-rapides au sein de la matière.

Cependant, avec l'évolution rapide des besoins en recherche et des applications technologiques, la cadence des lasers Ti:Sa s'est avérée être une limitation significative. Dans ce contexte, les lasers à ytterbium (Yb) ont émergé comme une alternative prometteuse, offrant des cadences beaucoup plus élevées et une plus grande flexibilité dans diverses applications. Cette transition, bien que porteuse de nouvelles possibilités, soulève également le défi d'adapter les techniques initialement développées pour les lasers Ti:Sa aux systèmes à base d'ytterbium.

Cette thèse se concentre sur l'exploration de cette transition, mettant en lumière les défis et les opportunités qu'elle présente. Nous examinerons en détail l'adaptation de plusieurs techniques spécifiquement conçues pour les lasers Ti:Sa aux lasers Yb. L'accent sera mis sur la compréhension des différentes implications qu'engendre ce changement de cadence et d'énergie entre ces deux technologies.

1.1 Impulsion femtoseconde

Les impulsions ultracourtes sont d'excellents outils pour explorer les propriétés de la matière sur une échelle de temps très court. Elles permettent d'observer des phénomènes tels que les réactions chimiques, les transitions de phase, et les mouvements électroniques avec une résolution temporelle exceptionnelle. Pour décrire ces impulsions avec précision, un formalisme mathématique est nécessaire. Cette introduction présentera le formalisme utilisé dans cette thèse pour décrire ces impulsions femtosecondes puis se terminera sur les différentes technologies disponibles pour générer de telles impulsions.

1.1.1 Description de l'impulsion

Les impulsions lumineuses sont des ondes électromagnétiques et peuvent être entièrement décrites par une quantité vectorielle réelle $\vec{\mathbf{E}}(r,t)$ dépendant de l'espace ($r = x,y,z$) et du temps. Pour introduire des concepts de base, considérons uniquement l'aspect temporel du champ électrique

scalaire $\mathbf{E}(t)$. Nous pouvons décrire les impulsions lumineuses en utilisant la pulsation angulaire ω_0 de la manière suivante :

$$\mathbf{E}(t) = E(t)e^{i\omega_0 t}. \quad (1.1)$$

Dans ce cas, $E(t)$ représente l'enveloppe complexe variant lentement et modulée par une oscillation sinusoïdale rapide appelée porteuse. Nous définissons la longueur d'onde λ_0 dans le vide comme la période spatiale de l'impulsion par :

$$\lambda_0 = \frac{2\pi c}{\omega_0}, \quad (1.2)$$

c représente la vitesse de la lumière dans le vide, nous introduisons également le temps d'un cycle optique T tel que :

$$T = \frac{\lambda_0}{c}. \quad (1.3)$$

Au cours de cette thèse, nous travaillons sur une gamme de fréquence allant du visible au moyen infrarouge, plus précisément entre $0.8 \mu m$ et $8 \mu m$. Les cycles optiques correspondants pour des impulsions de $0.8 \mu m$, $1.03 \mu m$ et $8 \mu m$ sont de $2.7 fs$, $3.4 fs$ et $27 fs$ respectivement.

La durée d'une impulsion lumineuse est aussi un paramètre fondamental à prendre en considération lorsqu'on utilise des sources lasers impulsionnelles. En effet, elle influe sur la capacité à interagir avec la matière et évidemment sur la résolution temporelle que l'on peut avoir pour observer un processus. La durée est souvent mesurée en fonction de la période temporelle pendant laquelle l'intensité lumineuse est significativement élevée. Pour une onde monochromatique, l'intensité lumineuse est liée à l'amplitude du champ électrique par la relation suivante :

$$I = \frac{c\epsilon_0 n}{2} |E|^2 \quad (1.4)$$

où c est la vitesse de la lumière, ϵ_0 est la permittivité du vide et n est l'indice de réfraction. Il est à noter que nous mesurons généralement l'intensité mais pas le champ électrique qui oscille trop rapidement pour être résolu par des méthodes traditionnelles¹.

La caractérisation de la durée d'une impulsion peut varier selon les contextes, les besoins, et les techniques utilisées. Cela conduit à l'existence de différentes définitions pour la durée d'une impulsion lumineuse. La définition la plus fréquemment utilisée et celle utilisée dans cette thèse est basée sur la largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de l'intensité optique en fonction du temps. Le principal biais de cette définition est qu'elle n'est pas sensible aux piédestaux souvent observés

¹Il existe des méthodes plus complexes qui permettent d'avoir accès directement au champ électrique, ces techniques seront mentionnées dans la section 7.2.3

avec les impulsions lumineuses. Si ceux-ci restent négligeables ou inexistantes comme dans la fig. 1.1, cette description est appropriée.

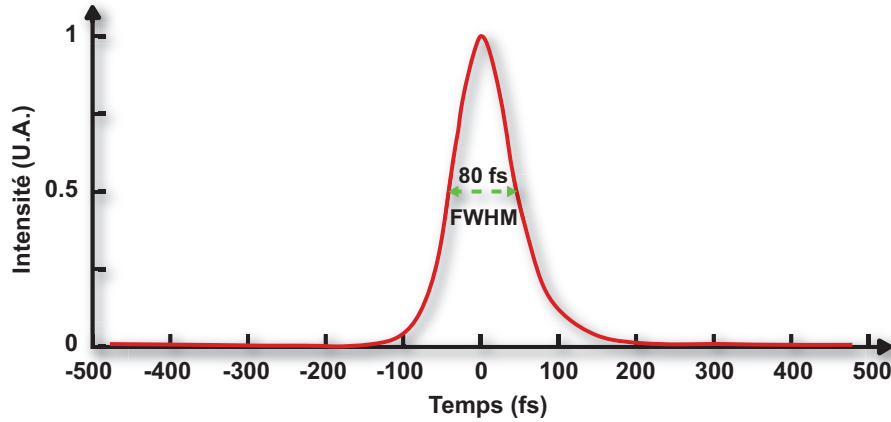


Fig. 1.1 : Largeur Totale à Mi-Hauteur (FWHM)

Exemple de la mesure de la durée d'une impulsion d'une longueur de 80 fs (FWHM) produite par un laser femtoseconde

Pour les profils d'impulsions plus complexes, il est préférable d'utiliser une définition basée sur le second moment du profil d'intensité temporel. Dans ce cas, les piédestaux éventuels augmentent considérablement la durée d'impulsion obtenue. Différentes définitions de la durée peuvent donc aboutir à des valeurs de durée d'impulsion sensiblement différentes.

1.1.2 Domaine temporel et fréquentiel

Le champ électrique d'une impulsion lumineuse peut être représenté aussi bien dans le domaine temporel que dans le domaine fréquentiel. C'est la transformée de Fourier qui relie la représentation dans le domaine temporelle $\mathbf{E}(t)$ et la représentation dans le domaine fréquentielle $\tilde{\mathbf{E}}(\omega)$ par la relation suivante :

$$\tilde{\mathbf{E}}(\omega) = FT\{E(t)\} = \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)e^{i\omega t} dt. \quad (1.5)$$

Cette représentation nous permet de décrire parfaitement l'impulsion laser. En effet, avec le spectre et la phase spectrale, le calcul de la forme temporelle et de la phase est direct, dû au fait que la transformée de Fourier soit bijective. Cette propriété sera très utile dans cette thèse pour la caractérisation d'impulsion ultracourte. En outre, un grand nombre de techniques de caractérisation d'impulsions ultracourtes estime la phase spectrale et le spectre d'une impulsion pour ensuite calculer la forme temporelle de cette dernière.

Le meilleur critère à suivre pour savoir si une impulsion est la plus courte possible est de regarder la phase spectrale. Si chaque composante spectrale a la même phase et interfère de manière

constructive, l'impulsion est alors limitée par la transformée de Fourier (FTL). La limite de transformée (ou limite de Fourier, limite de transformée de Fourier) est donc la limite inférieure de la durée d'impulsion qui est possible d'obtenir pour un spectre optique donné d'une impulsion.

Mais si les composantes spectrales ne sont pas en phase, la phase spectrale ne sera plus constante et la durée de l'impulsion augmentera, l'impulsion est dispersée (ou chirpée). Nous traitons souvent le domaine spectral et temporel, il est donc pratique de définir le produit temps/largeur de bande :

$$\Delta t \Delta \omega \geq K. \tag{1.6}$$

La condition d'être à la limite de Fourier est essentiellement équivalente à la condition d'une phase spectrale plate (c'est-à-dire indépendante de la fréquence), et implique fondamentalement que le produit temps/largeur de bande est à son minimum et qu'il n'y a pas de chirp. Le produit temps/largeur de bande minimale K est dépendant de la forme de l'impulsion et est par exemple de $K \sim 0,315$ pour les impulsions en forme de sech^2 et de $K \sim 0,44$ pour les impulsions en forme de gaussienne.

C'est un outil puissant, car en pratique, la simple mesure du spectre permet d'établir une durée d'impulsion minimale. Si l'impulsion a une durée relativement plus grande que cette limite, on peut en déduire qu'elle est dispersée.

1.1.3 L'importance de la source laser

À mesure que la recherche autour des sources laser femtosecondes à haute puissance moyenne et à haute intensité crête progresse, les oscillateurs à fibre et les amplificateurs à base d'ions ytterbium gagnent du terrain sur un marché qui était jusqu'à récemment largement dominé par la technologie au titane-saphir [1–3]. Depuis l'invention de l'amplification par dérive de fréquences (CPA) [4], la technologie au titane-saphir avait solidement établi sa domination en tant que source référence pour des impulsions femtosecondes. Cela est dû à la bande passante de ces cristaux qui permet l'amplification d'impulsions qui ont une FTL de ~ 40 fs en sortie de laser. Cependant, cette hégémonie est aujourd'hui contestée par une nouvelle génération de lasers basés sur l'ytterbium [5], qui gagne en pertinence et en adoption. Cette transition vers les lasers à l'ytterbium s'accompagne d'une série de défis et de découvertes qui ouvrent de nouvelles perspectives dans le domaine des impulsions ultracourtes et de leurs applications, et plusieurs de ces aspects seront explorés en profondeur dans le cadre de cette thèse.

La principale cause de cette transition est due au fait que la technologie ytterbium permet d'atteindre de grande puissance moyenne [6, 7], tandis que la technologie Ti:Sa a du mal à atteindre ces puissances (voir table 1.1). La croissance des cristaux de saphir dopés au titane pour obtenir les tailles et formes nécessaires à l'amplification de puissances moyennes élevées est une tâche complexe.

Table 1.1 : Comparaison des caractéristiques typiques des technologies lasers Ti:Sa et Yb

Paramètres clés	Ti:Sa	Ytterbium
Énergie par impulsion	5-15 <i>mJ</i>	50 μ J à 2 <i>mJ</i>
Puissance moyenne	5-15 <i>W</i>	20-200 <i>W</i>
Durée de l'impulsion	25-100 <i>fs</i>	200 <i>fs</i> à 2 <i>ps</i>
Taux de répétition	50 <i>Hz</i> à 10 <i>kHz</i> fixe	10 <i>kHz</i> à 1 <i>MHz</i> ajustable
Pompe	Diode continue et laser pulsé vert	Diode continue à 980 <i>nm</i>
Rentabilité	Coût avantageux par millijoule	Coût avantageux par Watt
Flexibilité sur la puissance/répétition	Limitée	Excellente

De plus, la technologie Ti:Sa repose sur un défaut quantique important avec une absorption dans le vert et une émission dans l'infrarouge, ce qui engendre un dépôt important de chaleur dans le cristal lors de l'excitation par la pompe [8–10].

En comparaison, les cristaux et verres amorphes dopés à l'ytterbium sont plus faciles à produire et tolèrent de plus fortes puissances. Cependant, leur bande passante d'amplification est nettement moins large que celle du titane-saphir [11–14]. En conséquence, les impulsions générées par un système CPA basé sur l'ytterbium ont généralement une durée beaucoup plus longue. Selon la technologie utilisée, ces impulsions se situent typiquement dans la fourchette de 200 femtosecondes à 2 picosecondes (voir table 1.1). Ces durées s'avèrent insuffisantes pour les applications exigeant une haute intensité crête ou pour l'étude de phénomènes dynamiques nécessitant une meilleure résolution temporelle. Ainsi, un des défis de cette transition est de mettre au point une méthode de compression suffisamment efficace et qui permet de significativement accroître la puissance crête, c'est-à-dire de réduire la durée des impulsions sans trop compromettre leur énergie.

Une part significative de cette thèse est dédiée à l'adaptation de techniques bien établies pour la technologie Ti:Sa [15–17] sur la technologie des lasers Ytterbium. Cette adaptation s'avère essentielle pour permettre une transition entre ces deux technologies de pointe. L'un des défis majeurs qui se pose au cours de cette transition est la gestion de la thermique. En effet, les lasers Yb fonctionnent

à une cadence bien plus élevée, dépassant le kilohertz, tandis que les lasers Ti:Sa fonctionnent à des cadences inférieures au kHz . Cette différence de cadence engendre une série d'effets additionnels inhérents au taux de répétition et à la puissance élevée des lasers Yb, qui sont autant de paramètres à prendre en compte et à analyser. Dans cette thèse, nous aborderons en détail plusieurs de ces effets et nous explorerons les solutions pour les maîtriser de manière efficace, tout en optimisant la performance des lasers Yb dans le cadre des applications visées.

1.2 Objectifs & réalisations

Comme évoqué précédemment, l'objectif principal de cette thèse est d'adapter les techniques développées dans le laboratoire ALLS (Advanced Laser Light Source) sur des lasers Ti:Sa aux nouvelles technologies de laser Yb. En effet, à mon arrivé dans ALLS fin 2019, le laboratoire était équipé uniquement de lasers Ti:Sa avec des sorties à $50 Hz$ et $100 Hz$ délivrant plusieurs mJ d'énergie. Au cours de l'année 2020, muni de nos masques FFP2, les lasers Ti:Sa ont été déménagés et plusieurs lasers Ytterbium furent installés dans ALLS avec la création d'une nouvelle salle blanche. Il y a un laser tangerine de la compagnie Amplitude délivrant $50 W$ à $250 kHz$ avec $125 fs$ de durée pour les impulsions; un laser Amphos qui pompe un OPCPA (acronyme pour *Optical Parametric Chirp Pulse Amplification*) de la société Fastlite avec $200 W$ de puissance à $100 kHz$ avec des impulsions de $1.3 ps$; et un laser magma d'Amplitude délivrant $80 mJ$ d'énergie par impulsion à $1 kHz$ avec des durées de $700 fs$.

L'objectif primaire sur ces nouveaux lasers était de reproduire avec les lasers Yb les techniques développées par le groupe de recherche sur les lasers Ti:Sa. Pendant cette thèse, je vais me concentrer sur 2 techniques : La technique FROSt (Commutation optique à résolution de fréquences ou en anglais *Frequency Resolved Optical Switching*) pour la caractérisation d'impulsion ultra-courte [15, 18] et le MDSS (états solitoniques multidimensionnels ou en anglais *Multi-Dimensional Solitary States*) pour la post-compression d'impulsions [17, 19].

La méthode FROSt repose sur l'absorption transitoire dans les solides et présente de nombreux avantages, tels que la capacité à caractériser des impulsions peu intenses et très larges spectralement, ainsi que la possibilité de caractériser simultanément plusieurs impulsions n'ayant pas la même polarisation. Cependant, le transfert de cette technique aux lasers Yb n'est pas direct. En effet, dû au changement du taux de répétition du laser, la période entre les impulsions doit être suffisante pour permettre à l'échantillon de retrouver son état fondamental pour restaurer sa transmission initiale, et permettant l'acquisition de données (spectrogrammes) exploitables. De plus, l'augmentation du taux de répétition va aussi avoir pour conséquence de déposer plus d'énergie sur l'échantillon et cela va créer une lentille thermique (détaillé dans la section 5.1.3) sur le signal transmis. Toutes ces problématiques seront expliquées et traitées dans le chapitre 7.

Le MDSS est basé sur l'effet Raman rotationnel dans un gaz moléculaire et permet d'élargir spectralement des impulsions afin de les compresser. Les applications potentielles de cette technique englobent la création de supercontinuum, la compression temporelle des impulsions, ainsi que l'extension de la coupure dans la génération d'harmoniques élevés. Étant donné que l'effet Raman rotationnel n'est pas instantané, cela a pour effet de limiter le taux de répétition du laser. L'un des buts de cette thèse consistera donc à examiner et à décrire les effets rotationnels des molécules dans un premier temps, afin de développer des méthodes permettant l'utilisation du MDSS à une répétition plus élevée. Ce point sera traité dans le chapitre 5.

Enfin, avec l'installation de nouveaux lasers dans le laboratoire ALLS et l'arrivée d'un appareil de mesure TR-ARPES (acronyme pour *Time- and angle-resolved photoemission spectroscopy*), une source laser est réalisée pour cette application spécifique. La source est divisée en deux lignes : la première est un faisceau à 6 eV servant de sonde, la seconde est un amplificateur paramétrique suivi d'une différence de fréquences permettant d'atteindre des longueurs d'ondes dans le moyen infrarouge pour réaliser la pompe. Cela sera expliqué en détail dans le chapitre 3

1.3 Chronologie

L'objectif principal de ce projet a toujours été l'adaptation des techniques développer sur les lasers Ti:Sa aux lasers Yb. Cependant, certaines contraintes et opportunités ont conduit à l'ajout d'objectifs secondaires, en particulier la création d'une source accordable pour une expérience de TR-ARPES. Afin de clarifier la séquence des événements et l'ordre dans lequel les divers objectifs ont été atteints, une description chronologique est présentée ci-dessous.

Lors de mon arrivée à l'INRS, j'ai poursuivi les recherches initiées par Adrien Leblanc. Sur la ligne 50 Hz du laser Ti:Sa du laboratoire ALLS, l'objectif consistait à évaluer les limites de la technique de caractérisation FROSt, en se concentrant d'abord sur la plage spectrale que cette méthode était en mesure de caractériser. Pour cela, une source délivrant des impulsions très larges spectralement a dû être développée en utilisant deux fibres creuses en série remplies d'un gaz noble. Cela a conduit à une publication résumée dans la section 7.3.5. Cette même source a ensuite été utilisée pour déterminer la précision de la technique FROSt. Plus précisément, nous démontrons la sensibilité de la technique FROSt pour détecter une petite quantité de déphasage spectral pour la caractérisation précise d'impulsions laser ultra-courtes. Cette étude est résumée dans la section 7.3.3.

Suite à cette étude, une (petite) pandémie mondiale a éclaté, coïncidant avec l'arrivée des nouveaux lasers Yb au laboratoire ALLS qui ont subi des retards logiques. Le laser Tangerine fut le premier laser Ytterbium opérationnel dans le laboratoire. Il délivre des impulsions de 125 fs qui sont plus longues que les impulsions en sortie d'un laser Ti:Sa. La première expérience menée sur ce laser a porté sur la mise en œuvre de la technique MDSS à haute cadence permettant de compresser

ces impulsions avec un montage expérimental compact sous les 20 fs. Cette étude a été réalisée en collaboration avec Loïc Arias, et a mené à une autre publication résumée dans la section 5.2.3.

Ce laser a été utilisé par la suite pour pomper une expérience de TR-ARPES. Un amplificateur paramétrique optique (OPA) suivi d'une différence de fréquences (DFG) a été mis en place afin d'obtenir une pompe dans la plage de 4 à 8 microns. Simultanément, une sonde à 6 eV (206 nm), issue de multiples conversions non linéaires, a été élaborée. La caractérisation complète de cette source a été réalisée avec la technique FROSt qui a été adaptée pour la première fois à haute cadence. Ces travaux sont résumés dans la section 7.3.4 pour l'adaptation de la technique FROSt et dans la section 3.5.3 pour la présentation complète de la source laser pour des expériences ARPES résolues en temps.

1.4 Division des chapitres

Au chapitre 2, les propriétés de la propagation de la lumière en régime linéaire puis non linéaire à travers des matériaux anisotropes vont être développées. Cela va servir à développer les concepts de base permettant d'expliquer les différentes techniques vues au cours de cette thèse. La section 2.1 va permettre de définir les équations de propagation linéaire dans un matériau anisotrope. Cela va aussi permettre d'introduire les cristaux biréfringents. La section 2.2 et la section 2.3 décrivent les phénomènes de dispersion et de phase spectrale. La section 2.4 contient une revue de littérature sur les techniques permettant de contrôler efficacement la dispersion. Finalement, la section 2.5 va introduire les équations de propagations non linéaires.

Ces équations vont permettre de décrire les effets non linéaires du second ordre dans le chapitre 3. Après avoir établi les équations de Manley-Rowe dans la section 3.1, les différentes interactions possibles de mélange à trois ondes dans un milieu non linéaire du second ordre vont être présentées dans la section 3.2. La notion d'accord de phase va ensuite être présentée dans la section 3.3. La section 3.4 contient une discussion sur le choix du cristal non linéaire ainsi que sur les cristaux les plus couramment utilisés. La section 3.5 va présenter une application de la technique d'amplification paramétrique à la technique ARPES.

Le chapitre 4 introduit l'article nommé *250 kHz repetition rate OPCPA and 6 eV line for ARPES measurement*. Dans cet article, la source laser permettant de faire des expériences de TR-ARPES est présentée ainsi que des premiers résultats TR-ARPES.

Le chapitre 5 va introduire les effets non linéaires d'ordre 3. L'effet Kerr va tout d'abord être étudié dans la section 5.1. La diffusion Raman va ensuite être étudiée dans la section 5.2, ce qui va permettre d'introduire la technique du MDSS.

L'article intitulé *Few-cycle Yb laser source at 20 kHz using multidimensional solitary states in hollow-core fibers* [20] est introduit au chapitre 6. Dans cet article, la technique de MDSS va être adaptée aux hautes cadences pour être utilisée avec des lasers Ytterbium.

Le chapitre 7 contient une discussion sur les différentes techniques de caractérisations d'impulsions ultra-courtes. La technique d'autocorrélation sera abordée dans la section 7.1. La technique FROG, ces variantes et ces limitations seront étudiées dans la section 7.2. Cela permettra d'introduire la technique FROSt dans la section 7.3.

Au chapitre 8, l'article intitulé *Spectral Phase Sensitivity of Frequency Resolved Optical Switching for Broadband IR Pulse Characterization* est introduit [21]. Cet article étudie la sensibilité de la technique FROSt et démontre que cette technique a une résolution suffisante pour caractériser précisément des impulsions lasers ultra-courtes.

L'article intitulé *Complete characterization of an Yb-based OPA at high repetition rate using frequency resolved optical switching* [22] est introduit au chapitre 9. Dans cette article, nous démontrons expérimentalement que le FROSt peut être utilisé pour caractériser des impulsions à très large bande à des taux de répétition élevés allant jusqu'à 500 kHz.

Finalement, le chapitre 9 conclut ce document avec une discussion de synthèse ainsi qu'un retour sur les objectifs de ces travaux.

2 Propagation d'impulsions femtosecondes

Cette section traitera des propriétés de la propagation de la lumière en régime linéaire puis en régime non linéaire à travers des matériaux anisotropes pour permettre de décrire l'origine de la dispersion et les conséquences temporelles pour les impulsions. La dispersion chromatique est directement liée au fait que chaque composante spectrale de l'impulsion ne se déplace pas à la même vitesse à l'intérieur d'un matériau. Cela est dû au fait que l'indice de réfraction $n(\lambda)$ de chaque milieu n'est pas constant sur la gamme spectrale couverte par l'impulsion. Un énoncé empirique, appelé équation de Sellmeier [23], fournit une relation entre l'indice de réfraction d'un matériau spécifique et la longueur d'onde. Elle s'exprime généralement sous la forme

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \sum_j \frac{A_j \lambda^2}{\lambda^2 - B_j}} \quad (2.1)$$

où les coefficients A_j et B_j , propre à chaque matériau, sont déterminés expérimentalement. Par exemple, l'indice de réfraction de la silice peut être calculé comme suit [24]

$$n_{silice}(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0.6961663\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0684043^2} + \frac{0.4079426\lambda^2}{\lambda^2 - 0.1162414^2} + \frac{0.8974794\lambda^2}{\lambda^2 - 9.896161^2}} \quad (2.2)$$

où λ est exprimé en micromètre. À noter qu'un tel modèle n'est précis que dans la région de longueur d'onde où l'absorption est négligeable.

Les équations de Sellmeier sont très utiles, car elles permettent de décrire assez précisément l'indice de réfraction dans une large gamme de longueurs d'onde avec seulement quelques coefficients dits de Sellmeier. Par exemple, elle va être utilisée dans cette thèse comme référence pour évaluer la dispersion chromatique retrouvée par la technique FROSt (présentée dans la section 7.3) d'un matériau. Un autre intérêt de l'équation de Sellmeier est qu'elle reste valable pour des ordres de dispersion élevés qui seront présentés plus tard dans ce chapitre.

2.1 Équation de propagation linéaire dans un matériau anisotrope

Les équations de Maxwell permettent de décrire tous les phénomènes électromagnétiques. Ces équations décrivent l'évolution du champ électromagnétique en fonction du courant et des densités de charge. Elles peuvent être écrites comme suit :

$$\frac{\partial \mathcal{D}}{\partial t} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.3a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.3b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.3c)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathcal{J}. \quad (2.3d)$$

Où \mathbf{E} et \mathbf{H} représentent le champ électrique [V/m] et le champ magnétique [A/m], ϵ_0 est la permittivité du vide. \mathbf{D} et \mathbf{B} sont les densités de flux électrique [C/m^2] et magnétique [Wb/m^2 ou Tesla T]. ρ et \mathcal{J} sont la densité de charge volumique [C/m^3] et la densité de courant [A/m^2] de toute charge externe.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons uniquement utilisé des matériaux non magnétiques et une relation simple reliera donc \mathbf{B} et \mathbf{H} :

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0}, \quad (2.4)$$

où μ_0 est la perméabilité du vide.

À l'intérieur d'un matériau, une polarisation diélectrique \mathcal{P} se produit lorsqu'une impulsion laser interagit avec lui :

$$\mathbf{D} = \mathbf{E}\epsilon_0 + \mathcal{P}. \quad (2.5)$$

Le vecteur \mathcal{P} décrit entièrement la réponse du milieu au champ électrique incident. Maintenant, en ignorant les charges et les courants libres dans le milieu, l'équation d'onde peut être exprimée de cette façon :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(t) + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2}. \quad (2.6)$$

Dans le domaine de Fourier, cette équation d'onde devient :

$$\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}}(\omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{\mathbf{E}}(\omega) = -\omega^2 \mu_0 \tilde{\mathcal{P}}(\omega). \quad (2.7)$$

La relation constitutive entre la polarisation linéaire $\mathcal{P}(t)$ et l'onde électrique incidente $\mathbf{E}(t)$ dans le domaine des fréquences est donnée par :

$$\tilde{\mathcal{P}}(\omega) = \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(\omega). \quad (2.8)$$

où nous avons introduit la susceptibilité linéaire électrique $\underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\omega)$ qui est une grandeur caractérisant la polarisation créée par un champ électrique (ou le champ électrique produit par de la matière polarisée).

Un milieu anisotrope est caractérisé par la relation tensorielle entre les vecteurs \mathbf{D} et \mathbf{E} . À l'inverse d'un milieu isotrope, la direction des vecteurs \mathbf{D} et \mathbf{E} peut être différente dans ce genre de matériau

(ce phénomène sera expliqué plus en détail dans la section 3.3.2):

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega) = \underline{\underline{\epsilon}}(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(\omega) \quad (2.9)$$

avec $\underline{\underline{\epsilon}}(\omega) = \epsilon_0 \left(1 + \underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\omega)\right)$.

Les axes cristallographiques principaux du matériau définissent une base pour laquelle la matrice est diagonale. Pour un champ électrique polarisé selon l'un des axes principaux, le milieu est équivalent à un milieu isotrope.

De plus, l'indice de réfraction $n(\omega)$ peut être défini par :

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\omega)} = \sqrt{\epsilon_r(\omega)} \quad (2.10)$$

où ϵ_r est la permittivité relative ou « constante diélectrique ». Cette grandeur relie la permittivité du milieu ϵ à la permittivité du vide ϵ_0 par $\epsilon(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega)$.

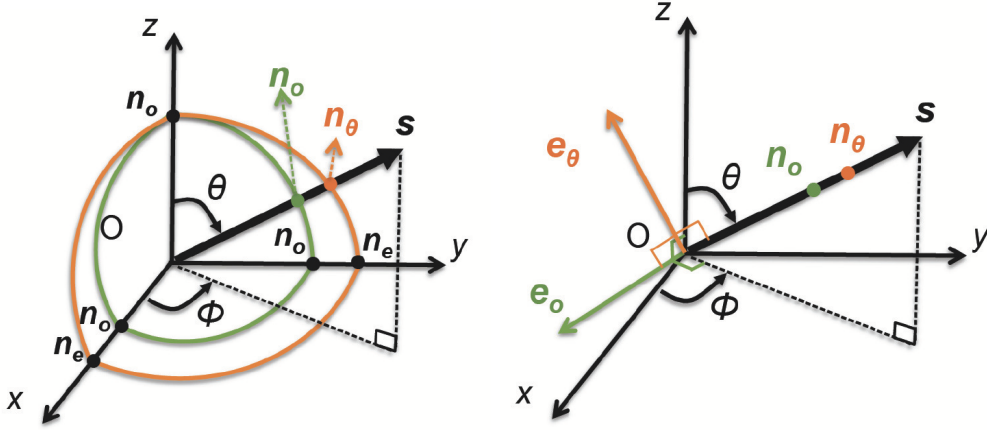


Fig. 2.1 : Indices d'un cristal uniaxial.

Intersection entre la direction du vecteur d'onde \mathbf{s} et la surface des indices pour un cristal uniaxial. Les deux intersections donnent les deux indices de réfraction n_o et n_θ (voir à gauche), qui sont vus respectivement par une onde ordinaire e_o et une onde ordinaire e_θ (voir à droite).

On peut montrer que les valeurs de n pour une direction de propagation donnée définie par un vecteur unitaire \mathbf{s} , avec $\mathbf{k} = |k|\mathbf{s}$, sont solutions de l'équation de Fresnel :

$$\frac{n_x^2 s_x^2}{n^2 - n_x^2} + \frac{n_y^2 s_y^2}{n^2 - n_y^2} + \frac{n_z^2 s_z^2}{n^2 - n_z^2} = 0 \quad (2.11)$$

où (s_x, s_y, s_z) sont les coordonnées de la direction de propagation définies le long des directions principales, notées (x, y, z) , et n_x, n_y, n_z sont les indices de réfraction principaux¹.

⁰¹ Pour une onde polarisée le long de l'un des axes principaux, par exemple x , la relation $D_x = \epsilon_x E_x$, où $\epsilon_x = \epsilon_0 \left(1 + \chi_{xx}^{(1)}\right)$ est la permittivité. L'indice de réfraction est défini comme suit : $n_x^2 = c^2 \epsilon_x \mu_0$.

Cristaux biréfringents uniaxiaux

Selon la symétrie de la structure cristalline, un cristal peut être uniaxe ou biaxe. Le cas le plus simple est un cristal biréfringent uniaxial qui présente deux indices de réfraction principaux identiques : $n_x = n_y = n_o$ et $n_z = n_e \neq n_o$. On distingue les cristaux uniaxiaux positifs et négatifs ; dans le premier cas, l'indice extraordinaire est plus élevé que l'indice ordinaire. On peut notamment citer le bêta-borate de baryum (BBO) ou le niobate de lithium (LN) qui sont des cristaux uniaxiaux négatifs et qui seront utilisés dans cette thèse.

Nous considérons la propagation d'une onde le long de la direction s , qui est définie dans les axes cristallographiques principaux du cristal selon les angles d'Euler (voir fig. 2.1) :

$$s = \begin{pmatrix} \cos \phi \sin \theta \\ \sin \phi \sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix}$$

Les solutions de l'éq. (2.11) sont représentées graphiquement sur la fig. 2.1 (partie gauche). Le long de la direction de propagation s , le milieu présente deux indices de réfraction n_o et n_θ :

$$\left(\frac{1}{n_\theta}\right)^2 = \left(\frac{\cos \theta}{n_o}\right)^2 + \left(\frac{\sin \theta}{n_e}\right)^2 \quad (2.12)$$

qui sont respectivement liés aux polarisations e_o et e_θ (voir fig. 2.1, côté droit) :

$$e_o = \begin{pmatrix} \sin \phi \\ -\cos \phi \\ 0 \end{pmatrix}, \quad e_\theta = \begin{pmatrix} -\cos \theta \cos \phi \\ -\cos \theta \sin \phi \\ \sin \theta \end{pmatrix}$$

Ces deux polarisations sont appelées polarisation ordinaire et extraordinaire. Elles sont orthogonales et définissent les modes propres du milieu le long de la direction de propagation s .

La biréfringence des matériaux cristallins permet d'obtenir un accord de phase biréfringent pour avoir des interactions non linéaires. Cela signifie essentiellement que la biréfringence compense la dépendance de l'indice de réfraction par rapport à la longueur d'onde. Il s'agit de la méthode la plus fréquemment utilisée pour obtenir un accord de phase dans divers types de conversion de fréquences non linéaire, comme le doublement de fréquences et l'amplification paramétrique optique. Nous explorerons davantage ce point dans le chapitre 3.

Solution à l'équation de propagation

Si l'on revient à l'éq. (2.6), celle-ci peut être résolue de plusieurs façons en fonction des approximations utilisées. Pour simplifier le problème, on suppose ici que le champ électrique se propage dans

la direction z (approximation scalaire) et qu'il est polarisé dans un plan transversal constant (xy), ce que l'on appelle l'approximation de l'onde plane. L'équation d'onde peut être reformulée comme suit :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}(z,t)}{\partial z^2} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathcal{E}(z,t)}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathcal{P}(z,t)}{\partial t^2}. \quad (2.13)$$

La solution analytique de l'éq. (2.13) est la description du champ électrique donnée dans la section 1.1.1. En effet, pour un champ électrique polarisé linéaire le long du plan transversal (xy) et se propageant le long de l'axe z , le champ électrique peut être écrit de cette façon :

$$E(z,t) = E_0(z,t)e^{i(\omega_0 t - k_0 z)}. \quad (2.14)$$

De la même façon, le vecteur d'onde k_0 est défini comme suit:

$$k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} n(\omega_0) = \frac{\omega_0}{c_0} n(\omega_0). \quad (2.15)$$

Le même formalisme peut être appliqué au champ de polarisation P :

$$P(z,t) = P_0(z,t)e^{i(\omega_0 t - k_0 z)}. \quad (2.16)$$

Les champs électriques et de polarisation peuvent aussi être décrits dans le domaine fréquentiel de la façon suivante :

$$\tilde{E}(z,\omega) = FT\{E(z,t)\} = \tilde{E}_0(\omega',t)e^{ik_0 z}, \quad (2.17)$$

$$\tilde{P}(z,\omega) = FT\{P(z,t)\} = \tilde{P}_0(\omega',t)e^{ik_0 z}, \quad (2.18)$$

avec $\omega' = \omega - \omega_0$.

En conséquence, l'équation (2.13) devient :

$$e^{-ik_0 z} \left[\frac{\partial^2 \tilde{E}_0}{\partial z^2} - 2ik_0 \frac{\partial \tilde{E}_0}{\partial z} - \left(k_0^2 - \frac{\omega^2}{c_0^2} \right) \tilde{E}_0 \right] = -\mu_0 \omega^2 \tilde{P}_0 e^{-ik_0 z} \quad (2.19)$$

En ce qui concerne l'approximation de l'enveloppe à variation lente, la variation de l'enveloppe dans l'espace être négligeable par rapport à la longueur d'onde de la porteuse :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_0}{\partial z^2} \ll \frac{2\pi}{\lambda_0} \frac{\partial \tilde{E}_0}{\partial z}. \quad (2.20)$$

En notant que \tilde{P}_0 peut se reformuler en utilisant l'éq. (2.10), l'équation d'onde peut finalement être exprimée ainsi :

$$-2ik_0 \frac{\partial \tilde{E}_0}{\partial z} + [(k(\omega))^2 - k_0^2] \tilde{E}_0 = 0 \quad (2.21)$$

Le spectre de l'impulsion est centré sur ω_0 et $n(\omega)$ varie lentement avec la fréquence, de sorte que la différence entre k_0 et $k(\omega)$ est faible. Cela donne donc :

$$k(\omega)^2 - k_0^2 = (k(\omega) + k_0) \cdot (k(\omega) - k_0) \simeq 2k_0(k(\omega) - k_0). \quad (2.22)$$

Nous venons d'établir les équations de propagations d'ondes lumineuses dans un matériau. L'un des paramètres cruciaux de ces équations est le nombre d'onde qui est directement lié au phénomène de dispersion. Ce phénomène est crucial pour l'étude des impulsions ultracourtes. La section suivante permettra d'expliquer en détail ce phénomène.

2.2 Dispersion chromatique

La dispersion chromatique d'un matériau optique est le phénomène selon lequel la vitesse des composantes spectrales d'une impulsion se propageant dans un milieu transparent à des vitesses différentes. Cette dépendance résulte principalement de l'interaction de la lumière avec les électrons du milieu. Il est à noter qu'on utilise ici le terme "chromatique" pour distinguer cette dispersion avec d'autres types de dispersions. On peut notamment penser à la dispersion intermodale et la dispersion du mode de polarisation dans des fibres (ce sujet sera abordé dans la section 5.2 de cette thèse). Ainsi, pour le reste de cette thèse, toute mention de la dispersion se référera à la dispersion chromatique.

La quantification de la dispersion chromatique est basée sur un développement de Taylor du nombre d'onde k en fonction de la fréquence angulaire ω . L'expansion se fait autour d'une fréquence centrale ω_0 et peut être formulée ainsi :

$$\begin{aligned} k(\omega) &\simeq \sum_{n=0}^{\infty} \frac{k^{(n)}(\omega_0)}{n!} (\omega - \omega_0)^n \\ &\simeq k(\omega_0) + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{\partial^3 k}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + \dots \end{aligned}$$

Les termes correspondant aux différents ordres de ce développement ont la signification suivante :

le terme d'ordre zéro décrit un déphasage commun.

Le terme de premier ordre contient l'inverse de la vitesse de groupe v_g (dont les détails seront exposés plus finement par la suite) et décrit un retard global sans effet sur la forme de l'impulsion :

$$k' \simeq \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} = \frac{1}{v_g} \quad (2.23)$$

Le terme de second ordre (quadratique) contient la dispersion de second ordre ou dispersion de vitesse de groupe (GVD) :

$$k'' \simeq \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} = GVD \quad (2.24)$$

Le terme du troisième ordre (cubique) contient la dispersion du troisième ordre (TOD) par unité de longueur :

$$k''' \simeq \left. \frac{\partial^3 k}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} \quad (2.25)$$

Étant donné que chaque composante spectrale voit un indice $n(\omega)$ différent, il est important de définir la vitesse de phase v_p . Cette vitesse correspond à la vitesse du front d'onde à une longueur d'onde spécifique se propageant dans l'espace, et elle peut être formulée comme suit :

$$v_p = \frac{\omega}{k} = \frac{c_0}{n(\omega)}. \quad (2.26)$$

Cependant, une impulsion laser n'est jamais monochromatique. De plus, dans le cadre de cette thèse, les impulsions ont toujours un spectre très large pour avoir accès à de courtes durées. Sa propagation ne peut donc pas être définie uniquement par une vitesse de phase. On va donc utiliser la vitesse de groupe v_g (introduite précédemment) qui représente la vitesse de l'enveloppe de l'impulsion et qui s'écrit:

$$v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k}. \quad (2.27)$$

Ces deux vitesses sont importantes pour les impulsions ultracourtes (\leq quelques cycles optiques) notamment à cause de la phase porteuse-enveloppe (CEP). En effet, lorsque l'impulsion se propage dans un milieu, la position relative entre l'onde porteuse et l'enveloppe change généralement en raison de la différence entre la vitesse de phase et la vitesse de groupe ($v_p \neq v_g$). En d'autres termes, la phase entre l'enveloppe et l'onde porteuse (la CEP) va varier. Cette variation va entraîner un glissement du maximum du champ électrique par rapport au maximum de l'enveloppe. La connaissance et le contrôle passif ou actif de la CEP sont cruciaux pour de nombreuses applications où les effets étudiés ne dépendent pas uniquement de l'enveloppe, mais aussi du champ électrique directement. C'est le cas des recherches qui ont mené au prix Nobel de physique 2023 qui a été attribué à Pierre Agostini, Ferenc Krausz et Anne L'Huillier pour leurs travaux expérimentaux pour générer des impulsions laser attoseconde permettant d'étudier la dynamique des électrons dans la matière.

La dispersion de vitesse de groupe (GVD) est une autre notion importante, car chaque composante spectrale a une vitesse différente lorsqu'elle se propage à l'intérieur d'un milieu, ce qui étire ou comprime l'impulsion dans le temps. On distingue la dispersion normale (pour $k'' \geq 0$) et la dispersion anormale (pour $k'' \leq 0$). La dispersion normale, où la vitesse de groupe diminue avec l'augmentation de la fréquence optique, se produit pour la plupart des milieux transparents dans le domaine spectral visible. La dispersion anormale se produit à des longueurs d'onde plus grandes,

par exemple dans la silice (la base de la plupart des fibres optiques) pour des longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde de dispersion nulle de $\simeq 1,3 \mu m$. Cette particularité sera utilisée pour compresser des impulsions dans l'article 6.

Une dispersion normale entraîne une vitesse de groupe plus faible des composantes à haute fréquence, et donc étire l'impulsion avec une fréquence instantanée augmentant avec le temps. On parle ici d'un chirp positif. De façon similaire, une dispersion anormale crée des chirps négatifs.

2.3 Phase spectrale

Comme mentionné précédemment, la propagation d'une l'impulsion dans un matériau diélectrique exerce une influence significative sur chacune des composantes spectrales de cette impulsion. La dispersion peut également être définie pour un trajet optique complet. Dans ce cas, on effectue le développement de Taylor sur la phase spectrale $\phi(\omega) = k(\omega)z$ (plutôt que pour le nombre d'onde, c'est-à-dire le retard de phase par unité de longueur), et on obtient :

$$\begin{aligned} \phi(\omega) &\simeq \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\phi^{(n)}(\omega_0)}{n!} (\omega - \omega_0)^n \\ &\simeq \phi(\omega_0) + \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + \dots \end{aligned}$$

D'une façon analogue au nombre d'onde $k(\omega)$, chaque terme du développement de Taylor a une signification particulière :

Le premier ordre de dispersion , également appelé retard de groupe, représente l'intervalle de temps nécessaire à l'impulsion pour traverser une certaine quantité de matériau (longueur L). La propagation de l'impulsion, sur une longueur définie, introduit un retard et peut être décrite de cette façon :

$$\tau_g = \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}. \quad (2.28)$$

Il est à noter que le retard de groupe n'a pas d'impact sur la forme de l'enveloppe. Aussi, si le milieu n'est pas dispersif (les ordres supérieurs de la phase spectrale sont nuls), la phase varie linéairement avec la fréquence. Par conséquent, le temps de propagation est constant pour chaque composante spectrale.

Le deuxième ordre de dispersion ou en anglais *Group Velocity Dispersion* (GVD) a un impact important sur la durée de l'impulsion. La GVD quantifie le facteur d'étirement que l'impulsion reçoit pendant la propagation à l'intérieur d'un milieu (longueur L). Cette quantité est connue sous le nom de dispersion de retard de groupe ou *Group Delay Dispersion* (GDD) :

$$GDD = GVD \times L = \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0}. \quad (2.29)$$

Le troisième ordre de dispersion ou en anglais *Third Order Dispersion* (TOD) a un impact moins important sur la durée de l'impulsion (plus précisément sur la FWHM), mais il déforme l'enveloppe dans le domaine temporel. Tous les milieux diélectriques produisent un TOD positif, ce qui constitue un problème à la sortie d'une chaîne laser. Mais nous verrons plus loin quelques techniques pour compenser le TOD. Le TOD s'exprime ainsi :

$$TOD = \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} \quad (2.30)$$

Il est important de noter que les impulsions plus courtes deviennent de plus en plus sensibles à la dispersion, comme illustrée dans la fig. 2.2. Cela s'explique intuitivement par le fait que plus une impulsion est brève, plus son spectre est large. Par conséquent, la variation de vitesse entre toutes les longueurs d'onde qui composent l'impulsion sera plus prononcée, ce qui la rendra plus sensible à la dispersion par rapport à une impulsion caractérisée par un spectre plus étroit. On remarque aussi qu'un élargissement significatif se produit lorsque le carré de la durée de l'impulsion initiale τ_{in}^2 est inférieur à la GDD (fig. 2.2). Cette observation peut être démontrée en utilisant les équations eq. (2.22) et eq. (2.21), on obtient :

$$\tau_{out} = \tau_{in} \sqrt{1 + \left(\frac{GDD}{\tau_{in}^2}\right)^2}, \quad (2.31)$$

où τ_{out} est la durée de l'impulsion à la sortie.

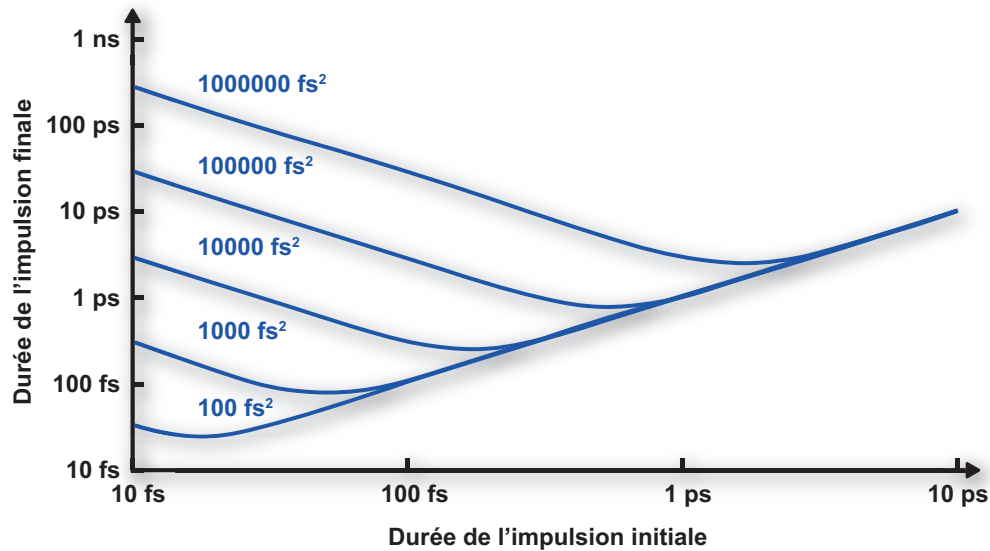


Fig. 2.2 : Effet de la dispersion en fonction de la durée de l'impulsion

Durée de l'impulsion de sortie en fonction de la durée de l'impulsion initiale (l'impulsion initial est à la limite de Fourier) avec différents niveaux de dispersion de retard de groupe (GDD) en échelle logarithmique.

Une dispersion d'ordre supérieur (≥ 3) entraîne des modifications plus complexes de la forme de l'impulsion. Ces modifications sont souvent très difficiles à rectifier avec des techniques de compensation de la dispersion et il devient très compliqué d'approcher la limite de Fourier. En pratique, lorsqu'on travaille avec des impulsions ultracourtes, on va toujours essayer de minimiser les dispersions d'ordre supérieur afin de se rapprocher autant que possible de la limite de Fourier.

Pour conclure cette section, il est indéniable que la dispersion a une importance cruciale dans le domaine des impulsions ultracourtes. La gestion de la dispersion au sein d'un système laser est essentielle pour obtenir des impulsions courtes. Dans la section suivante, nous aborderons différentes méthodes qui permettent de contrôler cette dispersion.

2.4 Gestion de la dispersion

La gestion de la dispersion est un terme un peu plus large que la compensation de la dispersion, même si les deux sont souvent utilisés de la même manière. Au sens strict, la compensation de la dispersion doit être comprise comme une méthode d'annulation de la dispersion chromatique d'un ou de plusieurs éléments optiques pour avoir une phase spectrale nulle et une impulsion proche de la limite de Fourier. La gestion de la dispersion est plus généralement l'utilisation d'une dispersion adaptée afin d'améliorer un processus précis comme l'amplification d'impulsion chirpé ou en anglais *Chirped Pulse Amplification* (CPA) [4].

La gestion de la dispersion est essentielle dans bon nombre d'applications comme les lasers à verrouillage de mode [25] ou la communication par fibre optique [26] par exemple. Dans le cadre de cette thèse, les méthodes présentées pour modifier la phase spectrale sont applicables à des impulsions ultracourtes. Un point important à noter est que dans la majorité des cas, on essaye de compenser un chirp positif. Toutes les méthodes présentées par la suite doivent donc être capable d'induire une GDD négative à la phase spectrale de l'impulsion. Nous allons d'abord voir les méthodes compensant principalement la GDD pour ensuite étudier les méthodes qui peuvent aussi modifier les ordres supérieurs de la phase spectrale.

