

Université du Québec  
Institut National de la Recherche Scientifique  
Centre énergie Matériaux Télécommunications

## **OPTIQUE NON-LINÉAIRE DANS LE DOMAINE DES FRÉQUENCES**

Par

Guilmot Ernotte

Mémoire présenté pour l'obtention du grade  
Maître ès sciences (M.Sc.)  
en sciences de l'énergie et des matériaux  
Déposé le 19 décembre 2016

### **Jury d'évaluation**

Président du jury et  
examineur interne

François Vidal  
INRS-ÉMT

Examineur externe

Fabien Quéré  
Commissariat à l'énergie atomique et  
aux énergies alternatives

Directeur de recherche

François Légaré  
INRS-ÉMT



## REMERCIEMENTS

Je commencerais par remercier Audrey. Bien que les choses soient différentes aujourd'hui, tu as été d'un support incommensurable particulièrement pendant mes temps de faisceau.

Je dois aussi remercier Mathieu Giguère que j'ai rencontré en industrie et qui m'a fortement suggéré d'essayer la recherche en milieu académique pour ma maîtrise et qui m'a introduit à l'INRS et à l'équipe de François Légaré.

Un merci sincère à François Légaré, mon directeur de recherche, pour avoir créé un environnement vraiment stimulant dans lequel j'ai grandement grandi. Merci aussi pour les multiples projets auquel tu m'as fait participer et à la chance que tu m'as donnée en m'envoyant à plusieurs conférences.

Un gros merci à Philippe Lassonde pour toute l'aide que tu m'as apportée dans le laboratoire, ainsi que les bons moments de délire qu'on a eu particulièrement en fin de temps de faisceau.

Je tiens aussi à remercier Vincent Gruson, ton arrivée et ta présence m'ont permis de me motiver pour ma fin de maîtrise et tu m'as permis de débloquer sur certains problèmes sur lesquels je travaillais depuis quelques temps. Merci aussi pour tes relectures de ce mémoire !

Je dois aussi remercier Bruno Schmidt qui a été un mentor pour moi ainsi qu'une véritable aspiration pour me dépasser. Tu es toujours plein de super idées intéressantes et tu rends les expériences au laboratoire très motivantes.

Finalement, un merci à tous ceux qui m'ont aidé un moment ou un autre dans mes démarches à l'INRS en particulier : Antoine Laramée, Carol Morissette, Charles-André Couture, Vincent Wanie, Vincent Cardin, Samuel Beaulieu, Heide Ibrahim et Nicolas Thiré.



## RÉSUMÉ

L'optique non-linéaire repose sur l'interaction entre un champ électrique intense et la matière. Cette interaction crée de nouvelles fréquences, permettant d'atteindre des régions spectrales inaccessibles par l'optique linéaire. Un champ électrique intense peut être obtenu via l'utilisation d'impulsions ultra-brèves, de l'ordre de la femtoseconde. Cependant, la relation temps-fréquence montre que ce type d'impulsions possède un spectre large. Il devient alors difficile de conserver toutes les propriétés spectrales d'une impulsion dû à la nature non-linéaire des opérateurs en jeu, en particulier dans le cas de l'amplification paramétrique optique et pour la génération de seconde harmonique. Ce mémoire présente une nouvelle approche pour l'optique non-linéaire qui divise cet opérateur non-linéaire sur des bandes spectrales plus étroites de façon parallèle afin de conserver toutes les propriétés spectrales de l'impulsion. Pour ce faire, un montage 4-f est utilisé et l'interaction non-linéaire se réalise sur un spectre dispersé spatialement. Plus particulièrement, un amplificateur paramétrique optique a été construit de cette façon et a permis d'amplifier une impulsion très large-bande de trois cycles optiques à  $1.8 \mu\text{m}$  jusqu'à 13 mJ avec 79 mJ de pompe sans aucune perte au niveau de la largeur du spectre. De plus, un montage de génération de seconde harmonique a été construit dans un 4-f et les propriétés de l'impulsion de seconde harmonique sont comparées à celles d'un montage conventionnel. Il a été observé que la génération dans un 4-f annule le couplage fréquentiel et permet d'obtenir un spectre de seconde harmonique qui a une relation avec le spectre fondamental linéaire en phase et quadratique en amplitude, alors que le montage conventionnel utilisant l'espace temporel ne respecte pas ces relations.

**Mots clés** : Optique non-linéaire ; optique ultra-rapide ; optique de Fourier ; laser ; amplificateur non-linéaire ; génération de seconde harmonique.