Compensation de la GDD

Une de ces méthodes est l'utilisation de deux prismes [27]. Un premier prisme diffracte les différentes composantes de la longueur d'onde à des angles légèrement différents. Un second prisme diffracte à nouveau toutes les composantes pour les laisser se propager dans des directions parallèles après ce prisme (voir fig. 2.3, en bas), mais avec une position qui dépend de la longueur d'onde (ce que l'on appelle un chirp spatial). Avec une deuxième paire de prismes, ou simplement en réfléchissant les faisceaux à travers la paire de prismes d'origine, toutes les composantes de longueur d'onde peuvent ensuite être recombinaées dans l'espace. La longueur totale du trajet dépend de la longueur d'onde

et, par conséquent, cette configuration crée une dispersion chromatique importante, qui peut être utilisée pour la compensation de la dispersion.

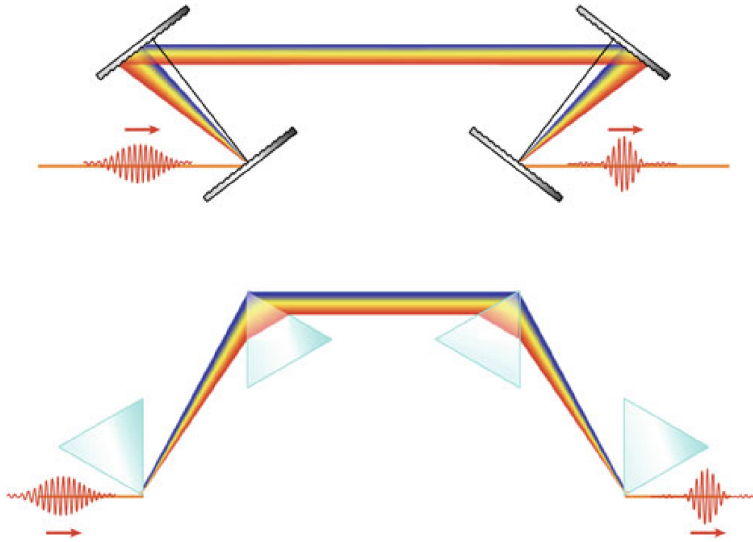


Fig. 2.3 : Compresseurs

Schéma de deux types de compresseurs : un compresseur à réseaux (en haut) et un compresseur à prismes (en bas).

Les quantités typiques de GDD négatives que des paires de prismes peuvent induire sont de l'ordre de quelques milliers de fs^2 . Cela est souvent suffisant pour la compensation de la dispersion pour de la post-compression, mais généralement pas pour l'amplification d'impulsions chirpées (CPA), par exemple. Pour des dispersions plus importantes, une paire de réseaux de diffraction peut être nécessaire; ceux-ci présentent une dispersion angulaire beaucoup plus importante et donc également une dispersion chromatique plus importante. Le haut de la fig. 2.3 montre un compresseur de Treacy [28] avec quatre réseaux, où toutes les composantes de longueur d'onde sont finalement recombinaées.

Pour la compression d'impulsions ultracourtes allant jusqu'à quelques cycles optiques, de telles configurations laissent dans la majorité des cas un chirp résiduel dû à la dispersion d'ordre supérieur. Il est souvent nécessaire de compenser cette dispersion restante par d'autres moyens pour se rapprocher de la limite de Fourier. C'est particulièrement le cas pour le compresseur à prismes, car le matériau ajoute de la TOD positive à l'impulsion.

Compensation des ordres supérieurs

Un des éléments optiques les plus utilisés pour compenser le chirp résiduel d'une impulsion sont les miroirs chirpés [29, 30]. Un miroir chirpé est un type de miroir diélectrique dispersif avec une variation des valeurs d'épaisseur des différentes couches qui composent le miroir, comme présenté dans la fig. 2.4. Une caractéristique intéressante de ces miroirs est qu'ils permettent d'obtenir une

réflexion proche de 100 % sur une grande largeur spectrale. En raison des nombreuses possibilités d'optimisation, les miroirs chirpés sont souvent vendus en tant qu'optiques sur mesure.

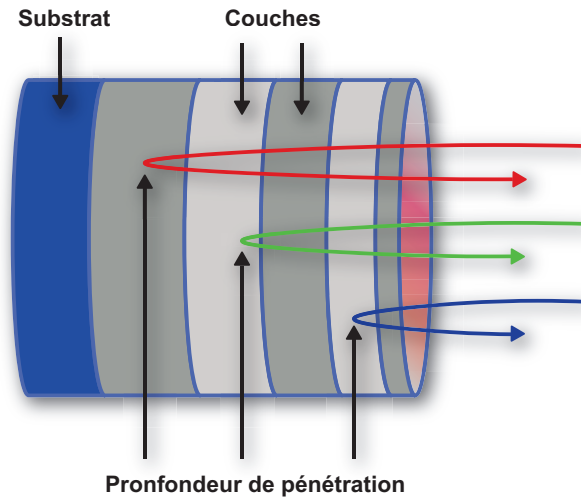


Fig. 2.4 : Exemple de fonctionnement d'un miroir chirpé.

En raison de la structure en couches, chaque longueur d'onde est réfléchie à une position différente et l'impulsion devient négativement chirpée.

Ils sont généralement conçus non seulement pour compenser une dispersion à retard de groupe constant, mais aussi pour corriger une dispersion d'ordre supérieur. Cependant, il y a des limites à la dispersion (et en particulier à la dispersion d'ordre supérieur) qui peut être compensée avec un miroir chirpé. Les solutions possibles consistent à utiliser une combinaison appropriée de plusieurs miroirs, où les erreurs de dispersion des différents miroirs s'annulent partiellement, et à combiner des miroirs chirpés avec une paire de prismes ou de réseaux.

Il existe aussi des méthodes permettant de moduler la phase spectrale des impulsions laser de façon dynamique. Cela implique l'utilisation d'une électronique à grande vitesse pour piloter un modulateur électro-optique (EOM). La forme d'onde électronique a la même forme que la forme de la lumière ciblée, mais l'électronique est généralement limitée aux basses fréquences (par rapport à la fréquence du laser), autour de quelques dizaines de GHz.

Une de ces méthodes est basée sur l'optique de Fourier avec un modulateur spatial de lumière ou *Spatial Light Modulator* (SLM) avec un montage 4f [31, 32]. Les SLM sont basés sur des cristaux liquides. L'idée est de diffracter spatialement le faisceau d'entrée à l'aide d'un réseau et de le collimater à l'aide d'une lentille (la plupart du temps cylindrique). Cette opération permet de convertir l'information temporelle en un domaine spatial (transversal au faisceau de propagation). Ensuite, un SLM est placé afin d'ajuster la phase et l'amplitude de l'impulsion en ajustant la matrice de cristaux liquides. Ensuite, une autre lentille est utilisée pour focaliser le faisceau et il est diffracté une fois de plus par un autre réseau pour recombiner spatialement le faisceau.

Une autre méthode, basée sur un filtre dispersif programmable acousto-optique (AOPDF)[33], permet de moduler la phase spectrale jusqu'au 4th ordre de dispersion. Le principe est basé sur

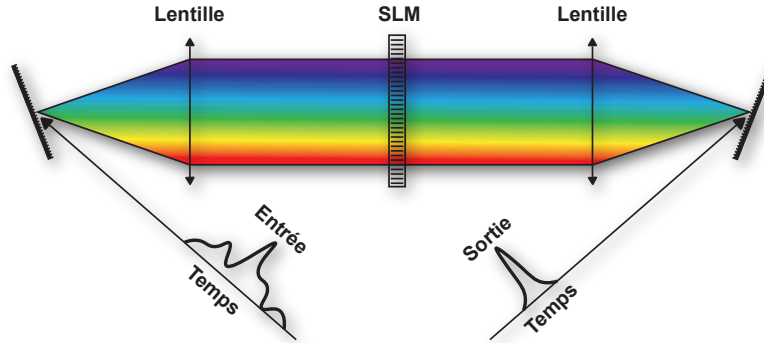


Fig. 2.5 : Exemple de fonctionnement d'un modulateur d'impulsion basé sur un modulateur spatial de lumière.

Les différentes longueurs d'ondes qui composent l'impulsion sont séparées spatialement dans le dispositif à l'aide de réseaux et collimaté dans le SLM. Le SLM module la phase spectrale de l'impulsion et toutes les composantes sont recombinaées à la fin grâce à un autre réseau.

l'interaction d'une onde acoustique et d'une impulsion lumineuse polychromatique qui copropagent à l'intérieur d'un cristal biréfringent. L'onde acoustique induit une vibration à l'intérieur de la matrice cristalline. Comme l'onde acoustique est très lente ($v = 765m/s$) par rapport à l'impulsion lumineuse, cette dernière est considérée comme une onde stationnaire. Le cristal étant biréfringent, un nouveau faisceau diffracté se propage avec une polarisation orthogonale et la phase du faisceau diffracté est directement contrôlée par l'onde acoustique.

Il est important de souligner que l'application de ces techniques de gestion de la dispersion requiert une analyse précise de la phase spectrale. Plusieurs méthodes de caractérisation de la phase spectrale pour des impulsions ultra-courtes seront présentées dans le chapitre 7. Dans le cadre de cette thèse, le compresseur de Treacy sera mis en œuvre pour l'amplification d'impulsions chirpées (CPA). Pour corriger le chirp résiduel, j'aurai recours à des miroirs chirpés ou à une épaisseur précise de matériau capable d'induire une GDD négative¹. Enfin, en ce qui concerne la compression d'impulsions au moyen de la technique MDSS (voir la section 5.2.2), l'impulsion en sortie à la particularité d'avoir un chirp négatif. Ainsi, le simple ajout d'un matériau induisant une GDD positive suffit pour comprimer l'impulsion.

Maintenant que nous avons établi les équations de propagation linéaires qui nous ont permis, entre autres, de voir les effets de la dispersion sur les impulsions et les façons de la compenser. Il nous manque une description de la propagation d'impulsion pour des champs plus intenses. Cette description est cruciale pour appréhender les interactions non linéaires qui se manifestent lors de la propagation d'impulsions ultra-courtes à travers des gaz ou des matériaux.

¹À titre d'exemple, la silice induit une GDD négative pour des impulsions ayant une longueur d'onde supérieur à 1300 nm.

2.5 Équation de propagation non linéaire

Pour les champs plus intenses, une autre description de la polarisation est nécessaire. Nous considérerons que le champ est suffisamment fort pour provoquer une non-linéarité dans le milieu sans générer de processus d'ionisation ou de dommages dus à la physique des champs forts. Dans ce cas, en plus de la polarisation macroscopique linéaire \mathcal{P} , nous devons ajouter à la relation constitutive $\mathcal{D} = \epsilon_0 \mathcal{E} + \mathcal{P}$ un terme source non linéaire $\mathcal{P}^{(NL)}$ de sorte que $\mathcal{P} = \mathcal{P}^{(1)} + \mathcal{P}^{(NL)}$. L'équation d'onde 2.6, qui est valide dans le régime linéaire, contient maintenant un vecteur de polarisation non linéaire :

$$\nabla^2 \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(NL)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.32)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{(1)} &= \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(1)} \mathcal{E} \\ \mathcal{P}^{(NL)} &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(2)} \mathcal{E}^2 + \dots + \frac{1}{n!} \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(n)} \mathcal{E}^n. \end{aligned} \quad (2.33)$$

Les quantités $\underline{\underline{\chi}}^n$ sont connues comme les susceptibilités optiques non linéaires de l'ordre n . Dans le domaine de Fourier, l'équation d'onde devient :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \omega^2 \mu_0 \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) + \omega^2 \mu_0 \mathbf{P}^{(NL)}(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.34)$$

Dans le cas d'un matériau ayant une réponse à la contribution linéaire :

$$\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega),$$

l'équation d'onde non linéaire prendra la forme suivante :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \underline{\underline{\epsilon}}_r(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \omega^2 \mu_0 \mathbf{P}^{(NL)}(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.35)$$

Puisque dans la partie suivante, nous nous concentrerons sur le second ordre de l'optique non linéaire, nous pouvons directement écrire que la relation tensorielle de l'interaction non linéaire de second ordre est :

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1) \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \quad (2.36)$$

Propagation non linéaire d'une onde plane dans un milieu isotrope

Alors que la propagation d'une onde plane en régime non linéaire ne correspond à aucune situation expérimentale réaliste (ou très rarement), l'équation d'onde non linéaire correspondante prend une forme simple et souligne les principales conditions dans lesquelles une interaction non linéaire efficace se produira. En fait, le développement suivant correspond à la propagation d'une onde à

travers un matériau non linéaire pour lequel les comportements transversaux ou temporels ne sont pas pris en compte.

Une simplification consiste à supposer d'abord un milieu isotrope et homogène, ce qui implique que le terme de gauche de l'eq. (2.35) est réduit à :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E} = -\Delta \mathbf{E}.$$

L'équation $\nabla \cdot (\mathbf{D}) = \nabla \cdot (\underline{\epsilon} \mathbf{E}) = 0$ implique $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$, la permittivité étant décrite par une quantité scalaire, qui ne dépend pas de la coordonnée spatiale. L'équation d'onde non linéaire devient alors

$$\Delta \mathbf{E}(\omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_r \mathbf{E}(\omega) = -\omega^2 \mu_0 \mathbf{P}_{NL}(\omega). \quad (2.37)$$

Nous considérons ici une onde plane se propageant le long de la direction z , $\mathbf{E}(z, \omega) = A(z) e^{ikz} \mathbf{e}$. Après substitution dans l'eq. (2.37), on obtient :

$$\frac{\partial^2 A(z)}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial A(z)}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{e} \cdot \mathbf{P}_{NL}(z, \omega) e^{-ikz} \quad (2.38)$$

en utilisant la relation de dispersion $k^2(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega)$ pour le matériau. Nous allons réutiliser une approximation très fréquente qui consiste à négliger la variation de l'enveloppe du champ $A(z)$ sur une longueur typique de l'ordre de la longueur d'onde λ . L'approximation de l'enveloppe à variation lente se note ici :

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

et repose sur l'efficacité généralement faible des interactions non linéaires. Sur cette base, l'équation des ondes non linéaires prend une forme très simple :

$$\frac{\partial A(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2\epsilon_0 n c} \mathbf{e} \cdot \mathbf{P}_{NL}(z, \omega) e^{-ikz}. \quad (2.39)$$

On montre ici qu'une onde à ω peut être modifiée par un terme non linéaire source $\mathbf{P}_{NL}(z, \omega)$ à ω si $\mathbf{e} \cdot \mathbf{P}_{NL}(z, \omega) \neq 0$. Cette condition est directement liée à la valeur des coefficients des tenseurs de susceptibilité non linéaire $\chi^{(n)}$ que l'on appelle les coefficients non linéaire d_{eff} . La deuxième condition est liée à la condition d'accord de phase, qui découle du fait que l'amplitude de polarisation non linéaire $\mathbf{P}_{NL}(z, \omega)$ contient aussi un terme de phase².

²Pour expliciter ce terme de phase, on va prendre le cas de la génération de seconde harmonique induite par la propagation d'une onde ω dans un matériau $\chi^{(2)}$. En reprenant l'eq. (2.36), l'amplitude complexe de la polarisation non linéaire générée à 2ω est donnée par :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{NL}(z, 2\omega) &= \epsilon \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1 A^2(z, \omega) e^{2ik(\omega) \cdot \mathbf{r}} \\ &\equiv \mathbf{\Pi}_{NL}(z, 2\omega) e^{2ik(\omega) \cdot \mathbf{r}} \end{aligned} \quad (2.40)$$

Pour résumer, la résolution de l'équation de propagation non linéaire dans le cas simple d'une onde plane dans un milieu isotrope montre qu'il est impératif de satisfaire ces deux conditions fondamentales pour initier une interaction non linéaire. Le chapitre suivant se concentrera uniquement sur les interactions non linéaires du second ordre et approfondira la manière dont ces conditions doivent être respectées pour garantir une interaction non linéaire efficace.

avec $\mathbf{\Pi}_{NL}(z, 2\omega)$ l'amplitude de l'enveloppe de la polarisation non linéaire.
On obtient donc :

$$\frac{\partial A_{2\omega}(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2\epsilon_0 n c} \mathbf{e} \cdot \mathbf{\Pi}_{NL}(z, 2\omega) e^{2i\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r}} e^{-i\mathbf{k}(2\omega) \cdot \mathbf{r}}$$

Même si la condition $\mathbf{e} \cdot \mathbf{P}_{NL}(z, 2\omega) \neq 0$ serait respectée, la deuxième condition à remplir pour maximiser l'onde de second harmonique sera : $2\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r} = \mathbf{k}(2\omega) \cdot \mathbf{r}$. Cette condition fait référence à la condition d'accord de phase.

3 Amplification paramétrique optique

Dans ce chapitre, nous étudierons les phénomènes physiques reliés uniquement aux interactions non linéaires du second ordre. Ce qui implique que :

$$\mathcal{P}^{(NL)} = \mathcal{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(2)} \mathcal{E}^2. \quad (3.1)$$

L'interaction non linéaire du second ordre est couramment utilisée dans diverses applications. Par exemple, elle est couramment employée pour doubler la fréquence de la lumière, un processus connu sous le nom de génération de second harmonique ou en anglais *Second Harmonic Generation* (SHG). Elle est plus généralement utilisée pour la conversion de longueur d'onde avec l'utilisation d'amplificateur paramétrique optique ou *Optical Parametric Amplifier* (OPA).

Dans ce chapitre, nous allons d'abord expliciter les différents types d'interactions qu'il est possible de faire et les contraintes qui sont nécessaires pour que le processus d'interaction non linéaire du second ordre soit efficace. Puis, après avoir passé en revue les différents types de cristaux qu'il est possible d'utiliser, je présenterai un exemple concret d'utilisation de l'interaction non linéaire du second ordre à travers un OPA conçu pendant ma thèse.

3.1 Relations de Manley-Rowe

Avant l'étude spécifique des interactions non linéaires du 2^{ème} ordre, nous allons voir dans ce qui suit une description générale de la propagation de 3 ondes ω_1 , ω_2 et ω_3 , avec $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$, interagissant dans un matériau non linéaire du 2^{ème} ordre sans perte. L'hypothèse d'un milieu sans perte signifie que l'interaction entre les trois ondes aura lieu sans aucun échange d'énergie avec le matériau. Par conséquent, les trois équations d'ondes non linéaires couplées à ω_1 , ω_2 et ω_3 devraient satisfaire la condition de conservation de l'énergie.

Pour le vérifier, nous considérons la situation simple d'ondes planes copropagatives pour lesquelles les équations d'ondes non linéaires sont directement déduites de l'eq. (2.39) :

$$\begin{aligned} \frac{dA_3(z)}{dz} &= \frac{i\omega_3}{2\epsilon_0 n_3 c} \mathbf{e}_3 \cdot \mathcal{P}^{NL}(z, \omega_3 = \omega_1 + \omega_2) e^{-ik_3 z}, \\ \frac{dA_2(z)}{dz} &= \frac{i\omega_2}{2\epsilon_0 n_2 c} \mathbf{e}_2 \cdot \mathcal{P}^{NL}(z, \omega_2 = \omega_3 - \omega_1) e^{-ik_2 z}, \\ \frac{dA_1(z)}{dz} &= \frac{i\omega_1}{2\epsilon_0 n_1 c} \mathbf{e}_1 \cdot \mathcal{P}^{NL}(z, \omega_1 = \omega_3 - \omega_2) e^{-ik_1 z}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

L'évolution spatiale des intensités de champ I_1 , I_2 et I_3 se démontre rapidement en utilisant $I = 2nc\epsilon_0|A|^2$:

$$\begin{aligned}\frac{dI_3(z)}{dz} &= +i\epsilon_0\omega_3\chi_{eff}^{(2)}A_1A_2A_3^*e^{i\Delta kz} + C.C. \\ \frac{dI_2(z)}{dz} &= -i\epsilon_0\omega_2\chi_{eff}^{(2)}A_1A_2A_3^*e^{i\Delta kz} + C.C. \\ \frac{dI_1(z)}{dz} &= -i\epsilon_0\omega_1\chi_{eff}^{(2)}A_1A_2A_3^*e^{i\Delta kz} + C.C.\end{aligned}\tag{3.3}$$

avec $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ qui représente l'accord de phase, C.C. est le complexe conjugué et $\chi_{eff}^{(2)}$ la susceptibilité non linéaire effective donnée par :

$$\begin{aligned}\chi_{eff}^{(2)} &= 2\mathbf{e}_3 \cdot \underline{\underline{\chi}}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2 \\ &= 2\mathbf{e}_2 \cdot \underline{\underline{\chi}}^{(2)}(\omega_2; \omega_3, -\omega_1) \mathbf{e}_3 \mathbf{e}_1 \\ &= 2\mathbf{e}_1 \cdot \underline{\underline{\chi}}^{(2)}(\omega_1; \omega_3, -\omega_2) \mathbf{e}_3 \mathbf{e}_2.\end{aligned}\tag{3.4}$$

Cette égalité entre les susceptibilités effectives non linéaires est le point clé de cette section. Elle est en fait justifiée par l'hypothèse d'un milieu sans perte permettant la permutation complète entre les indices du tenseur de susceptibilité (sans échanger les arguments de fréquence).

Avec l'interaction des 3 ondes dans un matériau non linéaire du 2ème ordre sans perte, leurs évolutions d'intensité (eq. (3.3)) suivent la relation :

$$\frac{dI_3(z)}{dz} + \frac{dI_2(z)}{dz} + \frac{dI_1(z)}{dz} = 0\tag{3.5}$$

ce qui signifie que l'échange d'énergie entre les 3 ondes pendant leur propagation dans le milieu non linéaire se fait en conservant la quantité totale d'intensité $I = I_1 + I_2 + I_3$ et $dI(z)/dz = 0$.

Il est intéressant de dériver une relation similaire pour la quantité $N_i = I_i/\hbar\omega_i$ liée au nombre de photons à ω_i se propageant dans le matériau par unité de temps et de surface, ce qui donne :

$$\frac{dN_1(z)}{dz} = \frac{dN_2(z)}{dz} = -\frac{dN_3(z)}{dz}.\tag{3.6}$$

Ces deux dernières relations font référence aux relations dites de Manley-Rowe qui décrivent l'interaction entre 3 ondes dans un matériau non linéaire d'ordre 2 sans perte. Ces deux relations montrent que leurs interactions sont régies par la conservation de l'énergie totale transportée par les trois ondes, en accord avec l'hypothèse d'un milieu sans perte. La deuxième relation (eq. (3.6)) est particulièrement pertinente car elle donne une description de l'interaction des trois ondes en termes de nombre de photons comme représenté par les deux diagrammes d'énergie illustrés à la fig. 3.1. La création (resp. l'annihilation) d'un photon à ω_3 doit être accompagnée de l'annihilation (resp. de la création) simultanée d'un photon à ω_1 et d'un photon à ω_2 .

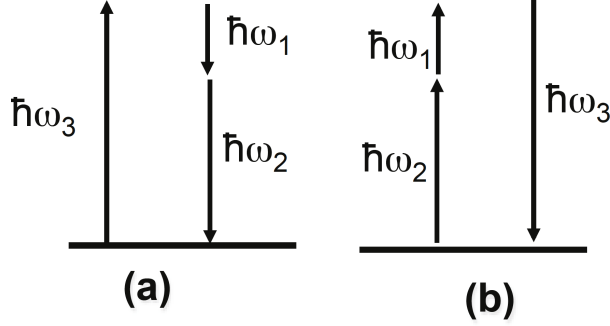


Fig. 3.1 : Diagrammes d'énergie à 3 ondes

Diagramme d'énergie de l'interaction entre 3 ondes à ω_1, ω_2 et ω_3 dans un matériau non linéaire d'ordre 2 sans perte : la création (a) (resp. l'annihilation (b)) d'un photon à ω_3 doit être accompagnée de l'annihilation simultanée (resp. de la création) d'un photon à ω_1 et d'un photon à ω_2 .

3.2 Interaction à trois ondes

En utilisant les relations de Manley-Rowe, les différentes interactions possibles de mélange à trois ondes dans un milieu non linéaire du second ordre vont être présentées. Pour toutes les situations, nous considérons l'interaction entre 3 ondes à ω_1, ω_2 et ω_3 , ou $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3$ (avec $\omega_1 \leq \omega_2 \leq \omega_3$), à l'intérieur d'un matériau sans perte $\chi^{(2)}$.

Les différentes interactions à trois ondes étudiées sont illustrées dans la fig. 3.2 :

La génération par somme de fréquences (SFG) est présentée dans la fig. 3.2(a) où l'interaction de deux faisceaux intenses incidents à ω_1 et ω_2 génère un troisième faisceau à $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Deux photons, respectivement à ω_1 et ω_2 , génèrent un photon à ω_3 . La direction de propagation du faisceau à ω_3 est donnée par la condition d'accord de phase : $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$. Un cas particulier est la SFG avec une onde de pompe originale et une partie de celle-ci doublée en fréquence, ce qui conduit à un triplement de la fréquence. Un tel processus peut être beaucoup plus efficace que le triplement direct de la fréquence sur la base d'une non-linéarité d'ordre 3. Ce cas particulier sera utilisé dans la section 3.5.3 pour générer un faisceau à 206 nm servant de sonde pour une application en ARPES (acronyme pour *Angle-resolved photoemission spectroscopy*).

La génération d'harmoniques du second ordre (SHG) peut être considérée comme un cas de dégénérescence de la SFG avec un seul faisceau incident, $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, dont la fréquence sera doublée : $\omega_3 = \omega + \omega = 2\omega$. Comme l'illustre la fig. 3.2(b), la génération d'un photon à 2ω est régie par l'annihilation simultanée de 2 photons à ω . Avec un seul faisceau incident le long du vecteur d'onde \mathbf{k}_ω , le faisceau de SHG sera généré dans la même direction puisque $\mathbf{k}_{2\omega} = 2\mathbf{k}_\omega$. Cette interaction permettra de doubler la fréquence d'un laser Yb dans la section 3.5.3.

La génération par différence de fréquences (DFG) est présentée dans la fig. 3.2(c) où l'interaction de deux faisceaux intenses incidents à ω_1 et ω_3 génère un troisième faisceau à $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$. La direction de propagation du faisceau à ω_3 est donnée par la condition d'accord de phase

: $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$. Cette interaction permet d'avoir accès à des longueurs d'onde plus grandes. Elle sera notamment utilisée pour générer un faisceau pouvant varier entre 4 et 8 μm dans la section 3.5.3.

La fluorescence paramétrique optique (OPF) ou en anglais *Optical Parametric Fluorescence* peut être observée avec un seul faisceau intense à ω_3 incident sur le cristal non linéaire, qui générera des paires de photons à ω_1 et ω_2 le long des directions définies par l'accord de phase $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$. Un tel effet non linéaire ne peut pas être prédit par la description classique utilisée ici et une description complète de ce phénomène n'entre pas dans le cadre de cette thèse. En pratique, on essaye toujours d'être en dessous du seuil de fluorescence lorsque l'on veut produire une autre interaction.

L'amplification paramétrique optique (OPA) diffère de la configuration précédente par l'ajout d'un faisceau faible à ω_2 en entrée. L'amplification paramétrique peut être parfaitement décrite en résolvant des équations d'ondes non linéaires couplées. Les solutions montrent qu'une amplification du faisceau incident ω_2 se produit avec une diminution de l'intensité du faisceau de pompe ω_3 . En accord avec les relations de Manley-Rowe, un troisième faisceau à ω_1 est généré simultanément à l'intérieur du cristal le long de la direction $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2$. Ce faisceau est appelé l'onde complémentaire ou l'idler¹.

L'oscillation paramétrique optique (OPO) consiste à insérer un OPA à l'intérieur d'une cavité optique. La configuration décrite dans la fig. 3.2(f) coïncide avec une configuration d'OPA à copropagation, les trois ondes se propageant dans la même direction, bien qu'une configuration non colinéaire telle que celle décrite dans le graphique (e) puisse être mise en place. Dans la pratique, les miroirs sont recouverts d'un revêtement réfléchissant soit à ω_1 , soit à ω_2 , dans le cas d'une OPA à résonance unique, soit à ω_1 et ω_2 dans le cas d'une configuration à double résonance. Lorsque l'intensité de la pompe atteint une valeur seuil, le gain d'amplification paramétrique subi par ω_1 ou ω_2 compense parfaitement les pertes de la cavité, et la condition d'oscillation de la cavité est satisfaite. Deux faisceaux cohérents à ω_1 et ω_2 sortent de la cavité.

3.3 Accord de phase

La condition d'accord de phase, qui a déjà été mentionné dans la section 2.5, est une donnée cruciale pour avoir un processus non linéaire efficace. Pour avoir une meilleure compréhension de cette notion, nous allons reprendre l'expression de l'amplitude complexe de la polarisation non

¹Il est à noter que le processus d'OPA et de DFG représente en réalité la même interaction et un éternel débat s'est créé dans la communauté quant à la dénomination appropriée de ces processus. Dans cette thèse, si le processus à pour but l'amplification d'un des faisceaux incidents, ce sera un OPA. Une DFG sera le cas où le but du processus est de récupérer le faisceau généré (l'idler).

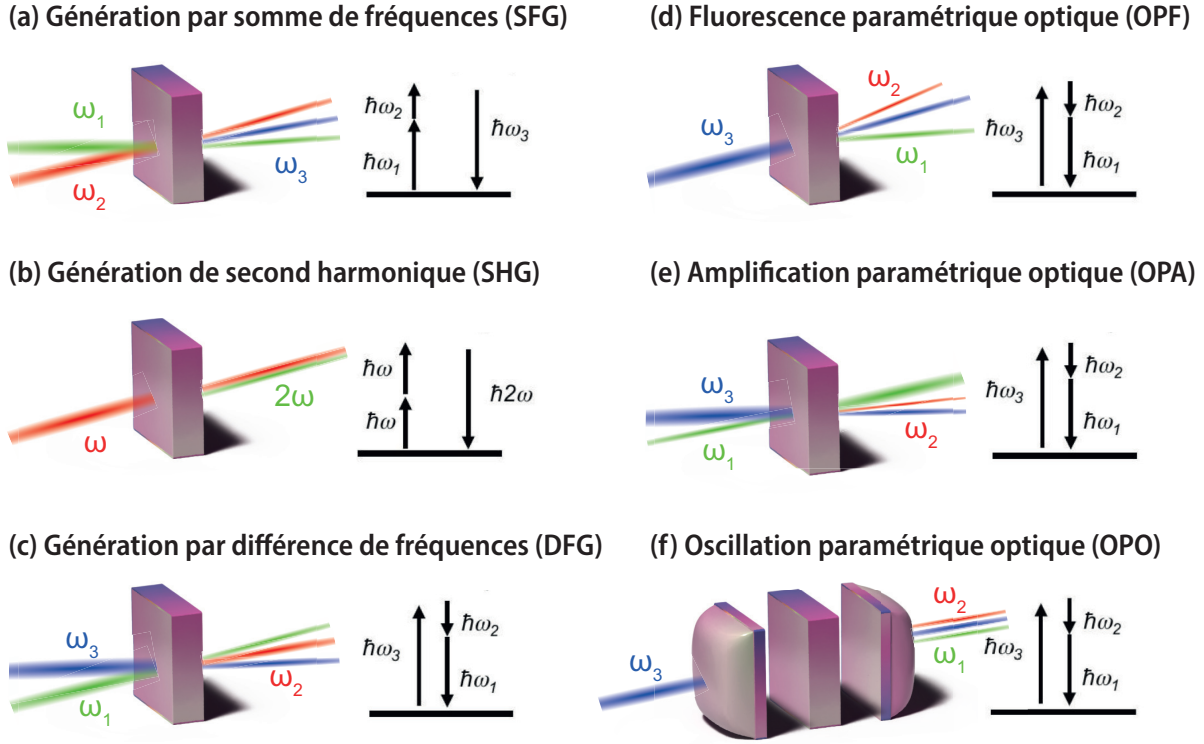


Fig. 3.2 : Interactions à 3 ondes

Configurations possibles d'interactions à 3 ondes, avec les diagrammes d'énergie des photons correspondants. (a) Génération par somme de fréquences. (b) Génération de second harmonique. Effets paramétriques optiques : (c) Fluorescence, (d) Amplification et (e) Oscillation.

linéaire définie dans l'éq. (2.40). L'amplitude complexe de la polarisation non linéaire s'écrit avec un terme d'enveloppe Π_{NL} et un terme de phase :

$$P_{NL}(z, \omega) = \Pi_{NL}(z, \omega) e^{i\mathbf{k}_p(\omega) \cdot \mathbf{r}} \quad (3.7)$$

avec \mathbf{k}_p le vecteur d'onde lié à la polarisation non linéaire, qui dépend des vecteurs d'onde des ondes en interaction. L'équation d'onde non linéaire (eq. (2.39)) prend alors la forme :

$$\frac{\partial A(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2\epsilon_0 n c} \mathbf{e} \cdot \Pi_{NL}(z, \omega) e^{-i\Delta k z} \quad (3.8)$$

avec $\Delta k z = (\mathbf{k}_p - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{z}$ le décalage de phase entre la polarisation non linéaire et l'onde à ω . En supposant une interaction non linéaire très faible (également appelée interaction paramétrique), nous pouvons supposer que l'intensité de la polarisation non linéaire est constante le long de z , c'est-à-dire que $\Pi_{NL}(z, \omega) = \text{Const}$. Dans ces conditions, l'équation d'onde (eq. (3.8)) peut être

facilement intégrée et l'évolution de l'intensité de l'onde est donnée par :

$$I(z) = \frac{\omega^2}{2nc\epsilon_0} |e \cdot \mathbf{\Pi}_{NL}(\omega)|^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) L^2. \quad (3.9)$$

Pour avoir une meilleure idée de l'impact que l'accord de phase a sur l'intensité en sortie, la fig. 3.3 montre l'évolution de l'intensité (eq. (3.9)) pour trois conditions d'accord de phase : $\Delta k = 0$, $\Delta k = 10/L$, $\Delta k = 40/L$, avec L l'épaisseur du matériau non linéaire. Alors que l'intensité croît avec le carré de la distance dans le cas d'un accord de phase parfait, l'intensité se met à osciller quand $\Delta k \neq 0$. Comme la périodicité augmente avec Δk , l'intensité maximale de l'onde évolue à l'inverse de Δk .

Dans le cas d'une interaction sans un accord de phase parfait (ce qui est tout le temps le cas), il peut être utile de définir la longueur de cohérence $L_c = \pi/\Delta k$, qui est égale à la moitié d'une période de l'intensité. Cette définition sera essentielle pour expliquer le quasi-accord de phase qui sera traité dans la section 3.3.4.

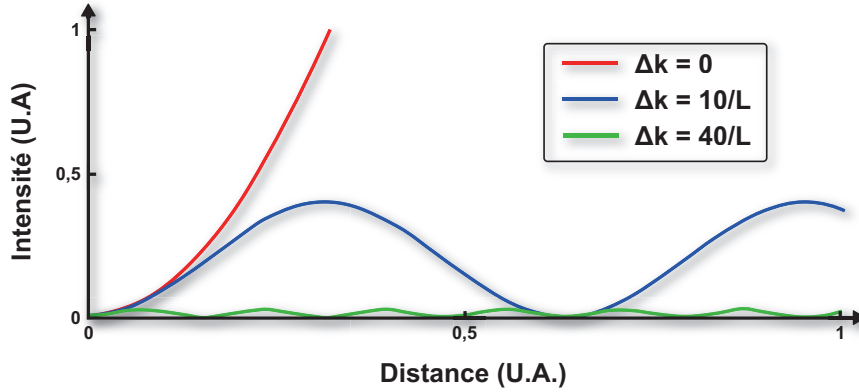


Fig. 3.3 : Intensité en fonction de la condition d'accord de phase.

Évolution de l'intensité du faisceau en fonction de la distance pour trois conditions d'accord de phase : $\Delta k = 0$, $\Delta k = 10/L$, $\Delta k = 40/L$, avec L l'épaisseur du matériau non linéaire.

3.3.1 Accord de phase biréfringent

Maintenant que nous avons vu l'impact que la condition d'accord de phase a sur l'intensité, il faut se demander comment réaliser cette condition d'accord de phase en pratique. La réalisation de la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ pour le cas simple de la SHG implique : $n(\omega) = n(2\omega)$. En général, la dépendance en fréquence de l'indice de réfraction d'un matériau sans perte présente une dispersion normale, ce qui signifie que l'indice de réfraction augmente avec la fréquence. Comme le montre la fig. 3.4 (a), l'égalité $n(2\omega) = n(\omega)$ peut être impossible dans la pratique, si l'on considère un matériau isotrope.

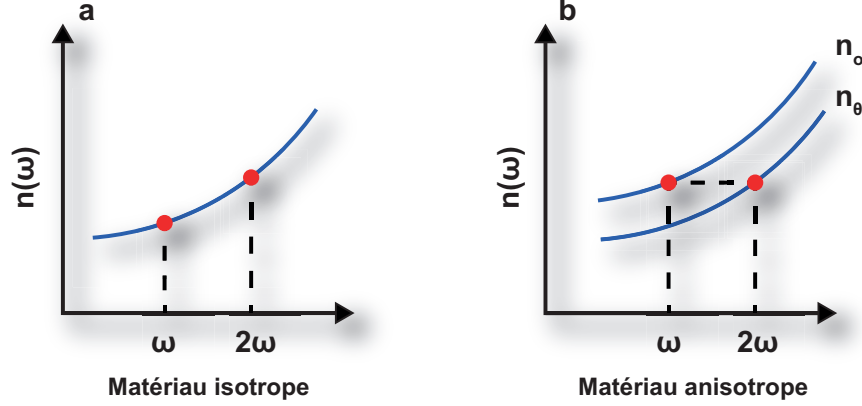


Fig. 3.4 : Accord de phase dans des matériaux isotrope et anisotrope.

Variation de l'indice de réfraction en fonction de la fréquence dans un matériau à dispersion normale. (a) Matériau isotrope pour lequel $n(2\omega) \neq n(\omega)$. (b) Exemple de matériau anisotrope pour lequel on peut obtenir $n(2\omega) = n(\omega)$ pour une onde à 2ω polarisée sur l'axe extraordinaire et une onde à ω polarisée sur l'axe ordinaire.

Pour remédier à cela, nous pouvons exploiter les propriétés biréfringentes des matériaux. Comme mentionné dans la section 2.1, un milieu anisotrope bien choisi présente deux indices de réfraction le long d'une direction de propagation donnée z . Chaque indice de réfraction, n_o ou n_θ , en référence aux indices ordinaires et extraordinaires, est lié à un état de polarisation propre spécifique, soit e_o , soit e_θ . En utilisant la relation de dispersion, on peut obtenir un accord de phase, par exemple en propageant sélectivement le faisceau de pompe à ω le long de l'état de polarisation ordinaire e_o , et l'onde à 2ω le long de l'état de polarisation extraordinaire e_θ , comme illustré dans la fig. 3.4 (b).

Types d'accords de phases

Il existe différentes variantes pour obtenir un accord de phase dans un cristal biréfringent. Une de ces variantes est l'accord de phase de type I qui signifie que, par exemple, dans la génération de second harmonique, les deux photons à ω ont la même polarisation, perpendiculaire à celle de l'onde à 2ω . L'accord de phase prendra nécessairement une de ces formes : $\mathbf{k}_o(\omega) + \mathbf{k}_o(\omega) = \mathbf{k}_\theta(2\omega)$ ou $\mathbf{k}_\theta(\omega) + \mathbf{k}_\theta(\omega) = \mathbf{k}_o(2\omega)$, ce qui permet d'obtenir l'égalité

$$n_o(\omega) = n_\theta(2\omega) \text{ ou } n_\theta(\omega) = n_o(2\omega).$$

Inversement, dans un accord de phase de type II, les deux photons à ω ont des directions de polarisation différentes. L'accord de phase prendra donc une des formes suivantes : $\mathbf{k}_o(\omega) + \mathbf{k}_\theta(\omega) = \mathbf{k}_\theta(2\omega)$ ou $\mathbf{k}_o(\omega) + \mathbf{k}_\theta(\omega) = \mathbf{k}_o(2\omega)$, ce qui permet d'obtenir l'égalité

$$\frac{1}{2}(n_o(\omega) + n_\theta(\omega)) = n_\theta(2\omega) \text{ ou } \frac{1}{2}(n_o(\omega) + n_\theta(\omega)) = n_o(2\omega)$$

Ce type d'accord de phase peut être approprié lorsque la biréfringence est relativement forte (surcompensation de la dispersion dans un accord de phase de type I).

Les différents arrangements de polarisation peuvent avoir diverses implications pratiques. Par exemple, lorsque deux ondes présentent la même polarisation, on préférera un accord de phase de type I si cela est possible. La réalisation d'un accord de phase de type II, dans ce cas, nécessitera de changer la polarisation d'un des faisceaux.

Accord de phase critique et non critique

Un accord de phase non critique (parfois appelé accord de phase en température ou accord de phase à 90°) est une technique permettant d'obtenir l'accord de phase d'un processus non linéaire. Les faisceaux en interaction sont alignés de telle sorte qu'ils se propagent le long des axes du cristal non linéaire biréfringent. L'accord de phase est minimisé en ajustant la température du cristal.

Le terme "non critique" vient du fait que cette technique est relativement insensible à un léger désalignement des faisceaux lasers. Un autre avantage est que le phénomène de walk-off spatial est évité (ce phénomène sera expliqué dans la prochaine section). Par conséquent, l'efficacité de la conversion peut souvent être plus élevée avec l'accord de phase non critique, car les faisceaux peuvent être focalisés plus petits. L'inconvénient, cependant, est que la température du cristal est généralement éloignée de la température ambiante, de sorte que l'utilisation d'un four à cristal est souvent nécessaire pour atteindre cette température. Dans la plupart des cas, la température à atteindre est juste irréaliste et ce genre d'accord de phase n'est pas réalisable en pratique.

Dans ce cas la, un accord de phase critique est nécessaire. Les faisceaux en interaction sont alignés à un certain angle par rapport aux axes du cristal. Dans presque tous les cas, il y a une ou deux ondes polarisées linéairement le long d'un axe de l'ellipsoïde d'indice (faisceau ordinaire), tandis qu'une ou deux autres ondes sont polarisées à un angle variable avec le plan traversé par les deux autres axes (faisceaux extraordinaires) (fig. 2.1). L'ajustement de l'angle de propagation affecte l'indice de réfraction du faisceau extraordinaire (appelé indice de réfraction extraordinaire), alors que l'indice ordinaire reste constant. Pour une certaine position angulaire, l'accord de phase peut être atteint.

L'accord de phase critique est le plus répandu en pratique, car il permet d'avoir des accords de phases à température ambiante. De plus, on peut ajuster l'accord de phase simplement en variant l'angle du cristal. Néanmoins, cette méthode est plus sensible et peut amener des instabilités. Cette méthode est aussi sensible au walk-off spatial comme nous allons le voir dans la prochaine section. Il est à noter que tous les accords de phases dans cette thèse sont des accords de phases critiques.

3.3.2 Walk-off spatial and temporel

Dans les cristaux biréfringents, il peut arriver que la distribution de l'intensité s'éloigne de la direction définie par le vecteur d'onde, comme illustré dans la fig. 3.5. Le vecteur de Poynting \mathcal{S} qui définit la direction du transport d'énergie n'est plus colinéaire au vecteur d'onde \mathbf{k} qui est normal aux fronts d'onde. Cela s'explique par la relation tensorielle qui lie \mathcal{E} et \mathcal{D} exprimée dans l'éq. (2.9) et par le fait que la valeur du vecteur de Poynting moyenné dans le temps est donnée par $\langle \mathcal{S} \rangle = \langle \mathcal{E} \times \mathcal{H} \rangle$. Ce phénomène, appelé walk-off spatial, est associé à un certain angle fini α (appelé angle de déviation) entre la direction du vecteur d'onde et la direction du vecteur de Poynting.

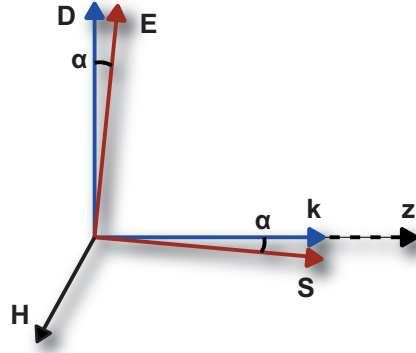


Fig. 3.5 : Angle de walk-off spatial α

Directions de $(\mathbf{D}, \mathbf{H}, \mathbf{k})$ pour une onde électromagnétique se propageant le long de la direction z dans un milieu anisotrope.

Le walk-off spatial ne se produit que pour un faisceau laser polarisé extraordinairement, se propageant à un certain angle par rapport aux axes optiques, de sorte que l'indice de réfraction n_θ et la vitesse de phase dépendent de cet angle. L'angle de déviation peut alors être calculé à partir de l'équation suivante :

$$\tan \alpha = -\frac{1}{n_\theta} \frac{\partial n_\theta}{\partial \theta} \quad (3.10)$$

Cet effet peut grandement réduire l'efficacité d'un processus non linéaire tout en altérant les caractéristiques spatiales des faisceaux de sorties, qui tendent généralement à prendre une forme ellipsoïdale. Dans le cadre de cette thèse, cet effet sera très peu visible car les cristaux employés ici sont trop courts pour qu'il soit visible. Le walk-off spatial est généralement pris en compte dans le cas d'impulsions plus longues, dépassant souvent la picoseconde, et lorsque les cristaux non linéaires sont nécessairement plus longs.

Il est essentiel de distinguer cet effet du walk-off temporel. En effet, la réalisation de l'accord de phase ne veut pas nécessairement dire que les vitesses de groupe des ondes en interaction coïncident. Il existe souvent un certain décalage des vitesses de groupe qui limite la longueur d'interaction des impulsions et donc la longueur du cristal, que l'on appelle le walk-off temporel. La fig. 3.6 montre le cas où le cristal utilisé pour la conversion non linéaire est beaucoup trop long. Il en résulte en sortie

de cristal une impulsion générée très longue et déformée, cela peut aussi mener à de la reconversion vers l'impulsion fondamentale dans les cas les plus extrêmes. Il existe plusieurs méthodes pour éviter ces effets, l'une d'elles serait de chirper les impulsions avant l'interaction pour éviter ce décalage temporel.

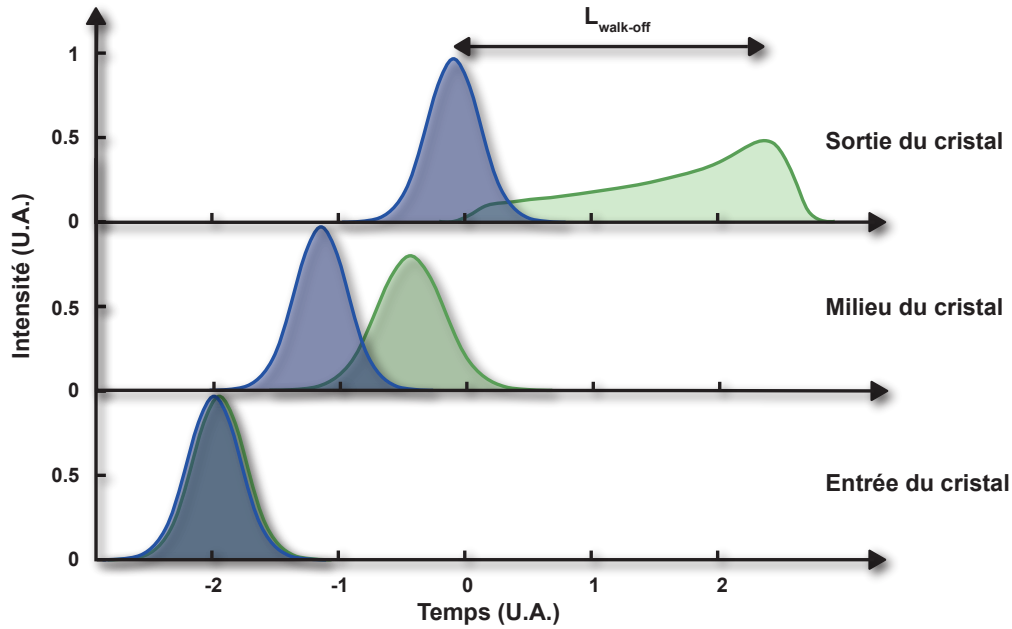


Fig. 3.6 : Walk-off temporel

Intensité (unité arbitraire) normalisée de l'impulsion fondamentale (bleu) et de l'impulsion générée (verte) à plusieurs longueurs dans le cristal non linéaire. En raison du décalage de vitesse de groupe, les deux impulsions qui se chevauchent initialement dans le temps ne peuvent plus se chevaucher après une certaine distance de propagation. Ainsi, lorsque la longueur du cristal non linéaire dépasse la longueur du décalage de vitesse de groupe ($L_{walk-off}$), l'impulsion générée est déformée en sortie.

Si l'on regarde dans le domaine fréquentiel, pour une longueur d'interaction donnée, la plage spectrale dans laquelle l'accord de phase est réalisé est aussi limitée, on appelle cela la largeur de bande d'accord de phase. En outre, il n'existe qu'une gamme finie d'angles de faisceau où l'accord de phase fonctionne (en particulier pour l'accord de phase critique). Cette plage d'angles est généralement appelée largeur de bande d'accord de phase angulaire. Le walk-off temporel et la largeur de bande d'accord de phase décrivent exactement le même effet dans le domaine temporel et fréquentiel.