## ABSTRACT

Nonlinear optics is performed by interacting an intense electric field with matter. This interaction generates new frequencies, which are inaccessible by linear optics. Intense electric field can be obtained by using ultrashort pulses that are in the order of the femtosecond. However, time-frequency relation shows that this type of pulse has a large bandwidth. Hence, it becomes difficult to conserve all spectral properties of the laser pulse due to the nonlinear nature of the operator, in particular in the case of optical parametric amplification and second harmonic generation. This master thesis presents a new approach for nonlinear optics which divides this operator on multiples shorter bandwidth in a parallel manner to conserve all spectral properties. To do so, a 4-f setup was built and nonlinear propagation is realized in a plane where the spectrum is dispersed on a spatial axis. In particular, an optical parametric amplifier was built in this manner to amplify a three cycles bandwidth at  $1.8 \mu\text{m}$  to 13 mJ with the use of 79 mJ of pumping without losing any spectrum. Moreover, a second harmonic generation setup was built in a 4-f and is compared with a regular setup. It will be shown that the generation in the 4-f setup suppresses the frequency coupling during the nonlinear propagation thus the second harmonic spectrum has a relation with the fundamental spectrum that is linear in phase and quadratic in amplitude, while the conventional setup in the temporal domain did not conserve these properties.

**Keywords** : Non-linear optics ; Ultrafast optics ; Fourier optics ; Laser ; Non-linear amplifier ; Second harmonic generation.



# TABLE DES MATIÈRES

Remerciements . . . . .	iii
Résumé . . . . .	v
<i>Abstract</i> . . . . .	vii
Table des matières . . . . .	ix
Liste des figures . . . . .	xiii
Liste des symboles et des acronymes . . . . .	xvi
<b>1 Introduction . . . . .</b>	<b>1</b>
<b>2 Théorie . . . . .</b>	<b>5</b>
2.1 Susceptibilité électrique . . . . .	5
2.1.1 Définitions . . . . .	5
2.1.2 Biréfringence . . . . .	6
2.1.3 Dispersion . . . . .	8
2.1.4 Mélange à trois ondes . . . . .	10
2.1.5 Accord de phase . . . . .	13
2.1.6 Génération de seconde harmonique . . . . .	15
2.1.7 Amplification paramétrique optique . . . . .	16
2.1.8 Mélange à quatre ondes . . . . .	19
2.2 Mesure de durées par FROG . . . . .	21
2.2.1 Fenêtrage optique résolu en fréquences . . . . .	22
2.2.2 Génération de seconde harmonique-FROG . . . . .	23
2.2.3 Réseau transitoire-FROG . . . . .	23
2.3 Étireur 4-f . . . . .	24
2.3.1 Fonctionnement . . . . .	24
2.3.2 Durée au plan de Fourier . . . . .	26
2.3.3 Matrice de Kostenbauder . . . . .	27
<b>3 Amplification paramétrique optique dans le domaine de Fourier (FOPA) . . . . .</b>	<b>33</b>
3.1 Problématique . . . . .	33
3.2 Principe de fonctionnement . . . . .	33

3.3	Travaux antérieurs . . . . .	35
3.3.1	Montage et résultats expérimentaux . . . . .	35
3.3.2	Autres FOPA . . . . .	37
3.4	Objectifs . . . . .	37
3.5	Montage expérimental . . . . .	38
3.5.1	Génération de l’amorce . . . . .	39
3.5.2	Mise en forme de la pompe . . . . .	40
3.5.3	Composants du FOPA . . . . .	41
3.6	Résultats expérimentaux . . . . .	42
3.6.1	Spectre . . . . .	42
3.6.2	Énergie et efficacité . . . . .	43
3.6.3	Profil spatial . . . . .	44
3.6.4	Profil temporel . . . . .	45
3.7	Observations et simulations . . . . .	46
3.7.1	Durée de l’impulsion de pompe . . . . .	46
3.7.2	Synchronisation de l’amorce et de la pompe . . . . .	48
3.8	Considérations futures . . . . .	49
<b>4</b>	<b>Génération de seconde harmonique dans le domaine de Fourier (GSHF) . . . . .</b>	<b>51</b>
4.1	Objectifs . . . . .	51
4.2	Montage expérimental . . . . .	52
4.3	Résultats expérimentaux . . . . .	53
4.3.1	Profil spatial . . . . .	53
4.3.2	Modulation de phase . . . . .	54
4.3.3	Modulation d’amplitude . . . . .	55
4.4	Discussion . . . . .	57
4.4.1	Modèle mathématique . . . . .	57
4.4.2	Modulation de phase . . . . .	58
4.4.3	Modulation d’amplitude . . . . .	60
4.5	Considérations futures . . . . .	62
<b>5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>65</b>

<b>Annexes</b> . . . . .	<b>69</b>
<b>Références</b> . . . . .	<b>69</b>



## LISTE DES FIGURES

1.1	Schématisation de l'amplification par dérive de fréquences. . . . .	2
1.2	Milieux d'amplification laser. Image tirée de [13]. . . . .	3
2.1	Surface d'indice pour un milieu a) uniaxial positif, b) uniaxial négatif et c) biaxial . . . . .	8
2.2	Double réfraction à travers un cristal de calcite, image tirée de [48] . . . . .	9
2.3	Évolution d'une impulsion temporelle avec de la dispersion spectrale : a) sans dispersion, b) dispersion du premier ordre, c) dispersion du deuxième ordre et d) dispersion du troisième ordre . . . . .	10
2.4	Diagramme d'énergie de Jablonski pour les mélanges à trois ondes . . . . .	12
2.5	Évolution de l'amplitude complexe du champ généré quand a) il n'y a pas d'accord de phase, b) un accord de phase par biréfringence et c) un accord de phase par domaines inversés. Chaque flèche noire représente une onde générée dans le cristal non-linéaire sur une longueur infinitésimal $dz$ et la flèche rouge représente l'interférence de toutes ces ondes. . . . .	14
2.6	Différence entre le schéma d'un OPA et d'un NOPA. Chaque rectangle coloré représente une impulsion laser à une fréquence donnée. . . . .	15
2.7	Oscillation de l'intensité des faisceaux dans un OPA en fonction de la longueur pour un accord de phase parfait avec les conditions initiales d'une pompe beaucoup plus intense que le signal et un idler d'une intensité nulle. . . . .	17
2.8	Visualisation temporelle d'une amplification en OPCPA. On remarque que les ailes de l'impulsion à amplifier, qui sont aussi les ailes spectrales, voient une intensité de pompe plus faible. . . . .	19
2.9	Schéma optique d'un réseau transitoire . . . . .	21
2.10	Spectrogrammes GSH-FROG pour une impulsion avec une dispersion de a) 0 fs , b) -2000 fs <sup>2</sup> , c) 2000 fs <sup>2</sup> , d) -75 000 fs <sup>3</sup> et e) 75 000 fs <sup>3</sup> . . . . .	24
2.11	Spectrogrammes RT-FROG pour une impulsion avec une dispersion de a) 0 fs , b) -2000 fs <sup>2</sup> , c) 2000 fs <sup>2</sup> , d) -75 000 fs <sup>3</sup> et e) 75 000 fs <sup>3</sup> . . . . .	25
2.12	Schéma d'un montage 4-f . . . . .	26
2.13	Évolution d'une impulsion dans un montage 4-f dans les quatre domaines $(x, k, t, \nu)$ pour une impulsion se situant à $z$ (a & b) < 0, (c) = 0.33f, (d) = 0.66f, (e) = 1.33f, (f) = 1.66f, (g) = 2.00f, (h) = 2.66f, (i) = 3.66f et (h) = 4.00f. Les lignes de contours s'arrêtent à 0.1%. . . . .	31
3.1	Schéma d'un FOPA . . . . .	34
3.2	Interaction picoseconde dans un a) OPCPA et b) un FOPA . . . . .	34
3.3	Différents profils de spatiaux de pompe pour le FOPA : a) gaussien et b) accru sur les ailes. Adaptée de [62] . . . . .	35
3.4	Suppression de la superfluorescence dans un FOPA. La majorité de la superfluorescence ne se propage pas dans la même direction que l'onde amplifiée. . . . .	36