Il convient de souligner que cet effet devient de plus en plus apparent à mesure que la durée de l'impulsion lumineuse diminue. Par conséquent, le walk-off temporel sera un phénomène crucial dans le cadre de cette thèse et sera pris en compte dans toutes les interactions non linéaires présentées dans la suite de cette étude.

3.3.3 Accord de phase non colinéaire

Un des moyens couramment utilisés pour augmenter la largeur de bande d'accord de phase est d'avoir un accord de phase non colinéaire. Dans le cas d'un OPA, il y aura un angle α_{int} entre les faisceaux de la pompe et le faisceau du signal. Cela permet d'obtenir à la fois un gain élevé (compensation du walk-off spatial) et une largeur de bande plus grande car l'angle d'accord de phase devient quasiment indépendant de la longueur d'onde [34, 35]. En pratique, l'angle entre la pompe et le signal est typiquement autour de 3,5 deg.

Cette technique vient néanmoins avec quelques désavantages. L'angle entre la pompe et le signal peut mener à des déformations du faisceau en sortie. De plus, l'idler généré sera dispersé angulairement avec un angle β_{int} à cause d'un tel accord de phase comme illustré dans la fig. 3.7.

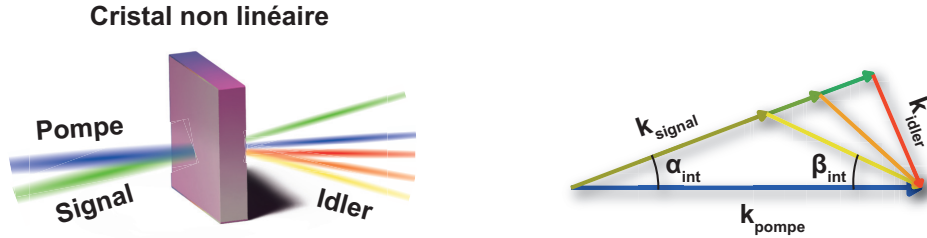


Fig. 3.7 : Accord de phase non colinéaire.

Schéma d'un OPA en géométrie non colinéaire (NOPA) : la pompe, le signal et l'idler respectent la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement à l'intérieur d'un cristal non linéaire, ce qui se traduit par un chirp angulaire du faisceau idler émergent (à gauche). Accord de phase des vecteurs d'ondes k_{pompe} (bleu), k_{signal} (vert) et k_{idler} (jaune, orange, rouge) pour un NOPA (à droite).

Il existe toutefois des moyens pour récupérer un idler dispersé angulairement [36, 37] mais en pratique, lorsque l'on veut utiliser l'idler généré après une interaction non linéaire, on va préférer un accord de phase colinéaire. Ce sera le cas dans cette thèse où l'on utilisera un accord de phase colinéaire afin de facilement utiliser l'idler par la suite (section 3.5.3).

3.3.4 Quasi-accord de phase

Un quasi-accord de phase ou en anglais *Quasi-Phase Matching* (QPM) est une technique permettant d'obtenir des résultats similaires à ceux obtenus avec un accord de phase classique, en particulier pour la conversion de fréquences non linéaire basée sur des non-linéarités en $\chi^{(2)}$ [38, 39]. Au lieu d'un matériau cristallin non linéaire homogène, on utilise un matériau dont les propriétés

non linéaires sont modulées dans l'espace. L'idée est de modifier périodiquement le coefficient non linéaire du matériau. Cela permet d'inverser l'interaction non linéaire à des endroits où l'interaction se produirait dans le mauvais sens de conversion comme illustré dans la fig. 3.8 (courbes bleu et noir).

Comme mentionné dans la section 3.3, sans accord de phase, le gain suit une loi périodique où la demi-période est appelée longueur de cohérence $L_c = \pi/\Delta k$. Pendant la propagation à l'intérieur du cristal, le gain augmente jusqu'à atteindre un maximum à L_c . Ensuite, une rétroconversion se produit (du signal et de l'idler vers la pompe) jusqu'à $2L_c$. Le QPM consiste à inverser le signe du coefficient non linéaire d_{eff}^2 à chaque L_c afin de maintenir le gain croissant au cours de la propagation. Par conséquent, à chaque instant, dans le cristal, nous avons des interférences constructives pour augmenter le gain. La condition d'accord de phase peut donc s'écrire ainsi :

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i - \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (3.11)$$

où Λ est la période d'oscillation du signal amplifié.

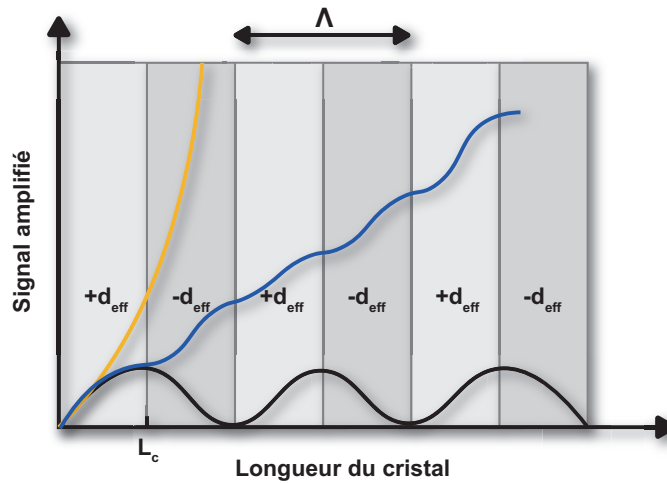


Fig. 3.8 : Quasi-accord de phase

Comparaison du gain en fonction de la longueur du cristal non linéaire, pour un cristal avec un accord de phase parfait (ligne jaune), sans accord de phase (ligne noire) et en utilisant le quasi-accord de phase (ligne bleue).

Par rapport au cas de l'accord de phase parfait, le QPM conduit à un rendement de conversion plus faible si le coefficient non linéaire est le même : le coefficient non linéaire effectif d_{eff} est réduit d'un facteur de $2/\pi$ et le carré de ce facteur influe sur l'efficacité de la conversion. Cette différence d'efficacité se remarque dans la fig. 3.8 entre les courbes jaune et bleu.

²Comme mentionné à la fin de la section 2.5, le coefficient non linéaire d_{eff} est en fait une composante du tenseur de non linéarité et se note $d_{ijk} = 1/2 \cdot \chi_{ijk}^{(2)}$. Nous supposons que la composante d_{ijk} est symétrique dans ses deux derniers indices. Cette hypothèse est valable chaque fois que la condition de symétrie de Kleinman est valable. La notation d_{ijk} est alors remplacée par une notation contractée d_{ij} qui est utilisé dans cette thèse.

Cependant, le QPM autorise l'utilisation de la même direction de polarisation pour toutes les ondes qui interagissent, ce qui permet souvent d'avoir accès à un élément plus fort du tenseur non linéaire. On parle parfois d'un "accord de phase de type 0". Cela permet d'obtenir dans certains cas une efficacité de conversion plus élevée que pour un véritable accord de phase. Prenons l'exemple du niobate de lithium (LN) utilisé dans cette thèse à la section 3.5.3, pour lequel l'accord de phase biréfringent utilisé pour les étages 2 et 3 de l'OPA s'appuie sur le coefficient $d_{31} = 4,35 \text{ pm/V}$, alors que le QPM utilisé dans l'étage 1 avec le même matériau se repose sur le coefficient plus élevé $d_{33} = 25 \text{ pm/V}$. Comme l'efficacité de la conversion est généralement proportionnelle au carré du coefficient non linéaire (dans le régime de faible conversion), l'utilisation de d_{33} permet ici une efficacité de conversion bien meilleure (nous reviendrons sur ce point dans la section 3.4.3). De plus, une telle configuration permet d'éviter le phénomène de walk-off spatial.

3.4 Cristaux non linéaires

Dans cette thèse, nous avons déjà beaucoup abordé le sujet des cristaux non linéaire (ce mot revient plus de 30 fois juste dans ce chapitre). Cependant, nous avons surtout parlé des interactions qu'il était possible de faire, des différents accords de phase et des effets indésirables que l'on pouvait rencontrer avec ce genre de cristaux. En pratique, il y a un moment où il faut choisir un cristal pour une interaction particulière. Cette partie va tenter d'expliquer les paramètres qui rentrent en compte lorsqu'on choisit un cristal non linéaire.

3.4.1 Choix du cristal non linéaires

Il y a de nombreuses propriétés différentes qui peuvent être importantes dans le choix d'un cristal non linéaire par rapport à un autre. Dans le cadre de cette thèse et plus généralement dans le cadre d'interaction non linéaire d'impulsion femtoseconde, trois paramètres sont prédominants :

L'ampleur du coefficient non linéaire effectif d_{eff} est le plus important étant donné qu'il contribue directement à l'efficacité de conversion de l'interaction. Il dépend des composantes du tenseur non linéaire $\chi^{(2)}$ et de la configuration de l'accord de phase utilisé. Il arrive que l'on change un accord de phase juste pour atteindre un d_{eff} plus grand dans un cristal non linéaire.

Les propriétés de dispersion chromatique et de biréfringence sont aussi importantes car elles déterminent les possibilités d'accord de phase, la largeur de bande d'accord de phase et l'acceptation angulaire. Même si un cristal à un d_{eff} très grand, si sa largeur de bande d'accord de phase est faible, on préférera utiliser un autre cristal avec un d_{eff} plus petit et une meilleure largeur de bande d'accord de phase.

Le seuil de dommage a aussi une importance significative, car il restreint l'intensité maximale qui peut être atteinte dans le cristal, influant directement sur son efficacité. Cependant, il convient de noter que l'obtention de cette donnée peut souvent s'avérer complexe, car elle est généralement déterminée par des mesures expérimentales et présente une variation importante en fonction de la durée de l'impulsion et de la longueur d'onde.

Voici une liste non exhaustive d'autres propriétés pouvant aussi être pertinentes dans le choix d'un cristal non linéaire :

- La transparence optique est aussi une donnée à regarder. Normalement, le matériau cristallin doit avoir une transparence optique élevée pour toutes les longueurs d'onde concernées - par exemple, pour la pompe, le signal et l'idler dans un amplificateur paramétrique optique. Dans le cas contraire, cela réduirait nettement la conversion non linéaire tout en chauffant le cristal à cause de l'absorption. Cela pourrait créer une lentille thermique (ce phénomène sera expliqué dans la section 5.1.3) ou même endommager le cristal.
- L'accessibilité à des cristaux offrant une qualité constante est essentielle, tout en garantissant qu'ils sont disponibles dans des dimensions adaptées à l'application envisagée. Il est à noter que des cristaux de petite taille peuvent parfois être les seuls disponibles, car leur croissance sur de plus grandes dimensions peut s'avérer complexe.
- La durabilité chimique peut s'avérer pertinente dans certains cas. Par exemple, certains matériaux cristallins sont hygroscopiques, tandis que d'autres subissent des modifications chimiques lorsqu'ils sont chauffés dans une chambre à vide pour l'application d'un revêtement diélectrique. C'est donc une donnée à prendre en compte dans le choix du cristal non linéaire.

Le choix du cristal le plus approprié pour une application donnée est souvent loin d'être trivial; il doit tenir compte de nombreux aspects, avec souvent plusieurs options envisageables. Après avoir vu les principaux critères de sélections, nous allons maintenant étudier les cristaux non linéaires les plus couramment utilisés.

3.4.2 Cristaux non linéaires couramment utilisés

Le niobate de lithium ($\text{LiNbO}_3 = \text{LN}$) est un matériau présentant une non-linéarité relativement forte. Il est souvent utilisé pour la conversion non linéaire de fréquences et pour les modulateurs électro-optiques. Ce matériau a un seuil de dommage relativement bas, mais n'a pas besoin d'être utilisé à des intensités élevées en raison de sa forte non-linéarité. Il a néanmoins tendance à produire des effets photoréfractifs, qui sont préjudiciables à la conversion de fréquences. La tendance aux "dommages photoréfractifs" dépend fortement de la composition du matériau; elle peut être réduite par le dopage au MgO. Ce type de dopage sera utilisé pour les cristaux dans la section 3.5.3.

La famille des borates est aussi très utilisée pour des interactions non linéaires. Les plus connus sont le triborate de lithium ($\text{LiB}_3\text{O}_5 = \text{LBO}$), le borate de césium et de lithium (CLBO , $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$), le borate de β -baryum ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4 = \text{BBO}$), le triborate de bismuth ($\text{BiB}_3\text{O}_6 = \text{BIBO}$) et le borate de césium ($\text{CSB}_3\text{O}_5 = \text{CBO}$). Les borates sont généralement hygroscopiques ; ce problème est important pour le CLBO et pour le BBO, mais beaucoup moins pour le LBO.

Le LBO, le BBO, le CLBO conviennent à la génération de longueurs d'onde relativement courtes, par exemple dans les sources lasers vertes et bleues, et à la génération d'UV car l'énergie de leur bande interdite est relativement élevée. Ils sont aussi relativement résistants à la lumière UV et proposent des options d'accord de phase adéquates. Le BBO sera, par exemple, utilisé dans cette thèse pour générer de l'UV à 206 nm. Le LBO et le BBO fonctionnent également bien dans les oscillateurs paramétriques optiques et dans l'amplification d'impulsions chirpées avec des OPCPA.

Pour générer de l'infrarouge moyen, il faut des matériaux cristallins dont la gamme de transparence s'étend loin dans la région spectrale de l'infrarouge. Les matériaux les plus utilisés pour cette application sont le diphosphure de zinc et de germanium (ZGP, ZnGeP_2), le sulfure et le séléniure d'argent et de gallium (AgGaS_2 et AgGaSe_2) et le séléniure de gallium (GaSe). Dans la section 3.5.3, nous avons utilisé du silicate de lanthane et de gallium (LGS) pour générer du moyen infrarouge qui a aussi l'avantage de pouvoir être pompé avec du 1030 nm [40].

3.4.3 Cristaux à retournement de périodes périodiques

La technique de QPM (présentée dans la section 3.3.4) a été proposée dès 1962 [41], mais n'a pas pu être utilisée à l'époque car les techniques de fabrication appropriées n'avaient pas encore été mises au point. Par conséquent, l'accord de phase biréfringent a longtemps été la seule technique utilisée. C'est dans les années 1980 que la technique de QPM a été démontrée expérimentalement pour la première fois [42]. La clé dans sa démocratisation a été le développement de la technique de retournement de périodes périodiques qui permet d'obtenir un quasi-accord de phase. Elle implique un processus qui génère une inversion périodique de l'orientation du domaine dans un cristal non linéaire, de sorte que le signe du coefficient non linéaire change également.

La technique de fabrication la plus courante pour le retournement de période périodique se fait par l'application d'un champ électrique puissant à un cristal ferroélectrique par l'intermédiaire d'électrodes disposées sur la surface du cristal. Ils ont généralement une période comprise entre quelques microns et quelques dizaines de microns. La période de retournement de domaine (c'est-à-dire la période du motif de l'électrode) détermine les longueurs d'onde pour lesquelles le quasi-accord de phase peut se produire. L'effet se produit pour une intensité de champ supérieure à l'intensité de champ dite coercitive, qui est par exemple de $\approx 21 \text{ kV/mm}$ dans le cristal de LN. Le problème principal de cette technique est que l'on a pas encore accès à des cristaux de grandes dimensions, ce qui pose problème lorsqu'on veut utiliser des cristaux à retournement de période périodique avec de grandes énergies de pompe.

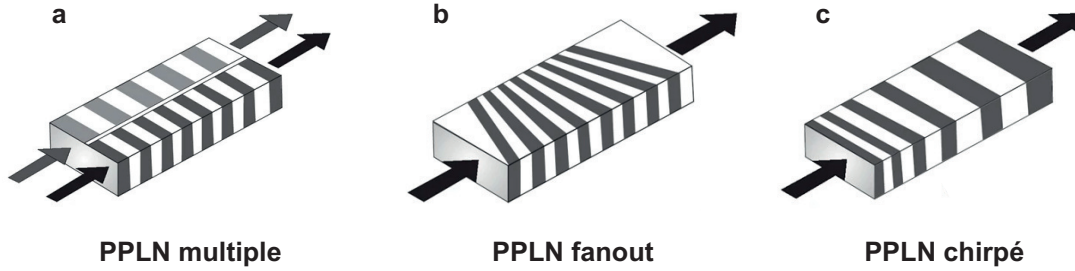


Fig. 3.9 : Schéma de différentes variantes de PPLN

(a) PPLN multiple où plusieurs période de retournement de période sont mises côte à côte. (b) PPLN "fanout" où la période de retournement de période change en fonction de l'axe transversal. (c) PPLN chirpé où la période de retournement de période change en fonction de l'axe de propagation.

Pour plus de flexibilité, il est possible de mettre en place plusieurs quasi-accords de phase dans un seul cristal. On y parvient en utilisant des cristaux à retournement de domaine périodique avec plusieurs périodes de retournement de domaine côte à côte par exemple (fig. 3.9 (a)). Le LN à retournement de domaine périodique (PPLN) utilisé pour le premier étage d'amplification dans l'OPA présenté dans la section 3.5.3 a une telle configuration. Il est aussi possible d'utiliser des PPLN "fanout", comme présenté dans la fig. 3.9 (b), où la période de retournement de période change en fonction de l'axe transversal du faisceau de propagation, ce qui évite d'avoir des discontinuités. Enfin, il existe des variantes de QPM, c'est le cas du QPM chirpé (fig. 3.9 (c)), où la période change cette fois le long de l'axe du faisceau de propagation. Ces cristaux sont utilisés pour avoir un accord de phase sur des bandes spectrales plus élevées.

3.5 Application d'un système d'amplification paramétrique

Maintenant que nous connaissons le mécanisme des interactions non linéaires du second ordre et les matériaux dans lesquels ces interactions peuvent se produire, on peut se tourner vers les applications possibles pour ces techniques et en particulier les applications des amplificateurs paramétriques optiques (OPA). Les OPAs trouvent leurs utilités dans bon nombre d'applications; on pourrait notamment citer la spectroscopie [43] où ils éliminent la nécessité de plusieurs lasers et permettent, dans certains cas, la détection simultanée de plusieurs pics d'absorption. Les sources OPA capables de produire un rayonnement ultra-court et intense dans l'infrarouge moyen gagnent aussi en importance dans les sciences de l'attoseconde et la physique des champs forts en raison de la dépendance en longueurs d'onde du processus de HHG [44, 45]. Dans cette section, nous mettrons en œuvre un système de conversion non linéaire couplé à un système d'amplification paramétrique afin de réaliser de la spectroscopie dans des matériaux quantiques. Nous commencerons par une explication de la technique, suivie de la présentation du système.

3.5.1 Le principe de la mesure ARPES

Dans cette thèse, je vais présenter une autre application pour un système d'amplification paramétrique : la spectroscopie de photo-émission résolue en angle (ARPES). Cette technique est basée sur l'effet photoélectrique et permet de mesurer la structure électronique d'un matériau en détectant l'angle des photo-électrons émis à la surface du matériau. Elle est notamment utilisée pour l'étude de matériaux quantiques tels que des isolants topologiques ou des supraconducteurs à haute température [46–48]. Pour photo-émittre des électrons, on dirige un faisceau de photons à haute énergie sur l'échantillon, comme illustré dans la fig. 3.10. Dans le cadre de cette thèse, nous utiliserons des photons d'une énergie de 6 eV. Il est essentiel que l'énergie des photons soit supérieure à la fonction de travail du matériau, généralement située autour de 4-5 eV pour les métaux. Cette énergie est nécessaire pour surmonter la barrière potentielle à la surface du matériau, ce qui permet aux électrons d'être photo-émis.

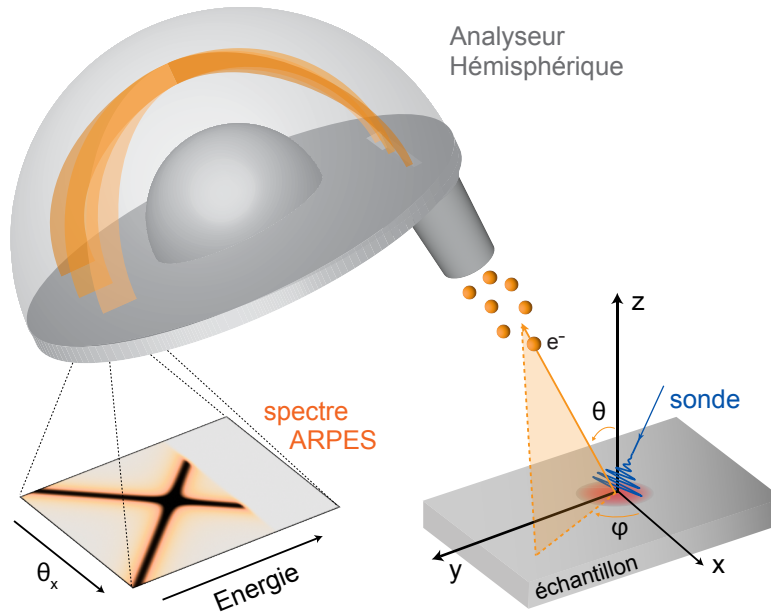


Fig. 3.10 : Schéma de la technique ARPES.

Les impulsions de la sonde provoquent la photo-émission d'électrons à partir de l'échantillon. Les photo-électrons sont ensuite collectés par un analyseur d'électrons (un analyseur hémisphérique sur le schéma), qui les sépare à la fois en fonction de leur énergie cinétique et de leur angle d'émission, générant ainsi le spectre ARPES. Adapté de [49] .

Ces photo-électrons sont ensuite collectés par un analyseur, dans notre cas un analyseur hémisphérique (fig. 3.10). Il permet de mesurer l'énergie cinétique des photo-électrons pour un angle d'émission spécifique en les déviant vers un détecteur 2D. En utilisant les principes de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, nous pouvons établir un lien direct entre le spectre ARPES, l'énergie et la quantité de mouvement de l'électron dans le matériau. Cela est démontré

par les équations suivantes :

$$\hbar k_{\parallel} = \sqrt{2mE_k} \cdot \sin(\theta), \quad (3.12)$$

$$E_k = h\nu - \phi - |E_B|, \quad (3.13)$$

où $\hbar k_{\parallel}$ est la composante parallèle à la surface du moment cristallin ou en anglais *crystal momentum*, E_k est l'énergie cinétique des photo-électrons, θ est l'angle d'émission azimutal, ϕ est la fonction de travail du matériau et E_B est l'énergie de liaison. La technique ARPES permet donc d'avoir un accès direct à la dispersion des électrons dans un matériau. Cependant, si l'on regarde à la formule décrivant l'intensité du spectre ARPES $I(\omega, \mathbf{k})$:

$$I(\omega, \mathbf{k}) = A(\omega, \mathbf{k}) \cdot |M(\omega, \mathbf{k})|^2 \cdot f(\omega) \quad (3.14)$$

où $A(\omega, \mathbf{k})$ est la fonction spectrale contenant notamment les interactions entre les électrons, $M(\omega, \mathbf{k})$ est la matrice de photo-émission et fait référence à la probabilité totale d'un processus de photo-émission, $f(\omega)$ est la fonction de distribution de Fermi-Dirac. Cela montre que le spectre ARPES ne contient pas seulement des informations sur la distribution des électrons mais aussi des informations sur les interactions qu'ont ces électrons dans le matériau.

3.5.2 La mesure ARPES résolue dans le temps : TR-ARPES

Dans le laboratoire ALLS, nous voulons aussi réaliser des mesures ARPES résolues dans le temps (TR-ARPES) [49, 50]. Cela suppose la mise en place d'une expérience pompe-sonde. La pompe, utilisant des photons de faible énergie, servira à exciter l'échantillon, tandis que la sonde (avec un faisceau à 6 eV) permettra de photo-émittre les électrons comme montré dans la fig. 3.11(a). L'analyse de l'énergie et de la quantité de mouvement de ces électrons émis en fonction du délai entre la pompe et la sonde permet de voir l'évolution temporelle de la structure électronique du matériau (fig. 3.11(b)).

En d'autres termes, la technique TR-ARPES permet donc d'avoir un film de l'excitation de la pompe sur la structure électronique du matériau. Pour des retards négatifs ($\tau < 0$, à l'extrême gauche de la fig. 3.11(b)), l'impulsion de pompe atteint l'échantillon après l'impulsion de sonde, de sorte que l'excitation n'apparaît pas dans le signal de photo-émission. Lorsque les impulsions de la pompe et de la sonde se chevauchent ($\tau \sim 0$, au centre à gauche), le signal TR-ARPES montre une nouvelle distribution entraînée par l'excitation de la pompe. Ensuite, sur des échelles de temps comparables au temps de diffusion électron-électron ($\tau \sim \tau_{ee} \sim 10\text{-}100$ fs, au centre à droite), les électrons chauds induits par la pompe tendent à se thermaliser. Enfin, pour des délais positifs plus longs ($\tau \gg 0$, ~ 100 fs - 10 ps, extrême droite), le système revient à ses conditions d'équilibre en transférant l'énergie du bain électronique dans les vibrations du réseau et/ou d'autres modes collectifs.

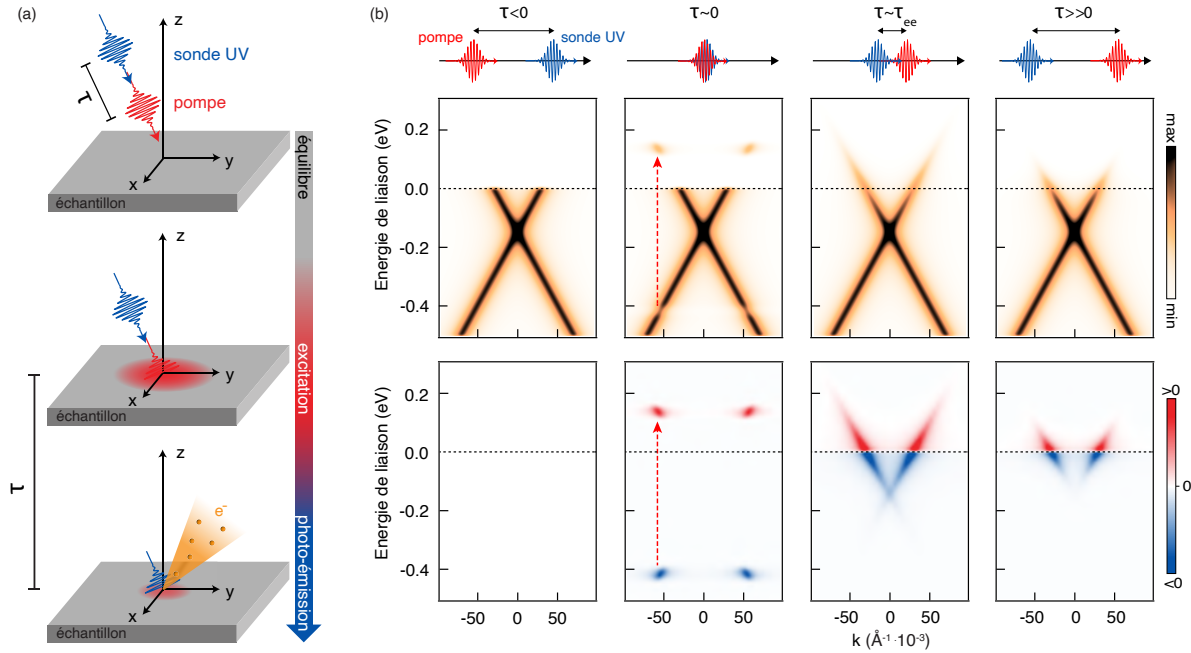


Fig. 3.11 : Principes de fonctionnement de la technique TR-ARPES.

(a) Illustration de l'approche pompe-sonde en TR-ARPES utilisant deux impulsions lasers séparées par un intervalle de temps τ : l'impulsion pompe fait sortir le système de l'équilibre et l'impulsion sonde déclenche le processus de photo-émission. (b) Croquis simplifié de l'évolution du signal TR-ARPES induite par la pompe pour une dispersion de Dirac. Rangée du haut : traces TR-ARPES pour différents délais pompe-sonde τ (τ_{ee} définit le temps de thermalisation électron-électron). La flèche rouge en pointillé indique l'énergie du photon de pompe et la transition optique verticall correspondante entre les états occupés et les états non occupés. Rangée du bas : les traces TR-ARPES différentielles mettent en évidence les redistributions énergétiques induites par la pompe. Adapté de [49] .

Cela permet de comprendre la dynamique des propriétés électroniques du matériau, comme les processus de relaxation des électrons excités, la formation d'états transitoires et l'interaction entre les électrons et les vibrations du réseau. En faisant varier des paramètres tels que la température, la pression ou le champ magnétique, on peut étudier la manière dont ces facteurs influencent le comportement des électrons dans le matériau. Cela peut aider à comprendre des phénomènes physiques fondamentaux, tels que les transitions de phase, la supraconductivité et le comportement des matériaux dans des conditions extrêmes.

La technique TR-ARPES s'est historiquement appuyée sur les longueurs d'ondes dans l'infrarouge proche et le visible pour l'excitation de la pompe. Cela a conduit aux premières démonstrations des capacités de la technique TR-ARPES dans plusieurs systèmes [51, 52]. Bien qu'il existe plusieurs cas spécifiques où la lumière infrarouge proche/visible est nécessaire (comme l'excitation d'excitons), bien souvent, les photons sont trop énergétiques et l'excitation en résultant est trop intense. Cela se traduit par des températures électroniques effectives pouvant atteindre des milliers de degrés Kelvin. L'analyse et la compréhension de telles excitations sont encore délicates.

Une excitation avec un photon de plus petite énergie permettra un couplage plus sélectif avec le bain électronique, ce qui peut donner lieu à l'émergence de nouveaux phénomènes quantiques

[53–55]. Il est à noter que le développement des systèmes TR-ARPES avec des excitations à grande longueur d’onde est encore à un stade préliminaire. Cependant, des recherches pionnières ont démontré la faisabilité de telles expériences en utilisant des impulsions de pompe dans l’infrarouge moyen [56–58].

3.5.3 Résumé français de *Longa et al. OE 2024* - Source MIR accordable et sonde à 6.0 eV pour des expériences TR-ARPES

Nous présentons une source laser conçue spécifiquement pour la technique de TR-ARPES. Notre source laser génère des impulsions laser accordables dans l’infrarouge proche et moyen (1,5 à 8 microns - 0,82 à 0,15 eV) à une cadence de 250 kHz. Comme expliqué précédemment dans la section 3.5.2, les systèmes TR-ARPES avec des capacités d’excitation à longue longueur d’onde en sont encore à leurs balbutiements et il n’y a que quelques systèmes de ce type dans le monde. Des recherches pionnières ont démontré la viabilité de telles expériences, produisant des résultats significatifs en utilisant des impulsions de pompe dans l’infrarouge moyen. Néanmoins, la capacité à fournir une source laser stable et accordable pour les expériences TR-ARPES, générant des impulsions d’une durée de 100 fs et couvrant une large gamme spectrale, est une nouveauté. Ce travail montre comment notre nouveau dispositif peut faire progresser la technique TR-ARPES en offrant aux chercheurs un outil puissant pour étudier les phénomènes induits par la lumière dans les matériaux quantiques. Nous anticipons que notre système contribuera grandement à faire progresser notre compréhension du comportement électronique dans divers systèmes complexes.

Pour construire cette source laser, un laser à fibre dopée à l’ytterbium est utilisé. Ces lasers ont une robustesse de niveau industriel, ce qui les rend très stables en termes d’énergie et fiables dans le temps. Les lasers à base d’ytterbium ont des défauts quantiques très faibles, ce qui permet des taux de répétition très élevés. Cependant, la largeur spectrale du gain est relativement étroite, ce qui se traduit généralement par une durée d’impulsion d’environ 300 fs. En combinant cette technologie avec un OPA, il est possible d’accorder la longueur d’onde dans les régions infrarouge proche et moyen tout en réduisant la durée de l’impulsion à environ 100 fs. Cette combinaison de technologies donne une source idéale pour exciter, de façon sélective, des transitions électroniques dans les matériaux quantiques tout en maintenant une haute résolution temporelle. De plus, des étages non linéaires appropriés peuvent être mis en œuvre pour générer des impulsions dans le proche UV pour le faisceau sonde.

Dans cet article, la source laser est composée d’un OPA pompé à l’ytterbium à 250 kHz synchronisé avec un dispositif de génération de cinquième harmonique. L’OPA génère des impulsions entre 1,5 et 8 μm (0,82 à 0,15 eV) pour le faisceau de pompe. Le dispositif de génération de cinquième harmonique délivre des impulsions à 206 nm (6 eV) pour la sonde TR-ARPES. Nous présentons une caractérisation complète du faisceau de pompe avec une stabilité en puissance d’environ 2%

RMS, un profil de faisceau en champ lointain de $200 \mu m$ et une durée d'environ $100 fs$. Enfin, nous présentons des résultats préliminaires de TR-ARPES sur un isolant topologique.

4 Article - ARPES résolu en temps avec une sonde à 6.0 eV et une pompe MIR accordable à 250 kHz

Time-resolved ARPES with probe energy of 6.0 eV and tunable MIR pump at 250 kHz

ARPES résolu en temps avec une sonde à 6.0 eV et une pompe MIR accordable à 250 kHz

Auteurs :

Adrien Longa¹, Jean-Michel Parent¹, Benson Kwaku Frimpong¹, Dario Armanno¹, Nicolas Gauthier¹, François Légaré¹, Fabio Boschini¹ and Gaëtan Jargot¹

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada

Titre de la revue ou de l'ouvrage :

Article soumis à la publication en 2024 dans la revue Optics Express

Manuscript ID : 525265

Contribution :

Adrien Longa et Gaëtan Jargot ont construit l'OPA à 3 étages d'amplification.

Adrien Longa et Jean-Michel Parent ont réalisé et optimisé la DFG.

Adrien Longa et Gaëtan Jargot ont caractérisé le troisième étage de l'OPA et la DFG.

Adrien Longa a réalisé l'analyse des résultats et la rédaction de la partie "système laser" du papier.

Jean-Michel Parent, Benson Kwaku Frimpong et Dario Armanno ont pris les résultats préliminaires TR-ARPES.

Jean-Michel Parent a réalisé l'analyse des résultats et rédigé la partie TR-ARPES du papier.

François Légaré, Fabio Boschini et Gaëtan Jargot ont formulé et développé le projet.

Abstract

In this paper, we present a laser source designed specifically for time- and angle-resolved photoemission (TR-ARPES) investigations of light-induced electron dynamics in quantum materials. Our laser source is based on an ytterbium-doped laser that seeds an optical parametric amplifier (OPA) followed by a difference frequency generation (DFG) stage. This configuration enables the generation of tunable near-infrared and mid-infrared laser pulses (1.5 to 8 μm - 0.82 to 0.15 eV) at 250 kHz of repetition rate, serving as the pump for TR-ARPES measurements. The remaining energy of the laser is used to generate the ultraviolet 6 eV probe pulses, which prompt the material to emit photoelectrons. We demonstrate the long-term stability of the source, as well as the characterization of the beam profiles and pulse durations. Additionally, we present preliminary TR-ARPES results obtained on Bi_2Te_3 , a prototypical 3D topological insulator. This paper illustrates the capability of our laser source to probe electronic dynamics in quantum materials.

4.1 Introduction

Through the continuous progress in the field of quantum materials, key challenges are being addressed in various areas such as communication, computing, and medicine. At the forefront of quantum material studies, angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) provides direct access to their electronic structure with momentum and energy resolutions [59, 60]. ARPES has played a crucial role in advancing our understanding of strongly correlated electron and topological systems, with the investigation of the low-energy electronic structure of high-temperature cuprate superconductors [48] and the demonstration of the existence of topological surface states in topological insulators [47] as emblematic examples. Additionally, the ARPES technique can be extended in the time domain by using ultrafast lasers, also known as time-resolved ARPES (TR-ARPES), giving access to ultrafast electron dynamics and their scattering processes, light-induced phase transitions, and the mapping of out-of-equilibrium electronic states [49]. TR-ARPES relies on a pump-probe scheme. The two laser pulses used must be carefully chosen to excite the material out of its equilibrium state (pump pulse) and photoemit electrons (probe pulse) [61].

Firstly, the probe pulse must have a photon energy higher than the material's work function, typically 4-5 eV, to prompt the material to photoemit an electron. The spectral bandwidth of the probe has significant implications for the time and energy resolutions that can be obtained [62]. Regarding the pump pulse, light excitations in the near or mid-infrared range provide new opportunities for selective excitation schemes, to access electronic states with no equilibrium counterpart and to control quantum properties on demand [63–66]. Another important aspect to consider for TR-ARPES measurements is the need for a high electron count rate, i.e. a high photon flux of the probe source, to obtain high statistic data. However, the density of photoemitted electrons per pulse can become large enough to lead to space charge effects, which can significantly broaden the

spectral features [61, 67]. High repetition rate lasers are, therefore, crucial to maintain a high average photon flux while keeping the number of photons per pulse sufficiently low to avoid detrimental space charge effects. Furthermore, as TR-ARPES scans run typically on a time scale of several hours / days, a highly stable source over time is a non-negotiable choice to obtain exploitable data.

To build this laser source, an ytterbium-doped fiber amplifier laser is used. These lasers have industrial-level robustness, making them very stable in energy and reliable over time. Ytterbium-based lasers have very low quantum defects, allowing for very high repetition rates [6, 7]. However, the gain spectral width is relatively narrow, typically resulting in pulse duration of approximately 300 fs [11–14, 68]. Combining this technology with an OPA allows wavelength tuning in the near and mid-infrared regions while shortening the pulse duration to approximately 100 fs [69–71]. This combination is an ideal pump source to excite selected electronic transition in quantum materials while maintaining a high temporal resolution. Additionally, appropriately chosen nonlinear stages can be implemented to generate pulses in the near UV range for the probe beam [72].

In this paper, we introduce a laser source tailored for TR-ARPES measurements that is composed of a ytterbium-pumped 250-kHz OPA synchronized with a fifth harmonic generation setup. The OPA is generating pulses between 1.5 and 8 μm (0.82 to 0.15 eV) for the pump beam. The fifth harmonic generation setup delivers pulses at 206 nm (6 eV) for the TR-ARPES probe. We present a complete characterization of the output pump beam with a power stability of $\approx 2\%$ RMS, a far-field beam profile of 200 μm , and a duration of about 100 fs. Finally, we present preliminary TR-ARPES results on a prototypical topological insulator.

4.2 Optical Setup

The TR-ARPES endstation and optical system are located at the Advanced Laser Light Source (ALLS) facility. The OPA is pumped by an industrial grade Yb-doped fiber amplifier laser (Tangerine, Amplitude) that deliver pulses with an energy of 200 μJ and a duration of approximately 150 fs full-width at half-maximum (FWHM). It has a maximum average power of 50 W with a repetition rate of 250 kHz. The laser’s internal grating can be adjusted to change the pulse duration, and the repetition rate can be set anywhere between a few Hz and 2 MHz. The beam profile is nearly Gaussian, with a measured M^2 value of less than 1.3, and the pulse-to-pulse energy stability is typically within 1% RMS.

Figure 4.1 displays the optical setup configuration. The laser is split into two components with a beam-splitter (BS) 75-25. The fifth harmonic is generated from the weaker component, in the deep ultraviolet (DUV) range (6 eV). This beam is used as the probe in the ARPES experiment. The more intense part seeds an ultrashort tunable OPA followed by a difference frequency generation (DFG) stage that generates light in the mid-infrared (MIR) range, which covers wavelengths from 4 to 8 μm . This second part can be employed to photoexcite a wide variety of quantum materials.

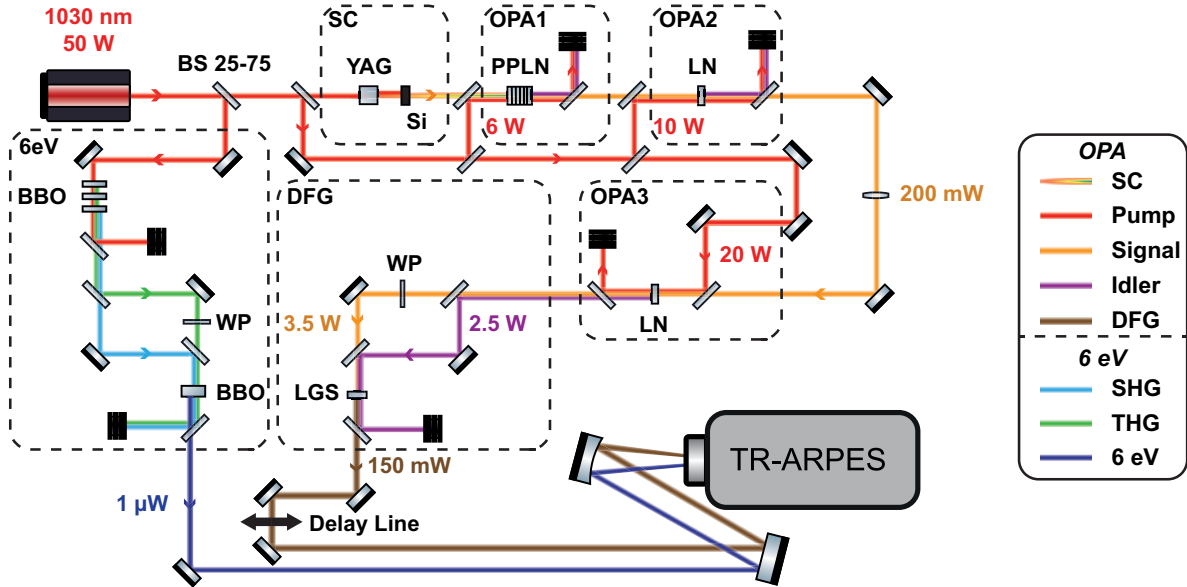


Fig. 4.1 : Optical setup. BS: beam splitter. SC: supercontinuum generation in Yttrium Aluminium Garnet (YAG) crystal. OPA1: 1 mm long Periodically Poled MgO:LiNbO₃ crystal. OPA2 and OPA3: 1.5 mm long MgO:LiNbO₃ crystals. DFG: difference frequency generation. LGS: La₃Ga₅SiO₁₄ crystal. WP: waveplate. BBO: BaB₂O₄ crystal.

The OPA is seeded with most of the energy of the pump laser at 250 kHz and with the shorter pulse duration available with this laser (150 fs), which has been empirically determined to be the optimal duration for maximizing the extraction of the pump into the signal and idler. The supercontinuum (SC) of the OPA is generated by tightly focusing 1 W of the pump laser in a 10 mm long YAG crystal, and its spectrum spans from visible to infrared light (500-2000 nm). A complete characterization of this supercontinuum has been presented in Ref. [22]. The bandwidth of interest is between 1600 nm and 1850 nm, and the SC has been optimized to be stable in this region. In order to achieve the best possible compromise between gain and bandwidth in the initial amplification stage (OPA1), the seed is stretched over time using a 3-mm-thick silicon (Si) plate (see SC in Fig. 4.1). The stretched seed is then amplified in a 1-mm MgO-doped Periodically Poled Lithium Niobate (PPLN) crystal in a collinear geometry and a type-0 phase matching (see OPA1 in Fig. 4.1). The amplified signal is selected and successively amplified in the subsequent OPA stages (OPA2 and OPA3 in Fig. 4.1), both collinear, type-I, 1.5-mm, bulk LiNbO₃ crystals. OPA2 and OPA3 are pumped by 10 W and 20 W respectively. The amplified signal and the generated idler in OPA3 are separated and recombined in a type-1 1 mm long LGS crystal to generate MIR pulses through a DFG process. In order to satisfy the phase-matching condition, the signal polarization is turned with a half-waveplate (WP). The OPA can be tuned to generate a DFG signal between 4 μm and 8 μm with at least 70 mW of average power.

The remaining power (12 W) of the pump laser is used for the probe beam. At the moment, only a small part of the remaining power is used to generate 6 eV light but we are planning to extend our probe in the extreme ultraviolet (XUV) range via high harmonic generation using gas in the near future. The first step for the 6 eV line is a third harmonic generation (THG) done in a two-

step process, a second harmonic generation (SHG) followed by a sum-frequency generation (SFG) between the fundamental and the second harmonic. This scheme is more effective than a direct THG. A type-1 1 mm long Beta Barium Borate (BBO) crystal is used for the SHG and a type-2 1 mm long BBO crystal is used for the SFG. A type-2 phase matching is chosen for the SFG to avoid the change of the polarization between these two steps. A time delay between the fundamental pulse and the SHG pulse is introduced via propagation through the SHG crystal as a result of the group velocity mismatch (GVM) and a calcite plate is placed after the SHG to compensate for the delay induced by the first BBO. This is used to improve the temporal overlap of the pulses for the SFG. Both SHG (515 nm) and THG (343 nm) pulses are spatially separated and recombined in a type-1 1 mm long BBO crystal to perform another SFG and generate the fifth harmonic (206 nm or 6 eV). The 6 eV light and the MIR light are collected and spatially and temporally overlap in the TR-ARPES system.

4.2.1 Tunability

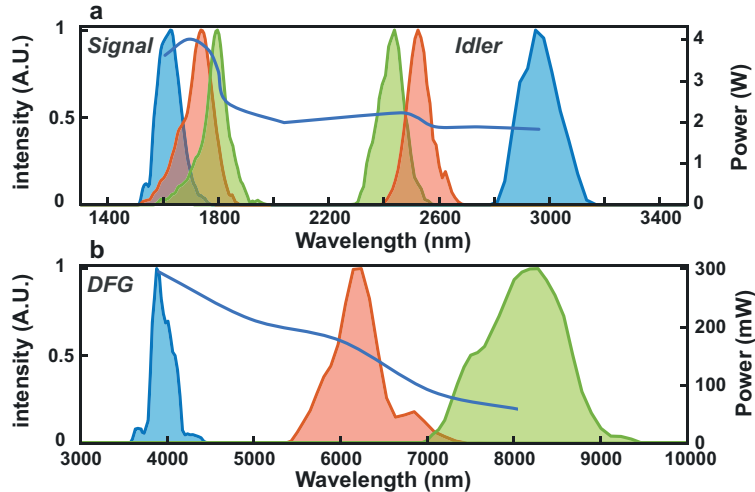


Fig. 4.2 : (a) Tunability of the OPA system for three different signal and idler couples (blue, orange and green). (b) Tunability of the DFG between 4 μm and 8 μm for the three different couples. The blue curve represents the average power.

The OPA is designed to deliver light between 4 μm and 8 μm using a DFG stage. Figure 4.2a presents pairs of signal and idler: 1640/2770 nm (blue), 1770/2460 nm (orange) and 1830/2350 nm (green) that generate MIR light through the DFG process. Each pair shown in Fig. 4.2a generates a DFG spectrum centered at 4 (blue), 6.4 (orange) and 8.2 μm (green), respectively (Fig. 4.2b). The layout of this system allows rapid wavelength change and switching between the signal, the idler or the DFG to be used as the pump for the TR-ARPES system. All put together, this system can deliver pulses between 1.5 to 8 μm . In terms of average power, the signal output power varies between 2.5 and 4 W, the idler output power between 1.8 and 2.3 W, and the DFG output power between 70 and 300 mW, depending on the wavelength in use (blue curve in Fig. 4.2a-b).

4.2.2 Long-term measurement and beam profile

Average output power is measured every 0.1 s using an air-cooled power meter. Fig. 4.3a shows the power after the dichroic for the signal and the idler at the output of OPA3 for a period of 25 hours. In this specific case, the signal/idler couple (1640/2770 nm) is optimized for the generation of a 4 μm DFG light. The average power values are 4.10 W and 1.58 W with an RMS stability of 1 % for the signal and idler, respectively, over 25 hours. Figure 4.3b presents the power stability of the DFG beam after the LGS crystal for 2 different tuning of the OPA, one to generate 4 μm of DFG light (300 mW and 3 % RMS over 15 hours) and the other one to generate 8 μm (74 mW and 3 % RMS over 15 hours). It is important to note that these measurements were taken after two weeks during which the system was operating 24/7 at 8 μm . The system was tuned back to 4 μm to take long-term measurements for the signal, the idler and the DFG.

The spatial beam profile of the signal and the idler at the output of the OPA (OPA3) is characterized by using a silicon camera. The beam is seen through multi-photon absorption, and compensation is needed to access the real spot size. The near-field beam profile is measured just after the dichroic separating the signal and idler beam where the beam is collimated. The beam is relatively Gaussian, with a diameter of ≈ 2.5 mm for the signal and the idler at $1/e^2$. Both beams are then focused using a + 200 mm AR-coated plano-convex CaF_2 lens. This setup is the one used for the DFG stage. For the far-field, the camera is positioned at the focus, where the LGS crystal is normally placed. The far-field beam profiles are shown in Fig. 4.3a. The beam diameter for the signal is around 120 μm and around 90 μm for the idler over the whole range of the OPA.

The spatial beam profile of the DFG beam is characterized with a BaSrTiO_3 pyroelectric infrared camera (Electrophysics, model PV320-L2Z). This camera operates with an internal 10 Hz chopper and has a 320×240 pixel imaging array with a pixel spacing of 48.5 μm . The DFG and 6 eV beams are focused into the TR-ARPES chamber via an $f=50$ cm Al concave mirror. The far-field beam profile is around 200 μm and the 8 μm beam far-field is shown in Fig. 4.3b.