3.5	Spectre de l'impulsion amplifiée dans le FOPA en fonction du niveau de pompe. Adaptée de [61] . . . . .	37
3.6	Distribution spatiale de l'impulsion au plan de Fourier pour obtenir 100 mJ de moyen infrarouge. . . . .	38
3.7	Schéma de la chaîne laser pour le FOPA . . . . .	39
3.8	Spectres normalisés avant et après la fibre creuse . . . . .	40
3.9	Profil spatial de la pompe du FOPA a) avant la mise en forme et b) après la mise en forme . . . . .	41
3.10	Vue de côté du FOPA . . . . .	41
3.11	Valeur du $\text{sinc}^2(\Delta k L/2)$ pour les BBO utilisés dans le FOPA. La ligne en tirets délimite la séparation entre les deux cristaux dans le plan de Fourier . . . . .	42
3.12	Spectres en sortie de FOPA pour différents niveaux d'amplification. La ligne en tirets illustre la séparation entre les deux cristaux . . . . .	43
3.13	Énergie et efficacité en sortie de FOPA en fonction du niveau de pompage . . . . .	44
3.14	Profil spatial au foyer d'une lentille de 50 cm du faisceau a) d'amorce et b) amplifié. Les images sont prises par absorption à deux photons sur une caméra CCD en silicium. . . . .	45
3.15	Trace FROG reconstituée et profil temporel correspondant de l'amorce . . . . .	46
3.16	Évolution d'une impulsion amplifiée dans un FOPA lorsque la pompe a la même durée que l'amorce (a-c) et lorsqu'elle est plus courte (d-f). a), b), d) et e) présentent l'impulsion au plan de Fourier et c) et f) en sortie. . . . .	47
3.17	Évolution d'une impulsion amplifiée dans un FOPA lorsque la pompe est synchronisée (a-c) et désynchronisée (d-f). a), b), d) et e) présentent l'impulsion au plan de Fourier et c) et f) en sortie. . . . .	49
4.1	GSH pour a) un laser continu, b) une impulsion femtoseconde et c) une impulsion dispersée spatialement . . . . .	51
4.2	Montage expérimental de la GSH dans le plan de Fourier. . . . .	53
4.3	Image du foyer du faisceau de seconde harmonique en GSHF. . . . .	54
4.4	Spectrogrammes RT-FROG pour un faisceau avec une dispersion du second ordre négative généré par a) GSHF et b) GSHT et un faisceau avec une dispersion du second ordre positive généré par c) GSHF et d) GSHT . . . . .	54
4.5	Spectrogrammes RT-FROG pour une impulsion avec une dispersion du troisième ordre pour a) l'onde fondamentale, b) l'onde générée par GSHF et c) l'onde générée par GSHT . . . . .	55
4.6	Phases spectrales reconstruites des ondes fondamentale et de seconde harmonique. Un facteur deux sur les échelles entre les ondes fondamentale et de seconde harmonique est appliqué à des fins de comparaison. . . . .	56
4.7	Spectres de la GSH en fonction de la durée de l'impulsion fondamentale pour une interaction a) dans le domaine du temps et b) dans le domaine des fréquences. . . . .	56
4.8	Spectrogrammes RT-FROG théoriques pour un faisceau avec une dispersion du second ordre négative généré par a) GSHF et b) GSHT et un faisceau avec une dispersion du second ordre positive généré par c) GSHF et d) GSHT. . . . .	59

4.9	Spectrogrammes RT-FROG théorique pour une impulsion avec une dispersion du troisième ordre pour a) l'onde fondamentale, b) l'onde générée par GSHF et c) l'onde générée par GSHT. . . . .	60
4.10	Spectrogrammes RT-FROG théoriques pour la (b-i) GSHF avec un filtre fréquentiel $F_i$ allant de 0.2 nm à 200 nm. a) présente le spectrogramme RT-FROG pour l'onde fondamentale et j) celui de la GSHT. . . . .	61
4.11	Spectres de l'impulsion fondamentale mis au carré (jaune) et lorsqu'on tient compte de sa courbe d'accord de phase (orange), de l'onde de GSHF (noire) et de l'onde de GSHT lorsque l'impulsion initiale n'est pas allongée (violet) et lorsqu'elle l'est à 2 ps (gris). . . . .	62
4.12	Spectre de seconde harmonique sur une carte fluorescente pour un cristal au plan de Fourier trop épais. On observe la fonction $\text{sinc}^2$ en fonction de la fréquence. . . .	62

## LISTE DES SYMBOLES ET DES ACRONYMES

$A$	Amplitude électrique [V/m]
$B$	Champ magnétique [T]
$c$	Vitesse de la lumière [m/s]
$\chi^{(n)}$	Susceptibilité électrique d'ordre $n$ []
$D$	Induction électrique [C/m <sup>2</sup> ]
$d$	Coefficient non-linéaire [m/V]
$\epsilon_0$	Permittivité du vide [F/m]
$\epsilon_r$	Permittivité relative []
$\phi$	Phase [rad]
$\Phi$	Flux de photons [m <sup>-2</sup> · s <sup>-1</sup> ]
$f$	Longueur focale [m]
$g$	Pas du réseau [m]
$H$	Champ magnétique [A/m]
$I$	Intensité [W/m <sup>2</sup> ]
$J$	Densité de courant [A/m <sup>2</sup> ]
$k$	Vecteur d'onde [m <sup>-1</sup> ]
$\lambda$	Longueur d'onde [m]
$L_c$	Longueur du cristal [m]
$M$	Aimantation [A/m]
$m$	Ordre de diffraction []
$\mu_0$	Perméabilité du vide [T · m/A]
$n$	Indice de réfraction []
$\nu$	Fréquence [Hz]
$n_2$	Indice de réfraction non-linéaire []
$P$	Vecteur polarisation [C/m <sup>2</sup> ]
$P_k$	Matrice de projection []
$\theta_d$	Angle de diffraction [rad]
$\theta_i$	Angle d'incidence [rad]
$\rho$	Densité de charges [C/m <sup>3</sup> ]
$R$	Rayon de courbure [m]
$\sigma_t$	Durée de l'impulsion
$t$	Temps [s]
$\tau$	Délai [s]
$v_f$	Vitesse de phase [m/s]
$v_g$	Vitesse de groupe [m/s]
$\omega$	Pulsation [rad · Hz]
$w_{in}$	Taille du faisceau [m]
$x$	Position transverse [m]

ALLS	Ang., Advanced Laser Light Source
BBO	Ang., Beta borate de barium
CCD	Ang., Charged Coupled Device
CEP	Ang., Phase entre l'enveloppe et la porteuse
CPA	Ang., Amplification par dérive de fréquences
EEO	Effet électro-optique
EMT	Énergie, matériaux et télécommunications
FOPA	Ang., Amplification paramétrique optique dans le domaine de Fourier
FROG	Ang., Fenêtrage optique résolu en fréquences
GDF	Génération par différence de fréquences
GSF	Génération par somme de fréquences
GSH	Génération de seconde harmonique
GSHF	Génération de seconde harmonique dans le domaine de Fourier
GSHT	Génération de seconde harmonique dans le domaine temporel
INRS	Institut national de la recherche scientifique
NOPA	Ang., Amplification paramétrique optique non-collinéaire
OPA	Ang., Amplification paramétrique optique
OPCPA	Ang., Amplification paramétrique optique par dérive de fréquence
PF	Plan de Fourier
RO	Rectification optique
RT	Réseau transitoire
SPM	Ang., Auto-modulation de phase



# CHAPITRE 1

## INTRODUCTION

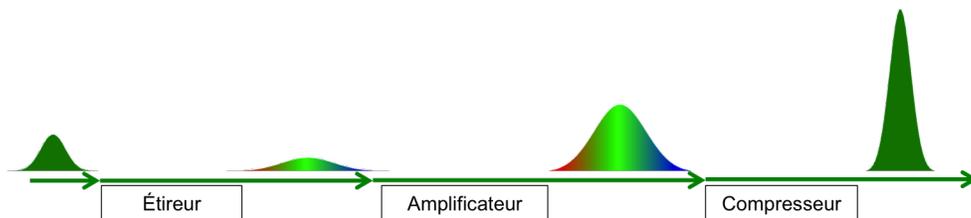
La vision est probablement le sens qui comble le plus le besoin de curiosité de l'homme. Le vieil adage dit qu'il est beaucoup plus aisé de comprendre ce que l'on peut voir. Cependant, l'oeil humain est limité à l'observation de la gamme spectrale dite visible (400 nm-780 nm) et limité par son pouvoir de séparation (environ une minute d'arc). Afin de dépasser cette limite, l'homme a développé des outils pour contrôler la lumière et mieux observer la nature qui l'entoure. Ces outils ont permis de comprendre les comportements de la lumière comme la réfraction, la réflexion, la diffusion, etc. Au XX<sup>e</sup> siècle, les expériences sur l'effet photoélectrique ont permis de comprendre que la lumière se comporte comme des particules de lumière appelés photons [1]. Chaque photon possède sa propre énergie  $E$  qui est reliée à sa fréquence  $\nu$  grâce à la constante de Planck :  $E = h\nu$ . Les phénomènes qui conservent l'énergie de ces photons sont classés par les physiciens comme étant de l'optique linéaire. À l'inverse, l'optique non-linéaire est une classification qui regroupe tous les phénomènes de *chimie des photons* : deux photons identiques fusionnent ensemble pour n'en faire qu'un avec le double d'énergie ou encore un photon de grande énergie se scinde en deux photons de moindre énergie.