4.2.3 Duration measurement

Frequency-resolved optical switching (FROSt) is the technique used to temporally characterize the signal and the idler after the last stage of amplification (OPA3) and the DFG pulses [15, 21]. A complete description of the FROSt optical setup can be found in [22], as well as the temporal characterization of the SC and OPA2 stage. We delay the depleted pump of the OPA3 to coincide both temporally and spatially with the beam we want to characterize (signal, idler or DFG) onto a Silicon (Si) plate of 0.5 mm, which acts as the pump for the FROSt. Si is chosen as the medium for our FROSt measurements because of its 1.12 eV bandgap, which is below the pump photon energy (1.2 eV), and it has a relatively good transmission up to 10 μm . A commercial NIR spectrometer (NIRQuest+2.5, Ocean Insight) is used for the signal (1640 to 1830 nm) pulses. For the idler and

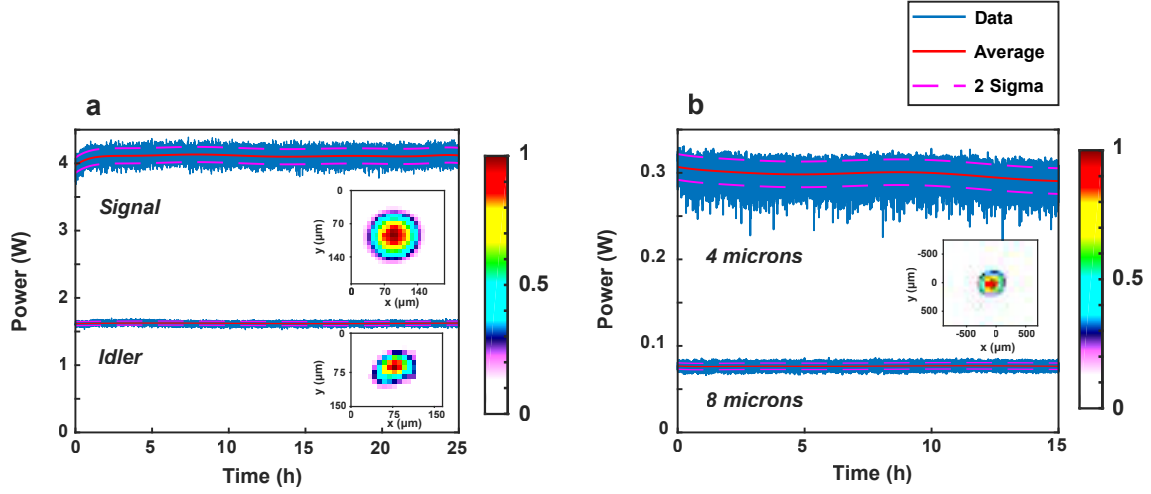


Fig. 4.3 : (a) Long-term power measurement for the signal (1640 nm) and idler (2770 nm) pair generating $4\ \mu\text{m}$ of DFG light. The measured far-field beam profiles at the LGS crystal are shown in the insets (b) Long term measurement for the DFG light at $4\ \mu\text{m}$ and $8\ \mu\text{m}$. The $8\ \mu\text{m}$ far-field beam profile is shown in the inset.

DFG pulses (2350 to 8000 nm), a home-built spectrometer based on the CM110 monochromator from Spectral Products is used, with the HgCdTe (MCT) bolometric detector from Infrared Associates Inc. cooled with liquid nitrogen. Figure 4.4 presents FROST reconstruction for the signal and idler pair (1640 and 2770 nm respectively) generating pulses at $4\ \mu\text{m}$ through the DFG process. The retrieved pulse duration is 62 fs, 110 fs, and 135 fs for the signal, idler and DFG respectively, for a Fourier-transform limit of 51 fs, 80 fs and 104 fs FWHM. The duration of an optical cycle at $4\ \mu\text{m}$ is 13 fs meaning that the DFG pulse duration is around 10 optical cycles.

4.3 TR-ARPES

To showcase the capabilities of the overall beamline and, more specifically, of the MIR three-stage OPA and DFG pump line, we present some preliminary TR-ARPES results (Fig. 4.5). The dataset was collected on the TR-ARPES endstation at the ALLS laboratory. The TR-ARPES endstation consists of a hemispherical analyzer with deflector technology that detects photoelectrons within a 60-degree cone of emission without mechanically moving the sample (ASTRAIOS 190 by SPECS GmbH). Additionally, it includes a fully motorized five-degree-of-freedom manipulator with a closed-cycle cryostat that cools the sample down to 10 K. Photoelectrons are emitted by 6 eV probe pulses, vertically polarized.

Figure 4.5 displays our TR-ARPES results on Bi_2Te_3 , prototypical 3D topological insulator [47]. The sample was aligned along the $\Gamma - \text{K}$ direction and cleaved at 10 K in ultra-high vacuum conditions ($< 7 \times 10^{-11}$ Torr). Figure 4.5(a) shows the ARPES spectrum at zero pump-probe delay upon

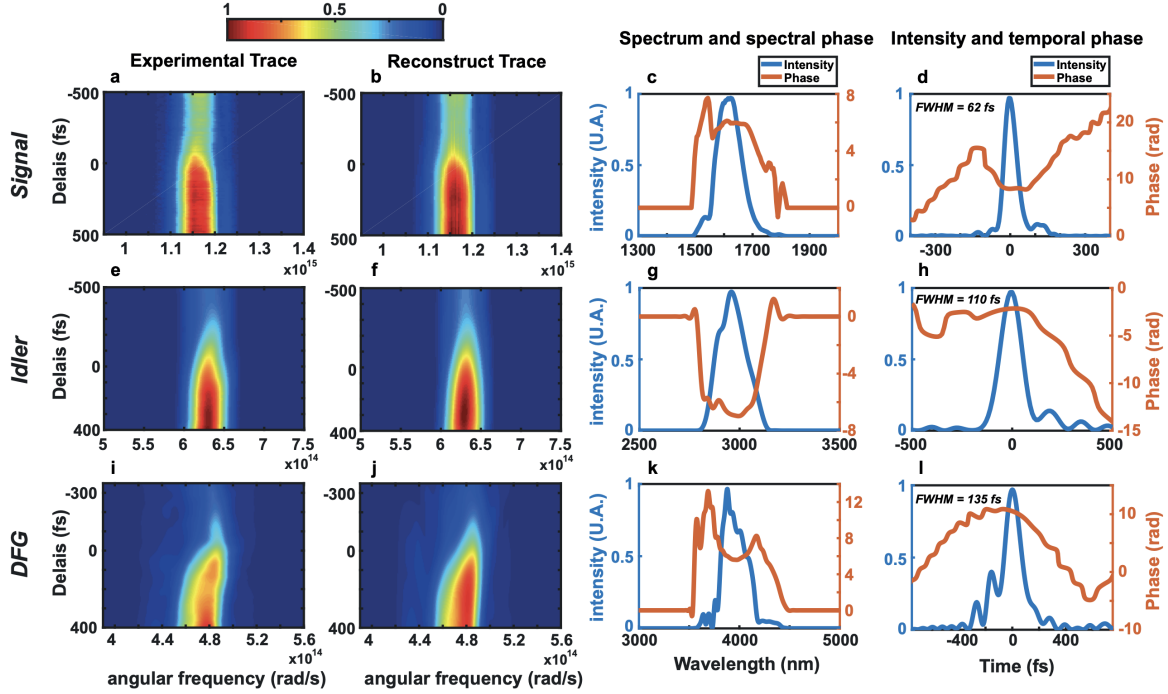


Fig. 4.4 : (a-d) Signal FROSt reconstruction (1640 nm). (e-h) Idler FROSt reconstruction (2770 nm). (i-l) DFG FROSt reconstruction (4000 nm). (a,e,i) Experimental FROSt trace. (b,f,j) Retrieved FROSt trace. (c,g,k) Reconstructed time-dependent intensity (blue lines) and temporal phase (orange lines). (d,h,j) Reconstructed spectrum (blue lines) and spectral phase (orange lines)

300 meV ($4 \mu\text{m}$) pump excitation. This spectrum reveals the electronic band structure of the material where the characteristic Dirac-like topologically protected surface states (TSS) of 3D TIs can readily be identified around $k_{\parallel} = 0$ and below the Fermi level (E_F) [73]. The MIR pump pulse promotes carriers from the occupied into the unoccupied states, leading to an out-of-equilibrium electronic distribution. Several out-of-equilibrium spectral features can be identified within this rich and complex spectrum, such as the upper part of the TSS, the partially filled bulk conduction band, as well as a few energy band replicas.

Those energy replicas are of particular interest since they generally consist of photon-dressed states [74, 75]. As such, their lifetime is limited by the temporal overlap between the pump and probe pulses. By following the dynamics of a replica through the integration of a portion of its photoemission intensity for each pump-probe delay [purple region in Fig. 4.5(a)], one can extract the temporal resolution by fitting the resulting gaussian-like peak near $\Delta t = 0$, which yields a resolution of 202 ± 12 fs [Fig. 4.5(b)]. Moreover, Fig. 4.5(c) clearly demonstrates our ability to track ultrafast electron dynamics with energy- and momentum-selectivity. By integrating the photoemission intensity within different momentum-energy areas shown in Fig. 4.5(a), we can extract electron dynamics within the TSS through their pathway to thermalization [49].

Overall, these preliminary results demonstrate the capabilities of the MIR three-stage OPA and DFG pump line in seeding the TR-ARPES endstation at the ALLS laboratory. This enables the

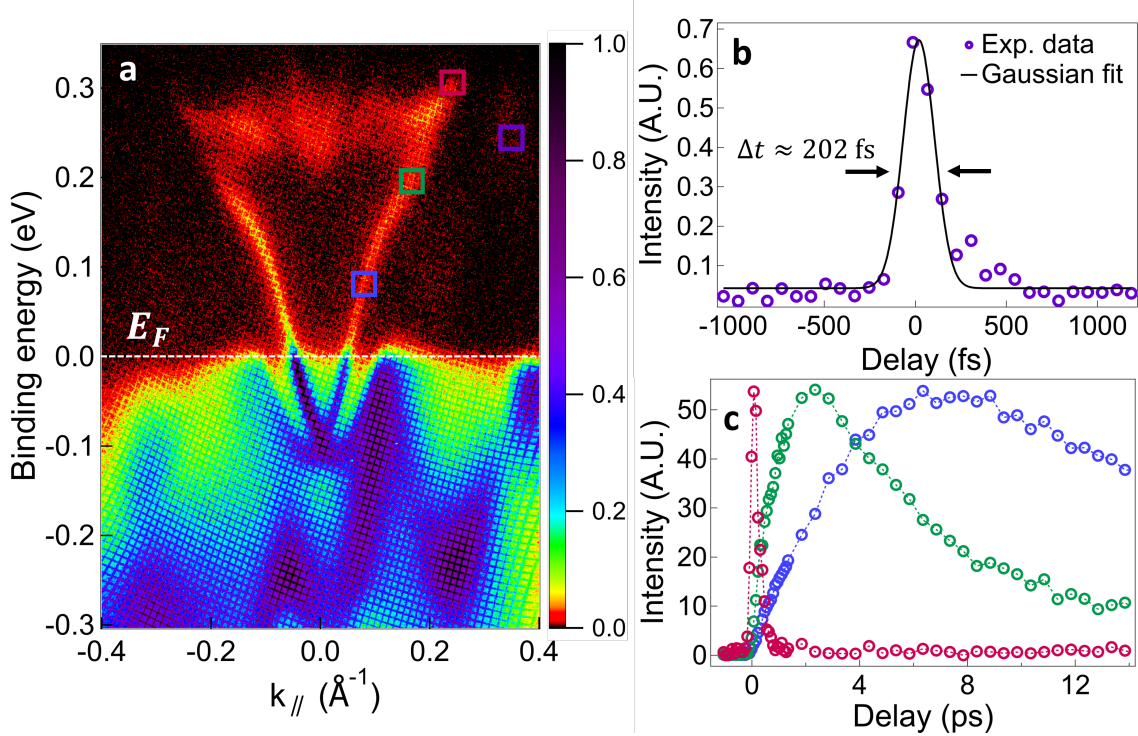


Fig. 4.5 : Preliminary time- and angle-resolved photoemission spectroscopy results on prototypical 3D topological insulator, Bi_2Te_3 . (a) ARPES mapping of the photoemission intensity as a function of the electronic binding energy and in-plane momentum acquired at a pump-probe delay of $\Delta t = 0$, i.e., when both light pulses are perfectly overlapped temporally. An electrostatic grid was used in front of the detector in order to minimize the secondary electron background and the data are presented in logarithmic scale in order to emphasize the orders of magnitude weaker pump effect above the Fermi level ($E_F = 0$ eV). (b) Fit of the dynamics upon pump excitation within an electronic band replica to determine the temporal resolution of the ARPES system and beamline. The region of integration is illustrated as a purple box in panel (a). (c) Electronic dynamics and thermalization at different positions within the topological surface state. The corresponding regions of integration are depicted as color-coded boxes in panel (a).

investigation of ultrafast electron dynamics upon intense long-wavelength excitation in quantum materials.

4.4 Conclusion

In conclusion, we have presented a novel optical setup designed for TR-ARPES measurements. Key features of our setup include the use of an OPA seeded by an industrial-grade Yb-doped fiber amplifier laser, capable of generating pulses with a duration of 100 fs and covering a broad spectral range. Additionally, a DFG stage allows for the generation of MIR light, essential for selective excitation schemes for TR-ARPES measurements.

We have demonstrated the tunability of our system from 1.5 to 8 μm (0.82 to 0.15 eV) depending on the selected beam between the signal, the idler and the DFG. Moreover, long-term stability measurements over 15h demonstrate a power stability below 3% RMS. This result confirms the reliability

and robustness of our setup over extended operating periods which is crucial for TR-ARPES experiments. The temporal characterization using the FROSt technique revealed the excellent temporal resolution of our pump source with a pulse duration of around 100 fs.

Preliminary TR-ARPES results on a prototypical 3D topological insulator, Bi_2Te_3 , showcase the capabilities of our system in studying out-of-equilibrium electronic distributions and tracking electron dynamics with high energy and momentum selectivity.

Overall, our study underscores the significance of our novel optical setup in advancing the TR-ARPES technique, providing researchers with a powerful tool for investigating light-induced phenomena in quantum materials. We anticipate that our system will contribute significantly to advancing our understanding of complex electronic behaviors in a wide range of complex systems.

Funding

Ministère de l'Économie, de l'Innovation et de l'Énergie - Québec; PROMPT - Québec; Canada Foundation for Innovation (Innovation fund and Major Science Initiatives); Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies; Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada.

Acknowledgments

Adrien Longa acknowledges financial support from the NSERC CREATE program. Jean-Michel Parent acknowledges financial support from the BESC-D scholarship from NSERC.

Disclosures

The authors declare no conflicts of interest.

Data availability

Data underlying the results presented in this paper are available upon reasonable request to the authors.

5 Post-compression d'impulsion ultra-courte

Ce chapitre est consacré à l'étude des effets optiques non linéaires du troisième ordre. On présentera l'effet Kerr optique lié à la capacité d'un faisceau intense à modifier l'indice de réfraction du matériau. Les conséquences de cet effet sur la propagation d'impulsions seront analysées en détail. On séparera l'aspect temporel de l'effet Kerr qui est notamment utilisé pour de la post-compression d'impulsion laser et l'aspect spatial qui est souvent une limitation pour la propagation d'impulsion intense dans des milieux. La dernière section se concentrera sur la diffusion Raman qui introduira le concept d'états solitoniques multidimensionnels (MDSS).

5.1 L'effet Kerr

L'effet Kerr est un effet non linéaire du troisième ordre. Pour comprendre d'où vient ce phénomène, nous allons considérer la propagation d'une onde monochromatique à ω dans un milieu ayant une non-linéarité en $\chi^{(3)}$ et nous allons étudier les conséquences de la polarisation non linéaire à ω . Tout d'abord, nous pouvons directement expliciter la polarisation non linéaire du troisième ordre :

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega = \omega - \omega + \omega) = \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(-\omega) \mathbf{E}(\omega).$$

La polarisation générée dans le matériau peut s'exprimer ainsi¹:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\omega) &= \mathbf{P}^{(1)}(\omega) + \mathbf{P}^{(3)}(\omega) \\ &= \epsilon_0 \left[\underline{\underline{\chi}}^{(1)}(\omega) \mathbf{E}(\omega) + \underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(-\omega) \mathbf{E}(\omega) \right]. \end{aligned}$$

Durant sa propagation, l'onde à ω va être modifiée de la sorte:

$$\mathbf{e} \cdot \mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 [\chi_{\text{eff}} + \underbrace{\chi_{\text{eff}}^{(3)} |A(\omega)|^2}_{\text{Kerr}}] A(\omega) e^{ikz}.$$

Cela met en évidence une modification de la susceptibilité proportionnellement à l'intensité de l'onde. Par la suite, nous considérerons uniquement la contribution de la partie réelle χ'_{eff} de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre qui est responsable de la modification de l'indice de réfraction du matériau par rapport à l'intensité de l'onde. Aussi, nous supposons le milieu sans perte afin de négliger la contribution de la partie imaginaire χ''_{eff} .

¹Il est à noter qu'on inclut pas ici les non linéarité en $\chi^{(2)}$. Cela est dû au fait que la majorité des milieux présentent une centrosymétrie. Cela signifie que le tenseur de susceptibilité non linéaire est invariant par la transformation $i \rightarrow -i$, avec $i = x, y, z$, les trois coordonnées spatiales. En raison des transformations $\mathbf{E} \rightarrow -\mathbf{E}$ et $\mathbf{P} \rightarrow -\mathbf{P}$ dans le cadre d'un milieu centrosymétrique, nous pouvons conclure que toutes les composantes du tenseur $\underline{\underline{\chi}}^{(2)}$ doivent être nulles. Plus généralement, les matériaux centrosymétriques ne supportent aucune non-linéarité optique d'ordre pair.

En se rappelant que $n_0(\omega) = \sqrt{1 + \chi_{eff}(\omega)}$, la modification de l'indice de réfraction par l'effet Kerr suit la relation :

$$\begin{aligned} n^2(\omega) &= 1 + \chi_{eff}(\omega) + \chi_{eff}^{(3)} |A(\omega)|^2 \\ &= n_0^2(\omega) \left[1 + \frac{\chi_{eff}^{(3)}}{2n_0^3(\omega)\epsilon_0 c} I(\omega) \right] \end{aligned}$$

L'effet Kerr se retrouve traditionnellement écrit avec un indice de réfraction non linéaire n_2 . On peut reformuler ce phénomène de la sorte :

$$n(\omega) = n_0(\omega) + n_2 I(\omega) \quad (5.1)$$

avec

$$n_2 = \frac{\chi_{eff}^{(3)}}{4n_0^2(\omega)\epsilon_0 c}$$

L'indice de réfraction non linéaire n_2 s'exprime en m^2/W

5.1.1 Origine physique de l'indice de réfraction non linéaire

Nous allons maintenant brièvement voir les principales origines physiques qui génèrent un indice de réfraction non linéaire dans un milieu.

Non-linéarités électroniques non résonantes : Cette contribution provient des électrons liés des entités polarisées. Elle coïncide avec un temps de réponse très rapide, typiquement de l'ordre de 10^{-15} s. En tant qu'effet non résonant, elle donne lieu à une efficacité très faible avec un n_2 de l'ordre de 10^{-20} à 10^{-18} m^2/W [76].

Effet Kerr induit par l'orientation moléculaire : L'interaction entre des champs électriques cohérents provenant de faisceaux laser intenses et des molécules anisotropes induit une orientation des molécules, qui présente une variation de l'indice de réfraction proportionnelle à $|E|^2$ [77]. Malgré un temps de réponse plus faible, de 10^{-11} à 10^{-12} s, les valeurs de n_2 sont plus élevées (10^{-18} – 10^{-17} m^2/W).

Effet d'électrostriction : La modification de la densité du matériau sous une illumination inhomogène contribue à augmenter la valeur de n_2 (10^{-18} m^2/W) [78], mais avec un temps de réponse faible ($\approx \mu s$).

Effet thermique : Dans les matériaux absorbants la lumière, l'énergie absorbée contribue à augmenter la température de la partie éclairée du matériau et entraîne une variation de l'indice de réfraction. Il peut être très efficace, comme nous le verrons par la suite, mais son temps de réponse est lent.

5.1.2 Auto-modulation de phase

En raison de l'effet Kerr, une forte intensité optique dans un milieu (par exemple une fibre optique) entraîne une modification de l'indice du milieu et donc un retard de phase non linéaire de la lumière qui se propage. Dans cette section, l'accent est mis sur la dépendance temporelle du déphasage (l'auto-modulation de phase), alors que la dépendance transversale pour un certain profil de faisceau conduit au phénomène d'auto-focalisation que nous verrons dans la section suivante.

L'auto-modulation de phase ou en anglais *self-phase modulation* (SPM) est principalement utilisée (cette thèse ne fait pas exception, voir chapitre 8 et section 7.3.5) pour compresser les impulsions. En effet, la plupart du temps, les sorties des lasers ou des OPAs ont des durées d'impulsion trop longues et une post-compression est nécessaire pour diminuer la durée des impulsions. Ce type de compression se fait en deux étapes : la SPM qui élargit le spectre suivi de la compensation du chirp (les techniques de compensation du chirp ont déjà été vues à la section 2.4).

La compression d'impulsions par SPM a été démontrée pour la première fois en 1967 par Shimizu [79] mais cette technique a été appliquée aux impulsions ultra-courtes en 1987 par Fork [80] à l'aide d'une fibre solide. En 1996, Nisoli [81, 82] remplacera la fibre solide par une fibre creuse remplie d'un gaz noble qui servira de milieu non linéaire. Cette technique a permis de contribuer à l'essor des sources lasers à impulsions ultra-courtes dans les laboratoires puis dans l'industrie.

Pour comprendre l'origine de ce phénomène, nous pouvons trouver la solution de l'équation non linéaire de Schrödinger lorsque seule la SPM est conservée (la dispersion est négligée) dans [83] :

$$A(z,t) = A(0,t)e^{i\phi_{LN}(z,t)} = A(0,t)e^{i\gamma_{SPM}P(z,t)z}.$$

Le coefficient non linéaire γ_{SPM} est donné par :

$$\gamma_{SPM} = \frac{n_2\omega_0}{cA_{eff}}, \quad (5.2)$$

A_{eff} représente la zone des modes effectifs du faisceau.

Avec cette solution, nous remarquons que dans le domaine temporel, le profil n'est pas affecté, seule la phase change. Pour mieux comprendre, on va regarder l'évolution du spectre en analysant la fréquence optique instantanée $\Omega(t)$.

$$\Omega(t) = \frac{d}{dt}(\omega_0 t + \gamma P(z,t)z) = \omega_0 + \delta\omega. \quad (5.3)$$

Il est évident que les fréquences générées sont modulées par la dérivée temporelle de l'intensité comme illustrée dans la fig. 5.1. Le bord avant de l'impulsion donne lieu à un décalage vers le rouge, tandis que le bord arrière provoque un décalage vers le bleu.

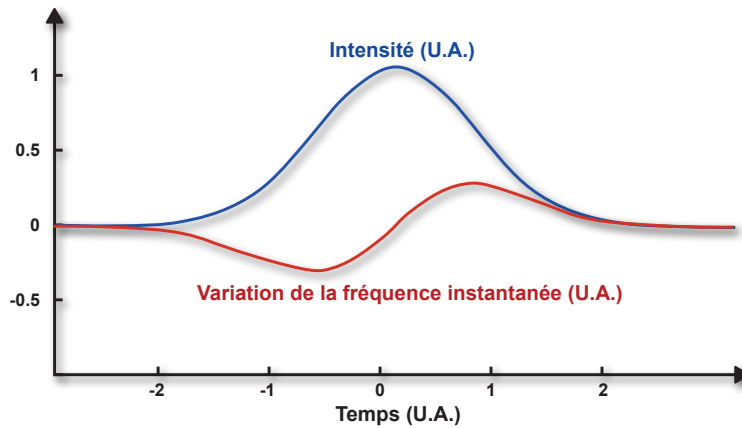


Fig. 5.1 : Variation de la fréquence instantanée en fonction de l'intensité

Pour résumer, lorsqu'une impulsion subit de la SPM, son spectre est élargi mais l'impulsion conserve la même durée. En revanche, la propagation de cette impulsion dans un milieu induira aussi un chirp en raison du second ordre de dispersion, mais son spectre restera le même (en prenant en compte uniquement le second ordre de dispersion). La fig. 5.2 présente différents élargissements spectraux en fonction du déphasage non linéaire maximal ϕ_{max} . On remarque que lorsque l'impulsion initiale est symétrique, l'élargissement spectral l'est aussi.

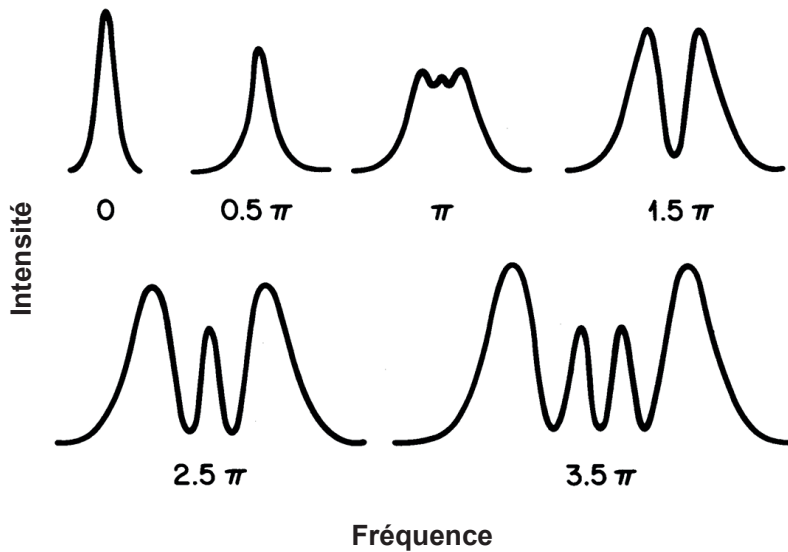


Fig. 5.2 : Élargissement spectral d'impulsions gaussiennes

Spectres élargis par SPM pour une impulsion gaussienne non chirpée. Les spectres sont présentés en fonction de leur déphasage non linéaire maximal $\phi_{max} = \phi_{LN}/P$. Adapté de [83].

Il existe aussi un moyen de quantifier la phase non linéaire avec l'intégrale B qui représente la phase non linéaire accumulée au centre de l'impulsion au cours de la propagation sur la distance L :

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2 I(z) dz. \quad (5.4)$$

Il convient de noter que la description de la SPM avec un indice de réfraction dépendant du temps est quelque peu simplifiée. Dans des situations plus extrêmes, des modèles étendus sont nécessaires. Ils prennent notamment en compte l'effet d'auto-creusement ou en anglais *self-steepening* - un changement de la forme temporelle de l'impulsion même en l'absence de dispersion chromatique. Cet effet peut être interprété comme une modification non linéaire de la vitesse de groupe [84].

5.1.3 Auto-focalisation

L'auto-focalisation est la représentation spatiale de l'effet Kerr. Lorsque l'intensité augmente transversalement à la direction de propagation, l'indice de réfraction change et le faisceau crée une lentille appelée lentille de Kerr. Pour un $\chi^{(3)} \geq 0$, l'indice de réfraction augmente au centre du faisceau, le milieu devient une lentille convergente. Si la lentille de Kerr est trop importante, le faisceau se focalisera à l'intérieur du milieu, ce qui pourrait affecter son profil spatial et endommager le matériau.

Ce phénomène apparaît lorsque la puissance critique P_{crit} est dépassée, pour un faisceau gaussien elle est définie comme :

$$P_{crit} = \frac{\lambda^2}{8n_0n_2}. \quad (5.5)$$

Il faut remarquer que la puissance critique ne dépend pas de la taille du faisceau d'origine². Pour la silice, la limite d'auto-focalisation en terme de puissance de crête est de l'ordre de 4 MW dans la région de longueur d'onde de 1 μm .

Pour mieux appréhender ce phénomène, on va introduire la variable f_{Kerr} , la focale induite par l'effet Kerr.

$$f_{Kerr} = \frac{\pi\omega^4}{4n_2dP_{peak}} \quad (5.6)$$

Cela nous donne une bonne estimation de la divergence du faisceau due à la lentille de Kerr. La figure (5.3) nous montre l'impact de l'effet Kerr spatial sur un faisceau.

Un changement de l'indice de réfraction peut aussi se produire à cause d'effets thermiques. Dans cette thèse, nous utilisons des lasers ytterbium à haute puissance moyenne. Ce type de laser a tendance à créer des lentilles thermiques dans les milieux que le faisceau traverse dues au chauffage

²Un faisceau plus large génère une lentille de Kerr plus faible, mais il est également plus sensible à l'effet de lentille.

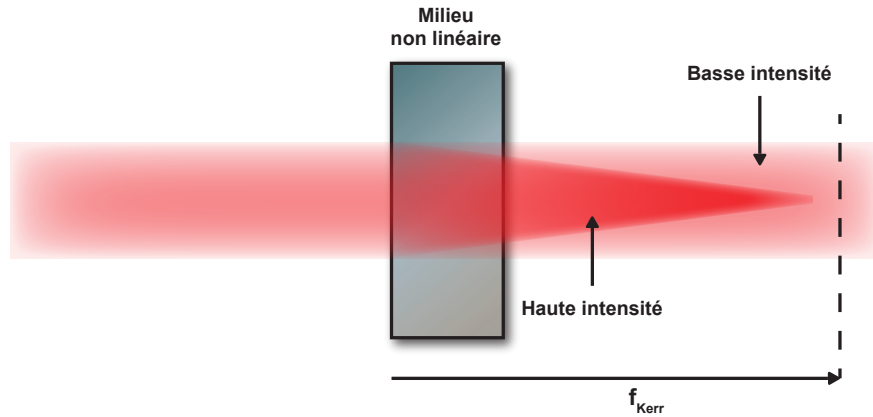


Fig. 5.3 : Effet de la lentille Kerr.

Pour des intensités basses, il n’y a pas d’effets non linéaires et la forme spatiale du faisceau n’est pas modifiée. Pour de fortes intensités, une lentille Kerr apparaît et focalise le faisceau dans cet exemple.

inhomogène du milieu. Cette lentille a un effet similaire à la lentille Kerr mais n’a pas les mêmes origines physiques. Voici les principaux mécanismes responsable d’une lentille thermique :

Effet thermo-optique : Le milieu est plus chaud dans l’axe du faisceau que dans les régions extérieures, ce qui entraîne généralement un gradient transversal de l’indice de réfraction (quantifié par le coefficient $\frac{\partial n}{\partial T}$).

Effet photoélastique : D’autres modifications de l’indice de réfraction peuvent être provoquées par des contraintes mécaniques induites par la chaleur (quantifié par les coefficients photoélastiques ρ_{ij} et le coefficient de dilatation thermique α).

Ce phénomène est beaucoup plus long à apparaître que l’auto-focalisation mais peut être très efficace. Il sera observé dans cette thèse dans des gaz lors de l’injection d’un faisceau laser dans une fibre creuse. La formation d’une lentille thermique à l’entrée de la fibre nécessitera une adaptation de la géométrie de pompage du gaz afin d’éviter la création de cette lentille (chapitre 6). On observera aussi cet effet dans le silicium lors de la réalisation de mesures FROSt à haute cadence (chapitre 9).

Un autre phénomène lié aux effets thermiques est l’efflorescence thermique (en anglais *thermal blooming*) [85, 86]. L’efflorescence thermique est un phénomène physique associé à la propagation de faisceaux laser de haute puissance dans un milieu, généralement un gaz (par exemple l’air) ou un liquide. Ce phénomène découle de l’absorption locale entraînant un échauffement. Même en l’absence d’une absorption marquée dans la plage des longueurs d’onde concernées, des éléments tels que la vapeur d’eau ou les impuretés peuvent contribuer à cet effet. Le chauffage provoque une dilatation des gaz et des mouvements convectionnels, qui va faire varier localement l’indice de réfraction. Ces variations induisent des irrégularités dans le profil spatial, entraînant une diminution de la cohérence spatiale comme observée à la fig. 5.4. Une façon simple d’éviter ce phénomène est

d'augmenter le diamètre du faisceau laser. Dans cette thèse, ce phénomène nous a obligés à propager des faisceaux avec des diamètres assez grands pour éviter cet effet.

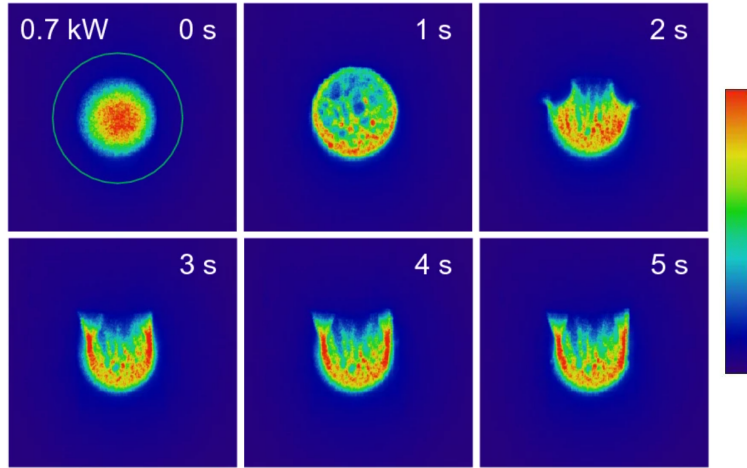


Fig. 5.4 : L'efflorescence thermique dans l'eau d'un laser continu à grande puissance

Distribution de l'intensité (barre de couleur à droite, échelle logarithmique, U.A.) après 10 cm d'eau en fonction du temps. Le diamètre du faisceau fait 17.8 mm. On observe d'abord une augmentation de la taille, puis une ouverture vers le haut. Le cercle vert indique la taille de l'ouverture du wattmètre utilisé. Adapté de [87].

5.2 Diffusion Raman

Dans le cas de l'effet Kerr, on a supposé implicitement que les non-linéarités dans les milieux optiques sont décrites par une polarisation non linéaire qui suit instantanément le champ électrique incident et ne dépend donc pas de l'intensité du champ électrique à des moments antérieurs. Par exemple, la non-linéarité en $\chi^{(3)}$ se traduit par une polarisation non linéaire proportionnelle au champ électrique au cube (en ignorant la nature tensorielle de la non-linéarité) :

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) |E(t)|^2,$$

où le module au carré du champ électrique est lié à l'intensité optique. Il s'agit d'une approximation raisonnable pour l'effet Kerr optique. Toutefois, il existe également des contributions provenant des vibrations et des rotations des molécules (comme mentionné dans la section 5.1.1), qui peuvent être excitées par des champs électriques intenses et influencer la polarisation du milieu. Ces contributions à la polarisation non linéaire se produisent sur des échelles de temps plutôt courtes, mais suffisamment longues pour être considérées comme non instantanées dans le contexte d'impulsions ultra-courtes. Tous les effets thermiques mentionnés précédemment se produisent sur des échelles de temps encore plus longues.

Pour mettre en équation ces effets non instantanés, on doit prendre en compte que la polarisation non linéaire induite à un moment t ne dépend pas seulement de l'intensité du champ électrique à ce moment-là, mais plutôt de cette intensité pendant un certain intervalle de temps avant t . Ce phénomène peut être décrit à l'aide d'une fonction de réponse $R(t)$:

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) \int_0^\infty R(\tau) |E(t - \tau)|^2 d\tau. \quad (5.7)$$

Une réponse instantanée serait simplement décrite par une fonction $R(\tau)$ qui a une distribution de Dirac. La combinaison d'une réponse électronique instantanée et d'une réponse retardée liée aux vibrations et aux rotations des molécules conduit à une combinaison d'une distribution de Dirac avec une fonction oscillatoire décroissante $h(\tau)$:

$$R(\tau) = (1 - f_R)\delta(\tau) + f_R h(\tau) \quad (5.8)$$

Ici, le facteur f_R quantifie l'importance de la contribution de la fonction oscillatoire $h(\tau)$. Dans le contexte de cette thèse, la diffusion Raman sera l'effet prédominant dans la fonction oscillatoire $h(\tau)$. On utilise alors une fonction de réponse Raman $h_R(\tau)$ qui présente généralement des oscillations avec des fréquences térahertz, disparaissant en quelques picosecondes.

Dans cette thèse, l'effet Raman sera surtout observé dans des gaz moléculaires. Il est à noter que les gaz rares sont des milieux inactifs du point de vue Raman, et la plupart des techniques proposées pour l'élargissement spectral et la compression d'impulsion dans les HCF sont basées sur eux (voir la section 5.1.2). Les gaz moléculaires ont été initialement négligés pour des applications de post-compressions du fait de la très bonne efficacité de la technique basée sur la SPM dans des gaz noble [88–90]. Néanmoins, la durée plus longue des impulsions d'un laser ytterbium est favorable à l'utilisation de gaz moléculaires et défavorable aux gaz nobles [91]. L'objectif de la prochaine section est donc de comprendre le comportement et le potentiel des gaz moléculaires ayant une forte réponse Raman pour l'élargissement spectral. Les applications envisagées de cette technique incluent la génération de supercontinuum, la compression temporelle des impulsions, ainsi que l'extension de la coupure dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

5.2.1 Diffusion Raman dans des gaz moléculaires

L'interaction d'un champ électrique laser puissant avec des gaz moléculaires induit des mouvements vibrationnel et rotationnel aux molécules. Cela entraîne l'ajout de réponses non linéaires "retardées" causées par l'alignement et l'étirement des liaisons moléculaires induits par le champ [92]. Du même temps, il y a aussi des processus de mélange à quatre ondes associés aux transitions Raman [93]. Dans le cadre de cette thèse où des molécules linéaires seulement seront utilisées (N_2O , N_2 et CO_2 notamment) avec des impulsions relativement longues (≥ 100 fs), la non-linéarité rotationnelle domine la contribution vibratoire [94].

Dans le cas d'impulsions femtosecondes, où la durée de l'impulsion d'entrée est comparable à la période de rotation moléculaire, le couple transmis par le laser persiste après le passage de l'impulsion [95, 96]. Dans ce régime, les impulsions créent des paquets d'ondes correspondant à un mouvement de rotation cohérent des molécules, ce qui conduit à des transitoires d'indices ultra-rapides [97]. En utilisant l'eq. (5.7), on peut exprimer la variation totale de l'indice de réfraction induite par des impulsions optiques :

$$\Delta n(t) = \int_0^\infty R(\tau) |E(t - \tau)|^2 d\tau. \quad (5.9)$$

La réponse Raman rotationnelle $h_R(\tau)$ peut se modéliser comme un oscillateur harmonique amorti. La contribution du Raman rotationnelle à l'indice non linéaire peut s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} \Delta n_{rot} &= n_2 \cdot f_R \int_0^\infty h_R(\tau) |E(t - \tau)|^2 d\tau \\ &= f_R (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \tau_1 \int_0^\infty \exp(-t/\tau_2) \sin(t/\tau_1) |E(t - \tau)|^2 d\tau \end{aligned} \quad (5.10)$$

La partie réelle de la transformée de Fourier de la réponse Raman rotationnelle $h_R(\tau)$ conduit aux changements d'indice induits par l'effet Raman stimulé ou en anglais *Stimulated Raman Scattering* (SRS), tandis que sa partie imaginaire est liée au gain Raman [83]. Le changement de l'indice de réfraction non linéaire $\Delta n(t)$ dans la réponse Kerr instantanée est proportionnel au profil d'intensité de l'impulsion laser $I(t)$. Comme vu dans la section 5.1.2, si $I(t)$ est symétrique, l'élargissement spectral le sera aussi (comme illustré dans le spectre supérieur de la fig. 5.5). En revanche, dans le cas d'un milieu actif Raman, les molécules ne réagissent pas instantanément à l'intensité du laser. Comme explicité dans l'eq. (5.10), Δn_{rot} peut être obtenu comme une convolution de $h_R(\tau)$ et $|E(t - \tau)|^2$. Comme $h_R(\tau)$ est retardé, la convolution présente une asymétrie avec une forte augmentation au bord avant de l'impulsion et une lente diminution au bord arrière. Cela a pour conséquence de créer un décalage vers le rouge dominant dans l'élargissement spectral (bas de la fig. 5.5).

Pour mieux comprendre les critères pour avoir un élargissement spectral efficace grâce à l'alignement moléculaire, le phénomène peut être décrit dans le domaine des fréquences. Le gain Raman g_R , où $\Omega = \omega_p - \omega_s$ est la différence de fréquence entre les fréquences de pompe ω_p et de Stokes ω_s , peut s'écrire sous la forme :

$$g_R(\Omega) = f_R(\omega_p/c) \cdot n_2 \cdot \text{Im}[h_R(\Omega)] \quad (5.11)$$

Il est à noter que le SRS est dominant tant que la différence de fréquences Ω se situe dans la largeur de bande de l'impulsion laser (cela est par exemple le cas dans la fig. 5.6).

Pour comprendre pleinement la physique observée dans une HCF remplie de gaz moléculaire, une étude numérique sophistiquée a dû être développée pour reproduire les élargissements spectraux observés au laboratoire. Cette simulation inclut la propagation de plusieurs modes spatiaux ainsi que les couplages entre ces différents modes. Ce modèle précis permet d'expliquer les mécanismes

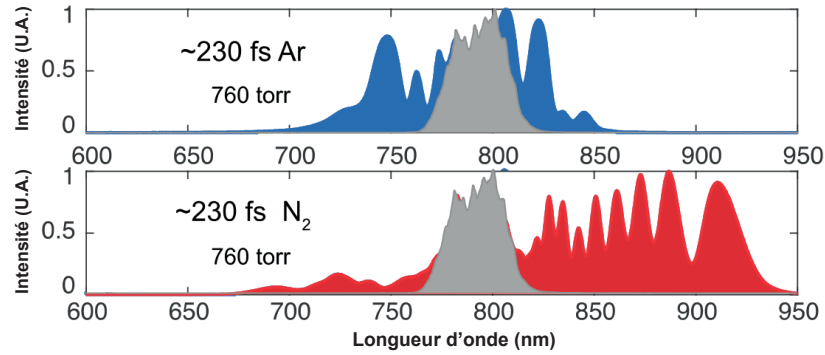


Fig. 5.5 : Comparaison de l'efficacité de l'élargissement spectral dans (en haut) Ar et (en bas) N_2 pour une durée d'impulsion de 230 fs à 760 Torr

À 230 fs , les élargissements spectraux pour de la SPM (spectre bleu) et de la diffusion Raman (spectre rouge) sont comparés. Le gris indique le spectre d'entrée du laser Ti:Sa. On remarque une nette différence entre l'élargissement quasi-symétrique de la SPM et le décalage vers le rouge de la diffusion Raman. Adapté de [91].

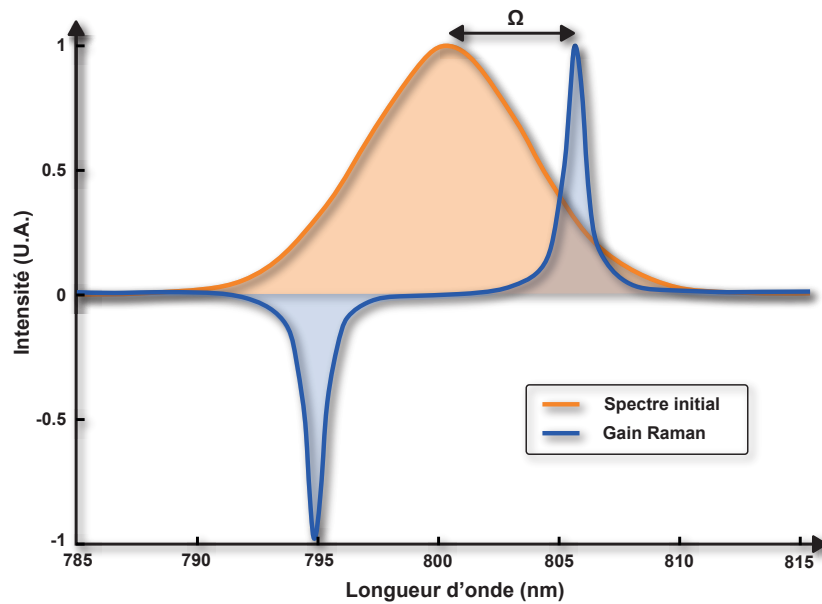


Fig. 5.6 : Gain Raman

Courbe orange : spectre gaussien supportant des impulsions de 120 fs . Courbe bleu : gain Raman pour N_2 . On remarque que pour des impulsions de 120 fs , la largeur de bande est suffisante pour permettre un SRS efficace.

responsables de cet élargissement induits par l'effet Raman stimulé et sera étudié dans la partie suivante.

5.2.2 États solitoniques multidimensionnels (MDSS)

Les états solitoniques multidimensionnels ou *multidimensional solitary states* (MDSS) permettent d'expliquer le processus de l'effet Raman stimulée (SRS) dans un gaz qui a une réponse Raman. La fig. 5.7 résume les processus qui se produisent dans la fibre lors de la propagation d'une impulsion femtoseconde.

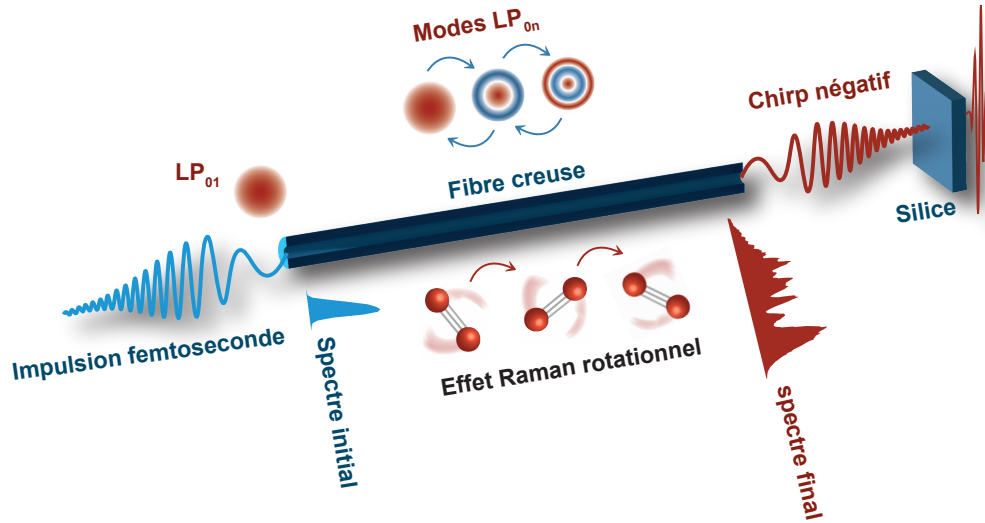


Fig. 5.7 : Principe du MDSS

Le MDSS est composé des modes LP_{0n} qui sont créés au début de la HCF. L'évolution des spectres est représentée sous la fibre, en commençant par le spectre d'entrée en bleu, jusqu'au spectre élargi en rouge foncé (spectres issus de [20]). Les spectres larges et décalés vers le rouge proviennent de l'effet Raman en cascade. Les impulsions issues du MDSS ont la particularité d'avoir un chirp négatif et sont comprimées par propagation linéaire dans une fenêtre de silice fondue. Inspiré de [17].

Tout d'abord, la taille de la tache focale à l'entrée de la fibre a été choisie pour obtenir la meilleure efficacité de couplage dans le mode fondamental. Dans les conditions de faible guidage de la HCF, les modes se répartissent en groupes de modes linéairement polarisés (LP_{mn}). L'autofocalisation dans la HCF peut être interprétée comme le transfert d'énergie du mode fondamental (LP_{01}) vers d'autres modes LP_{0n} qui ont une symétrie par rotation avec une intensité maximale dans la partie centrale. Dans le cadre de cette thèse où les impulsions sont très énergétiques, les effets de l'autofocalisation deviennent importants et de multiples modes LP_{0n} sont créés au début de la fibre. Un échange d'énergie va se créer entre tous ces modes grâce à la faible dispersion modale des fibres creuses. Cela va avoir pour principale conséquence d'améliorer le processus Raman stimulé.

Jusqu'à présent, l'étape de post-compression dans une HCF remplie de gaz était fondamentalement limitée en énergie par l'effet d'autofocalisation. Cela impose un seuil pour l'énergie maximale de l'impulsion et la pression du gaz. Ici, nous utilisons cet effet à notre avantage, car la propagation multimode favorise le processus MDSS par rapport à la SPM.

Il est à noter qu'à l'entrée de la fibre, la différence de fréquences Ω est bien plus grande que la largeur de bande des impulsions d'entrée pour un laser Ytterbium (voir fig. 5.6). Par conséquent, le processus Raman n'est pas dominant au début de la fibre et le mélange inter-modal à quatre ondes ou *intermodal four-waves mixing* (IFWM) est le processus non linéaire prédominant. Cela conduit à un transfert d'énergie entre le mode fondamental (LP_{01}) et les modes LP_{0n} plus élevés. Dans le domaine des fréquences, les impulsions de chaque mode commencent à générer de nouvelles fréquences qui se situent dans la largeur de bande du gain Raman, ce qui fournit un gain Raman suffisant pour que l'effet Raman intermodal devienne prédominant au bout d'une certaine propagation dans la fibre. À partir de là, un élargissement vers le rouge va se produire grâce à l'effet Raman stimulé en cascade.

À la sortie de la fibre, ces états solitoniques multidimensionnels sont expérimentalement séparés de la pompe en plaçant un filtre passe-haut. En effet, la pompe, se propageant dans des modes d'ordres plus élevées (LP_{mn}), n'est pas exploitable [17]. Les impulsions MDSS présentent un chirp négatif à la sortie et sont donc facilement comprimables à l'aide d'une simple plaque de silice.

Cette technique a beaucoup d'avantages, elle permet des montages de post-compression compacts pour des impulsions relativement longues (entre 200 *fs* et 1 *ps*) là où la technique basée sur la SPM aura souvent recours à 2 montages de fibres en série [98] avec une compensation de chirp entre les deux fibres. La technique MDSS permet aussi de s'affranchir de miroirs chirpés pour la compression. Néanmoins, cette technique a pour l'instant seulement été démontré à des taux de répétition assez bas ($\simeq 100$ *Hz*) avec des lasers Ti:Sa. Un des objectifs de cette thèse est d'étendre cette technique aux lasers Yb avec des taux de répétition plus élevés. Ce point va être détaillé dans la prochaine partie.

5.2.3 Résumé français de *Arias, Longa et al. OL 2022* - MDSS à haute cadence

Des résultats récents obtenus avec des impulsions sub-*ps* ont démontré un élargissement spectral hautement asymétrique et décalé vers le rouge, basé d'abord sur l'effet Raman stimulée (SRS) dans les gaz moléculaires à un faible taux de répétition, typiquement inférieur à 1 *kHz* [91, 99, 100]. Dans un second temps, comme expliquée dans la partie précédente, la démonstration de la création d'états solitoniques multidimensionnels (MDSS) dans un milieu actif Raman [17] fait de cette technique une alternative intéressante à l'élargissement spectral par auto-modulation de phase (SPM) avec des gaz nobles à travers des fibres creuses (HCF) [81, 89, 101–103] ou des cellules multi-passages [104]. Cependant, la technique MDSS est intrinsèquement limitée par le taux de répétition du laser à cause de son caractère non instantanée. Les molécules du gaz doivent avoir le temps de revenir dans leurs états fondamentaux entre deux impulsions pour que l'élargissement spectral se maintienne dans le temps. D'un point de vue macroscopique, on peut associer cela à des effets thermiques [105].

L'objectif de cette étude est d'ajuster cette technique pour des taux de répétition plus élevés afin de la rendre compatible avec des lasers ytterbium.

Pour cela, nous allons mettre en place un pompage différentiel du gaz pour créer un vide à l'entrée de la fibre. Cela aura pour premier effet de supprimer la lentille thermique d'entrée. Nous démontrons que le spectre MDSS présente un élargissement spectral élevé même à un taux de répétition de 20 *kHz* dans cette configuration, correspondant à 4 W de puissance moyenne à l'entrée (avec 160 μJ à la sortie). À des pressions élevées (≥ 5 bar), on observe des instabilités dans le profil spatial du faisceau dû à l'écoulement turbulent du gaz en sortie de fibre [106, 107]. Nous avons néanmoins trouvé une pression où le processus MDSS est exploitable à la limite du régime turbulent (à 4 bar) avec des instabilités spatiales limitées, et un élargissement spectral s'étendant jusqu'à 1300 *nm*. Cette gamme de longueurs d'onde laser présente un grand intérêt pour la génération d'harmoniques élevées [108]. Par conséquent, une pression différentielle de 4 bars semble être un compromis adéquat entre un élargissement spectral suffisant et la stabilité spatiale avec notre géométrie de HCF.

L'impulsion en sortie est compresser jusqu'à 17 *fs* (proche de sa limite de transformée de Fourier, 14 *fs*), en utilisant seulement 7 *mm* de BaF_2 . La phase spectrale quadratique négative confirme l'élargissement spectral par le processus MDSS. L'énergie par impulsion à la sortie est de 160 μJ .

En résumé, la pression différentielle dans une HCF permet d'augmenter considérablement le taux de répétition d'un facteur de 20 à 40 pour l'utilisation du processus MDSS. Son but est principalement d'éliminer la lentille thermique à l'entrée de la HCF. Nous pensons que la pression différentielle permet aussi l'évacuation d'une partie de la charge thermique en augmentant le taux de collision entre les molécules. Ce sont ces deux effets combinés qui rendent cette technique efficace et qui permet l'utilisation du MDSS à haute cadence avec des lasers Yb.

6 Article - Post-compression dans une fibre creuse à 20 kHz en utilisant des états solitoniques multidimensionnels

Few-cycle Yb laser source at 20 kHz using multidimensional solitary states in hollow-core fibers

Source laser Yb ultra-courte à 20 kHz utilisant des états solitaires multidimensionnels dans des fibres à cœur creux

Auteurs :

Loïc Arias^{1,4}, Adrien Longa^{1,4}, Gaëtan Jargot¹, Antoine Pomerleau¹, Philippe Lassonde¹, G. Fan^{1,2}, Reza Safaei³, P. B. Corkum¹, Fabio Boschini¹, Heide Ibrahim¹ and François Légaré¹

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada

² The Hamburg Centre for Ultrafast Imaging CUI, Universität Hamburg, 149 Luruper Chaussee, 22761 Hamburg, Germany

³ Department of Physics, University of Ottawa, Ottawa, ON K1N 6N5, Canada

⁴ Ces auteurs ont contribué de manière égale à ce travail

Titre de la revue ou de l'ouvrage :

Article publié en 2022 dans la revue Optics Letters, volume 47, numéro 14

DOI : 10.1364/OL.464428

Contribution :

Adrien Longa et Loïc Arias ont réalisé la partie expérimentale et l'analyse des résultats et ont été aidés par Gaëtan Jargot.

Antoine Pomerleau a réalisé des expériences préliminaires pour cette étude.

Philippe Lassonde a été en soutien pour la partie expérimentale et pour la révision du manuscrit.

Adrien Longa et Loïc Arias ont partagé la rédaction du manuscrit.

François Légaré, Heide Ibrahim et P. B. Corkum ont formulé et développé le projet.

Reza Safaei et Guangyu Fan ont aidé pour l'analyse des résultats et pour la révision du manuscrit.

Abstract

We demonstrate ultrashort pulse compression from 300 *fs* down to 17 *fs* at a repetition rate of 20 *kHz* and 160 μ *J* output pulse energy (3.2 *W* of average power) using multidimensional solitary states (MDSS) in a 1-meter hollow-core fiber (HCF) filled with N₂O. Under static pressure, thermal limitations at this repetition rate annihilate the MDSS with suppression of spectral broadening. The results obtained in differential pressure configuration mitigate thermal effects and significantly increase the range of repetition rate over which MDSS can be used to compress sub-picosecond laser pulses.

6.1 Introduction

Over recent years, major developments have led to cutting-edge high-power high repetition rate laser sources based on the ytterbium (Yb) gain media including fiber lasers, Innoslab, and thin-disk lasers [5, 7, 109–111]. This is of critical importance for a wide variety of applications such as scaling the flux and repetition rate of high harmonic sources [112–115] with attosecond pulse duration [116, 117]. In comparison with titanium-sapphire (Ti:Sa) technology, which is limited to 20 *W* of average power (e.g., 10 *kHz*, 2 *mJ*), the Yb can provide kW of average power and will enable third-generation femtosecond technology [5]. However, the pulse durations of Yb lasers are typically longer (250 *fs* - 1 *ps*) compared with Ti:Sa (sub-30 *fs*) and require large compression factors to reach few-cycle pulse durations [101, 118].

Recent results obtained with sub-ps pulses have demonstrated the generation of a highly asymmetric, redshifted multioctave supercontinuum based on the stimulated Raman scattering (SRS) in molecular gases at low repetition rate, typically lower than 1 *kHz* [91, 99, 100]. Furthermore, the demonstration of the creation of multidimensional solitary states (MDSS) in a Raman-active medium [17] makes this technique a sustainable alternative to the well-known self-phase modulation (SPM) broadening with noble gas through hollow-core fibers (HCF) [81, 89, 101–103] or multi-pass cells [104]. Nevertheless, thermal effects, associated with high rotational states in the molecular gases, have been identified as a limitation for scaling this technique at a high repetition rate [105].

Here, we have investigated how to mitigate the thermal effects observed when propagating pulses at higher repetition rates in a comparatively short 1-meter HCF filled with N₂O molecular gas. Furthermore, we have identified the parameters where the source is stable and usable. Coupling the MDSS at high repetition rates with Yb lasers promises to be an advantageous platform to generate short pulses in the near-infrared spectral range, overpassing the usual limitations of the

optical parametric amplification process, such as the low conversion efficiency [119]. The ability to generate MDSS pulses exhibiting negative dispersion in such a short HCF opens the door to a compact, cost-effective, and efficient single-stage compression system.

6.2 Results

The experiments were carried out at the Advanced Laser Light Source (ALLS) facility, using an Yb-doped fiber amplifier (Tangerine, Amplitude) delivering 300 *fs* pulses with a tunable repetition rate up to 2 *MHz* and a maximum average power of 50 W. All measurements were performed with a constant laser output energy of 200 μ J. The beam was focused into a 1-meter-long stretched HCF (Few-cycle Inc.) with an inner core diameter of 250 μ m. The setup enables pressurizing the HCF up to 10 bar, either in static or differential configuration. The use of a short HCF is motivated by our precedent simulations, showing that the spatiotemporal Raman enhancement takes place in the first centimeters of propagation [17]. A shorter HCF should thus also exhibit MDSS broadening, even with less spectral broadening and a higher flow velocity.

Our study compares static and differential pressure configurations. While the static configuration leads to suppression of spectral broadening, we demonstrate how to mitigate such annihilation by working in a differential pressure scheme by pumping the HCF input with a primary vacuum. Figure 6.1 shows the spectral broadening and power transmission behaviors in static configuration for different pressures of N₂O. All the spectrums presented are isolated from the pump using a long-pass filter at 1050 *nm* [17]. Increasing the gas pressure results systematically in enhanced spectral broadening, as shown at the bottom of Fig 6.1(a) for 1 *kHz*. On the contrary, in agreement with Ref. [105], increasing the pulse repetition rate (i.e., the average power), results in an important narrowing of the spectrum [Fig. 6.1(a)] and a loss in transmission [Fig. 6.1(b)]. This drop in transmission could be associated with the thermal lensing at the HCF input, which is mitigated using a differential pressure pumping scheme.

Figures 6.2(a) and 6.2(b) present the output spectrum and the power transmission through the HCF in a differential pressure scheme, respectively. We note that the behavior of the MDSS spectrum [Fig. 6.2(a)] appears to be completely different than that observed for the static pressure scheme [Fig. 6.1(a)], exhibiting spectral broadening even at 20 *kHz* repetition rate, corresponding to 4 *W* of average power at the input (with 160 μ J at the output). Figure 6.2(b) reports a non-negligible difference in transmission between short and long pulses at high pressure. This variation can be attributed to the photon conversion process. It is verified that the ratio between the central wavelengths of the short, redshifted pulse and the long pulse equals the ratio between the output powers, indicating that the lower output power in the case of MDSS is due to the difference of the output photon energy. In term of photons, there is no loss in transmission due to the MDSS process.

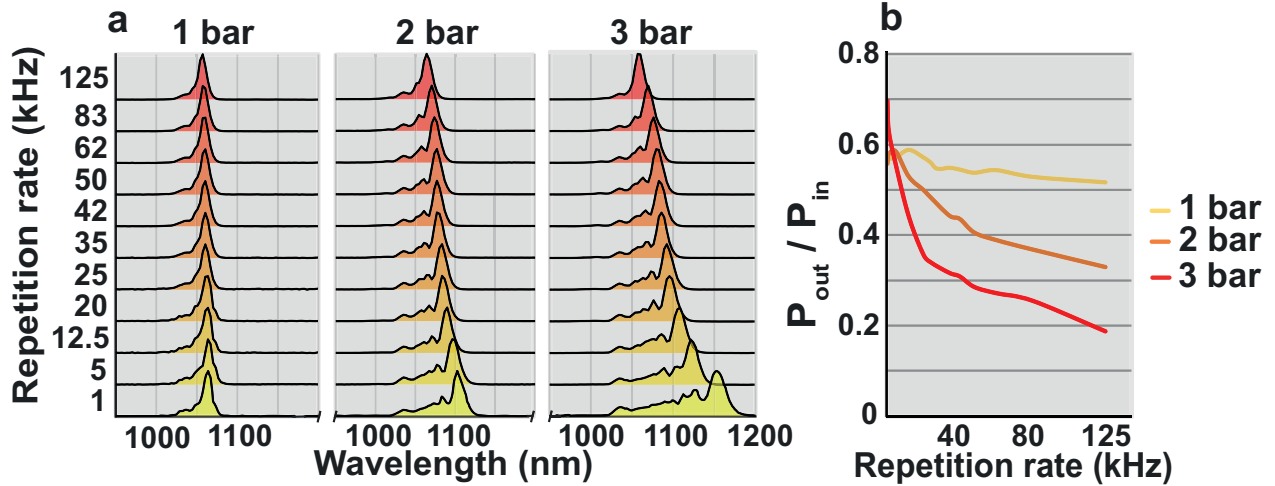


Fig. 6.1 : Spectral broadening in static pressure configuration

In static pressure configuration, comparison of (a) spectral broadening and (b) transmission (P_{out}/P_{in}) for different pressures when propagating $200 \mu\text{J}$ pulses through the N_2O -filled HCF.

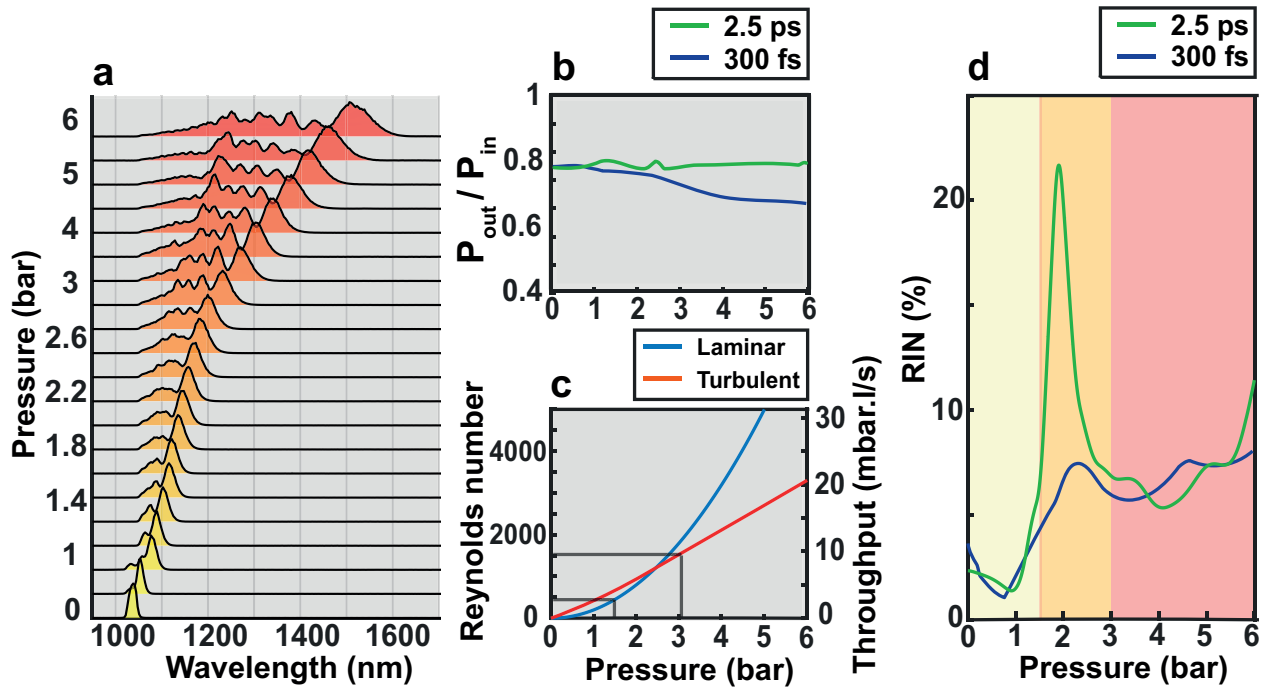


Fig. 6.2 : Spectral broadening in differential pressure configuration

Pressure dependencies for various experimental conditions at 20 kHz repetition rate. (a) Spectrum for the 300 fs pulses and (b) transmission for both short and long pulses. (c) Reynolds number and throughput of the HCF when filled with N_2O , based on the explicit equations for laminar and turbulent flow and (d) RIN value. Horizontal and vertical lines in panel (c) and background colors in panel (d) are used to indicate the different flow regions, based on the RIN measurement.

However, when strong pressure gradients are applied, we observe spatial instabilities at the output of the HCF, strongly reducing the beam quality. In this regard, the flow velocity of the gas and furthermore the flow regime (laminar, transition, and turbulent regimes) inside the HCF become important parameters of the system [106, 107]. To take the gas regime into account, we calculate

the throughput Q , using the two following explicit equations [120]. In the laminar regime,

$$Q_{lam} = \frac{\pi}{256} \cdot \frac{1}{\eta} \cdot \frac{d^4}{L} \cdot (p_i^2 - p_o^2) \quad (6.1)$$

where η is the gas dynamic viscosity, d the capillary inner diameter, L the capillary length, and p_i and p_o respectively the gas pressure at input and output. In the turbulent regime, Q becomes

$$Q_{tur} = d \cdot \left(0.39\pi^2 \cdot \frac{d^3(p_i^2 - p_o^2)}{2L} \right)^{\frac{4}{7}} \cdot \left(\frac{RT}{M_{mol}} \right)^{\frac{3}{7}} \cdot \left(\frac{4}{\pi\eta} \right)^{\frac{1}{7}} \quad (6.2)$$

Here, R is the universal gas constant, T the temperature, and M_{mol} the molar mass of the gas. Using the throughput, it is possible to estimate the Reynolds number Re [121], defined as the ratio between the inertial and viscous forces in a fluid,

$$Re = \frac{4M_{mol}Q}{RT\pi d\eta} \quad (6.3)$$

which gives us a first assumption of the boundary for the laminar ($Re < 2040$) and turbulent ($Re > 3500$) regimes [121, 122]. In the case of N_2O , Fig. 6.2(c) shows the gas throughput (right y axis) and the Reynolds number (left y axis) for our 1-meter, 250- μm inner diameter HCF as a function of the output pressure p_i ($p_o = 20$ mbar).

To confirm the regime, we measure the relative intensity noise (RIN), at the HCF output, using a fast photodiode and a small aperture, based on the method established in Refs. [106, 107]. Figure 6.2(d) presents the spatial instabilities for 2.5- ps and 300- fs pulses. The picosecond pulse linearly propagates through the HCF in the fundamental mode and is used as a reference. The femtosecond pulse experiences Raman based spectral broadening in the gas-filled HCF. At a strong pressure gradient (>3 bar), the two curves are comparable, proving that the MDSS process is not involved in the spatial instabilities. Those instabilities derive from the turbulent regime of the gas inside the HCF. Inversely, in the transition regime (1 – 3 bar), a diminution of the spatial instability is observed when the MDSS process takes place in the HCF. As mentioned in Ref. [107], spatial instabilities can be used as a novel tool for the investigation of volume flow in HCFs. In the transition regime, flow fluctuations occur close to the inner walls of the HCF; the flow in the center remains in a laminar regime [122]. This diminution of the spatial instability could be explained by the fact that the MDSS process propagates through a spatial soliton and thus maps only the central part of the flow.

By comparing Fig. 6.2(c) and Fig. 6.2(d), and based on the instability behavior, we deduce that the transitions between the flow regimes are reached for lower Reynolds numbers than the theoretical values, respectively 490 for laminar and 1500 for turbulent. This downshift, compared with the Reynolds numbers predicted in the literature ($Re < 2040$ for laminar regime and $Re > 3500$ for turbulent regime) [122], may be due to small variations in our geometry compared with a perfect

HCF. Based on the RIN values shown in Fig. 6.2(d), two pressure domains are suitable for applications, as they present limited spatial instabilities: (i) the laminar regime, with limited broadening; and (ii) at the beginning of the turbulent regime (at 4 bar) with a spectral broadening extending up to 1300 nm. This laser wavelength range is of high interest for driving high-harmonic generation (HHG) up to the carbon k-edge [108]. Therefore, 4 bar of backing pressure seems to be an adequate trade-off between sufficient spectral broadening and spatial stability with our HCF geometry.

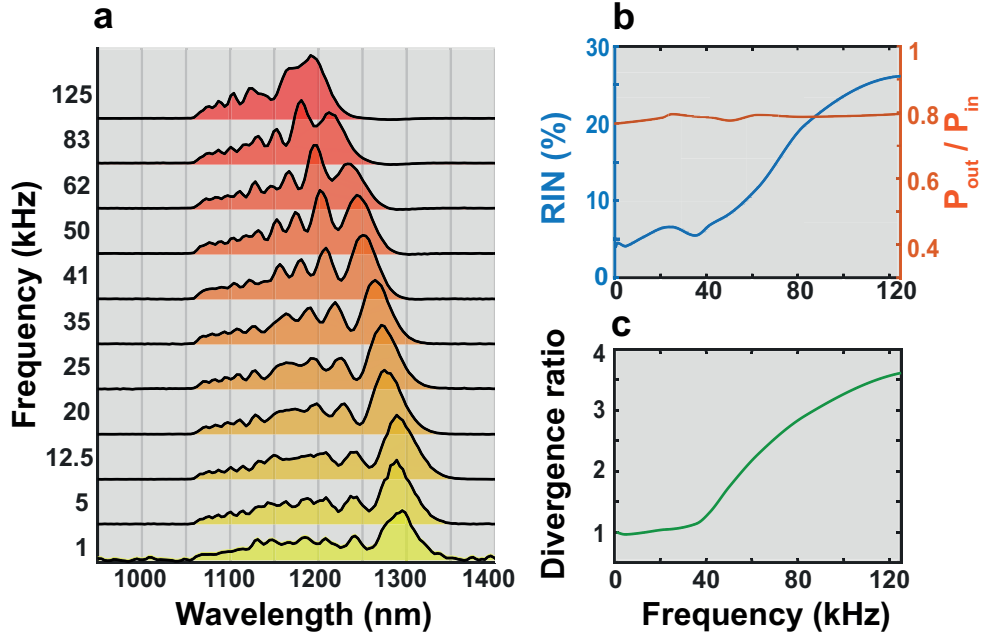


Fig. 6.3 : Influence of the repetition rate on the spectral broadening

Influence of the repetition rate on (a) the spectral broadening, (b) the beam divergence, compared with the divergence at 1 kHz, and (c) the transmission and the RIN when propagating a 200- μ J pulse in gradient pressure conditions through an output pressure of 4 bar of N₂O. As the pressure remains constant along the scan, the input coupling in the HCF has been re-optimized to get the output transmission of 80%.

With a backing pressure of 4 bar, we later performed spectral and transmission measurements as a function of the laser repetition rate, presented in Fig. 6.3(a) and Fig. 6.3(b), right y axis. We can gain better insight into thermal effects by studying the spatial instabilities presented on the left y axis of Fig. 6.3(b) and the measurement of the beam divergence, presented in Fig. 6.3(c). The spectral broadening slowly starts to shrink around 25 kHz [Fig. 6.3(a)], while the pulse instabilities [Fig. 6.3(b), blue curve] and the divergence [Fig. 6.3(c)] experience a major change above 40 kHz. Above this repetition rate, we also observe a modification in the characteristic structure of the MDSS spectrum. Without thermal effects, the spectrum exhibits clear Raman peaks, with most of the energy at the right edge of the spectrum. As the repetition rate increases, the energy is no longer fully transferred and is distributed more equally between the different peaks.

To understand the underlying physical mechanism of how the differential pressure scheme contributes to limit the thermal load in the molecular system, up to a certain pulse repetition rate,

we first hypothesize that the gas flow should be sufficiently high enough to replace gas molecules between two consecutive laser shots. We test this hypothesis using the calculated throughput in Fig. 6.2(c). For the 1-meter-long HCF with a $250\text{-}\mu\text{m}$ core diameter, a backing pressure of 4 bar enables to completely refresh the gas in the HCF core every 38 ms , corresponding to a renewing rate of 26.3 Hz . Therefore, the mitigation of the thermal load in the differential pressure configuration could not be directly related to the renewal of the molecules in the HCF, as there is no correlation between the refreshing rate and the suppression of spectral broadening. The thermal load induced by the laser pulses corresponds to larger contributions of higher-energy rotational states to the molecular ensemble, leading to a reduction in rotational coherence and, consequently, of the spectral broadening [17]. To our knowledge, the only mechanism responsible for the rotational state distribution relaxation between pulses is the collision. The induced flow generated by the differential pressure increases the collision rate between the molecules and seems to be responsible for the faster relaxation of the molecules [123].

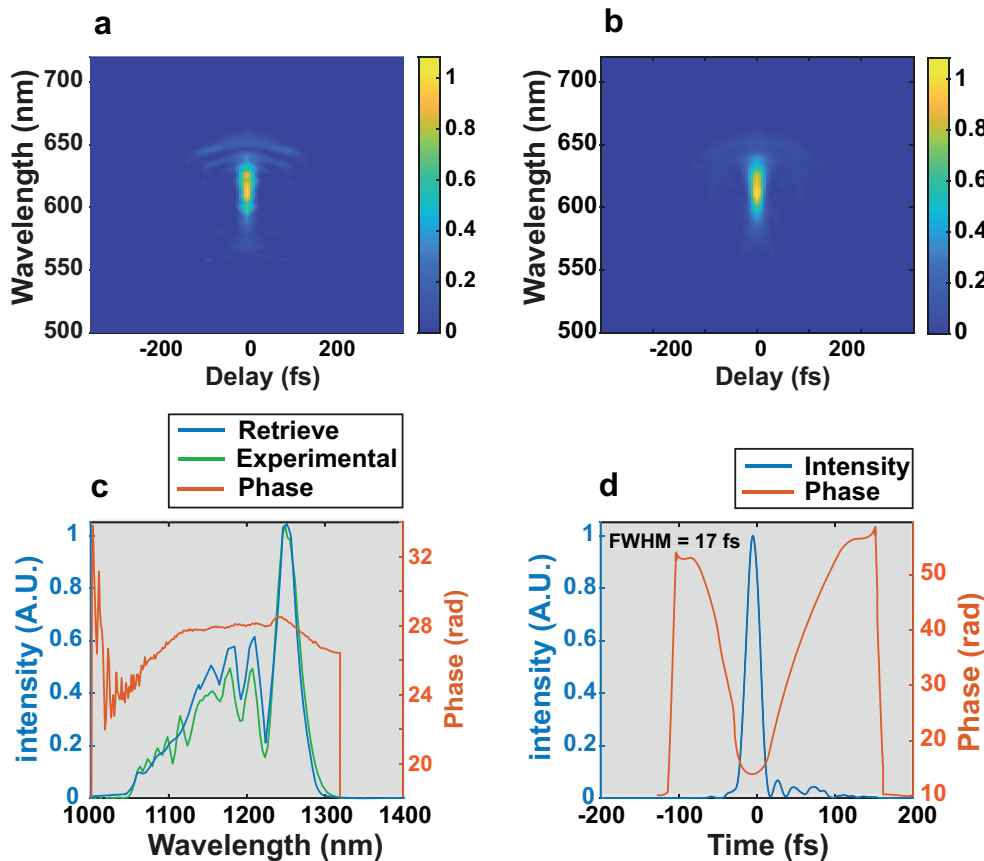


Fig. 6.4 : Compressed pulses characterized by SHG-FROG

Compressed pulses characterized by SHG-FROG: (a) measured and (b) reconstructed trace. (c) Reconstructed spectrum and (d) temporal profile (blue lines) with spectral and temporal phases (orange lines). The incoming 300-fs pulses propagate through the 1-meter HCF, filled with 4 bar of N_2O , at 20-kHz repetition rate. After the 3-mm BaF_2 window at the HCF output, the $160\text{-}\mu\text{J}$ pulse propagates through an additional 4 mm of BaF_2 . No further chirped mirrors have been added (Z error = 0.00476).

To confirm proper operation of the HCF system in the MDSS regime with a repetition rate of 20 kHz, we performed second-harmonic generation frequency-resolved optical gating (SHG-FROG) measurements at the HCF output [Figs. 6.4(a) and 6.4(b)] with an output pulse energy of 160 μJ . The characteristic negative quadratic spectral phase confirms spectral broadening through the MDSS process and enables compressing the pulse close to its Fourier transform limit (14 fs) without using additional chirped mirrors [Fig. 6.4(c)]. Moreover, the simple propagation through a high-density gas output cell and the output window results in a primary self-compression of the pulse. A total thickness of 7 mm of B_aF_2 allows us to compress the pulse duration to 17 fs [Fig. 6.4(d)], i.e., a compression factor of 17, resulting in a pulse of less than 4 optical cycles.

Here, the repetition rate of 20 kHz was chosen to fix the edge of the spectrum at 1300 nm [Fig. 6.4(c)]. However, as Fig. 6.3 suggests, our setup should allow higher repetition rates (up to 40 kHz) before instabilities start to increase.

6.3 Conclusion

In conclusion, by considering the gas flow and the different flow regimes present when using a differential pressure scheme, we demonstrate that the renewal rate of the molecules within the HCF is not directly linked to the mitigation of the thermal load inherent to the excitation of rotational molecular motions. However, the differential pressure scheme enables a significant increase of the repetition rate by a factor of 20–40, and we propose that the collision rate between molecules is the critical parameter responsible for evacuating the thermal load. Obviously, the parameters defining the gas flow and those defining the nonlinearity in the HCF are closely coupled. Therefore, an increase of the pressure to broaden the output spectrum could also result in a lower beam quality, which is not suitable. In this perspective, a balance needs to be found to simultaneously achieve a broad spectrum, a small divergence, and a low RIN value. Such parameters should define the guidelines for the design of MDSS-based HCF setups.

We remark that other parameters should also be considered to control the nonlinearity under specific conditions. For instance, in the case of a more energetic source, selecting a gas with a weaker Raman response such as N_2 could be beneficial. Another interesting option would be to mix a Raman-active gas such as N_2O with an inert gas such as He [105]. Adjusting relative pressures may enable control of the Raman broadening without observing thermal effects or spatial instabilities.

To summarize, we have demonstrated a simple way to use the MDSS approach for the pulse compression of a high repetition rate laser system. We compressed laser pulses at 20-kHz repetition rate to the few-cycle regime, in the infrared, that would allow HHG up to the carbon k-edge of the water window spectral range [124]. The results presented here confirm MDSS as a promising technology to redshift and compress high repetition rate ytterbium laser systems with a compact single-stage compressor.

Funding

NSERC CREATE; Fonds de recherche du Québec - Nature et technologies; Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada; PROMPT.

Disclosures

The authors declare no conflicts of interest.

Data availability

Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time but may be obtained from the authors upon reasonable request.

7 Caractérisation d'impulsions ultracourtes

La mesure d'impulsions lumineuses se fait généralement à l'aide d'une photodiode et d'un oscilloscope lorsque la durée de l'impulsion à caractériser le permet. La photodiode convertit la lumière en un signal électrique mesurable, tandis que l'oscilloscope enregistre ce signal dans le temps. Cependant, cette approche a ses limites en termes de résolution temporelle. Dans le cas où l'impulsion devient très courte ($\leq ps$), un système électronique ne sera tout simplement pas assez rapide pour résoudre l'impulsion.

Dans de telles situations, il devient impératif de recourir à des techniques de caractérisation optique plus avancées. Elles exploitent des principes optiques connus pour étudier et mesurer ces impulsions lumineuses ultracourtes avec une précision accrue. Parmi ces techniques figurent notamment la méthode d'autocorrélation et le gating optique résolu en fréquences ou en anglais *Frequency-resolved optical gating* (FROG) qui font parties des méthodes les plus utilisées. En outre, une nouvelle technique de caractérisation, la commutation optique résolue en fréquences ou en anglais *Frequency-resolved optical switching* (FROSt), a été développée au sein du groupe de recherche de F. Légaré. Le FROSt se distingue et complète les techniques classiques de caractérisation de plusieurs manières qui seront plus amplement développées dans ce chapitre. Chacune de ces méthodes permet d'extraire les propriétés des impulsions lumineuses, comme leur durée et leur phase spectrale. Néanmoins, chaque technique vient avec ces avantages et ces défauts comme nous allons l'expliquer dans la suite de ce chapitre.

Avec l'utilisation d'impulsions de plus en plus courtes, complexes et s'étendant sur de larges plages spectrales, le développement et la maîtrise de ces techniques sont essentiels. Cela s'applique à divers domaines qui font usage de lasers à impulsions ultracourtes, tels que la génération d'harmoniques d'ordres élevés [125], la tomographie à cohérence optique (OCT) [126, 127], la microfabrication et la lithographie [128], et la recherche en physique des matériaux [49, 129] pour ne citer qu'eux.

Le but de ce chapitre est de présenter certaines des méthodes les plus utilisées, commençant par les plus simples et évoluant vers les techniques les plus avancées. Cela permettra de mieux comprendre les avantages et les limites de chaque technique et d'exploiter efficacement ces outils pour l'analyse d'impulsions lumineuses ultracourtes. Dans le cadre de cette thèse, je vais m'attarder sur les techniques d'autocorrélation, du FROG et du FROSt. D'autres techniques, notamment le scan dispersif (D-scan) [130, 131], le swing en amplitude (a-swing) [132, 133] et celles permettant d'avoir un accès direct au champ électrique, seront hors du champ de cette étude.

7.1 Autocorrélation

Les autocorrélateurs optiques sont utilisés pour plusieurs applications [134–136], et notamment pour la mesure de la durée d’impulsions ultracourtes [137–139] d’une durée de l’ordre de la picoseconde à la dizaine de femtosecondes, lorsqu’un appareil purement électronique serait trop lent.

Le principe de base du fonctionnement d’un autocorrélateur pour la mesure de la durée d’une impulsion consiste à vérifier la corrélation de la trace temporelle de l’impulsion avec elle-même. Un séparateur de faisceau crée une réplique de l’impulsion à caractériser. Ces deux impulsions sont superposées dans un milieu non linéaire (en général, un cristal non linéaire), où elles interagissent sur la base d’une certaine non-linéarité, à condition que l’accord de phase, le chevauchement spatial et temporel soient respectés.

7.1.1 Autocorrélateur en intensité

Dans un autocorrélateur en intensité, comme le montre la figure 7.1, un séparateur de faisceau divise une impulsion entrante en deux impulsions, qui sont ensuite focalisées et envoyées dans un cristal présentant une non-linéarité en $\chi^{(2)}$. La différence de longueur de bras et donc la synchronisation temporelle relative des impulsions peuvent être réglées mécaniquement par l’intermédiaire d’une ligne à retard optique (différents types de lignes à retard sont utilisés, par exemple des blocs de verre rotatifs ou des miroirs montés sur des platines de translations). Si la différence de longueur de bras est faible, de sorte que les impulsions se rencontrent dans le cristal non linéaire, le processus de génération par somme de fréquences (SFG) se produit. Si le délai relatif est augmenté, de sorte que le chevauchement temporel des deux impulsions dans le cristal est réduit, l’intensité du signal non linéaire devient plus faible. Il est évident que ce chevauchement est perdu plus tôt si les impulsions sont plus courtes.

Pour mesurer la durée de l’impulsion, la puissance de la seconde harmonique (en réalité une somme de fréquences) est enregistrée en fonction du retard temporel τ entre les deux bras de l’autocorrélateur. Cette opération est couramment effectuée sous contrôle informatique, en utilisant une platine de translation motorisée pour déplacer la ligne à retard. La dépendance du signal d’autocorrélation $I_{ac}(\tau)$ par rapport au retard temporel τ est donnée par la formule suivante

$$I_{ac}(\tau) = \int P(t) \cdot P(t + \tau) dt \quad (7.1)$$

Pour les impulsions de forme gaussiennes, l’autocorrélation est également de forme gaussienne, avec une largeur d’environ $\sqrt{2}$ plus grande que l’enveloppe de l’impulsion. Pour d’autres formes d’impulsions, la forme de l’autocorrélation n’est généralement pas une simple version élargie de l’enveloppe de l’impulsion. La figure 7.2 montre le signal d’autocorrélation pour des impulsions en

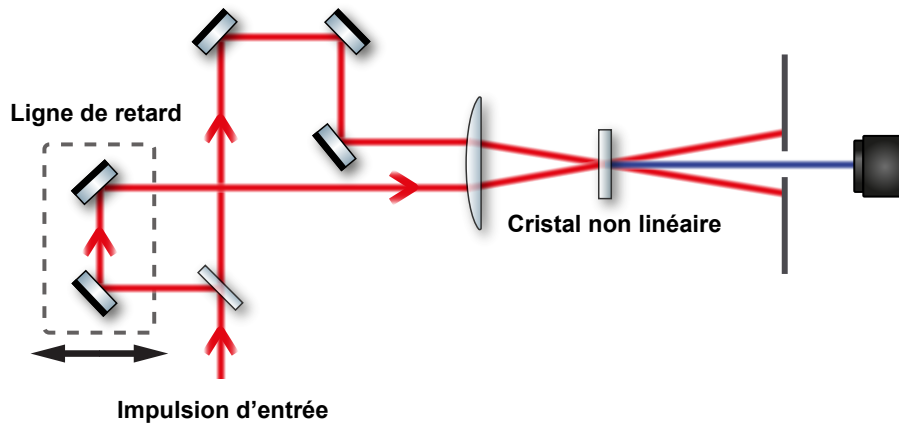


Fig. 7.1 : Schéma expérimental d'un autocorrélateur en intensité de seconde harmonique.

sécante hyperbolique (sech^2) [140]. L'axe horizontal indique le retard temporel d'une réplique par rapport à l'autre.

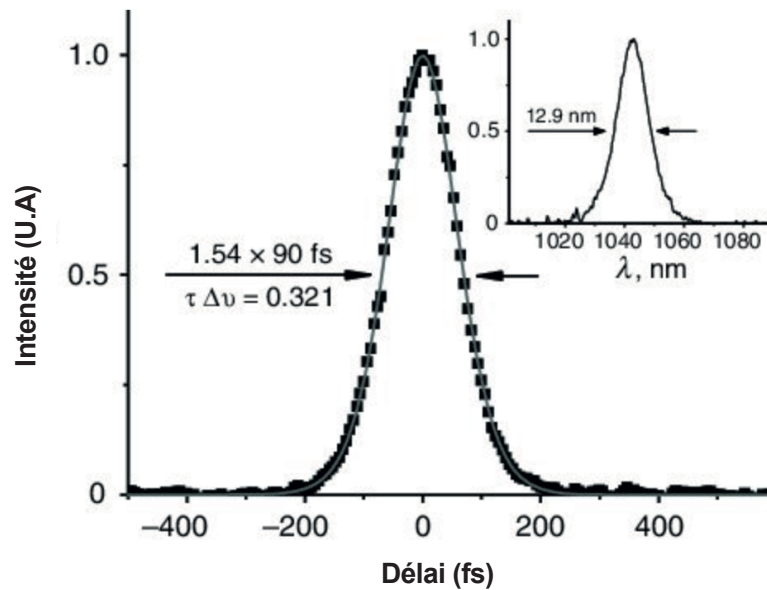


Fig. 7.2 : Mesure expérimentale d'une autocorrélation en intensité.

Trace d'autocorrélation expérimentale (carrés) avec un fit par une sécante hyperbolique (courbe) d'impulsions obtenues par post-compression. Encart : spectre correspondant. Adapté de [140].

Pour les impulsions ayant une enveloppe en sech^2 , la durée de l'impulsion est approximativement égale à 0,65 fois la largeur du signal d'autocorrélation. Comme mentionné précédemment, ce facteur de conversion peut varier en fonction de la forme précise de l'impulsion lumineuse. Pour obtenir une estimation de cette durée, on se base souvent sur une supposition concernant la forme de l'impulsion.

Pour valider cette hypothèse, on superpose l'autocorrélation enregistrée avec une courbe théorique correspondant à la forme d'impulsion présumée. Si celles-ci correspondent (comme dans la fig. 7.2), cela confirme la cohérence entre les données expérimentales et la supposition initiale. Cependant, il est important de noter que cette méthode ne constitue pas une vérification absolue, car elle ne donne pas accès à la phase spectrale de l'impulsion laser.

Il est aussi à noter que l'autocorrélation présente toujours une symétrie par rapport à son centre, même lorsque l'impulsion lumineuse initiale est asymétrique. Des formes d'autocorrélation asymétriques peuvent tout de même se produire en cas de désalignement ou de mauvais réglage des dispositifs d'autocorrélation.

7.1.2 Autocorrélateur à balayage ou à tir unique

Dans la plupart des cas, l'acquisition d'une trace d'autocorrélation nécessite l'utilisation de nombreuses impulsions provenant d'un train d'impulsions régulier. Ceci s'explique par le fait qu'au moins une impulsion est requise pour chaque délai, et une série de ces impulsions doit être balayée afin d'obtenir une mesure significative. Il est évident que ces méthodes de mesure ne peuvent pas fonctionner s'il y a une variation d'intensité ou de phase trop grande entre les impulsions.

Pour de nombreux lasers, en particulier ceux à haute cadence utilisant des techniques de verrouillage de mode, cette exigence ne pose généralement pas de problème majeur, car ils sont capables, pour la plupart, de générer des impulsions stables sur un temps long. Cependant, pour les systèmes lasers à amplification ultra-rapide fonctionnant à un faible taux de répétition, les méthodes d'autocorrélation basées sur des tirs multiples peuvent devenir impraticables et peu fiables.

Il est également possible de mesurer une trace d'autocorrélation complète avec une seule impulsion [141], si celle-ci a une énergie suffisamment élevée. Un autocorrélateur à tir unique peut être réalisé de telle sorte que la focalisation dans le cristal non linéaire soit effectuée avec une lentille cylindrique (plutôt que sphérique) et que le signal converti soit enregistré avec une caméra, voir fig. 7.3. Différentes positions spatiales dans le cristal correspondent alors à différents délais.

7.1.3 Choix du cristal non linéaire et accord de phase

Le choix d'un cristal non linéaire approprié et de l'épaisseur du cristal implique plusieurs considérations, notamment en ce qui concerne l'accord de phase et la transparence. Dans le régime femtoseconde, le décalage dû à la vitesse de groupe est également particulièrement important, limitant l'accord de phase et potentiellement la résolution temporelle. Les cristaux de KDP ou de BBO minces (parfois avec une épaisseur inférieure à $10\ \mu\text{m}$) constituent un bon choix pour des durées d'impulsions de quelques femtosecondes et dans le visible ou l'IR. Pour des longueurs d'ondes plus longues (MIR), d'autres cristaux qui ont une meilleure transparence dans cette gamme de fréquences

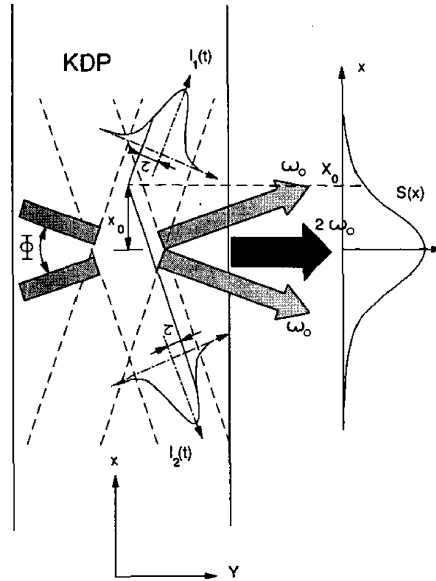


Fig. 7.3 : Autocorrélateur à tir unique.

Vue de dessus de la géométrie d'un autocorrélateur à tir unique. Deux impulsions se croisent à un angle interne ϕ à l'intérieur d'un cristal non linéaire et le signal de somme de fréquences qui en résulte est imagé sur un détecteur CCD, fournissant la fonction d'autocorrélation du second ordre $S(x)$. Adapté de [141]

seront utilisés comme le sulfure d'argent et de gallium (AGS) ou le silicate de lanthane et de gallium (LGS).

7.1.4 Limites de la méthode d'autocorrélation

À partir d'une trace d'autocorrélation mesurée, il est possible de retrouver la durée de l'impulsion si la forme de l'impulsion est connue, et de vérifier si la trace d'autocorrélation est cohérente avec une forme d'impulsion donnée. Cependant, il n'est pas possible de mesurer de manière unique la forme de l'impulsion avec une trace d'autocorrélation seule. Aussi, D'autres problèmes se posent si les trains d'impulsions sont sujets au bruit ; les tracés d'autocorrélation peuvent alors être très trompeurs.

De plus, la technique d'autocorrélation d'intensité ne peut pas fournir d'informations sur le profil de phase spectrale; les traces d'autocorrélation obtenues dépendent uniquement de la variation temporelle de l'intensité ou de la puissance optique. De plus, pour les impulsions très courtes, par exemple d'une durée inférieure à 10 fs, il est difficile d'effectuer des mesures d'autocorrélation précises. L'une des difficultés réside dans la largeur de bande limitée de l'adaptation de phase du cristal non linéaire, même s'il est très fin.

7.2 Gating optique résolu en fréquences (FROG)

Le gating optique résolu en fréquences (FROG) [142–144] est une technique de caractérisation plus complète des impulsions ultracourtes, c'est-à-dire qu'elle permet non seulement de mesurer la durée de l'impulsion, mais aussi le spectre et la phase spectrale, ce qui comme nous l'avons vu précédemment permet de caractériser entièrement l'impulsion laser. Ce que l'autocorrélation ne permet pas. Cette technique a été mise au point par le groupe de recherche de R. Trebino au Georgia Institute of Technology.

La configuration typique d'un FROG est similaire à celle d'un autocorrélateur d'intensité, sauf que le photodétecteur est remplacé par un spectromètre. Une mesure FROG implique l'enregistrement de quelques dizaines ou centaines de spectres pour différents délais entre les deux impulsions. Ces données peuvent être illustrées sous la forme d'une trace FROG (voir figure 7.4), qui est une sorte de spectrogramme et s'affiche sur une échelle de couleurs l'intensité en fonction du délai et de la fréquence optique (ou longueur d'onde).

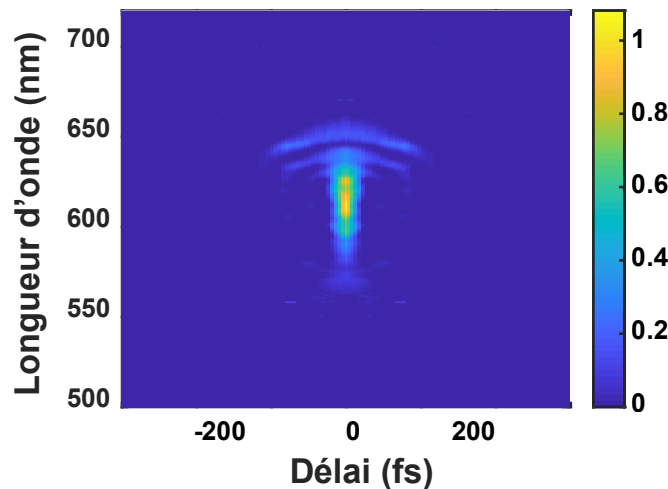


Fig. 7.4 : Trace FROG expérimentale

Trace FROG expérimentale d'une impulsion femtoseconde compressée. L'abscisse représente le délai entre les deux répliques et l'ordonnée montre la longueur d'onde. L'intensité est normalisée.

Un algorithme sophistiqué de récupération de phase itératif peut alors être utilisé pour reconstruire la forme de l'impulsion à partir de la trace FROG. Comme les données enregistrées sont redondantes, l'algorithme de récupération FROG peut non seulement fournir la forme de l'impulsion, mais aussi effectuer un contrôle de cohérence. Sur un ordinateur classique, la procédure peut prendre quelques minutes avec un algorithme non optimisé. Par la suite, des algorithmes optimisés ont été mis au

point et permettent d'effectuer les calculs en moins de 0,1 s, du moins pour les impulsions de formes simples.

7.2.1 Exemple du SHG-FROG

Le FROG utilisant la génération de seconde harmonique (SHG-FROG) est la version la plus simple et la plus courante des variantes de la technique FROG [145]. Le principal avantage de la méthode de SHG-FROG est la sensibilité : elle n'implique qu'une non-linéarité de second ordre, alors que la majorité des variations FROG utilisent des non-linéarités optiques de troisième ordre, qui sont beaucoup plus faibles en termes d'efficacité. Le SHG-FROG est couramment utilisé pour mesurer tout type d'impulsion, mais son véritable avantage vient lorsqu'il faut mesurer des impulsions de faible énergie, et il peut mesurer des impulsions aussi faibles qu'environ 1 pJ. Il est légèrement moins sensible que l'autocorrélateur.

Dans le cas du SHG-FROG, le signal d'autocorrélation généré est la seconde harmonique (ou plus spécifiquement la somme de fréquences) de l'impulsion à caractériser. Cela se produit dans un cristal non linéaire taillé pour respecter l'accord de phase. L'enveloppe du champ du signal SHG-FROG a donc la forme suivante

$$E_{sig}(t, \tau) = E(t) \cdot E(t - \tau), \quad (7.2)$$

où $E(t)$ est l'enveloppe complexe de l'impulsion à mesurer et τ est le délai entre les deux répliques de l'impulsion. Ce signal est alors collecté par un spectromètre, ce qui donne une trace FROG de la forme :

$$\begin{aligned} I_{frog}(\omega, \tau) &= \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \\ &= |E_{sig}(\omega, \tau)|^2. \end{aligned} \quad (7.3)$$

Le principal inconvénient du SHG-FROG, contrairement aux autres versions, est qu'il a une trace non intuitive qui est symétrique par rapport au retard et, par conséquent, présente une ambiguïté dans la direction du temps. Ainsi, lorsqu'une trace SHG-FROG est mesurée et que l'algorithme de reconstruction de phase est exécuté, il est possible que l'impulsion réelle soit la version inversée dans le temps de l'impulsion récupérée. Cette ambiguïté peut être facilement levée de plusieurs façons. L'une d'elles consiste à effectuer une seconde mesure SHG-FROG de l'impulsion après l'avoir déformée d'une manière connue. La méthode la plus courante consiste à placer un morceau de matériau dans le faisceau, avant le séparateur de faisceaux, ce qui permet d'ajouter une quantité

connue à la phase de l'impulsion. Une autre méthode consiste à savoir à l'avance quelque chose sur l'impulsion, par exemple le signe de la GDD.

Notez que l'ambiguïté temporelle n'affecte que les ordres pairs de phase. Le chirp linéaire, qui a une dépendance quadratique de la phase temporelle, a un signe ambigu en SHG-FROG. Cependant, un décalage de fréquence (ordre 1) ou une distorsion de phase cubique temporelle ou spectrale (ordre 3) n'a pas de signe ambigu pour le SHG-FROG [146].

La considération expérimentale la plus importante dans le cas du SHG-FROG est que le cristal de SHG ait une largeur de bande suffisante (c'est-à-dire qu'il soit suffisamment fin, puisque la largeur de bande est inversement proportionnelle à l'épaisseur du cristal) pour doubler en fréquences toute la bande de l'impulsion à caractériser. Si le cristal est trop épais, l'accord de phase n'est pas respecté sur toute la bande spectrale de l'impulsion et la trace SHG-FROG se rétrécit le long de l'axe spectral, ce qui fausse la mesure. Il est important de réaliser que les autocorrélateurs portent la même exigence de largeur de bande du cristal, mais cette exigence n'est souvent pas respectée dans la pratique, car contrairement à la technique FROG, il n'est pas possible de récupérer le spectre reconstruit pour le comparer avec le spectre expérimental.

Un autre argument en faveur d'un cristal fin est que la précision de la technique SHG-FROG dépend du maintien de la relation entre le champ d'entrée et le champ du signal, comme indiqué dans l'équation 7.2. Cela limite l'efficacité de la conversion que l'on peut utiliser pour générer le champ de signal. Si l'intensité au niveau du cristal, et donc l'efficacité de la SHG, est trop élevée, l'hypothèse de non-déplétion du signal d'entrée n'est plus respectée et l'équation 7.2 deviendra alors

$$E_{sig}(t, \tau) \propto E(t) \tanh[\alpha E(t)] \quad (7.4)$$

où α est une constante proportionnelle à la longueur du cristal et au coefficient non linéaire effectif. Par conséquent, si nous voulons maintenir l'équation 7.2 à moins de 1% de déviation, nous devons maintenir le rendement de conversion inférieur à 3% [145]. Dans le cadre de cette thèse, cette contrainte n'est pas très restrictive.

7.2.2 Variantes du FROG

Il existe d'autres versions du FROG, qui reposent sur différentes non-linéarités, et qui génèrent différents types de traces FROG (nécessitant donc différents algorithmes de reconstruction). Toutes ces versions présentent des forces et des faiblesses différentes, et en voici une liste non exhaustive :

PG-FROG Le FROG à polarisation [147, 148] est la variante du FROG la plus simple d'un point de vue conceptuel. Dans ce cas, l'une des répliques, polarisée à 45° par rapport à l'autre, fait pivoter la polarisation de cette dernière lorsqu'elles se croisent dans un matériau ayant une non-linéarité en χ^3 (par exemple, la silice) et conduit ainsi à la transmission de la sonde à

travers un polariseur. Comme toujours avec la méthode FROG, le signal de sonde transmis est analysé à l'aide d'un spectromètre. Les avantages du PG-FROG sont la facilité d'alignement et la génération de traces FROG assez intuitives. Le problème est qu'il faut un polariseur avec un rapport d'extinction très élevé.

TG-FROG Le FROG à réseau transitoire [149] utilise un réseau d'indice de réfraction non linéaire et une troisième impulsion à retard variable comme sonde, qui est diffractée sur le réseau généré par les deux autres faisceaux. La largeur de bande de l'accord de phase est plus grande en TG-FROG qu'en SHG-FROG, ce qui est important pour les impulsions extrêmement courtes ($< 20\text{-fs}$). L'inconvénient du TG-FROG est la nécessité de diviser le faisceau d'entrée en trois faisceaux et de les faire se chevaucher dans le milieu non linéaire.

XFROG Le FROG à corrélation croisée [150, 151] utilise le même processus non linéaire que le SHG-FROG, la différence est que de l'impulsion à caractériser va interagir avec une impulsion de référence connue (qui ne doit pas nécessairement se chevaucher spectralement avec l'impulsion à caractériser) dans le milieu linéaire. L'ambiguïté temporelle de la trace SHG-FROG n'apparaît pas dans la trace XFROG car les deux impulsions ne sont plus identiques. Les traces XFROG sont donc beaucoup plus intuitives. Cette méthode est aussi très sensible et peut être appliquée à différentes régions spectrales. L'inconvénient principal est évidemment le besoin d'avoir une impulsion intense déjà caractérisée pour utiliser cette technique.

Cependant, au sein de cette thèse, aucune de ces méthodes plus avancées n'a été mise en œuvre. Cette décision découle du fait que la plupart des caractérisations d'impulsions réalisées à l'aide du SHG-FROG ont uniquement permis de corroborer les mesures obtenues avec la technique FROSt. Il convient de noter que la technique du SHG-FROG demeure bien établie dans la communauté pour la caractérisation d'impulsions ultracourtes de par sa simplicité, puisqu'elle repose sur l'utilisation de deux répliques de la même impulsion pour la caractériser.

7.2.3 Limitations

Les approches basées sur la conversion de fréquences, comme le FROG, se sont avérées relativement fiables pour la reconstruction d'impulsions. Cependant, l'interaction paramétrique non linéaire qui en découle nécessite le respect de la condition d'accord de phase. Cette contrainte constitue un facteur limitant en ce qui concerne la largeur de bande maximale qu'il est possible de caractériser pour une impulsion donnée. Par exemple, la mesure d'impulsions de quelques cycles optiques à $0,8\ \mu\text{m}$ par SHG FROG nécessite un cristal de BBO d'une épaisseur de seulement quelques- μm d'épaisseur. Pour contourner cette difficulté, la condition d'accord de phase peut être assouplie en utilisant des non-linéarités du troisième ordre telles que le PG-FROG ou le TG-FROG. Cependant, cette approche s'accompagne d'une perte de sensibilité dans les mesures.

Ces dernières années, les techniques basées sur l'optique non linéaire ont été affinées et étendues pour permettre la caractérisation des impulsions à cycle unique et sous-cycle [152–154] en ayant un accès direct au champ électrique. Par exemple, l'ionisation sous-cycle à effet tunnel dans l'air (TIPTOE) a été utilisé pour caractériser des impulsions quasi mono-cycles [155, 156]. Cette technique a aussi été étendue au solide [157, 158], entre autres pour la rendre plus pratique d'utilisation. L'échantillonnage électro-optique (EOS) [159] est une autre technique permettant l'accès direct au champ électrique. L'EOS a d'abord été conçu pour la caractérisation d'impulsions dans les régions du moyen infrarouge ou du THz mais elle a été étendue à la région du proche infrarouge. Ces techniques restent néanmoins complexes à mettre en place en comparaison avec la technique FROG.

Le respect de l'accord de phase implique aussi une seconde contrainte. Toutes les techniques basées sur la conversion de fréquences ne pourront pas caractériser simultanément des impulsions avec des polarisations différentes ou juste une impulsion avec une polarisation complexe. Cette limitation peut s'avérer critique dans certaines situations expérimentales où il est nécessaire de caractériser des impulsions avec des polarisations complexes [160, 161].

Pour des impulsions peu intenses et très larges spectralement, la méthode FROG peut présenter des difficultés dans la reconstitution fidèle de ces impulsions. La largeur de bande est souvent trop grande pour le cristal et le signal résultant est difficile à détecter. De plus, ce type d'impulsion a souvent une phase spectrale et une forme très aléatoire comme c'est souvent le cas avec les supercontinuuums par exemple, ce qui rend la convergence de l'algorithme de reconstruction pas toujours évidente. Dans de telles situations, il est essentiel de prendre en considération ces défis potentiels lors du choix de la méthode de caractérisation. Les limitations de la technique FROG peuvent nécessiter l'exploration d'autres méthodes de caractérisation plus adaptées à ces impulsions complexes.

7.3 Commutation optique à résolution de fréquences

La commutation optique à résolution de fréquence (FROSt) [15] qui a été développé dans le groupe de François Légaré, est une technique alternative de caractérisation des impulsions basée sur l'absorption transitoire dans les solides. L'impulsion à caractériser sonde le changement ultrarapide de la transmission optique d'un solide déclenchée par une impulsion de pompe. Ce changement de transmission provient de la dynamique des électrons photoexcités et vient découper l'impulsion à caractériser temporellement en fonction du délai pompe-sonde. Le spectre transmis est ensuite enregistré en fonction de ce même délai. À partir de ce spectrogramme, nous extrayons les profils (amplitude et phase) temporels de l'impulsion de la sonde et de la porte (du commutateur) à l'aide d'algorithmes pychographiques.

Cette approche ne repose pas sur une conversion de fréquences non linéaire et n'est donc pas limitée (comme la technique FROG) par la contrainte d'accord de phase ni par l'intensité de l'impulsion (pour autant qu'elle soit supérieure au bruit de fond du spectromètre). Les impulsions à caractériser sont synchronisées à des impulsions de pompe dont l'intensité est suffisante pour induire la photoexcitation. Cette méthode est donc bien adaptée à la caractérisation complète des amplificateurs paramétriques optiques, qui constituent une technologie clé pour étendre la fréquence des lasers ultrarapides au domaine spectral de l'infrarouge et de l'infrarouge moyen. Elle permet aussi la caractérisation d'impulsion avec des polarisations complexes pour les mêmes raisons de contrainte d'accord de phase (voir section 7.2.3).

7.3.1 Absorption transitoire dans les solides

La technique FROSt est basée sur le phénomène d'absorption transitoire dans les solides, et les traces FROSt générées doivent être traitées par un algorithme de reconstruction pour extraire les données de l'impulsion. Cet algorithme a été développé dans le groupe de François Légaré [15] et est dérivé de la ptychographie spatiale. Cette dernière technique est bien connue et peut être transposée dans le domaine temporel. Issue de la microscopie, la ptychographie consiste à mesurer le motif $I(k)$ d'une sonde $P(r)$ diffractée sur un objet $O(r)$ pour de nombreuses positions relatives r_0 . L'ensemble des données 3D mesurées est décrit par l'équation suivante :

$$I(k, r_0) = \left| \int_r P(r) O(r - r_0) e^{ikr} dr \right|^2 \quad (7.5)$$

Des algorithmes de reconstruction de phase ont été mis au point pour exploiter la redondance des informations dans l'ensemble de données afin d'extraire les profils spatiaux de la sonde et de l'objet [162]. Par analogie, la ptychographie spatiale peut être transposée dans le domaine temporel. Un commutateur ultrarapide $S(t)$ qui est l'équivalent temporel de l'objet en ptychographie spatiale, est sondé par l'impulsion à caractériser $P(t)$. En éclairant une pompe ultracourte sur un matériau à faible bande interdite, les électrons sont promus de la bande de valence à la bande de conduction, ce qui modifie sa transmission optique à l'échelle de temps de l'impulsion de la pompe (fig. 7.5). Typiquement, cette chute de transmission se produit sur une échelle de temps de quelques dizaines de femtosecondes et agit comme un commutateur sur la sonde transmise [163], et prend plusieurs dizaines de picosecondes pour relaxer (voir fig. 9.2). En mesurant le spectre transmis de la sonde en fonction du délai pompe-sonde τ , le spectrogramme d'absorption transitoire obtenu est décrit par :

$$I(\omega, \tau) = \left| \int_t P(t) S(t - \tau) e^{i\omega\tau} dt \right|^2 \quad (7.6)$$

Comme pour le FROG, le spectrogramme doit être traité avec un algorithme de reconstruction pour extraire les informations sur l'impulsion. Ici, c'est un algorithme ptychographique qui permet de retrouver les profils temporels de la sonde $P(t)$ et du commutateur optique $S(t)$.

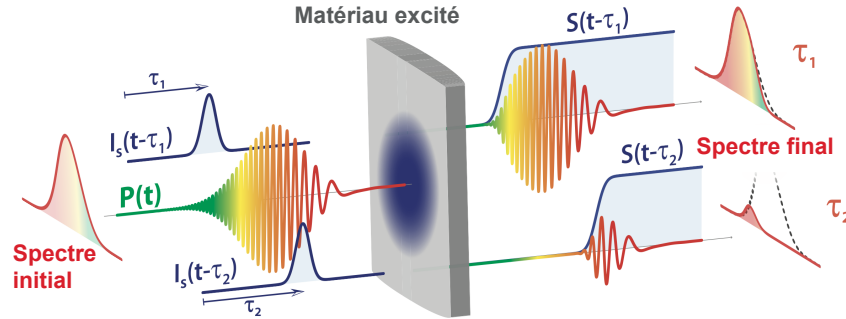


Fig. 7.5 : Principe de la technique FROSt.

L'échantillon solide est photoexcité par une impulsion de pompe $I_s(t)$ avec des délais variables entre la pompe et la sonde. Ici, deux retards différents (τ_1 et τ_2) sont illustrés. Ceci agit comme un commutateur ultra-rapide $S(t)$ pour une impulsion de sonde $P(t)$ (chirpée dans cet exemple) qui modifie sa forme d'onde transmise et dont le spectre est mesuré. Adapté de [15].

Dans le spectrogramme mesuré, l'information sur la phase spectrale de $P(t)$ est contenue dans le délai de la coupure de chaque fréquence. Si l'on considère le cas extrême d'une impulsion de sonde fortement chirpée, la pente du délai de coupure en fonction de la fréquence se remarque directement dans le spectrogramme et représente directement le retard de groupe (GDD). La combinaison de l'approche de l'absorption transitoire avec la force de la ptychographie fournit une méthode puissante et robuste pour récupérer la phase spectrale des impulsions ultracourtes, ce qui permet une caractérisation temporelle complète.

Il convient de noter que l'éq. (7.6) est identique à l'équation décrivant les mesures FROG (eq. (7.3)). Récemment, des algorithmes ptychographiques ont été adaptés pour reconstruire les spectrogrammes FROG et ont conduit à ce que l'on appelle la "ptychographie dans le domaine temporel" [164, 165]. Cependant, dans toutes ces études de ptychographie dans le domaine temporel, les spectrogrammes reconstruits résultent de mesures FROG conventionnelles. En d'autres termes, bien que ces algorithmes améliorent considérablement la procédure d'extraction, la nature de la mesure et les limitations qui vont avec cette technique restent inchangées. Ici, le processus même de la mesure est modifié afin d'éliminer la nécessité d'une conversion de fréquences.

7.3.2 Versatilité de la technique FROSt

Comme évoqué précédemment, la technique FROSt se distingue comme une méthode robuste et maintenant éprouvée pour la caractérisation d'impulsions ultracourtes. Pour mieux appréhender l'étendue de ses capacités et de son potentiel, il convient de mettre en lumière plusieurs propriétés intéressantes du FROSt :

Large Gamme Temporelle et Spectrale Il a été utilisé avec succès pour caractériser des impulsions ayant des longueurs d'onde centrales s'étendant sur une vaste plage spectrale, allant de 0,77 à 10 μm . Certaines de ces impulsions avaient une durée inférieure à deux cycles optiques et une faible énergie, de l'ordre de quelques nanojoules [15].

Utilisation de différentes durées de commutateurs Des impulsions de quelques cycles optiques à 0,77 μm sont caractérisées par deux durées de commutation différentes en pompant un échantillon de ZnSe avec des impulsions à 0,4 μm . Les impulsions reconstruites sont presque identiques, avec des durées d'impulsion de 8,5 et 8,2 fs, tandis que les profils de commutation optique sont différents, avec des durées d'impulsion pour la pompe de 55 et 101 fs respectivement [15]. Cette variation dans les profils de la commutation optique est une bonne illustration que l'influence de la durée de l'impulsion de pompage est négligeable sur les caractéristiques temporelles des impulsions reconstruites.

Utilisation de différentes intensités pour le commutateurs Des impulsions ont été caractérisées à différentes fluences d'impulsion de pompe [15]. La fluence maximale était proche du seuil d'ablation. L'énergie de l'impulsion de pompe est réduite à 10 % de ce maximum. Les profils récupérés de l'impulsion de la sonde sont presque identiques pour toutes les mesures, à l'exception de celle qui présente le contraste le plus faible (énergie de pompe de 10 %). Ces résultats démontrent que la technique de commutation optique résolue en fréquence est valable tant que le contraste du spectrogramme est suffisant (près de 25%).

Utilisation de différents matériaux Des impulsions centrées à 4 μm sont mesurées en utilisant trois solides différents et deux longueurs d'onde de pompe différentes - Ge pompé à 0,8 μm , Si à 0,8 μm , et ZnSe à 0,4 μm . Bien que les profils temporels des trois commutateurs optiques soient différents, les impulsions récupérées sont presque identiques, avec des durées de 51, 49 et 53 fs respectivement [15]. Cela met en évidence que le matériau utilisé pour induire la commutation n'a que très peu d'effet sur la caractérisation de l'impulsion.

Caractérisation de différentes polarisation simultanément La technique FROSt est intrinsèquement indépendante de la direction de polarisation de l'impulsion à caractériser. Cette capacité du FROSt est démontrée dans [166] en (i) caractérisant simultanément deux impulsions infrarouges polarisées orthogonalement et en récupérant le retard de groupe entre les deux impulsions. (ii) En suivant le processus de SHG d'une impulsion infrarouge chirpée qui est doublée en fréquence dans un cristal de BBO. De cette manière, la réduction de l'impulsion fondamentale et la génération de l'impulsion de seconde harmonique sont résolues temporellement en même temps. Cela permet un suivi unique de ce processus non linéaire. (iii) Mesurer simultanément trois impulsions dont les spectres s'étendent sur deux octaves et dont les polarisations linéaires sont différentes.

Montage à tir unique En employant une configuration similaire à ce qui a déjà été fait pour l'autocorrélation à tir unique [141] ou le FROG à tir unique [167], telle que présentée précédem-

ment dans la section 7.1.2; une méthode a été mise en œuvre pour réaliser une caractérisation FROSt en une seule acquisition [168]. Dans cette approche, la variation du retard est accomplie en utilisant le faisceau de pompe, qui est focalisé avec une lentille cylindrique vers l'échantillon avec un angle d'incidence relativement faible par rapport à la surface de celui-ci. Différentes positions spatiales dans le cristal correspondent alors à différents délais. Le spectrogramme est mesuré avec un capteur CCD.

La technique FROSt se révèle être une approche complémentaire au FROG lorsque ce dernier éprouve des difficultés à caractériser avec précision certaines impulsions, telles que les supercontinuuums de faible intensité ou des impulsions présentant une polarisation exotique. Cependant, il est essentiel de noter que, jusqu'à présent, toutes les capacités du FROSt ont uniquement été démontrées à basse cadence, généralement en dessous du kilohertz, en utilisant la technologie Ti:Sa, mais jamais à plus haute cadence en utilisant la technologie ytterbium.

Il est aussi important de souligner qu'au niveau théorique, le FROSt a la capacité de caractériser avec précision des impulsions s'étendant sur plusieurs octaves en fréquence. Toutefois, cette possibilité n'a pas encore été démontrée expérimentalement, principalement en raison de la difficulté de générer des impulsions ultracourtes couvrant de telles gammes spectrales dans la pratique.

Enfin, il convient de noter que la précision réelle de cette technique n'a pas encore fait l'objet d'études approfondies, bien que, à ma connaissance, il n'existe pas non plus d'études similaires dédiées à l'autocorrélation ou au FROG. Au cours de cette thèse, ces aspects particuliers ont été examinés en détail [21, 22, 169], et les résultats des études menées sur ces sujets seront résumés ci-dessous.

7.3.3 Résumé Français de *Longa et al. OE 2022* - Précision du FROSt

Dans ce travail [21], nous démontrons la sensibilité de la technique FROSt pour détecter une petite quantité de déphasage spectral pour la caractérisation précise d'impulsions lasers ultra-courtes. Nous avons caractérisé des impulsions femtosecondes centrées à $1,75 \mu m$ qui sont élargies spectralement jusqu'à une largeur de bande de $700 nm$ dans une fibre creuse remplie d'un gaz noble et ensuite compressées jusqu'à une durée de 2,3 cycles optiques par propagation dans l'air à la pression atmosphérique. En insérant de fines plaques de silice de différentes épaisseurs dans le trajet du faisceau, nous récupérons avec précision les variations de dispersion de groupe (GDD) aussi petites que $10 fs^2$. Ces variations de GDD correspondent à un changement de la durée de l'impulsion de seulement $0,2 fs$ pour une impulsion de 2 cycles à la limite de la transformée de Fourier à $1,75 \mu m$ (c'est-à-dire $11,8 fs$). La capacité de mesurer des variations temporelles aussi infimes démontre que la technique FROSt est suffisamment sensible pour caractériser avec précision les impulsions à cycle unique.

Pour cette étude, un système laser Ti:Sa à 50 Hz, délivrant des impulsions de 37 mJ centrées à 800 nm avant compression est utilisé. Le faisceau principal est divisé pour obtenir un bras de faible énergie (~ 1 mJ) utilisé comme faisceau de pompe pour la caractérisation FROSt. L'énergie restante est utilisée pour générer des impulsions à haute énergie avec une longueur d'onde centrale de 1,75 μm en pompant un OPA pour atteindre une énergie en sortie de 2,3 mJ (fig. 8.1a). Ce faisceau est ensuite couplé à une fibre creuse de 2,5 m de long pour élargir spectralement l'impulsion. Après la fibre, le faisceau collimaté se propage à travers 10 m d'air à la pression atmosphérique pour le compresser jusqu'à une durée de 13 fs FWHM (fig. 8.2a/c).

L'impulsion est ensuite caractérisée avec la technique FROSt. Plusieurs fenêtres de silice d'épaisseur connue sont insérées avant que le faisceau n'entre dans le montage FROSt. Les mesures FROSt sont obtenues avec l'utilisation d'une plaque de ZnSe de 500 μm d'épaisseur. Il convient de noter que le montage FROSt reste inchangé pour toutes les mesures: aucune optimisation n'est nécessaire car le signal mesuré n'est pas généré par une conversion non linéaire. En d'autres termes, la quantité de signal FROSt n'est affectée que linéairement par les variations d'intensité des impulsions à caractériser.

Pour évaluer la précision de la technique FROSt, les phases spectrales obtenues avec l'algorithme de reconstruction pour différences épaisseurs de silice sont comparées aux déphasages calculés à l'aide de l'équation de Sellmeier, comme le montre la fig. 8.3. Au total, 6 mm de silice sont insérés dans le trajet du faisceau avec des incréments variant entre 0,2 et 1,0 mm pour mesurer divers changements dans la phase spectrale. La concordance entre la théorie et l'expérience est excellente pour toutes les épaisseurs de silice, même pour le déphasage induit par la fenêtre de 0,2 mm. Par conséquent, ces résultats démontrent que la technique FROSt peut détecter un changement aussi petit que 10 fs² dans la dispersion du retard de groupe (GDD) de l'impulsion correspondant à la propagation à travers 0,2 mm de silice.

Pour résumer, nous avons démontré la capacité de la technique FROSt à caractériser avec précision des impulsions ultra-courtes dans le proche infrarouge centrées à 1,75 μm avec une largeur de bande de 700 nm. La technique FROSt peut détecter avec précision de petites quantités de déphasage (~ 10 fs²) et cette infime quantité de GDD ne correspond qu'à une variation de moins de 2 % de la durée d'une impulsion à deux cycles optique. En outre, l'erreur sur la GDD est de 3,5 fs² sur l'ensemble des mesures, ce qui prouve que la technique FROSt a effectivement une précision suffisante pour mesurer les impulsions à cycle unique.

7.3.4 Résumé Français de *Haddad, Longa et al. OE 2023* - FROSt à haute cadence

Dans cette étude [22], nous démontrons expérimentalement que le FROSt peut être utilisé pour caractériser des impulsions à très large bande à des taux de répétition élevés allant jusqu'à 500 kHz. Plus précisément, nous présentons la caractérisation temporelle complète d'un amplificateur

paramétrique optique (OPA), du supercontinuum (SC) jusqu'au deuxième étage d'amplification. La caractérisation simultanée des impulsions du signal et de l'idler permet de récupérer leur retard de groupe, ainsi que leur phase temporelle et leur intensité. Notre étude se concentre sur une gamme de fréquences couvrant la région infrarouge (1,2 à 2,4 μm) et confirme la versatilité et la robustesse de la technique FROSt pour caractériser une large gamme d'impulsions à des taux de répétition élevés.

Pour ce faire, nous avons utilisé un laser fibré dopé à l'ytterbium pour pomper l'OPA. Ce laser délivre des impulsions d'une durée d'environ 150 fs avec 200 μJ par impulsion pour une puissance moyenne maximale de 50 W (à une fréquence de répétition de 250 kHz). L'OPA utilisé se compose d'un supercontinuum, qui traverse deux cristaux de niobate de lithium périodiquement inversé (PPLN) pour l'amplification. L'amplification se déroule de manière collinéaire, et le signal et d'idler du second étage sont co-propagés jusqu'à atteindre le dispositif de caractérisation FROSt (voir fig. 9.1). Il est à noter que ce montage expérimental servira également de base pour l'OPA utilisé dans le cadre des mesures de photoémission résolue en temps (TR-ARPES), comme mentionné dans la section 3.5.3.

Si l'on examine le fonctionnement du FROSt, l'élément qui pourrait potentiellement limiter le taux de répétition est le matériau semi-conducteur lui-même. Même si la fluence de la pompe est suffisamment élevée pour photoexciter le matériau, l'intervalle entre les impulsions doit être suffisamment long pour permettre à l'échantillon de revenir à son état fondamental et donc à la transmission de se rétablir afin d'obtenir des spectrogrammes exploitables. Lors d'une expérience préliminaire sur l'étude de la relaxation du Si, nous prévoyons que la fréquence de répétition maximale possible pour mesurer les spectrogrammes FROSt se situera entre 250 kHz et 1 MHz , ce qui correspond à un intervalle entre les impulsions compris entre 4 μs et 1 μs (voir fig. 9.2).

Après cette étude préliminaire, nous avons d'abord caractérisé les impulsions du SC à l'aide de la technique FROSt. La caractérisation d'impulsions à large bande à si faible énergie est délicate en utilisant d'autres techniques conventionnelles de caractérisation d'impulsions. Nous avons réussi à effectuer des mesures FROSt jusqu'à 500 kHz (voir fig. 9.3), ce qui correspond à la limite attendue par l'étude préliminaire. Nous obtenons une durée d'impulsion de $\sim 18 fs$ (FWHM) avec une dispersion du troisième ordre qui est prédominante. Au dessus de 500 kHz , le contraste dans le spectrogramme diminue de manière significative, rendant impossible la reconstruction des traces pour l'algorithme de reconstruction.

Nous avons ensuite mesuré simultanément le signal et l'idler colinéaire à 250 kHz après deux étapes d'amplification (voir OPA2 et FROSt dans la fig. 9.1). Cet OPA est conçu pour fonctionner à 250 kHz , et toute modification du taux de répétition affecterait la dynamique thermique du système et réduirait considérablement l'efficacité. C'est pour cela que toutes les mesures du signal et de l'idler ont été effectuées à 250 kHz . Dans la fig. 9.4, nous montrons les résultats obtenus pour deux paires signal-idler, respectivement (I) 1,78 μm - 2,36 μm , et (II) 1,9 μm - 2,25 μm . Le retard de groupe entre le signal amplifié et l'idler généré peut être déduit des spectrogrammes FROSt, car la chute

de la transmission spectrale ne se produit pas en même temps pour les deux impulsions. Ce retard est lié à la vitesse de groupe dépendant de la longueur d'onde dans les cristaux non linéaires.

En résumé, cette étude démontre que la technique FROSt peut être étendue pour caractériser les sources lasers à des taux de répétition élevés, jusqu'à 500 kHz dans notre cas, permettant la transition de cette technique vers la technologie de laser ytterbium. Le temps de relaxation des porteurs libres du semi-conducteur limite le taux de répétition maximale de la technique FROSt. L'utilisation de nouveaux matériaux pourra peut être réduire ce temps de relaxation et pourra permettre d'utiliser la technique FROSt à des taux de répétition encore plus élevés.

7.3.5 Article supplémentaire 1 - Caractérisation temporelle d'impulsions infrarouges à deux octaves

Temporal characterization of two-octave infrared pulses by frequency resolved optical switching

Caractérisation temporelle d'impulsions infrarouges à deux octaves par commutation optique résolue en fréquence

Auteurs :

Adrien Leblanc^{1,2}, Adrien Longa¹, Mayank Kumar¹, Antoine Laramée¹, Charles Dansereau¹, Heide Ibrahim¹, Philippe Lassonde¹ et François Légaré¹

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada

² Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, CNRS, Ecole polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bd des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

Titre de la revue ou de l'ouvrage :

Article publié en 2021 dans la revue JPhys Photonics, volume 3, numéro 4

DOI : 10.1088/2515-7647/ac184f

Mise en contexte et résumé :

Le but de cette étude est de démontrer expérimentalement la capacité du FROSt à caractériser des impulsions très large spectralement. Nous présentons ici la caractérisation temporelle d'impulsions infrarouges dont les spectres s'étendent de 0,55 à 2,5 μm en utilisant la technique FROSt. Les impulsions sont obtenues en élargissant les impulsions femtosecondes à la longueur d'onde centrale de 1,75 μm à l'aide de deux fibres à cœur creux l'une après l'autre.

Sans besoin de condition d'accord de phase, le FROSt permet de caractériser des impulsions de très faible énergie à la limite du seuil de détection du spectromètre et pour des impulsions de longues durées. Cette force de la technique FROSt est illustrée par la caractérisation d'impulsions dont les spectres s'étendent sur deux octaves et dont l'énergie n'est que de 150 nJ, répartie temporellement

sur près de 40 *ps*. Les capacités du FROSt constituent un outil polyvalent pour la caractérisation des impulsions sous-cycles et pour l'étude des processus non linéaires tels que la génération de supercontinuum.

Abstract :

We present the temporal characterization of infrared pulses with spectra extending from 0.55 to 2.5 μm by using the frequency resolved optical switching (FROSt) technique. The pulses are obtained by broadening femtosecond pulses at 1.75 μm central wavelength in a two-stage hollow core fiber setup. This work demonstrates the capability of the FROSt technique to temporally characterize pulses with ultra-broadband spectra. Being free of phase-matching constraints, it enables the characterization of pulses with very low energy at the limit of the detection threshold and with arbitrary long pulse duration. This strength of the FROSt technique is illustrated by the characterization of supercontinua pulses whose spectra span over two octaves and with only 150 *nJ* energy that is spread temporally over almost 40 *ps*. The FROSt capabilities provide a versatile tool for the characterization of sub-cycle pulses and to study nonlinear processes such as supercontinuum generation.

Contribution personnelle :

J'ai poursuivi les recherches initiées par Adrien Leblanc en travaillant sur la ligne 50 *Hz* du laser Ti:Sa du laboratoire ALLS. Pour ce faire, j'ai développé une source émettant des impulsions très larges spectralement, en utilisant deux fibres creuses en série remplies d'un gaz noble. Cela à permis de reprendre des mesures et d'affiner les résultats préalablement obtenus.

8 Article - Précision de la technique FROSt

Spectral Phase Sensitivity of Frequency Resolved Optical Switching for Broadband IR Pulse Characterization

Sensibilité sur phase spectrale de la commutation optique résolue en fréquence pour la caractérisation des impulsions IR à large bande

Auteurs :

Adrien Longa¹, Mayank Kumar¹, Philippe Lassonde¹, Heide Ibrahim¹, François Légaré¹ and Adrien Leblanc²

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada

² Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, CNRS, Ecole polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bd des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

Titre de la revue ou de l'ouvrage :

Article publié en 2022 dans la revue Optics Express, volume 30, numéro 5

DOI : 10.1364/OE.451522

Contribution :

Adrien Longa et Mayank Kumar ont réalisé le montage expérimental ainsi que les acquisitions de données.

Philippe Lassonde supervisait la partie expérimental et a participé à l'élaboration de la source

Adrien Longa a fait l'analyse des résultats ainsi que la rédaction du manuscrit.

François Légaré, Heide Ibrahim et Adrien Leblanc ont formulé et développé le projet.

Adrien Leblanc a supervisé l'analyse des résultats et la rédaction du manuscrit.

Abstract

In this work, we demonstrate the sensitivity of the frequency-resolved optical switching (FROSt) technique to detect a small amount of spectral phase shift for the precise characterization of ultra-short laser pulses. We characterized fs pulses centered at $1.75 \mu m$ that are spectrally broadened up to $700 nm$ of bandwidth in a hollow-core fiber and subsequently compressed down to 2.3 optical cycles duration by propagation in the air at atmospheric pressure. By inserting thin fused silica

windows of different thicknesses in the beam path, we accurately retrieve group delay dispersion (GDD) variations as small as 10 fs^2 . Such GDD variations correspond to a change of the pulse duration of only 0.2 fs for a Fourier transform limited 2-cycle pulse at $1.75 \mu\text{m}$ (i.e., 11.8 fs). The capability to measure such tiny temporal variations thus demonstrates that the FROSt technique has sufficient sensitivity to precisely characterize single-cycle pulses.

8.1 Introduction

With the advance in ultrafast laser technologies, major efforts have been made to generate and characterize high-energy ultrashort laser pulses down to sub-cycle duration [170–172]. The access to such pulses allows, for instance, to generate high harmonic radiation with photon energy in the water window [45, 173], ultrashort electron bunches [174–176], or to measure ultrafast dynamics in atoms and molecules [177–179]. The characterization and control of the spectral phase of such pulses is a key step in the outgrowth of these techniques. Indeed, the spectral phase directly impacts the pulse duration and its temporal shape. Accurate control of the spectral phase allows access to high peak power. That is why considerable progress has been made with the development of technologies capable of temporally characterizing and controlling few to single-cycle pulses [180, 181]. Nevertheless, characterizing such ultrashort and broadband pulses remains challenging.

Considering, for example, the dispersion scan (D-scan) technique, well-established for the characterization of compressed few-cycle pulses [182], which measures the second harmonic spectrum of the pulse to be characterized while scanning its dispersion: the temporal and spectral profiles in amplitude and phase of the pulse can be extracted from the spectrogram using a phase retrieval algorithm [130, 131]. However, the D-scan technique has to respect the phase-matching condition of the second harmonic process across the entire bandwidth of ultra-broadband pulses. This issue is present in all pulse characterization techniques based on a nonlinear process, such as the second harmonic generation frequency-resolved optical gating (SHG-FROG), thus intrinsically limited in phase matching. Note the exception of surface third-harmonic generation FROG (THG-FROG) that doesn't require phase matching [183]. More complex techniques were developed, such as TIP-TOE [155] which uses sub-cycle tunneling ionization in gas to sample a laser field. This particular approach enables the complete temporal characterization waveforms of ultrashort pulses. However, it is limited to pulses close to the Fourier transform-limited (FTL) duration [184]. Another example is electro-optic sampling (EOS) that has been extended to the IR region and provides a complete field characterization of an IR waveform [159] with the requirement to provide a sampling pulse that has a duration shorter than the optical cycle of the pulse to be characterized [185].

In this work, we use an alternative pulse characterization technique, free of phase matching, based on transient absorption in solids [166, 168, 169]. FROSt consists of a pump pulse switching the optical transmission of a solid, and this transmission change is probed by the pulse to be characterized. The material has a bandgap energy higher than the photon energy of the probe; the solid then

becomes opaque or partially opaque to the probe after its interaction with the pump pulse. In other words, the probe pulse is transmitted, and as the pumping promotes the free carriers' electron in the conduction band, it leads to an ultrafast drop of the material transmissivity, i.e., the pump creates an optical switch. The spectrum of the probe pulse is measured at the output as a function of its relative delay with the pump pulse. The temporal profile of the probe pulse and the switch function can be extracted from this spectrogram using an iterative ptychographic algorithm. The versatility of FROSt was demonstrated by characterizing ultrashort and broadband pulses with a central wavelength from 0.77 to 10 μm and various energies down to a few nanojoules [15]. Note that a similar technique uses a transmission drop of an ionized solid target called plasma-mirror FROG (PM-FROG) demonstrated the characterization of UV pulses [186], with the cost that the material must be moved from shot to shot. In principle, FROSt is only spectrally limited by the sensitivity of the spectrometer and the transparency range of the material used for the switch. The present work demonstrates the capability of the FROSt technique to detect tiny amounts of spectral phase shift of ultrashort pulses. We show that FROSt is sufficiently accurate for precisely characterizing the spectral phase of ultrashort few-cycle pulses down to single-cycle.

8.2 Methods

8.2.1 Experimental setup

The experiment was conducted at the Advanced Laser Light Source (ALLS) located at INRS EMT (Varenes, Canada). The experimental setup and laser parameters are presented in Fig. 8.1 (a). The 50 Hz Ti:Sa laser system, delivering 37 mJ pulses centered at 800 nm before compression, is used for this study. The main beam is sampled to obtain a lower energy arm (1 mJ) used as the pump beam for the FROSt characterization. The remaining energy is used to generate high energy pulses with a central wavelength at 1.75 μm by pumping a three-stage Optical Parametric Amplifier (OPA). The first two stages of the OPA are achieved with a commercial OPA (TOPAS, Light Conversion) that delivers seed pulses with central wavelength at 1.75 μm and 0.25 mJ of energy. This beam is further amplified with a homebuilt OPA stage to reach an energy up to 2.3 mJ [187, 188]. The pulse duration measured at this stage with a homebuilt SHG-FROG is 38 fs full width at half maximum (FWHM) in intensity.

The beam is then coupled into a 2.5 m long HCF (few-cycle Inc.), see Fig. 8.1(a), with an inner diameter of 750 μm for spectral broadening [81, 103]. The fiber is filled with a differential pressure of argon: the entrance is connected to a vacuum pump and the output to the gas inlet. The optimal pressure of argon in our conditions was about 300 mbar. After the fiber, the pulse energy is 1.5 mJ and the spectrum spans from 1.25 to 2.2 μm , see Fig. 8.1 (f). The spectrum is measured with a near-IR/IR spectrometer (NIR256-2.5, Ocean Optics). The pulse duration before compression measured at the fiber output by SHG-FROG is 40 fs FWHM, see Fig. 8.1 (b-e).

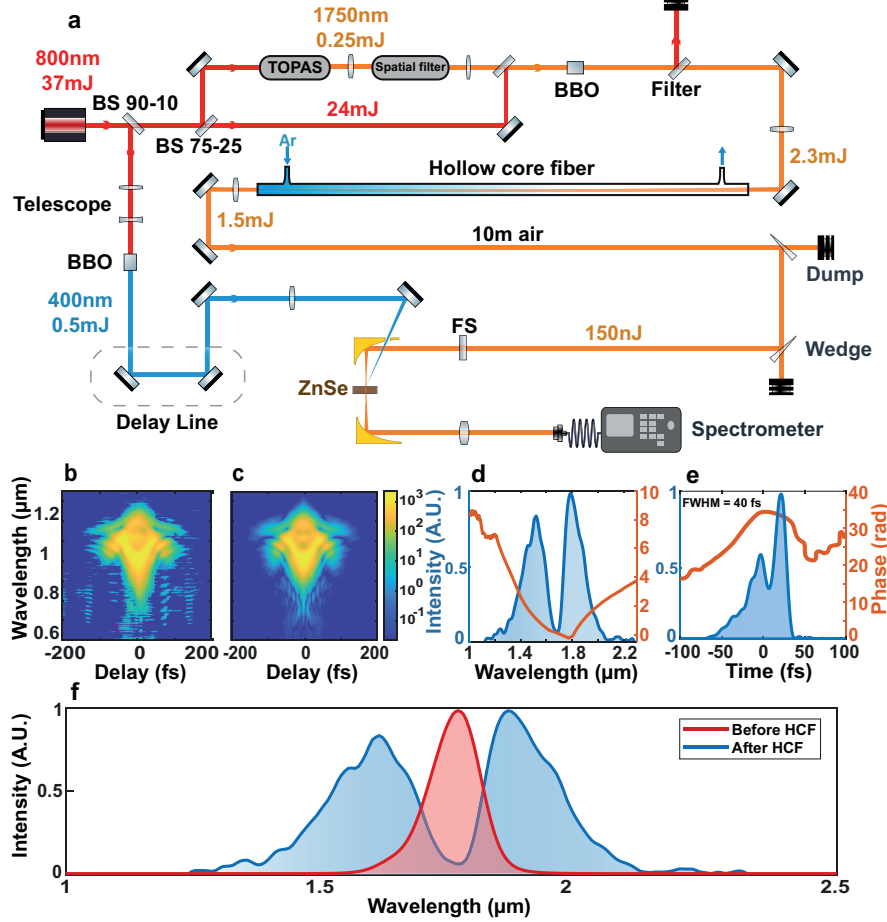


Fig. 8.1 : Layout of the experimental setup

(a) Layout of the experimental setup: The output beam of the Ti:Sa system is split into two parts. The first path is further split into two arms. The first part is used to generate a seed at $1.75 \mu\text{m}$ with an OPA, and the second part is used as a pump to amplify the seed with a homebuilt OPA stage. After amplification, the pulses centered at $1.75 \mu\text{m}$ with pulse energy of 2.3 mJ are spectrally broadened in an argon-filled HCF (2.5 m long, inner core diameter of $750 \mu\text{m}$). The collimated output of the HCF is attenuated to generate a probe pulse with pulse energy of 150 nJ by using the reflections off the two wedges. The probe beam is focused on the zinc selenide plate (ZnSe) by a 100 mm off-axis parabolic mirror. The second path is used to generate the pump beam for FROSt characterization. The probe pulses are frequency doubled to 400 nm and are focused on the ZnSe plate using $f = 600 \text{ mm}$ lens. The probe beam was collimated and then coupled in a spectrometer using $f = 500 \text{ mm}$ lens (b-e) SHG-FROG characterization of the amplified $1.75 \mu\text{m}$ pulses at the fiber output: (b) Measured and (c) reconstructed SHG-FROG spectrograms (log scale) (d) Retrieved Spectral and (e) temporal profiles of the pulses in intensity (blue line) and phase (orange line). (f) Spectrum before (blue line) and after (red line) the fiber.

After the fiber, the collimated beam propagates through 10 m of air at atmospheric pressure for compression down to 13 fs FWHM duration (Fig. 8.2 a/c) [189]. The pulse energy is then attenuated to 150 nJ with the reflection of two wedges for the FROSt characterization. Several FS windows of known thicknesses are inserted before the beam enters the FROSt setup. The FROSt measurements are obtained by switching the optical transmissivity of a $500 \mu\text{m}$ thick ZnSe plate. To create the optical switch, the fundamental beam is frequency-doubled to obtain pump pulses with a central wavelength at 400 nm with $500 \mu\text{J}$ of energy and 60 fs duration. This ensures that the switch

is created at the surface of the ZnSe sample since the photon energy of the pump is above the material bandgap. These pulses are focused with a 600 *mm* lens on the ZnSe window positioned a few centimeters before the focal spot to avoid damaging the sample and illuminate a much larger area than the size of the focused probe beam. The pump beam diameter on the window is approximately 1 *mm*. The probe beam is focused on the ZnSe plate with a 100 *mm* off-axis parabolic mirror at the center of the pump spot. The parabola with a hole is used to reduce to 3 degrees the angle between the pump and the probe beam onto the ZnSe plate, minimizing the pulse front mismatch. The fluence of the pump and the probe beams onto the plate surface are estimated to be 70 and 1 *mJ/cm²*, respectively. After passing through the ZnSe plate, the probe beam is collimated with another 100 *mm* off-axis parabolic mirror and is coupled into the near-IR/IR spectrometer with a 500 *mm* lens.

Note that special attention was given to the set-up temporal stability between the pump and probe pulses. Indeed, each arm has a length of 22 *m*. To evaluate the jitter between both arms, the first step to fulfill is to determine the “zero delay”, i.e. when the relative delay between the pump and the probe pulses onto the sample surface is zero. This is found when the intensity of the transmitted probe beam drops by approximately 50% of the contrast of the spectrogram. At this “zero delay” position of the translation stage, the effect of the jitter between the two pulses should be directly observed by measuring the intensity fluctuations from the transmitted probe beam from shot to shot. For instance, considering the average slope of the signal drop, a jitter delay of +2 *fs* (respectively of -2 *fs*) of the pump pulse compared to the probe pulse would result in a signal fluctuation of +6.7%. We have verified that such instabilities were not observed in the experiment. In addition, we have not observed slow delay drifts as we have regularly verified the “zero delay” position separated in times by tens of minutes. In this experiment, the jitter and slow delay drift between both arms are negligible and no active stabilization was necessary. The spectra at each delay of the FROSt spectrogram were averaged over 10 shots. Each spectrogram was acquired within 1-2 *min*.

8.2.2 Results

The objective is to demonstrate the capability of the FROSt method to precisely characterize very small amounts of spectral phase. To add a small amount of spectral phase to the 13 *fs* pulses, the simplest way is to linearly propagate the pulses through very thin materials of known thicknesses. This strategy mostly adds SOD. Fused silica windows of different thicknesses were used to add a known amount of spectral phase by small increments. The dispersion windows were placed after the two wedges to avoid nonlinear effects during the beam propagation in the windows. The retrieved temporal and spectral profiles of the probe pulses are presented in Fig. 8.2 (c). For all FROSt acquisitions, it is worth noting that the setup remains untouched: no optimization is needed because the measured signal is not generated from nonlinear conversion. In other words, the amount of FROSt signal is not affected by the intensity variations of the characterized probe pulses.

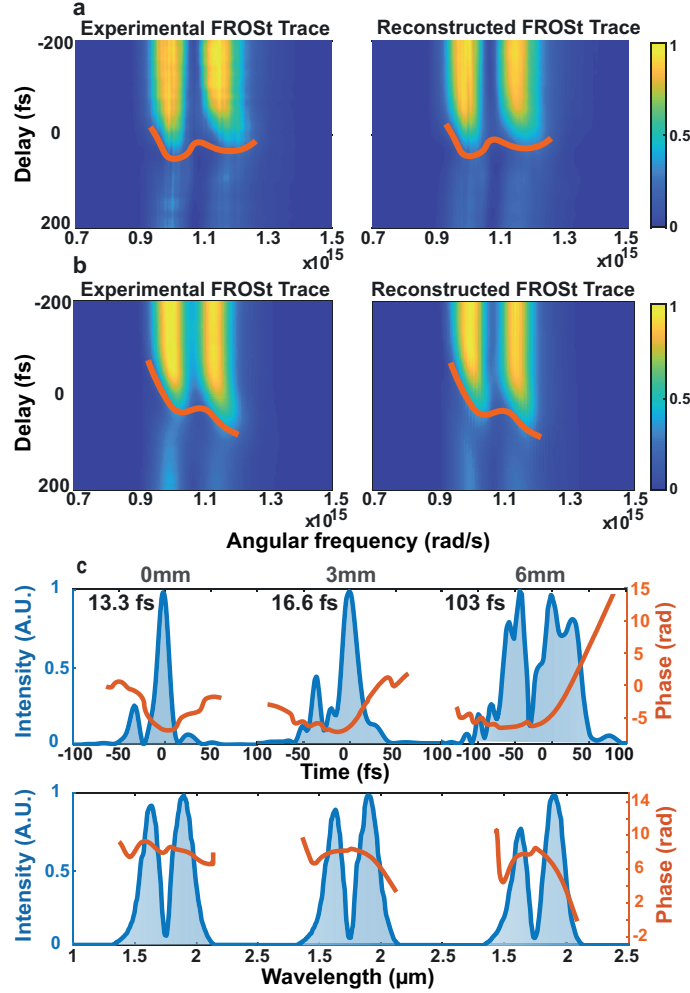


Fig. 8.2 : Experimental and reconstructed FROSt traces

(a) Experimental and reconstructed FROSt traces without additional fused silica. (linear scale) (b) Experimental and reconstructed FROSt trace for 6 mm of fused silica. (linear scale) (c) Retrieved temporal (top) and spectral (bottom) profiles of the pulse in intensity (blue line) and phase (orange line) for different thicknesses of fused silica placed in the beam path. The indicated durations are the FWHM of the peak intensity.

Reconstructions are made with an iterative ptychographic algorithm to retrieve the temporal profiles of the probe pulses [15]. In the FROSt trace, the spectral phase of the probe pulse is concealed in the cut-off delay of each frequency, whereas the switch effect is observed in amplitude by the transmissivity drop. With the increasing chirp of the probe pulse, the cut-off delay as a function of frequency tends to map the group delay. This effect can be seen by comparing the FROSt trace of a compressed probe pulse (Fig. 8.2 (a)) and one of a chirped probe pulse (Fig. 8.2 (b)). A slope corresponding to a negative chirp is observed for the stretched pulse in the spectrogram. However, an iterative reconstruction algorithm is required to extract the complete amplitude and phase of the probe pulse and the switch from the distribution.

To evaluate the accuracy of the FROSt technique, the spectral phases obtained with the reconstruction algorithm are compared with the phase shifts calculated using the Sellmeier equation,

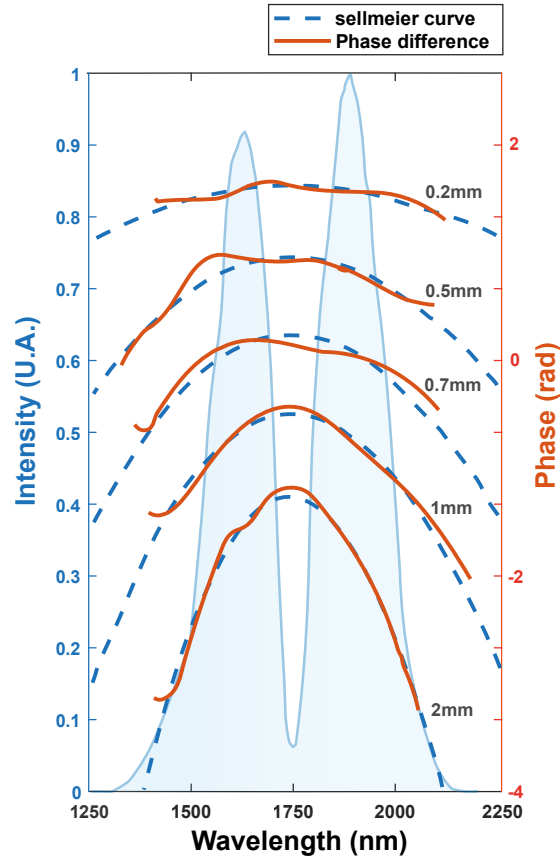


Fig. 8.3 : Experimental and theoretical spectral phases

(blue line) Experimental spectrum of the pulse after attenuation; (orange line) Difference between experimental spectral phase with different FS thickness (dashed blue line). The phase shift is calculated theoretically using the Sellmeier equation of FS.

as shown in Fig. 8.3. A total of 6 mm of FS is inserted in the probe beam path with increments varying between 0.2 and 1.0 mm to measure various changes in the spectral phase. The theoretical phase shifts are calculated for each thickness of FS windows (dashed blue line). The experimental phase shift (solid orange line) is the difference between spectral phases retrieved with the FROSt technique. The agreement is excellent between the theory and the experiment for all FS thicknesses, even for the phase shift induced by the 0.2 mm window. Therefore, these results demonstrate that the FROSt technique can detect a change as small as 10 fs^2 in the group delay dispersion (GDD) of the probe pulse corresponding to the propagation through 0.2 mm of fused silica.

To further quantify this result, the difference between the theoretical and the experimental curve was calculated in terms of GDD, which is more meaningful than a phase error representing the sum of phase difference. For instance, GDD is the lowest order coefficient of the spectral phase affecting the pulse shape. Moreover, the spectral phase shift induced by FS is mostly SOD, we thus use GDD values to evaluate the FROSt accuracy. The GDD as a function of frequency was deduced from the

reconstructed phase curve using the following equation:

$$GDD(\omega) = \frac{d^2\Phi(\omega)}{d\omega^2} \quad (8.1)$$

A weighted averaging using the spectral intensity has been done on this curve to get access to the GDD of the whole pulse:

$$GDD = \frac{\sum_{\omega}^n GDD(\omega) \times I(\omega)}{\sum_{\omega}^n I(\omega)} \quad (8.2)$$

where $I(\omega)$ is the intensity of the spectrum as a function of the frequency and n is the number of data points. The calculations for different FS thicknesses are presented in table 1, column 2. The first column presents the theoretical GDD value, deduced from the FS group velocity dispersion (GVD) at $1.8 \mu m$, and the last column is the error for each thickness. The error average is $3.5 fs^2$ over the whole range, demonstrating FROSt's capability to retrieve the GDD of the spectral phase of ultrashort pulses accurately. To underline the accuracy of FROSt: while a $10 fs^2$ change in the

Table 8.1 : Theoretical (column 2) and retrieved (column 3) GDD are presented for each thickness of FS, the error for each thickness is shown in column 4.

FS (<i>mm</i>)	GDD FS (<i>fs</i> ²)	GDD retrieved (<i>fs</i> ²)	Error (<i>fs</i> ²)
0.2	-12.5	-8.4	4.1
0.5	-31.4	-31.7	0.3
1	-62.9	-57.8	5.1
2	-125	-126	1
3	-189	-188	1
4	-252	-246	6
5	-315	-310	5
6	-378	-373	5

GDD of the pulse used in this experiment ($13 fs$, centered at $1.8 \mu m$) does not influence the pulse duration, (increase by $0.2 fs$, i.e., 1.7%), the same difference of $10 fs^2$ would indeed increase the duration of a single-cycle pulse at $1.8 \mu m$ from $6 fs$ to $7.5 fs$. This experimental result proves that the FROSt technique has sufficient precision to accurately measure the SOD of single-cycle pulses.

8.3 Conclusion

To conclude, we have demonstrated the capability of the FROSt technique to precisely characterize ultrashort near-IR pulses centered at $1.75 \mu m$ with $700 nm$ of bandwidth. The FROSt technique can precisely detect small amounts of phase shift. This approach can detect a $10 fs^2$ variation in the GDD of the probe pulse induced by the linear propagation through a thin FS window of $0.2 mm$. Such a tiny GDD amount only corresponds to a variation of less than 2% of the duration of

a 13 fs FT limited two-cycle pulse. In addition, the GDD error is 3.5 fs^2 over the whole scan, proving that the FROSt technique has effectively sufficient precision to resolve single-cycle pulse.

While characterization techniques based on a nonlinear process (such as SHG) have already demonstrated few-cycle to single-cycle pulse characterization [190, 191], i.e., high precision in the spectral phase measurement, these techniques are bandwidth limited to approximately one octave. The unique capability of FROSt lies in the combination of both capabilities to characterize ultra-broadband pulses, only limited by the transparency range of the pumped material and the sensitivity of the spectrometer [15], and to perform high precision spectral phase measurements, as demonstrated in this study. Therefore, the FROSt is a valuable metrology to characterize ultrashort pulses with ultra-broadband spectra such as single-cycle or even sub-cycle pulses.

This technique can also be used in the mid-IR (MIR) region, where remarkable efforts have been made this past decade to generate few-cycle pulses for their applications in strong-field physics, MIR spectroscopy, and biomedical research [192]. Pulse characterization technique in this spectral region is rather complex and limited [193, 194], and FROSt can be an alternative to precisely retrieve the spectral phase of single and sub-cycle MIR pulses.

Acknowledgments

Canada Foundation for Innovation (CFI), the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC), and the Fonds de Recherche du Québec sur la Nature et les Technologies (FRQNT). A. L. and M. K. thank the NSERC CREATE program for the scholarship. We also thank Antoine Laramée for the technical support in the laboratory.

Disclosures

The authors declare no conflicts of interest.

Data availability

Data underlying the results presented in this paper are available upon reasonable request to the authors (AL is the corresponding author).

9 Article - Caractérisation complète d'un amplificateur paramétrique optique

Complete characterization of an Yb-based OPA at high repetition rate using frequency resolved optical switching

Caractérisation complète d'un OPA pompé par un laser Yb à un taux de répétition élevé en utilisant la commutation optique résolue en fréquence

Auteurs :

Elissa Haddad^{1,3}, Adrien Longa^{1,3}, Philippe Lassonde¹, Adrien Leblanc², Heide Ibrahim¹, Fabio Boschini¹, François Légaré¹, and Gaëtan Jargot¹

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada

² Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, CNRS, Ecole polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bd des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

³ Ces auteurs ont contribué de manière égale à ce travail.

Titre de la revue ou de l'ouvrage :

Article publié en 2023 dans la revue Optics Express, volume 31, numéro 16

DOI : 10.1364/OE.494658

Contribution :

Elissa Haddad a fait la partie expérimentale sur la relaxation des semiconducteurs.

Elissa Haddad et Gaëtan Jargot ont fait la partie expérimentale sur la caractérisation du supercontinuum.

Adrien Longa et Gaëtan Jargot ont développé la source laser et caractérisé le second étage de l'OPA.

Adrien Longa et Elissa Haddad ont réalisé l'analyse des résultats aidé par Gaëtan Jargot.

Adrien Longa, Elissa Haddad et Gaëtan Jargot ont partagé la rédaction du manuscrit.

François Légaré, Heide Ibrahim, Fabio Boschini et Gaëtan Jargot ont formulé et développé le projet.

Adrien Leblanc a aidé pour l'analyse des résultats et pour la révision du manuscrit.

Abstract

We demonstrate experimentally that frequency resolved optical switching (FROSt) can be used to characterize ultra-broadband pulses at high repetition rates up to 500 kHz. Specifically, we present the complete temporal characterization of an optical parametric amplifier (OPA), from the supercontinuum (SC) to the second stage of amplification. Simultaneous characterization of co-propagating signal and idler pulses enables retrieval of their group delay, as well as their temporal phase and intensity. Our study focuses on an extensive frequency range spanning the infrared region (1.2 to 2.4 μm) and confirms the strength and convenience of FROSt as a single tool for characterizing a wide range of pulses at high repetition rate.

9.1 Introduction

Over recent years, major developments have resulted in advanced high repetition rate laser sources based on the ytterbium (Yb) gain media. Different Yb-based technologies have emerged such as thin-disk, InnoSlab, and fiber lasers [6, 7, 195] which are crucial for a wide range of applications (scientific and industrial), e.g. increasing the flux of extreme ultraviolet (EUV) and soft X-ray radiations from the process of high harmonic generation [196, 197] and accessing attosecond pulse duration [116]. Yb lasers have the advantage to provide up to kilowatts of average power, paving the way to the third-generation femtosecond technology [5]. In contrast, the titanium-sapphire (Ti:Sa) technology is limited to $\sim 20 W$ of average power (e.g. 10 kHz, 2 mJ). However, Ti:Sa lasers can provide ~ 40 -fs pulses, while Yb-based lasers tend to have longer pulse durations (250 fs to 1 ps). Indeed, they require higher compression factors to reach few-cycle pulse duration.

Ytterbium technology, combined with optical parametric amplification, has led to the development of high-repetition rate optical parametric chirped-pulse amplifiers (OPCPA) [198, 199] that achieve unprecedented peak power at high average power for tabletop systems. Major efforts have been made to reach the mid-infrared (MIR) spectral range [69, 70, 200, 201], which is of great importance for experimental investigations in strong-field physics that are currently carried out at lower repetition rate, including time- and angle-resolved photoemission spectroscopy (TR-ARPES) [202–205], cold target recoil-ion momentum spectroscopy (COLTRIMS) [206, 207], Coulomb explosion imaging (CEI) [208, 209], and high harmonic generation (HHG) [210, 211]. Nevertheless, characterizing such systems with ultrashort and broadband pulses at high repetition rate remains a challenging and intricate task.

The characterization and control of the spectral phase of such short pulses is a key step in the progress of the above-mentioned techniques. In fact, the spectral phase directly impacts the temporal shape of the pulse, and its control enables access to higher peak power. For most Yb-based optical parametric amplifier (OPA) systems, only the output signal and idler are characterized using well-established techniques such as dispersion scan (D-scan) [212, 213] or frequency resolved optical gating (FROG) [69, 198]. This is primarily because the low energy at the supercontinuum (SC) stage presents a major technical challenge. Yet, the characterization of the SC grants a thorough control of the dispersion across all OPA stages, thus ensuring a higher efficiency.

In this work, we present a complete characterization of an Yb-based OPA using frequency resolved optical switching (FROSt). Our characterization spans from the supercontinuum pulses to the simultaneous characterization of the signal and idler output pulses. We also investigated the relaxation dynamics of silicon (Si) – the semiconductor used throughout these FROSt experiments – to estimate the repetition rate at which FROSt can still work for the current setup conditions. The relaxation time of photoexcited semiconductors is a complex phenomenon that depends on multiple parameters and can vary from nanoseconds to microseconds [214–216].

Based on transient absorption in solids, the FROSt technique is free of phase-matching constraints (i.e. nonlinear conversion is not required) and polarization-independent [15, 21]. By using a pump pulse to switch the optical transmission of a solid, FROSt allows the characterization of a pulse (the probe) by analyzing its resulting transmission through the material as a function of pump-probe time delay. In principle, FROSt is spectrally limited only by the sensitivity of the spectrometer and the transparency range of the material used to perform the measurement. It enables the characterization of multi-octave pulses [169] and simultaneous characterization of pulses with different polarizations [166]. As previously mentioned, the FROSt technique relies on the use of a pump pulse to switch the optical transmission of a solid, and this pump must be synchronized with the probe beam being characterized. While this requirement may be a drawback in certain configurations, it is worth noting that in the case of an OPA, the pump and seed beams are synchronized throughout the amplification process, making the implementation of the FROSt technique straightforward. FROSt was first demonstrated at low repetition rates with Ti:Sa technology. The aim of this study is to demonstrate that FROSt works even at high repetition rate, up to 500 kHz, to precisely characterize ultrashort few-cycle pulses from an Yb-based OPA system.

9.2 Methods

All the experiments were performed at the Advanced Laser Light Source (ALLS) user facility, using an industrial-grade Yb-doped fiber amplifier laser (Tangerine, Amplitude). This laser delivers pulses around 150–fs duration with 200 μ J per pulse for a maximum average power of 50 W (at a repetition rate of 250 kHz). A controllable grating inside the laser allows the user to change the pulse duration. The repetition rate of the laser is also adjustable from few Hz up to 2 MHz.

In the near future, this laser will be used to generate ultrashort tunable light pulses to perform TR-ARPES measurements. Hence, this source is divided into two beamlines. One beam will be used to derive a probe in the EUV region (i.e. 6 eV up to 42 eV) and the second beam will serve as a pump for an ultrashort tunable OPA in the MIR region (i.e. 4 to 8 μm). These amplified pulses will then be employed to photoexcite a wide variety of quantum materials, spanning from topologically-protected systems to unconventional superconductors. For this reason, we use a beam splitter (BS) with 75 % transmission and 25 % reflection at the output of the laser, as shown on the left in Figure 9.1.

Our approach to reach the MIR region involves a commonly used scheme of difference frequency generation (DFG) between the signal and idler at the output of an OPA. Both of these beams are in the short wavelength infrared (SWIR) range, with wavelengths between 1.75 and 2.45 μm . The focus of this work is to characterize the signal and idler to enhance conversion efficiency towards longer wavelengths.

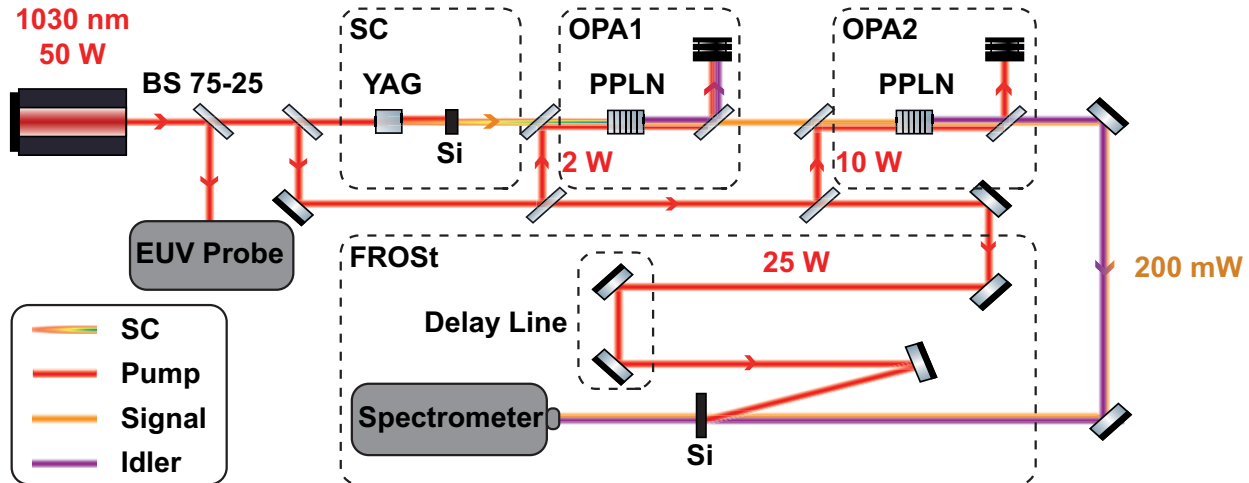


Fig. 9.1 : Schematic of the experimental setup of the two-stage OPA

Schematic of the experimental setup of the two-stage OPA (from left to right) followed by the FROSt (bottom) implemented to characterize the signal and the idler. Starting from the left, the Yb laser output is separated into two beams with a beam splitter (BS 75-25). The reflected beam will be an EUV probe. The transmitted beam is used to generate a supercontinuum (SC). That SC goes through a MgO:PPLN crystal in the first-stage OPA (OPA1) and the output signal is amplified in another MgO:PPLN in the second-stage OPA (OPA2). The idler generated in this process is kept. For the FROSt, the collinear signal and idler transmitted through a Si sample are collected in a spectrometer. The FROSt pump beam is picked up after the initial BS 75-25 and focused on the Si sample after going through a delay line.

Throughout this work, the Yb-based laser is chirped to 300 fs, which has been determined experimentally to be the optimal duration in our conditions to maximize the conversion of the pump into the signal and idler. The experimental setup is depicted in Fig. 9.1. The seed is generated in a 10-mm-long YAG crystal through white light generation (WLG) by tightly focusing few microjoules of the pump laser. A wide spectrum from the visible to the SWIR – the supercontinuum (SC) – is generated. The bandwidth of interest is between 1750 nm and 1950 nm. The seed is then stretched

in time with a 2-mm-thick Si plate in order to reach the best trade-off between gain and bandwidth in the first amplification stage (see SC in Fig. 9.1). Both stages of amplification (OPA1 and OPA2 in Fig. 9.1) are in collinear geometry and are identically composed of 1-mm-long MgO:Periodically Poled Lithium Niobate (PPLN) crystals with 10 discrete periods from 27.58 to 31.59 μm along the transverse direction of the crystal. The most efficient period is chosen according to the wavelength to amplify by translating the crystal in the transverse direction of the pump beam. 8 μJ are used to pump the first stage, and the pump and the idler produced during the amplification stage are dumped. The signal is refocused, and 25 μJ are used to pump the second amplification stage, resulting in a total of 200 mW for the signal and idler combined.

Using the FROSt technique, we characterize three components of the OPA: the seed generated via SC as well as the amplified signal and idler. The SC beam is characterized first. The collinear signal and idler are simultaneously characterized at the output of the two amplification stages. The implementation of the FROSt measurement is the same for all the beams to be characterized [15] and is depicted in Fig. 9.1, in the FROSt frame. The remaining pump is delayed to temporally and spatially overlap with the probe onto a Si plate of 0.5 mm . We purposely used Si as a medium for our FROSt measurements because of its 1.12 eV bandgap, which is below the pump photon energy (1.2 eV), and it has a good transmission up to 6.5 μm . The beam is subsequently collected into a spectrometer (NIRQuest+2.5, Ocean Insight) to acquire the FROSt spectrogram.

9.3 Semiconductor relaxation dynamics

When looking at the way FROSt works, the element that could potentially limit the maximum achievable repetition rate is the semiconductor material. Even if the pump fluence is high enough to photoexcite the material, the pulse-to-pulse interval must be sufficiently long to allow the sample to relax and thus the transmission to recover to obtain exploitable spectrograms, without pulse-to-pulse cumulative effects.

In an effort to find the maximum possible repetition rate for FROSt measurements, we performed a simplified pump-probe experiment to extract the relaxation time of the Si sample used for the pulse characterization technique, under the FROSt conditions.

We focused on the relaxation time of silicon here because it is the ideal switch material for our experiment as mentioned previously. Since we expect the timescale of the relaxation dynamics to be in the range of tens of nanoseconds to tens of microseconds [214–216], photodiodes are sufficiently fast for such measurements. It is important to note that the free carrier lifetime in semiconductors depends on several parameters, including material quality, sample thickness, as well as excitation wavelength and fluence [217–219]. The goal of our experiment is simply to estimate the relaxation time of our sample under the FROSt conditions.

In practice, we used a commercial continuous-wave (CW) laser diode centered at 1550 nm that we focused to probe the semiconductor sample – the same 0.5-mm-thick Si wafer used for all measurements. 40-fs pulses centered at 800 nm delivered by a 50 Hz Ti:Sa laser system were used to pump the Si sample, thus inducing the ultrafast switch of the material. Measurements were performed for different pump energies while keeping the same pump spot size to observe the effect of changing pump fluence. The spot size of the pump laser beam was more than twice that of the probe to ensure uniform excitation of the material in the probed area. The probe transmission through the switch was monitored using an InGaAs detector (DET10D2 Thorlabs photodiode) with a $\sim 25\text{ ns}$ rise time. A mechanical laser shutter (Uniblitz) was placed in the pump beam path to isolate single pulses, thus ensuring that the sample was always at its equilibrium state for each measurement.

The data was acquired over a timeframe of hundreds of microseconds by connecting the photodiode to a digital oscilloscope (Tektronix TDS5054B) and synchronizing the acquisition with the arrival of the pump pulse using a trigger.

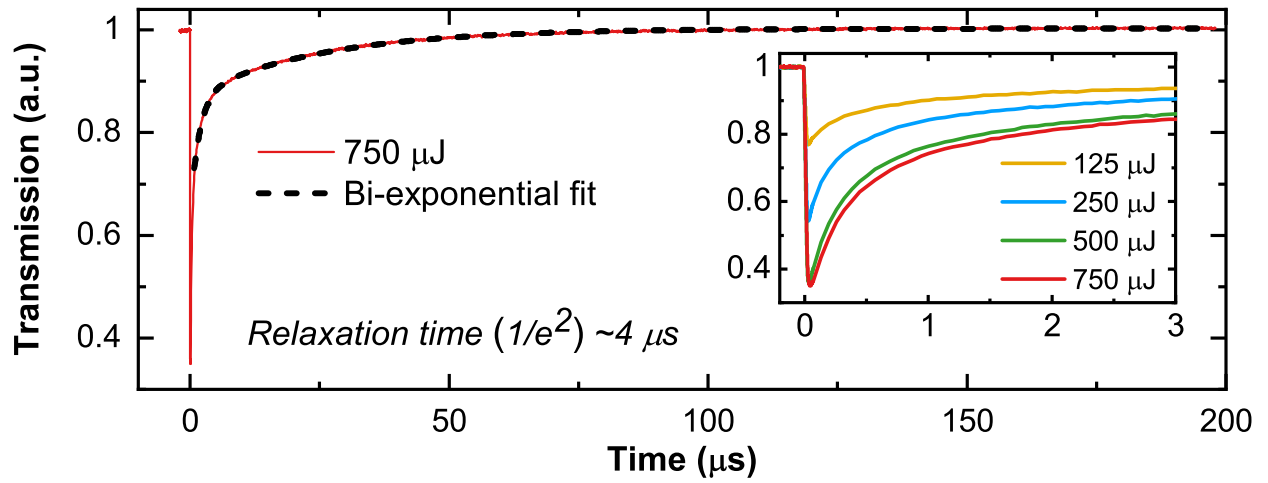


Fig. 9.2 : Relaxation time of silicon

Relaxation time of silicon: transmission curve of the probe as a function of delay following photoexcitation from a $750\text{-}\mu\text{J}$ pump and bi-exponential curve fit. The inset shows the zoomed-in relaxation curves of Si for different pump energies.

Figure 9.2 shows the intensity of the transmitted probe on the photodiode as a function of time (red curve) when the sample is pumped with $750\text{ }\mu\text{J}$ pulses. Time zero coincides with the moment the pump pulse reaches the sample, where we observe an abrupt decrease of the transmissivity. Yet, the transmission drop does not represent the true timescale of the physical phenomena since the photodiode response time is too slow. The recovery part we are interested in, however, corresponds to the real dynamics as it is much slower. The recovery curve was fitted with a bi-exponential function (black dashed line) and a relaxation time (at $1/e^2$) of $\sim 4\text{ }\mu\text{s}$ was obtained. The inset of Fig. 9.2 presents the zoomed-in transmission curve for $750\text{ }\mu\text{J}$ pump pulses in red, along with the

curves for different pump energies – $125 \mu\text{J}$, $250 \mu\text{J}$, and $500 \mu\text{J}$, respectively in yellow, blue, and green. As expected, the relaxation time slightly increases with fluence, from $1 \mu\text{s}$ to $4 \mu\text{s}$.

These results highlight the trade-off between fluence and repetition rate for FROSt measurements. Fluence must be increased to sufficiently reduce transmission and obtain a good contrast in the FROSt spectrograms. However, at higher fluences, the relaxation time of Si increases, limiting the repetition rate we can measure. Based on these initial findings, we anticipate that the maximum possible repetition rate to measure FROSt spectrograms will be between 250 kHz and 1 MHz , which correspond to pulse-to-pulse intervals between $4 \mu\text{s}$ and $1 \mu\text{s}$.

9.4 Supercontinuum characterization

We first characterized the OPA SC seed pulses using the FROSt technique described previously. Characterizing such low energy broadband pulses is tedious using other conventional pulse characterization techniques. Thanks to the energy tunability of the Yb laser, we were able to generate and characterize pulses at 50 kHz , 250 kHz , and 500 kHz at energies down to nanojoules. We managed to perform FROSt measurements up to 500 kHz , which is in the expected threshold range determined from the Si relaxation time. Figure 9.3(a) shows the experimental FROSt spectrogram obtained at the maximum repetition rate of 500 kHz for the nanojoule supercontinuum pulses extending from 1.2 to $1.8 \mu\text{m}$. Negative delays correspond to the time before the pump reaches the semiconductor sample. The $\sim 23\%$ contrast between the transmitted signal before and after the pump is quite low in Fig. 9.3(a), but still sufficient for the ptychographic pulse retrieval algorithm used to converge [15]. The numerically retrieved spectrogram is illustrated in Fig. 9.3(b) and reproduces all the essential features of the measured FROSt trace. Figures 9.3(c) and 9.3(d) show the intensity (red line) and phase (green line) of the reconstructed spectrum and temporal pulse, respectively. We obtain a pulse duration of $\sim 18 \text{ fs}$ (FWHM) with significant third-order dispersion [220].

We attempted FROSt characterization of pulses above 500 kHz repetition rate, but the absorption contrast in the spectrogram decreased significantly, making it impossible to reconstruct the traces. In other words, when measuring the transmitted spectrum at negative delays, before the pump pulse supposedly reached the sample, residual effects from previous pump pulses were sizable. As discussed in the above section, even if the pump fluence is high enough to photoexcite the sample, the pulse-to-pulse interval must be sufficiently long to allow the sample to relax and thus the transmission to recover.

It is noteworthy that the contrast between the transmitted signal before and after the pump was lower than expected for all the spectrograms measured. Even at 50 kHz , the impact of consecutive pulses on the measurements is still noticeable, leading to a decrease in contrast. One hypothesis is that this could be due to the incubation effect, where the material accumulates some laser energy

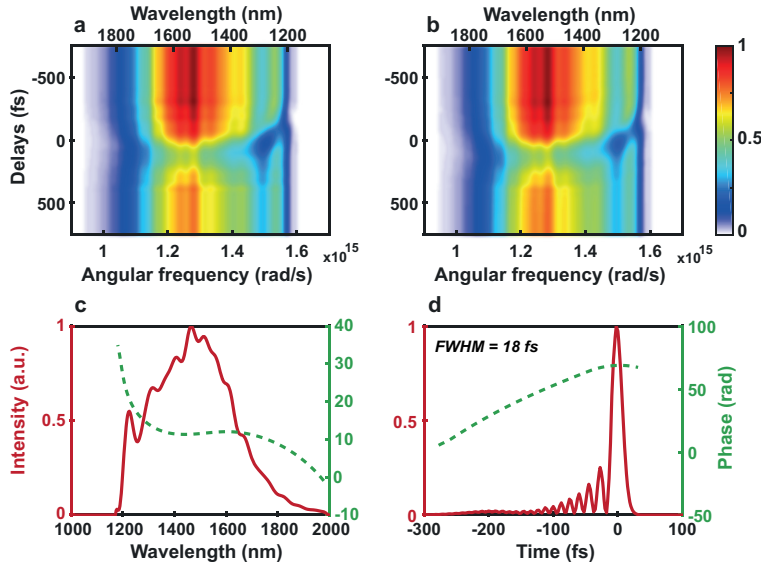


Fig. 9.3 : FROSt characterization of SC pulses

FROSt characterization at 500 kHz of nanojoule broadband SC pulses centered at 1.5 μm . (a) Experimental FROSt trace, (b) retrieved FROSt trace, and retrieved pulse intensity (red) and phase (green) (c) in the spectral domain and (d) in the temporal domain.

with each pulse instead of dissipating it completely. This mechanism has been extensively studied in metals and semiconductors for laser ablation, yet there is no consensus on the exact physical processes involved [221–224]. These effects take place even when the delay between consecutive laser pulses is longer than the thermal diffusion time, which could explain why there is a reduced contrast even at 50 kHz repetition rate.

9.5 Signal and idler characterization

To complete the characterization of the home-built OPA, we measured simultaneously the collinear signal and idler output at 250 kHz after two amplification stages seeded by the supercontinuum (see OPA2 and FROSt in Fig. 9.1). This OPA is designed to work at 250 kHz, and any change in the repetition rate would affect thermal dynamics in the system and considerably reduce the efficiency. For this reason, all measurements for the signal and the idler were done at 250 kHz. In Fig. 9.4, we show the results obtained for two signal-idler pairs, respectively (I) 1.78 μm - 2.36 μm , plotted in orange, and (II) 1.9 μm - 2.25 μm , plotted in blue. Figures 9.4(a) and 9.4(c) present the experimental FROSt traces measured for pair I and pair II, respectively. The group delay between the generated signal and idler can be inferred from the FROSt spectrograms, as the spectral transmission drop does not occur at the same time for both pulses. This delay is related to the wavelength-dependent group velocity in nonlinear crystals. Hence, as observed in Fig. 9.4, the delay between the signal and idler pulses is smaller for signal-idler pair II compared to I, because the signal and idler wavelengths are closer.

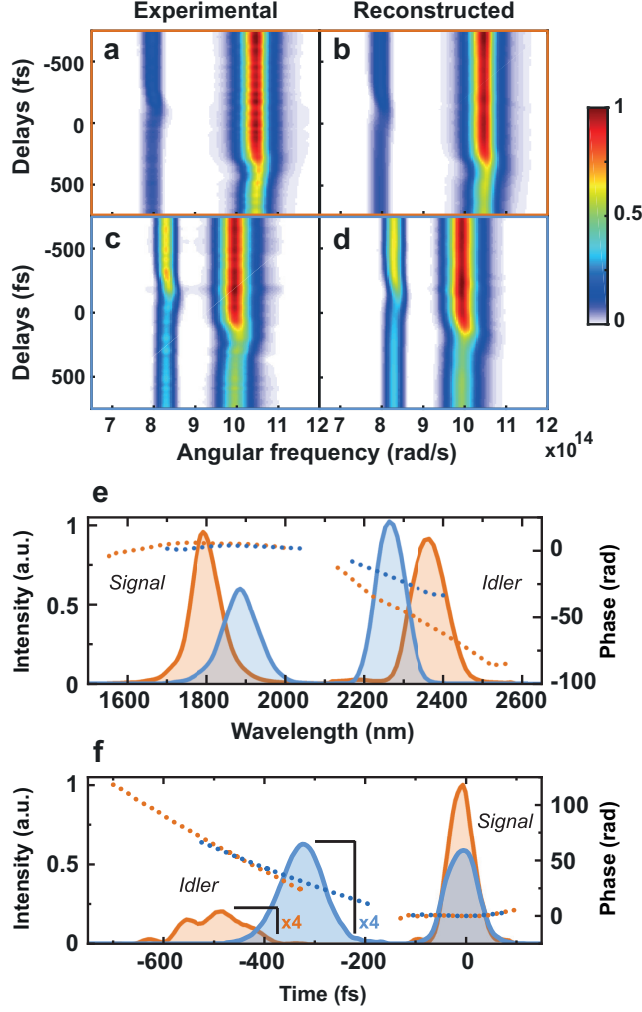


Fig. 9.4 : FROSt characterization of two signal-idler pairs

FROSt characterization of two signal-idler pairs, I (in orange) and II (in blue), at 250 kHz. (a) Experimental and (b) retrieved FROSt trace of signal-idler I. (c) Experimental and (d) retrieved FROSt trace of signal-idler II. (e) Retrieved spectral phase and intensity and (f) temporal phase (dotted lines) and intensity (solid lines) for both signal-idler pair pulses.

The corresponding retrieved FROSt traces are shown in Figures 9.4(b) and 9.4(d). Both signal and idler pulses are retrieved simultaneously using a ptychographic algorithm [15]. Figure 9.4(e) highlights the spectral tunability of the OPA source in the SWIR, with the spectra calibrated according to the measured power for each central wavelength. All the retrieved spectral phases are also displayed on Fig. 9.4(e) in dotted lines. Figure 9.4(f) shows the retrieved intensity profile (solid line) and phase (dotted line) of the corresponding signal-idler pairs with both signal pulses, at $1.78 \mu\text{m}$ (in orange) and $1.9 \mu\text{m}$ (in blue), centered at 0 fs . The exact temporal delay between the signal and idler is also retrieved. For visualization purposes, the intensity of both idler pulses is multiplied by a factor 4. The duration measured and the Fourier transform limit (FTL) calculated for each pulse are listed in Table 9.1.

Table 9.1 : Pulse duration of each signal and idler pulse with the corresponding Fourier transform limit (FTL)

	Wavelength (μm)	Pulse duration (fs)	FTL (fs)
Signal	1.78	60	48
	1.9	78	60
Idler	2.36	108	80
	2.25	106	85

9.6 Conclusion

To conclude, we have demonstrated that the FROSt technique can be extended to characterize laser sources at high repetition rates, up to 500 kHz. The free carrier relaxation time of the semiconductor used for FROSt, in the range of 1 μs to 4 μs for silicon, limits the maximum repetition rate we can reach. Above 500 kHz, the transmission contrast in the spectrogram was not sufficient for our pulse retrieval algorithm to converge. Advances in materials science make it possible to reduce the relaxation time of materials and could potentially enable the use of the FROSt technique at even higher repetition rates through the development of short-carrier-lifetime semiconductors [217, 218] or using higher purity materials[219].

We have presented the first instance of full temporal and spectral characterization of an OPA from the supercontinuum to the second stage of amplification. The supercontinuum characterized extended from 1.2 μm to 1.8 μm and we measured a pulse duration of ~ 18 fs. The signal and idler generated in the second stage of amplification were also characterized between 1.78 μm and 1.9 μm for the signal, and 2.25 μm and 2.36 μm for the idler.

The integration of this characterization technique into certain commercial OPCPA systems, given their intrinsic pump-probe synchronization, could enable real-time monitoring of the pulse duration, providing an important diagnostic tool. Furthermore, certain OPCPAs incorporate a pulse shaper or an acousto-optic programmable dispersive filter to adjust the spectral phase, and the addition of FROSt to this setup could enable to fine-tune and customize the control of the spectral phase.

In addition, the FROSt technique can be used in the MIR range [15], even at low signal energy, which is crucial for high repetition rate experimental studies in strong-field physics, including high harmonic generation, TR-ARPES, and COLTRIMS, that require precise control over spectral phase and pulse duration.

Funding

Ministère de l'Économie, de l'Innovation et de l'Énergie - Québec; PROMPT - Québec; Canada Foundation for Innovation; Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies; Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada.

Acknowledgments

We thank Antoine Laramée for his technical support in the laboratory. E. Haddad acknowledges financial support from NSERC Ph.D. scholarship program.

Disclosures

The authors declare no conflicts of interest.

Data availability

Data underlying the results presented in this paper are available upon reasonable request to the authors.

10 Conclusion

Dans cette thèse, plusieurs expériences ont été présentées qui permettent d'adapter plusieurs techniques initialement conçues pour les lasers Ti:Sa aux lasers Ytterbium. La différence de cadence et d'énergie entre ces deux technologies a engendré des effets additionnels qui ont dû être étudiés pour parvenir à une adaptation réussie. Ces techniques, maintenant utilisables sur des sources lasers basées sur l'Ytterbium, contribuent à la démocratisation de ce nouveau type de source laser.

Les résultats de cette thèse incluent la compression d'impulsions ultracourtes à un taux de répétition élevé en utilisant les états solitoniques multidimensionnels (MDSS) dans une fibre creuse remplie de N_2O . Des limitations thermiques apparaissent à haute cadence et annihilent l'effet MDSS qui se traduit par une suppression de l'élargissement spectral. Nous avons montré que l'utilisation de la pression différentielle permet d'atténuer les effets thermiques et d'augmenter de manière significative la cadence à laquelle le MDSS peut être utilisé pour compresser des impulsions laser sub-picosecondes.

Nous avons aussi démontré que la caractérisation à haut taux de répétition par la commutation optique résolue en fréquences (FROSt) peut être utilisée pour caractériser des impulsions à très large bande à des taux de répétition élevés allant jusqu'à 500 kHz. Cela a été prouvé en étudiant les dynamiques de relaxations du silicium. Plus précisément, nous avons présenté la caractérisation temporelle complète d'un amplificateur paramétrique optique (OPA), du supercontinuum (SC) jusqu'au deuxième étage d'amplification.

Enfin, l'évolution du laboratoire ALLS vers des sources Ytterbium s'accompagne du besoin de créer de nouvelles sources lasers pour diverses applications. C'est dans cette optique qu'une source laser permettant de faire de la spectroscopie de photoémission résolue en angle et en temps (TR-ARPES) a été conçue. La source laser repose sur une sonde UV (6 eV) avec une largeur de bande de 10 meV, permettant des études complètes de la dynamique électronique induite dans l'infrarouge moyen. Des impulsions optiques intenses servant de pompe sont générées dans le proche et le moyen infrarouge par un amplificateur paramétrique optique (OPA) à trois étages d'amplification, suivi d'une génération par différence de fréquences (DFG).

En résumé, cette thèse présente des avancées dans l'adaptation de nouvelles techniques et l'exploitation de la technologie ytterbium pour les lasers ultra-rapides. Dans le futur, ces techniques peuvent être affinées. La compression avec des fibres creuses, par exemple, peut encore être améliorée pour permettre la compression de faisceaux lasers avec une grande puissance moyenne et/ou avec un plus haut taux de répétition en adaptant le système d'injection du gaz ou en changeant le gaz lui-même. La technique FROSt pourra être étendue aux longueurs d'ondes plus courtes pour caractériser des harmoniques d'ordres élevées. Ce sont autant de pistes de recherche où les futurs membres du

groupe du professeur Légaré auront l'opportunité de laisser leur empreinte dans le développement des technologies lasers ultra-rapides et leurs applications scientifiques et industrielles.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, “60-fsec pulse generation from a self-mode-locked ti: sapphire laser,” *Optics letters*, vol. 16, no. 1, pp. 42–44, 1991.
- [2] S. Backus, C. G. Durfee, G. Mourou, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane, “0.2-tw laser system at 1 khz,” *Optics letters*, vol. 22, no. 16, pp. 1256–1258, 1997.
- [3] Y. Nabekawa, Y. Kuramoto, T. Togashi, T. Sekikawa, and S. Watanabe, “Generation of 0.66-tw pulses at 1 khz by a ti:sapphire laser,” *Optics letters*, vol. 23, no. 17, pp. 1384–1386, 1998.
- [4] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Optics communications*, vol. 55, no. 6, pp. 447–449, 1985.
- [5] H. Fattahi, H. G. Barros, M. Gorjan, T. Nubbemeyer, B. Alsaif, C. Y. Teisset, M. Schultze, S. Prinz, M. Haefner, M. Ueffing, A. Alismail, L. Vámos, A. Schwarz, O. Pronin, J. Brons, X. T. Geng, G. Arisholm, M. Ciappina, V. S. Yakovlev, D.-E. Kim, A. M. Azzeer, N. Karpowicz, D. Sutter, Z. Major, T. Metzger, and F. Krausz, “Third-generation femtosecond technology,” *Optica*, vol. 1, no. 1, 2014.
- [6] T. Nubbemeyer, M. Kaumanns, M. Ueffing, M. Gorjan, A. Alismail, H. Fattahi, J. Brons, O. Pronin, H. G. Barros, Z. Major, T. Metzger, D. Sutter, and F. Krausz, “1 kw, 200 mj picosecond thin-disk laser system,” *Optics Letters*, vol. 42, no. 7, pp. 1381–1384, 2017.
- [7] B. E. Schmidt, A. Hage, T. Mans, F. Légaré, and H. J. Wörner, “Highly stable, 54mj yb-innoslab laser platform at 0.5kw average power,” *Optics Express*, vol. 25, no. 15, pp. 17549–17555, 2017.
- [8] F. Canova, J.-P. Chambaret, G. Mourou, M. Sentis, O. Uteza, P. Delaporte, T. Itina, J.-Y. Natoli, M. Commandre, and C. Amra, “Complete characterization of damage threshold in titanium doped sapphire crystals with nanosecond, picosecond, and femtosecond laser pulses,” in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005*, vol. 5991, pp. 639–645, SPIE, 2006.
- [9] B. Bussiere, O. Uteza, N. Sanner, M. Sentis, G. Riboulet, L. Vigroux, M. Commandre, F. Wagner, J.-Y. Natoli, and J.-P. Chambaret, “Bulk laser-induced damage threshold of titanium-doped sapphire crystals,” *Applied optics*, vol. 51, no. 32, pp. 7826–7833, 2012.
- [10] H. Burton, C. Debardeleben, W. Amir, and T. A. Planchon, “Temperature dependence of ti: Sapphire fluorescence spectra for the design of cryogenic cooled ti: Sapphire cpa laser,” *Optics express*, vol. 25, no. 6, pp. 6954–6962, 2017.
- [11] S. Tokita, J. Kawanaka, Y. Izawa, M. Fujita, and T. Kawashima, “23.7-w picosecond cryogenic-yb: Yag multipass amplifier,” *Optics express*, vol. 15, no. 7, pp. 3955–3961, 2007.
- [12] P. Russbueltdt, T. Mans, J. Weitenberg, H. Hoffmann, and Poprawe, “Compact diode-pumped 1.1 kw yb: Yag innoslab femtosecond amplifier,” *Optics letters*, vol. 35, no. 24, pp. 4169–4171, 2010.

-
- [13] T. Eidam, S. Hanf, E. Seise, T. V. Andersen, T. Gabler, C. Wirth, T. Schreiber, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Femtosecond fiber CPA system emitting 830 W average output power,” *Optics letters*, vol. 35, no. 2, pp. 94–96, 2010.
- [14] D. A. Rand, S. E. Shaw, J. R. Ochoa, D. J. Ripin, A. Taylor, T. Y. Fan, H. Martin, S. Hawes, J. Zhang, S. Sarkisyan, *et al.*, “Picosecond pulses from a cryogenically cooled, composite amplifier using Yb: Yag and Yb: Gsag,” *Optics letters*, vol. 36, no. 3, pp. 340–342, 2011.
- [15] A. Leblanc, P. Lassonde, S. Petit, J.-C. Delagnes, E. Haddad, G. Ernotte, M. Bionta, V. Gruson, B. Schmidt, H. Ibrahim, *et al.*, “Phase-matching-free pulse retrieval based on transient absorption in solids,” *Optics express*, vol. 27, no. 20, pp. 28998–29015, 2019.
- [16] R. Safaei, O. Kwon, P. Lassonde, V. Cardin, E. Haddad, A. Leblanc, B. E. Schmidt, H. Ibrahim, and F. Légaré, “Low energy pulse compression in hollow core fibers using hydrofluorocarbon molecular gas,” *OSA Continuum*, vol. 2, no. 4, 2019.
- [17] R. Safaei, G. Fan, O. Kwon, K. Légaré, P. Lassonde, B. E. Schmidt, H. Ibrahim, and F. Légaré, “High-energy multidimensional solitary states in hollow-core fibres,” *Nature Photonics*, vol. 14, no. 12, pp. 733–739, 2020.
- [18] A. Leblanc, A. Longa, M. Kumar, A. Laramée, C. Dansereau, H. Ibrahim, P. Lassonde, and F. Légaré, “Temporal characterization of two-octave infrared pulses by frequency resolved optical switching,” *Journal of Physics: Photonics*, vol. 3, no. 4, p. 045002, 2021.
- [19] K. Légaré, R. Safaei, G. Barrette, L. Arias, P. Lassonde, H. Ibrahim, B. Vodungbo, E. Jal, J. Lüning, N. Jaouen, Z. Tao, A. Baltuška, F. Légaré, and G. Fan, “Raman red-shift compressor: A simple approach for scaling the high harmonic generation cut-off,” *Advanced Photonics Research*, vol. 2, no. 11, 2021.
- [20] L. Arias, A. Longa, G. Jargot, A. Pomerleau, P. Lassonde, G. Fan, R. Safaei, P. Corkum, F. Boschini, H. Ibrahim, *et al.*, “Few-cycle Yb laser source at 20 kHz using multidimensional solitary states in hollow-core fibers,” *Optics Letters*, vol. 47, no. 14, pp. 3612–3615, 2022.
- [21] A. Longa, M. Kumar, P. Lassonde, H. Ibrahim, F. Legare, and A. Leblanc, “Spectral phase sensitivity of frequency resolved optical switching for broadband IR pulse characterization,” *Optics Express*, vol. 30, no. 5, 2022.
- [22] E. Haddad, A. Longa, P. Lassonde, A. Leblanc, H. Ibrahim, F. Boschini, F. Légaré, and G. Jargot, “Complete characterization of a Yb-based OPA at a high repetition rate using frequency resolved optical switching,” *Optics Express*, vol. 31, no. 16, pp. 25840–25849, 2023.
- [23] Sellmeier, “Zur Erklärung der abnormen Farbenfolge im Spectrum einiger Substanzen,” *Annalen der Physik*, vol. 219, no. 6, pp. 272–282, 1871.
- [24] I. H. Malitson, “Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica,” *JOSA*, vol. 55, no. 10, pp. 1205–1209, 1965.
- [25] Y. Chen, F. Kärtner, U. Morgner, S. Cho, H. Haus, E. Ippen, and J. Fujimoto, “Dispersion-managed mode locking,” *JOSA B*, vol. 16, no. 11, 1999.
- [26] M. Nakazawa and H. Kubota, “Optical soliton communication in a positively and negatively dispersion-allocated optical fibre transmission line,” *Electronics Letters*, vol. 31, no. 3, pp. 216–217, 1995.

-
- [27] O. Martinez, J. Gordon, and R. Fork, “Negative group-velocity dispersion using refraction,” *JOSA A*, vol. 1, no. 10, pp. 1003–1006, 1984.
- [28] E. Treacy, “Optical pulse compression with diffraction gratings,” *IEEE Journal of quantum Electronics*, vol. 5, no. 9, pp. 454–458, 1969.
- [29] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, and F. Krausz, “Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers,” *Optics letters*, vol. 19, no. 3, pp. 201–203, 1994.
- [30] F. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi, “Design and fabrication of double-chirped mirrors,” *Optics letters*, vol. 22, no. 11, pp. 831–833, 1997.
- [31] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators,” *JOSA B*, vol. 12, no. 7, pp. 1343–1362, 1995.
- [32] A. M. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Review of scientific instruments*, vol. 71, no. 5, pp. 1929–1960, 2000.
- [33] P. Tournois, “Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems,” *Optics communications*, vol. 140, no. 4-6, pp. 245–249, 1997.
- [34] G. Gale, M. Cavallari, T. Driscoll, and F. Hache, “Sub-20-fs tunable pulses in the visible from an 82-mhz optical parametric oscillator,” *Optics letters*, vol. 20, no. 14, pp. 1562–1564, 1995.
- [35] G. Cerullo, M. Nisoli, and S. De Silvestri, “Generation of 11 fs pulses tunable across the visible by optical parametric amplification,” *Applied physics letters*, vol. 71, no. 25, pp. 3616–3618, 1997.
- [36] Z. Heiner, V. Petrov, G. Steinmeyer, M. J. Vrakking, and M. Mero, “100-khz, dual-beam opa delivering high-quality, 5-cycle angular-dispersion-compensated mid-infrared idler pulses at 3.1 μm ,” *Optics Express*, vol. 26, no. 20, pp. 25793–25804, 2018.
- [37] T.-J. Wang, Z. Major, I. Ahmad, S. A. Trushin, F. Krausz, and S. Karsch, “Ultra-broadband near-infrared pulse generation by noncollinear opa with angular dispersion compensation,” *Applied Physics B*, vol. 100, pp. 207–214, 2010.
- [38] L. E. Myers, R. Eckardt, M. Fejer, R. Byer, W. Bosenberg, and J. Pierce, “Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled linbo 3,” *JOSA B*, vol. 12, no. 11, pp. 2102–2116, 1995.
- [39] M. M. Fejer, G. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, “Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances,” *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 28, no. 11, pp. 2631–2654, 1992.
- [40] V. Petrov, “Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using non-oxide nonlinear crystals,” *Progress in Quantum Electronics*, vol. 42, pp. 1–106, 2015.
- [41] J. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, “Interactions between light waves in a nonlinear dielectric,” *Physical review*, vol. 127, no. 6, p. 1918, 1962.

-
- [42] E. Lim, M. M. Fejer, R. Byer, and W. Kozlovsky, “Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide,” *Electronics letters*, vol. 11, no. 25, pp. 731–732, 1989.
- [43] G. M. Greetham, P. Burgos, Q. Cao, I. P. Clark, P. S. Codd, R. C. Farrow, M. W. George, M. Kogimtzis, P. Matousek, A. W. Parker, *et al.*, “Ultra: A unique instrument for time-resolved spectroscopy,” *Applied Spectroscopy*, vol. 64, no. 12, pp. 1311–1319, 2010.
- [44] P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization,” *Physical review letters*, vol. 71, no. 13, p. 1994, 1993.
- [45] M.-C. Chen, P. Arpin, T. Popmintchev, M. Gerrity, B. Zhang, M. Seaberg, D. Popmintchev, M. Murnane, and H. Kapteyn, “Bright, coherent, ultrafast soft x-ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source,” *Physical review letters*, vol. 105, no. 17, p. 173901, 2010.
- [46] M. M. Otrokov, I. I. Klimovskikh, H. Bentmann, D. Estyunin, A. Zeugner, Z. S. Aliev, S. Gaß, A. Wolter, A. Koroleva, A. M. Shikin, *et al.*, “Prediction and observation of an antiferromagnetic topological insulator,” *Nature*, vol. 576, no. 7787, pp. 416–422, 2019.
- [47] Y. Chen, J. G. Analytis, J.-H. Chu, Z. Liu, S.-K. Mo, X.-L. Qi, H. Zhang, D. Lu, X. Dai, Z. Fang, *et al.*, “Experimental realization of a three-dimensional topological insulator, Bi_2Te_3 ,” *science*, vol. 325, no. 5937, pp. 178–181, 2009.
- [48] A. Damascelli, Z. Hussain, and Z.-X. Shen, “Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors,” *Reviews of modern physics*, vol. 75, no. 2, p. 473, 2003.
- [49] F. Boschini, M. Zonno, and A. Damascelli, “Time-resolved arpes studies of quantum materials,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 96, no. 1, p. 015003, 2024.
- [50] C. Lee, T. Rohwer, E. J. Sie, A. Zong, E. Baldini, J. Straquadine, P. Walmsley, D. Gardner, Y. S. Lee, I. R. Fisher, *et al.*, “High resolution time-and angle-resolved photoemission spectroscopy with 11 eV laser pulses,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 91, no. 4, 2020.
- [51] A. Grubisic Cabo, J. A. Miwa, S. S. Grønberg, J. M. Riley, J. C. Johannsen, C. Cacho, O. Alexander, R. T. Chapman, E. Springate, M. Grioni, *et al.*, “Observation of ultrafast free carrier dynamics in single layer MoS_2 ,” *Nano letters*, vol. 15, no. 9, pp. 5883–5887, 2015.
- [52] M. Puppin, C. W. Nicholson, C. Monney, Y. Deng, R. P. Xian, J. Feldl, S. Dong, A. Dominguez, H. Hübener, A. Rubio, *et al.*, “Excited-state band structure mapping,” *Physical Review B*, vol. 105, no. 7, p. 075417, 2022.
- [53] M. Mitrano, A. Cantaluppi, D. Nicoletti, S. Kaiser, A. Perucchi, S. Lupi, P. Di Pietro, D. Pontiroli, M. Riccò, S. R. Clark, *et al.*, “Possible light-induced superconductivity in $\text{K}_3\text{C}_6\text{O}$ at high temperature,” *Nature*, vol. 530, no. 7591, pp. 461–464, 2016.
- [54] D. Fausti, R. Tobey, N. Dean, S. Kaiser, A. Dienst, M. C. Hoffmann, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, and A. Cavalleri, “Light-induced superconductivity in a stripe-ordered cuprate,” *science*, vol. 331, no. 6014, pp. 189–191, 2011.
- [55] A. S. Disa, T. F. Nova, and A. Cavalleri, “Engineering crystal structures with light,” *Nature Physics*, vol. 17, no. 10, pp. 1087–1092, 2021.

-
- [56] I. Gierz, M. Mitrano, J. C. Petersen, C. Cacho, I. E. Turcu, E. Springate, A. Stöhr, A. Köhler, U. Starke, and A. Cavalleri, “Population inversion in monolayer and bilayer graphene,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 27, no. 16, p. 164204, 2015.
- [57] M. Chávez-Cervantes, G. Topp, S. Aeschlimann, R. Krause, S. Sato, M. Sentef, and I. Gierz, “Charge density wave melting in one-dimensional wires with femtosecond subgap excitation,” *Physical Review Letters*, vol. 123, no. 3, p. 036405, 2019.
- [58] K. Kuroda, J. Reimann, J. GÜdde, and U. Höfer, “Generation of transient photocurrents in the topological surface state of sb 2 te 3 by direct optical excitation with midinfrared pulses,” *Physical Review Letters*, vol. 116, no. 7, p. 076801, 2016.
- [59] A. Damascelli, “Probing the electronic structure of complex systems by arpes,” *Physica Scripta*, vol. T109, p. 61, 2004.
- [60] J. A. Sobota, Y. He, and Z. X. Shen, “Angle-resolved photoemission studies of quantum materials,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 93, 6 2021.
- [61] M. Na, A. K. Mills, and D. J. Jones, “Advancing time- and angle-resolved photoemission spectroscopy: The role of ultrafast laser development,” *Physics Reports*, vol. 1036, pp. 1–47, 10 2023.
- [62] A. Gauthier, J. A. Sobota, N. Gauthier, K. jun Xu, H. Pfau, C. R. Rotundu, Z. xun Shen, and P. S. Kirchmann, “Tuning time and energy resolution in time-resolved photoemission spectroscopy with nonlinear crystals,” *Journal of Applied Physics*, vol. 128, p. 093101, 9 2020.
- [63] M. Först, C. Manzoni, S. Kaiser, Y. Tomioka, Y. Tokura, R. Merlin, and A. Cavalleri, “Non-linear phononics as an ultrafast route to lattice control,” *Nature Physics*, vol. 7, pp. 854–856, 11 2011.
- [64] Y. H. Wang, H. Steinberg, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, “Observation of floquet-bloch states on the surface of a topological insulator,” *Science*, vol. 342, pp. 453–457, 10 2013.
- [65] M. Mitrano, A. Cantaluppi, D. Nicoletti, S. Kaiser, A. Perucchi, S. Lupi, P. D. Pietro, D. Pontiroli, M. Riccò, S. R. Clark, D. Jaksch, and A. Cavalleri, “Possible light-induced superconductivity in k3 c60 at high temperature,” *Nature*, vol. 530, pp. 461–464, 2 2016.
- [66] A. D. L. Torre, D. M. Kennes, M. Claassen, S. Gerber, J. W. McIver, and M. A. Sentef, “Colloquium: Nonthermal pathways to ultrafast control in quantum materials,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 93, 12 2021.
- [67] S. Hellmann, K. Rossnagel, M. Marczynski-Bühlow, and L. Kipp, “Vacuum space-charge effects in solid-state photoemission,” *Physical Review B*, vol. 79, p. 035402, 1 2009.
- [68] R. Paschotta, J. Nilsson, A. C. Tropper, and D. C. Hanna, “Ytterbium-doped fiber amplifiers,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 33, no. 7, pp. 1049–1056, 1997.
- [69] N. Thiré, R. Maksimenka, B. Kiss, C. Ferchaud, G. Gitzinger, T. Pinoteau, H. Jousset, S. Jarosch, P. Bizouard, and V. Di Pietro, “Highly stable, 15 w, few-cycle, 65 mrad cep-noise mid-ir opcpa for statistical physics,” *Optics express*, vol. 26, no. 21, pp. 26907–26915, 2018.
- [70] P. Rigaud, A. Van de Walle, M. Hanna, N. Forget, F. Guichard, Y. Zaouter, K. Guesmi, F. Druon, and P. Georges, “Supercontinuum-seeded few-cycle mid-infrared opcpa system,” *Optics express*, vol. 24, no. 23, pp. 26494–26502, 2016.

-
- [71] M. Mero, F. Noack, F. Bach, V. Petrov, and M. J. Vrakking, “High-average-power, 50-fs parametric amplifier front-end at 1.55 μm ,” *Opt Express*, vol. 23, no. 26, pp. 33157–63, 2015. Mero, Mark Noack, Frank Bach, Florian Petrov, Valentin Vrakking, Marc J J eng Research Support, Non-U.S. Gov’t Opt Express. 2015 Dec 28;23(26):33157-63. doi: 10.1364/OE.23.033157.
- [72] F. Boschini, H. Hedayat, C. Dallera, P. Farinello, C. Manzoni, A. Magrez, H. Berger, G. Cerullo, and E. Carpene, “An innovative Yb-based ultrafast deep ultraviolet source for time-resolved photoemission experiments,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 85, p. 123903, Dec. 2014.
- [73] M. Z. Hasan and C. L. Kane, “Colloquium: Topological insulators,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, pp. 3045–3067, Nov 2010.
- [74] L. Miaja-Avila, C. Lei, M. Aeschlimann, J. L. Gland, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and G. Saathoff, “Laser-assisted photoelectric effect from surfaces,” *Physical Review Letters*, vol. 97, p. 113604, 9 2006.
- [75] G. Saathoff, L. Miaja-Avila, M. Aeschlimann, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Laser-assisted photoemission from surfaces,” *Physical Review A*, vol. 77, p. 022903, 2 2008.
- [76] R. W. Boyd, A. L. Gaeta, and E. Giese, “Nonlinear optics,” in *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, pp. 1097–1110, Springer, 2008.
- [77] J. Hanus, “Effect of the molecular interaction between anisotropic molecules on the optical kerr effect. field-induced phase transition,” *Physical Review*, vol. 178, no. 1, p. 420, 1969.
- [78] E. L. Buckland and R. W. Boyd, “Electrostrictive contribution to the intensity-dependent refractive index of optical fibers,” *Optics letters*, vol. 21, no. 15, pp. 1117–1119, 1996.
- [79] F. Shimizu, “Frequency broadening in liquids by a short light pulse,” *Physical Review Letters*, vol. 19, no. 19, p. 1097, 1967.
- [80] R. L. Fork, C. B. Cruz, P. Becker, and C. V. Shank, “Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation,” *Optics letters*, vol. 12, no. 7, pp. 483–485, 1987.
- [81] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, “Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique,” *Applied Physics Letters*, vol. 68, no. 20, pp. 2793–2795, 1996.
- [82] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, “Compression of high-energy laser pulses below 5 fs,” *Optics letters*, vol. 22, no. 8, pp. 522–524, 1997.
- [83] G. P. Agrawal, “Nonlinear fiber optics,” in *Nonlinear Science at the Dawn of the 21st Century*, pp. 195–211, Springer, 2000.
- [84] P. Béjot, B. Schmidt, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and F. Legaré, “Mechanism of hollow-core-fiber infrared-supercontinuum compression with bulk material,” *Physical Review A*, vol. 81, no. 6, p. 063828, 2010.
- [85] B. F. Akers and J. A. Reeger, “Numerical simulation of thermal blooming with laser-induced convection,” *Journal of Electromagnetic Waves and Applications*, vol. 33, no. 1, pp. 96–106, 2019.

-
- [86] A. Marcano O, “Laser-induced bubble trapping in liquids and its effect on light thermal blooming,” *Applied optics*, vol. 31, no. 15, pp. 2757–2764, 1992.
- [87] S. Reich, S. Schäffer, M. Lueck, M. Wickert, and J. Osterholz, “Continuous wave high-power laser propagation in water is affected by strong thermal lensing and thermal blooming already at short distances,” *Scientific Reports*, vol. 11, no. 1, p. 22619, 2021.
- [88] G. Cerullo, S. De Silvestri, M. Nisoli, S. Sartania, S. Stagira, and O. Svelto, “Few-optical-cycle laser pulses: From high peak power to frequency tunability,” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 6, no. 6, pp. 948–958, 2000.
- [89] C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, and S. De Silvestri, “Optimal spectral broadening in hollow-fiber compressor systems,” *Applied Physics B*, vol. 80, no. 3, pp. 285–289, 2004.
- [90] T. Nagy, V. Pervak, and P. Simon, “Optimal pulse compression in long hollow fibers,” *Optics letters*, vol. 36, no. 22, pp. 4422–4424, 2011.
- [91] G. Fan, R. Safaei, O. Kwon, V. Schuster, K. Légaré, P. Lassonde, A. Ehteshami, L. Arias, A. Laramée, J. Beaudoin-Bertrand, *et al.*, “High energy redshifted and enhanced spectral broadening by molecular alignment,” *Optics Letters*, vol. 45, no. 11, pp. 3013–3016, 2020.
- [92] A. Couairon and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics reports*, vol. 441, no. 2-4, pp. 47–189, 2007.
- [93] S. Harris and A. Sokolov, “Subfemtosecond pulse generation by molecular modulation,” *Physical review letters*, vol. 81, no. 14, p. 2894, 1998.
- [94] A. Hoffmann, M. Zürch, M. Gräfe, and C. Spielmann, “Spectral broadening and compression of sub-millijoule laser pulses in hollow-core fibers filled with sulfur hexafluoride,” *Optics Express*, vol. 22, no. 10, pp. 12038–12045, 2014.
- [95] J. Ortigoso, M. Rodriguez, M. Gupta, and B. Friedrich, “Time evolution of pendular states created by the interaction of molecular polarizability with a pulsed nonresonant laser field,” *The Journal of chemical physics*, vol. 110, no. 8, pp. 3870–3875, 1999.
- [96] T. Seideman, “Revival structure of aligned rotational wave packets,” *Physical review letters*, vol. 83, no. 24, p. 4971, 1999.
- [97] R. Bartels, T. Weinacht, N. Wagner, M. Baertschy, C. H. Greene, M. Murnane, and H. Kapteyn, “Phase modulation of ultrashort light pulses using molecular rotational wave packets,” *Physical review letters*, vol. 88, no. 1, p. 013903, 2001.
- [98] K. Mak, M. Seidel, O. Pronin, M. Frosz, A. Abdolvand, V. Pervak, A. Apolonski, F. Krausz, J. Travers, and P. S. J. Russell, “Compressing μ j-level pulses from 250 fs to sub-10 fs at 38-mhz repetition rate using two gas-filled hollow-core photonic crystal fiber stages,” *Optics letters*, vol. 40, no. 7, pp. 1238–1241, 2015.
- [99] J. E. Beetar, M. Nrisimhamurty, T.-C. Truong, G. C. Nagar, Y. Liu, J. Nesper, O. Suarez, F. Rivas, Y. Wu, B. Shim, *et al.*, “Multioctave supercontinuum generation and frequency conversion based on rotational nonlinearity,” *Science Advances*, vol. 6, no. 34, p. eabb5375, 2020.

-
- [100] P. A. Carpeggiani, G. Coccia, G. Fan, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, R. Piccoli, Y.-G. Jeong, A. Rovere, R. Morandotti, *et al.*, “Extreme raman red shift: ultrafast multimode nonlinear space-time dynamics, pulse compression, and broadly tunable frequency conversion,” *Optica*, vol. 7, no. 10, pp. 1349–1354, 2020.
- [101] T. Nagy, S. Hädrich, P. Simon, A. Blumenstein, N. Walther, R. Klas, J. Buldt, H. Stark, S. Breilkopf, P. Jójárt, I. Seres, Z. Várallyay, T. Eidam, and J. Limpert, “Generation of three-cycle multi-millijoule laser pulses at 318 w average power,” *Optica*, vol. 6, no. 11, 2019.
- [102] R. Piccoli, J. Brown, Y.-G. Jeong, A. Rovere, L. Zanutto, M. Gaarde, F. Légaré, A. Couairon, J. Travers, R. Morandotti, *et al.*, “Intense few-cycle visible pulses directly generated via nonlinear fibre mode mixing,” *Nature Photonics*, vol. 15, no. 12, pp. 884–889, 2021.
- [103] P. Béjot, B. E. Schmidt, J. Kasparian, J. P. Wolf, and F. Legaré, “Mechanism of hollow-core-fiber infrared-supercontinuum compression with bulk material,” *Physical Review A*, vol. 81, no. 6, p. 063828, 2010.
- [104] A.-L. Viotti, M. Seidel, E. Escoto, S. Rajhans, W. P. Leemans, I. Hartl, and C. M. Heyl, “Multi-pass cells for post-compression of ultrashort laser pulses,” *Optica*, vol. 9, no. 2, 2022.
- [105] M. Gebhardt, E. B. Amuah, R. Klas, H. Stark, J. Buldt, A. Steinkopff, and J. Limpert, “Investigation of spatiotemporal output beam profile instabilities from differentially pumped capillaries,” *Optics Express*, vol. 29, no. 5, pp. 6957–6966, 2021.
- [106] H.-J. Otto, F. Stutzki, F. Jansen, T. Eidam, C. Jauregui, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Temporal dynamics of mode instabilities in high-power fiber lasers and amplifiers,” *Optics Express*, vol. 20, no. 14, pp. 15710–15722, 2012.
- [107] M. Gebhardt, E. B. Amuah, R. Klas, H. Stark, J. Buldt, A. Steinkopff, and J. Limpert, “Investigation of spatiotemporal output beam profile instabilities from differentially pumped capillaries,” *Optics Express*, vol. 29, no. 5, pp. 6957–6966, 2021.
- [108] T. Popmintchev, M.-C. Chen, A. Bahabad, M. Gerrity, P. Sidorenko, O. Cohen, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard x-ray regions of the spectrum,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 106, no. 26, pp. 10516–10521, 2009.
- [109] H. Stark, J. Buldt, M. Müller, A. Klenke, A. Tünnermann, and J. Limpert, “23 mj high-power fiber cpa system using electro-optically controlled divided-pulse amplification,” *Optics Letters*, vol. 44, no. 22, pp. 5529–5532, 2019.
- [110] T. Nubbemeyer, M. Kaumanns, M. Ueffing, M. Gorjan, A. Alismail, H. Fattahi, J. Brons, O. Pronin, H. G. Barros, Z. Major, *et al.*, “1 kw, 200 mj picosecond thin-disk laser system,” *Optics letters*, vol. 42, no. 7, pp. 1381–1384, 2017.
- [111] Y. Wang, H. Chi, C. Baumgarten, A. R. Meadows, K. Dehne, B. A. Reagan, A. Davenport, G. Murray, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, “1.1 j, 1 khz repetition rate, yb: Yag picosecond laser,” *Opt. Lett.*, vol. 45, p. 6615, 2020.
- [112] J. Boulet, Y. Zaouter, J. Limpert, S. Petit, Y. Mairesse, B. Fabre, J. Higuët, E. Mével, E. Constant, and E. Cormier, “High-order harmonic generation at a megahertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-doped-fiber chirped-pulse amplification system,” *Optics letters*, vol. 34, no. 9, pp. 1489–1491, 2009.

-
- [113] J. Rothhardt, S. Hädrich, A. Klenke, S. Demmler, A. Hoffmann, T. Gotschall, T. Eidam, M. Krebs, J. Limpert, and A. Tünnermann, “53 w average power few-cycle fiber laser system generating soft x rays up to the water window,” *Optics letters*, vol. 39, no. 17, pp. 5224–5227, 2014.
- [114] A. Harth, C. Guo, Y.-C. Cheng, A. Losquin, M. Miranda, S. Mikaelsson, C. M. Heyl, O. Prochnow, J. Ahrens, U. Morgner, *et al.*, “Compact 200 khz hhg source driven by a few-cycle opcpa,” *Journal of Optics*, vol. 20, no. 1, p. 014007, 2018.
- [115] J. Pupeikis, P.-A. Chevreuil, N. Bigler, L. Gallmann, C. R. Phillips, and U. Keller, “Water window soft x-ray source enabled by a 25 w few-cycle 2.2 μm opcpa at 100 khz,” *Optica*, vol. 7, no. 2, pp. 168–171, 2020.
- [116] M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Rothhardt, A. Zaïr, L. Chipperfield, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Towards isolated attosecond pulses at megahertz repetition rates,” *Nature Photonics*, vol. 7, no. 7, pp. 555–559, 2013.
- [117] T. Witting, M. Osolodkov, F. Schell, F. Morales, S. Patchkovskii, P. Šušnjar, F. H. Cavalcante, C. S. Menoni, C. P. Schulz, F. J. Furch, *et al.*, “Generation and characterization of isolated attosecond pulses at 100 khz repetition rate,” *Optica*, vol. 9, no. 2, pp. 145–151, 2022.
- [118] Y.-G. Jeong, R. Piccoli, D. Ferachou, V. Cardin, M. Chini, S. Hädrich, J. Limpert, R. Morandotti, F. Légaré, B. E. Schmidt, *et al.*, “Direct compression of 170-fs 50-cycle pulses down to 1.5 cycles with 70% transmission,” *Scientific reports*, vol. 8, no. 1, p. 11794, 2018.
- [119] A. Ciriolo, M. Negro, M. Devetta, E. Cinquanta, D. Faccialà, A. Pusala, S. De Silvestri, S. Stagira, and C. Vozzi, “Optical parametric amplification techniques for the generation of high-energy few-optical-cycles ir pulses for strong field applications,” *Applied Sciences*, vol. 7, no. 3, 2017.
- [120] W. Wißdorf, D. Müller, Y. Brachthäuser, M. Langner, V. Derpmann, S. Klotowski, C. Polaczek, H. Kersten, K. Brockmann, and T. Benter, “Gas flow dynamics in inlet capillaries: evidence for non laminar conditions,” *Journal of The American Society for Mass Spectrometry*, vol. 27, no. 9, pp. 1550–1563, 2016.
- [121] R. Livesey, “Solution methods for gas flow in ducts through the whole pressure regime,” *Vacuum*, vol. 76, no. 1, pp. 101–107, 2004.
- [122] K. Avila, D. Moxey, A. De Lozar, M. Avila, D. Barkley, and B. Hof, “The onset of turbulence in pipe flow,” *Science*, vol. 333, no. 6039, pp. 192–196, 2011.
- [123] J. Parker, “Rotational and vibrational relaxation in diatomic gases,” *The Physics of Fluids*, vol. 2, no. 4, pp. 449–462, 1959.
- [124] M. Gebhardt, T. Heuermann, R. Klas, C. Liu, A. Kirsche, M. Lenski, Z. Wang, C. Gaida, J. Antonio-Lopez, A. Schülzgen, *et al.*, “Bright, high-repetition-rate water window soft x-ray source enabled by nonlinear pulse self-compression in an antiresonant hollow-core fibre,” *Light: Science & Applications*, vol. 10, no. 1, p. 36, 2021.
- [125] T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev, P. Arpin, S. Brown, S. Ališauskas, G. Andriukaitis, T. Balčiunas, O. D. Mücke, A. Pugzlys, *et al.*, “Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers,” *science*, vol. 336, no. 6086, pp. 1287–1291, 2012.

-
- [126] D. V. Palanker, M. S. Blumenkranz, D. Andersen, M. Wiltberger, G. Marcellino, P. Gooding, D. Angeley, G. Schuele, B. Woodley, M. Simoneau, *et al.*, “Femtosecond laser–assisted cataract surgery with integrated optical coherence tomography,” *Science translational medicine*, vol. 2, no. 58, pp. 58ra85–58ra85, 2010.
- [127] K. König, A. Ehlers, F. Stracke, and I. Riemann, “In vivo drug screening in human skin using femtosecond laser multiphoton tomography,” *Skin pharmacology and physiology*, vol. 19, no. 2, pp. 78–88, 2006.
- [128] T. Zou, B. Zhao, W. Xin, Y. Wang, B. Wang, X. Zheng, H. Xie, Z. Zhang, J. Yang, and C. Guo, “High-speed femtosecond laser plasmonic lithography and reduction of graphene oxide for anisotropic photoresponse,” *Light: Science & Applications*, vol. 9, no. 1, p. 69, 2020.
- [129] A. Damascelli, “Probing the electronic structure of complex systems by arpes,” *Physica Scripta*, vol. 2004, no. T109, p. 61, 2004.
- [130] M. Miranda, C. L. Arnold, and T. Fordell, “Characterization of broadband few-cycle laser pulses with d-scan technique,” *Optic Express*, vol. 20, p. 17, 2012.
- [131] M. Miranda, C. L. Arnold, and T. Fordell, “Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirror and glass wedges,” *Optics express*, vol. 20, no. 1, pp. 688–697, 2012.
- [132] B. Alonso, W. Holgado, and Í. J. Sola, “Compact in-line temporal measurement of laser pulses with amplitude swing,” *Optics Express*, vol. 28, no. 10, pp. 15625–15640, 2020.
- [133] C. Barbero, B. Alonso, and Í. J. Sola, “Characterization of ultrashort vector pulses from a single amplitude swing measurement,” *Optics Express*, vol. 32, no. 7, pp. 10862–10873, 2024.
- [134] Y. Takagi, T. Kobayashi, K. Yoshihara, and S. Imamura, “Multiple-and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors,” *Optics letters*, vol. 17, no. 9, pp. 658–660, 1992.
- [135] F. Quercioli, A. Ghirelli, B. Tiribilli, and M. Vassalli, “Ultracompact autocorrelator for multiphoton microscopy,” *Microscopy research and technique*, vol. 63, no. 1, pp. 27–33, 2004.
- [136] J. Collier, C. Hernandez-Gomez, R. Allott, C. Danson, and A. Hall, “A single-shot third-order autocorrelator for pulse contrast and pulse shape measurements,” *Laser and particle beams*, vol. 19, no. 2, pp. 231–235, 2001.
- [137] J. Armstrong, “Measurement of picosecond laser pulse widths,” *Applied Physics Letters*, vol. 10, no. 1, pp. 16–18, 1967.
- [138] I. Z. Kozma, P. Baum, U. Schmidhammer, S. Lochbrunner, and E. Riedle, “Compact autocorrelator for the online measurement of tunable 10 femtosecond pulses,” *Review of Scientific instruments*, vol. 75, no. 7, pp. 2323–2327, 2004.
- [139] M. Raghuramaiah, A. Sharma, P. Naik, P. Gupta, and R. Ganeev, “A second-order autocorrelator for single-shot measurement of femtosecond laser pulse durations,” *Sadhana*, vol. 26, pp. 603–611, 2001.
- [140] A. Schmidt, S. Rivier, V. Petrov, U. Griebner, A. Garcia-Cortes, F. Esteban-Betegon, M. Serano, and C. Zaldo, “Diode-pumped femtosecond yb: Nay (wo4) 2 laser,” *Electronics Letters*, vol. 44, no. 13, pp. 806–807, 2008.

-
- [141] A. Brun, P. Georges, G. Le Saux, and F. Salin, “Single-shot characterization of ultrashort light pulses,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 24, no. 8, p. 1225, 1991.
- [142] T. e. Kane, “Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses : Frog,” *Optical society*, 1993.
- [143] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane, “Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 68, no. 9, pp. 3277–3295, 1997.
- [144] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Springer Science & Business Media, 2000.
- [145] K. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, and W. White, “Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation,” *JOSA B*, vol. 11, no. 11, pp. 2206–2215, 1994.
- [146] K. W. DeLong, R. Trebino, and D. J. Kane, “Comparison of ultrashort-pulse frequency-resolved-optical-gating traces for three common beam geometries,” *JOSA B*, vol. 11, no. 9, pp. 1595–1608, 1994.
- [147] D. J. Kane and R. P. Trebino, “Single-shot measurement of the intensity and phase of a femtosecond laser pulse,” in *Ultrafast Pulse Generation and Spectroscopy*, vol. 1861, pp. 150–160, SPIE, 1993.
- [148] D. J. Kane, A. Taylor, R. Trebino, and K. DeLong, “Single-shot measurement of the intensity and phase of a femtosecond uv laser pulse with frequency-resolved optical gating,” *Optics letters*, vol. 19, no. 14, pp. 1061–1063, 1994.
- [149] J. N. Sweetser, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino, “Transient-grating frequency-resolved optical gating,” *Optics letters*, vol. 22, no. 8, pp. 519–521, 1997.
- [150] S. Linden, H. Gießen, and J. Kuhl, “Xfrog—a new method for amplitude and phase characterization of weak ultrashort pulses,” *physica status solidi (b)*, vol. 206, no. 1, pp. 119–124, 1998.
- [151] J.-y. Zhang, A. P. Shreenath, M. Kimmel, E. Zeek, R. Trebino, and S. Link, “Measurement of the intensity and phase of attojoule femtosecond light pulses using optical-parametric-amplification cross-correlation frequency-resolved optical gating,” *Optics Express*, vol. 11, no. 6, pp. 601–609, 2003.
- [152] H. Liang, P. Krogen, Z. Wang, H. Park, T. Kroh, K. Zawilski, P. Schunemann, J. Moses, L. F. DiMauro, F. X. Kärtner, *et al.*, “High-energy mid-infrared sub-cycle pulse synthesis from a parametric amplifier,” *Nature Communications*, vol. 8, no. 1, p. 141, 2017.
- [153] C. Manzoni, O. D. Mücke, G. Cirimi, S. Fang, J. Moses, S.-W. Huang, K.-H. Hong, G. Cerullo, and F. X. Kärtner, “Coherent pulse synthesis: towards sub-cycle optical waveforms,” *Laser & Photonics Reviews*, vol. 9, no. 2, pp. 129–171, 2015.
- [154] G. Cirimi, R. E. Mainz, M. A. Silva-Toledo, F. Scheiba, H. Çankaya, M. Kubullek, G. M. Rossi, and F. X. Kärtner, “Optical waveform synthesis and its applications,” *Laser & Photonics Reviews*, vol. 17, no. 4, p. 2200588, 2023.

-
- [155] S. B. Park, K. Kim, W. Cho, S. I. Hwang, I. Ivanov, C. H. Nam, and K. T. Kim, “Direct sampling of a light wave in air,” *Optica*, vol. 5, no. 4, pp. 402–408, 2018.
- [156] W. Cho, S. I. Hwang, C. H. Nam, M. R. Bionta, P. Lassonde, B. E. Schmidt, H. Ibrahim, F. Légaré, and K. T. Kim, “Temporal characterization of femtosecond laser pulses using tunneling ionization in the uv, visible, and mid-ir ranges,” *Scientific Reports*, vol. 9, no. 1, p. 16067, 2019.
- [157] Y. Liu, S. Gholam-Mirzaei, J. E. Beetar, J. Nesper, A. Yousif, M. Nrisimhamurthy, and M. Chini, “All-optical sampling of few-cycle infrared pulses using tunneling in a solid,” *Photonics Research*, vol. 9, no. 6, pp. 929–936, 2021.
- [158] Y. Liu, J. E. Beetar, J. Nesper, S. Gholam-Mirzaei, and M. Chini, “Single-shot measurement of few-cycle optical waveforms on a chip,” *Nature Photonics*, vol. 16, no. 2, pp. 109–112, 2021.
- [159] S. Keiber, S. Sederberg, A. Schwarz, M. Trubetskov, V. Pervak, F. Krausz, and N. Karpowicz, “Electro-optic sampling of near-infrared waveforms,” *Nature Photonics*, vol. 10, no. 3, pp. 159–162, 2016.
- [160] I. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, *et al.*, “Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating,” *Nature physics*, vol. 2, no. 5, pp. 319–322, 2006.
- [161] P.-C. Huang, C. Hernández-García, J.-T. Huang, P.-Y. Huang, C.-H. Lu, L. Rego, D. D. Hickstein, J. L. Ellis, A. Jaron-Becker, A. Becker, *et al.*, “Polarization control of isolated high-harmonic pulses,” *Nature Photonics*, vol. 12, no. 6, pp. 349–354, 2018.
- [162] P. Thibault, M. Dierolf, O. Bunk, A. Menzel, and F. Pfeiffer, “Probe retrieval in ptychographic coherent diffractive imaging,” *Ultramicroscopy*, vol. 109, no. 4, pp. 338–343, 2009.
- [163] C. Rolland and P. B. Corkum, “Generation of 130-fsec midinfrared pulses,” *JOSA B*, vol. 3, no. 12, pp. 1625–1629, 1986.
- [164] D. Spangenberg, P. Neethling, E. Rohwer, M. H. Brüggemann, and T. Feurer, “Time-domain ptychography,” *Physical Review A*, vol. 91, no. 2, p. 021803, 2015.
- [165] T. Witting, D. Greening, D. Walke, P. Matia-Hernando, T. Barillot, J. Marangos, and J. Tisch, “Time-domain ptychography of over-octave-spanning laser pulses in the single-cycle regime,” *Optics Letters*, vol. 41, no. 18, pp. 4218–4221, 2016.
- [166] P. Lassonde, A. Laramée, H. Ibrahim, É. Cormier, F. Légaré, and A. Leblanc, “Polarization-independent pulse retrieval based on frequency resolved optical switching,” *Optics Express*, vol. 29, no. 15, pp. 23225–23233, 2021.
- [167] D. J. Kane and R. Trebino, “Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating,” *Optics letters*, vol. 18, no. 10, pp. 823–825, 1993.
- [168] B. Brizard, A. Leblanc, S. Petit, J.-C. Delagnes, É. Cormier, H. Ibrahim, F. Légaré, and P. Lassonde, “Single-shot phase-matching free ultrashort pulse characterization based on transient absorption in solids,” *Optics Express*, vol. 28, no. 24, pp. 35807–35815, 2020.

-
- [169] A. Leblanc, A. Longa, M. Kumar, A. Laramée, C. Dansereau, H. Ibrahim, P. Lassonde, and F. Légaré, “Temporal characterization of two-octave infrared pulses by frequency resolved optical switching,” *Journal of Physics: Photonics*, vol. 3, no. 4, p. 045002, 2021.
- [170] F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, “Advances in attosecond science,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 49, no. 6, p. 062001, 2016.
- [171] T. Brabec and F. Krausz, “Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 72, no. 2, pp. 545–591, 2000. RMP.
- [172] K. Ferenc and I. Misha, “Attosecond physics,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 81, no. 1, pp. 163–234, 2009.
- [173] V. Cardin, B. E. Schimdt, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, M. Negro, C. Vozzi, V. Tosa, and F. Légaré, “Self-channelled high harmonic generation of water window soft x-rays,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 51, no. 17, p. 174004, 2018.
- [174] S. Payeur, S. Fourmaux, B. Schmidt, J. MacLean, C. Tchervenkov, F. Légaré, M. Piché, and J. Kieffer, “Generation of a beam of fast electrons by tightly focusing a radially polarized ultrashort laser pulse,” *Applied Physics Letters*, vol. 101, no. 4, p. 041105, 2012.
- [175] S. Fritzler, K. Ta Phuoc, V. Malka, A. Rousse, and E. Lefebvre, “Ultrashort electron bunches generated with high-intensity lasers: Applications to injectors and x-ray sources,” *Applied physics letters*, vol. 83, no. 19, pp. 3888–3890, 2003.
- [176] J. Faure, Y. Glinec, A. Pukhov, S. Kiselev, S. Gordienko, E. Lefebvre, J. P. Rousseau, F. Burgy, and V. Malka, “A laser–plasma accelerator producing monoenergetic electron beams,” *Nature*, vol. 431, no. 7008, pp. 541–544, 2004.
- [177] L.-Y. Peng, W.-C. Jiang, J.-W. Geng, W.-H. Xiong, and Q. Gong, “Tracing and controlling electronic dynamics in atoms and molecules by attosecond pulses,” *Physics Reports*, vol. 575, pp. 1–71, 2015.
- [178] F. Légaré, I. Litvinyuk, P. Dooley, F. Quéré, A. Bandrauk, D. Villeneuve, and P. Corkum, “Time-resolved double ionization with few cycle laser pulses,” *Physical review letters*, vol. 91, no. 9, p. 093002, 2003.
- [179] A. R. Beck, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Probing ultrafast dynamics with attosecond transient absorption,” *Chemical Physics Letters*, vol. 624, pp. 119–130, 2015.
- [180] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Springer Science & Business Media, 2000.
- [181] I. A. Walmsley and C. Dorrer, *Characterization of ultrashort electromagnetic pulses*, vol. 1, book section 308. Optical Society of America, 2009.
- [182] F. Silva, M. Miranda, B. Alonso, J. Rauschenberger, V. Pervak, and H. Crespo, “Simultaneous compression, characterization and phase stabilization of gw-level 1.4 cycle vis-nir femtosecond pulses using a single dispersion-scan setup,” *Optics express*, vol. 22, no. 9, pp. 10181–10191, 2014.
- [183] T. Tsang, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino, “Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using thg on surfaces,” *Optics express*, vol. 21, no. 17, pp. 1381–1383, 1996.

-
- [184] W. Cho, S. I. Hwang, C. H. Nam, M. R. Bionta, P. Lassonde, B. E. Schmidt, H. Ibrahim, F. Légaré, and K. T. Kim, “Temporal characterization of femtosecond laser pulses using tunneling ionization in the uv, visible, and mid-ir ranges,” *Scientific Reports*, vol. 9, no. 1, p. 16067, 2019.
- [185] I. Pupeza, D. Sánchez, J. Zhang, N. Lilienfein, M. Seidel, N. Karpowicz, T. Paasch-Colberg, I. Znakovskaya, M. Pescher, and W. Schweinberger, “High-power sub-two-cycle mid-infrared pulses at 100 mhz repetition rate,” *Nature Photonics*, vol. 9, no. 11, pp. 721–724, 2015.
- [186] T. Endo, M. Tsubouchi, and R. Itakura, “Plasma-mirror frequency-resolved optical gating using a liquid-sheet jet in ultraviolet region,” *Optics Letters*, vol. 44, no. 13, pp. 3234–3237, 2019.
- [187] N. Thiré, S. Beaulieu, V. Cardin, A. Laramée, V. Wanie, B. E. Schmidt, and F. Légaré, “10 mj 5-cycle pulses at 1.8 μm through optical parametric amplification,” *Applied Physics Letters*, vol. 106, no. 9, p. 091110, 2015.
- [188] V. Cardin, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, F. Légaré, and B. E. Schmidt, “0.42 tw 2-cycle pulses at 1.8 μm via hollow-core fiber compression,” *Applied Physics Letters*, vol. 107, no. 18, p. 181101, 2015.
- [189] A. Mitrofanov, A. Voronin, M. Rozhko, D. Sidorov-Biryukov, A. Fedotov, A. Pugžlys, V. Shumakova, S. Ališauskas, A. Baltuška, and A. Zheltikov, “Self-compression of high-peak-power mid-infrared pulses in anomalously dispersive air,” *optica*, vol. 4, no. 11, pp. 1405–1408, 2017.
- [190] S. Akturk, C. d’Amico, and A. Mysyrowicz, “Measuring ultrashort pulses in the single-cycle regime using frequency-resolved optical gating,” *JOSA B*, vol. 25, no. 6, pp. A63–A69, 2008.
- [191] M. Canhota, F. Silva, R. Weigand, and H. M. Crespo, “Inline self-diffraction dispersion-scan of over octave-spanning pulses in the single-cycle regime,” *Optics letters*, vol. 42, no. 15, pp. 3048–3051, 2017.
- [192] K. Tian, L. He, X. Yang, and H. Liang, “Mid-infrared few-cycle pulse generation and amplification,” *Photonics*, vol. 8, no. 8, p. 290, 2021.
- [193] T. Fuji and T. Suzuki, “Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air,” *Optics Letters*, vol. 32, no. 22, pp. 3330–3332, 2007.
- [194] T. Fuji and Y. Nomura, “Generation of phase-stable sub-cycle mid-infrared pulses from filamentation in nitrogen,” *Applied Sciences*, vol. 3, no. 1, pp. 122–138, 2013.
- [195] H. Lim, F. O. Ilday, and F. W. Wise, “Femtosecond ytterbium fiber laser with photonic crystal fiber for dispersion control,” *Optics Express*, vol. 10, no. 25, pp. 1497–1502, 2002.
- [196] K. Midorikawa, “Progress on table-top isolated attosecond light sources,” *Nature Photonics*, vol. 16, no. 4, pp. 267–278, 2022.
- [197] P. A. Chevreuril, F. Brunner, S. Hrisafov, J. Pupeikis, C. R. Phillips, U. Keller, and L. Gallmann, “Water-window high harmonic generation with 0.8- μm and 2.2- μm opcpas at 100 khz,” *Optics Express*, vol. 29, no. 21, pp. 32996–33008, 2021.
- [198] M. Puppini, Y. Deng, O. Prochnow, J. Ahrens, T. Binhammer, U. Morgner, M. Krenz, M. Wolf, and R. Ernstorfer, “500 khz opcpa delivering tunable sub-20 fs pulses with 15 w average power based on an all-ytterbium laser,” *Optics Express*, vol. 23, no. 2, pp. 1491–1497, 2015.

-
- [199] M. K. Windeler, K. Mecseki, A. Miahnahri, J. S. Robinson, J. M. Fraser, A. R. Fry, and F. Tavella, “100 w high-repetition-rate near-infrared optical parametric chirped pulse amplifier,” *Optics letters*, vol. 44, no. 17, pp. 4287–4290, 2019.
- [200] X. Zou, W. Li, S. Qu, K. Liu, H. Li, Q. J. Wang, Y. Zhang, and H. Liang, “Flat-top pumped multi-millijoule mid-infrared parametric chirped-pulse amplifier at 10 khz repetition rate,” *Laser & Photonics Reviews*, vol. 15, no. 6, 2021.
- [201] M. Mero, Z. Heiner, V. Petrov, H. Rottke, F. Branchi, G. M. Thomas, and M. J. Vrakking, “43 w, 1.55 μm and 12.5 w, 3.1 μm dual-beam, sub-10 cycle, 100 khz optical parametric chirped pulse amplifier,” *Optics letters*, vol. 43, no. 21, pp. 5246–5249, 2018.
- [202] Y. H. Wang, H. Steinberg, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, “Observation of Floquet-Bloch States on the Surface of a Topological Insulator,” *Science*, vol. 342, no. 6157, pp. 453–457, 2013.
- [203] I. Gierz, J. C. Petersen, M. Mitrano, C. Cacho, I. C. E. Turcu, E. Springate, A. Stöhr, A. Köhler, U. Starke, and A. Cavalleri, “Snapshots of non-equilibrium Dirac carrier distributions in graphene,” *Nature Materials*, vol. 12, pp. 1119–1124, 2013.
- [204] M. Chávez-Cervantes, G. E. Topp, S. Aeschlimann, R. Krause, S. A. Sato, M. A. Sentef, and I. Gierz, “Charge Density Wave Melting in One-Dimensional Wires with Femtosecond Subgap Excitation,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 123, p. 036405, Jul 2019.
- [205] S. Zhou, C. Bao, B. Fan, H. Zhou, Q. Gao, H. Zhong, T. Lin, H. Liu, P. Yu, P. Tang, S. Meng, W. Duan, and S. Zhou, “Pseudospin-selective Floquet band engineering in black phosphorus,” *Nature*, vol. 614, pp. 75–80, 2023.
- [206] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking, “Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a ‘momentum microscope’ to view atomic collision dynamics,” *Physics Reports*, vol. 330, no. 2, pp. 95–192, 2000.
- [207] H. Schmidt-Böcking, J. Ullrich, R. Dörner, and C. L. Cocke, “The COLTRIMS Reaction Microscope—The Spyhole into the Ultrafast Entangled Dynamics of Atomic and Molecular Systems,” *Annalen der Physik*, vol. 533, no. 9, p. 2100134, 2021.
- [208] H. Ibrahim, B. Wales, S. Beaulieu, B. E. Schmidt, N. Thiré, E. P. Fowe, É. Bisson, C. T. Hebeisen, V. Wanie, M. Giguère, J.-C. Kieffer, M. Spanner, A. D. Bandrauk, J. Sanderson, M. S. Schuurman, and F. Légaré, “Tabletop imaging of structural evolutions in chemical reactions demonstrated for the acetylene cation,” *Nature Communications*, vol. 5, p. 4422, 2014.
- [209] T. Endo, S. P. Neville, V. Wanie, S. Beaulieu, C. Qu, J. Deschamps, P. Lassonde, B. E. Schmidt, H. Fujise, M. Fushitani, A. Hishikawa, P. L. Houston, J. M. Bowman, M. S. Schuurman, F. Légaré, and H. Ibrahim, “Capturing roaming molecular fragments in real time,” *Science*, vol. 370, no. 6520, pp. 1072–1077, 2020.
- [210] J. Pupeikis, P. A. Chevreuil, N. Bigler, L. Gallmann, C. R. Phillips, and U. Keller, “Water window soft x-ray source enabled by a 25 w few-cycle 22 μm opcpa at 100 khz,” *Optica*, vol. 7, no. 2, 2020.

-
- [211] A. I. Gonzalez, G. Jargot, P. Rigaud, L. Lavenu, F. Guichard, A. Comby, T. Auguste, O. Sublemontier, M. Bougeard, Y. Zaouter, P. Georges, M. Hanna, and T. Ruchon, “Spatio-spectral structures in high harmonic generation driven by tightly focused high repetition rate lasers,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 35, pp. A6–A14, Apr 2018.
- [212] I. Sytceвич, C. Guo, S. Mikaelsson, J. Vogelsang, A.-L. Viotti, B. Alonso, R. Romero, P. T. Guerreiro, I. J. Sola, A. L’Huillier, H. Crespo, M. Miranda, and C. L. Arnold, “Characterizing ultrashort laser pulses with second harmonic dispersion scans,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 38, no. 5, p. 1546, 2021.
- [213] I. Sytceвич, A.-L. Viotti, C. Guo, J. Vogelsang, F. Langer, A. L’Huillier, and C. L. Arnold, “Few-cycle short-wave-infrared light source for strong-field experiments at 200 khz repetition rate,” *Optics Express*, vol. 30, no. 15, pp. 27858–27867, 2022.
- [214] X. Zhang, H. Fang, S. Tang, and W. Ji, “Determination of two-photon-generated free-carrier lifetime in semiconductors by a single-beam Z-scan technique,” *Applied Physics B*, vol. 65, no. 4, pp. 549–554, 1997.
- [215] J. Linnros, “Carrier lifetime measurements using free carrier absorption transients. I. Principle and injection dependence,” *Journal of Applied Physics*, vol. 84, no. 1, pp. 275–283, 1998.
- [216] J. Linnros, “Carrier lifetime measurements using free carrier absorption transients. II. Lifetime mapping and effects of surface recombination,” *Journal of Applied Physics*, vol. 84, no. 1, pp. 284–291, 1998.
- [217] S. Gupta, M. Y. Frankel, J. A. Valdmanis, J. F. Whitaker, G. A. Mourou, F. W. Smith, and A. R. Calawa, “Subpicosecond carrier lifetime in GaAs grown by molecular beam epitaxy at low temperatures,” *Applied Physics Letters*, vol. 59, no. 25, pp. 3276–3278, 1991.
- [218] F. Ganikhanov, G.-R. Lin, W.-C. Chen, C.-S. Chang, and C.-L. Pan, “Subpicosecond carrier lifetimes in arsenic-ion-implanted GaAs,” *Applied Physics Letters*, vol. 67, no. 23, pp. 3465–3467, 1995.
- [219] J. Degallaix, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, C. Michel, L. Pinard, T. Bertrand, and G. Cagnoli, “Bulk optical absorption of high resistivity silicon at 1550 nm,” *Opt. Lett.*, vol. 38, pp. 2047–2049, Jun 2013.
- [220] J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, “Supercontinuum generation in photonic crystal fiber,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 78, pp. 1135–1184, Oct 2006.
- [221] Y. Jee, M. F. Becker, and R. M. Walser, “Laser-induced damage on single-crystal metal surfaces,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 5, pp. 648–659, Mar 1988.
- [222] J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger, W. Kautek, and M. Lenzner, “Femtosecond laser ablation of silicon—modification thresholds and morphology,” *Applied Physics A*, vol. 74, pp. 19–25, 2002.
- [223] R. N. Oosterbeek, C. Corazza, S. Ashforth, and M. C. Simpson, “Effects of dopant type and concentration on the femtosecond laser ablation threshold and incubation behaviour of silicon,” *Applied Physics A*, vol. 122, p. 449, 2016.
- [224] C. S. R. Nathala, A. Ajami, W. Husinsky, B. Farooq, S. I. Kudryashov, A. Daskalova, I. Bliznakova, and A. Assion, “Ultrashort laser pulse ablation of copper, silicon and gelatin: effect of the pulse duration on the ablation thresholds and the incubation coefficients,” *Applied Physics A*, vol. 122, p. 107, 2016.