Une des premières démonstrations théoriques d'un effet non-linéaire est l'absorption de deux photons par Maria Göppert-Mayer en 1931 [2]. L'absorption à deux photons est un processus où un électron est promu à un niveau supérieur en absorbant l'énergie de deux photons simultanément. Cependant, il a fallu attendre plusieurs années avant la première observation expérimentale de l'optique non-linéaire car la probabilité d'occurrence dépend de la présence de plusieurs photons au même moment, c'est-à-dire qu'il faut utiliser des sources lumineuses très intenses pour pouvoir voir un effet non-linéaire.

Ces sources très intenses sont apparues avec l'avènement du laser en 1960 [3] et ont permis la première démonstration expérimentale de l'absorption à deux photons qui a été réalisée par Kaiser *et al.* [4]. De plus, pour la première fois, il a été possible d'observer la génération d'une nouvelle fréquence [5]. Celle-ci était le double de celle du laser utilisé. Aujourd'hui, on appelle ce phénomène génération de seconde harmonique (GSH). La génération de seconde harmonique est l'équivalent de l'absorption à deux photons sauf qu'elle se fait vers un état virtuel au lieu de réel forçant ainsi une désexcitation instantanée de l'électron qui émet un photon avec le double d'énergie. Par la suite, un ensemble de phénomènes non-linéaires a été observé, permettant d'accéder à des fréquences inaccessible par amplification laser. Le développement de la technologie laser a grandement contribué au développement de l'optique non-linéaire en offrant des sources de plus en plus intenses.

Un de ces développements technologiques clés dans l'histoire du laser est l'arrivée du blocage de modes. Cette technique consiste à faire interférer constructivement tous les modes longitudinaux d'une cavité laser. Cet exploit est réalisé en gérant la dispersion de chacun de ces modes ainsi

qu'en favorisant leur propagation sous forme d'impulsion ultra-courte d'une durée inférieure à la picoseconde [6]. Au fur et à mesure que le développement de la technologie permettait d'augmenter l'énergie de ces impulsions ainsi que de diminuer leur durée, celles-ci sont devenues beaucoup trop intenses pour pouvoir être amplifiées de façon conventionnelle sans endommager les cristaux d'amplification. Pour contourner ce problème d'intensité, l'amplification par dérive de fréquences a été inventée [7]. Cette technique peut être décrite schématiquement en trois étapes : a) l'impulsion est étirée temporellement via l'ajout de dispersion. Pour cela, un couple de réseaux de diffraction est utilisé. Ce dispositif est appelé étireur. b) Une fois étirée, son intensité pic est fortement diminuée ; l'amplification est alors possible. c) L'impulsion amplifiée est compressée en compensant la dispersion initialement ajoutée, via un second couple de réseaux. Ce dispositif est appelé compresseur. L'amplification d'une impulsion laser par dérive de fréquences est illustrée à la figure 1.1.



**FIGURE 1.1 – Schématisation de l'amplification par dérive de fréquences.**

Un montage classique utilisé pour étirer des impulsions est le montage 4-f [8]. Celui-ci a la particularité de disperser les différentes composantes spectrales d'une impulsion dans un plan appelé plan de Fourier. Cette propriété est utilisée abondamment pour manipuler la phase et l'amplitude spectrale d'une impulsion [9–11] afin de générer le profil temporel. Cependant, cette manipulation spectrale dans un 4-f n'a été que linéaire jusqu'à présent. Dans le cadre de ce mémoire, le dispositif 4-f sera utilisé pour deux interactions non-linéaires. Comme nous le verrons, la séparation spatiale des différentes fréquences permettra de s'affranchir des contraintes usuelles de l'interaction non-linéaire large bande. Ces deux interactions seront l'amplification paramétrique optique (OPA, *ang.*) [12] et la GSH. On classifiera ces interactions comme étant de l' "optique non-linéaire dans le domaine des fréquences." Ce nouveau type d'interaction n'est pertinent que dans le domaine de l'optique ultra-court : il ne s'applique donc qu'aux impulsions larges bandes.

Tout d'abord, l'OPA et son complément, la génération par différence de fréquences (GDF), sont des outils indispensables en optique ultra-rapide. En effet, ils permettent d'atteindre des plages spectrales où aucun matériau d'amplification linéaire est en mesure de générer des impulsions femtosecondes et énergétiques. La figure 1.2 illustre que le nombre de milieux de gain laser supportant des bandes spectrales femtosecondes est très faible et qu'il y a un trou important dans la gamme de l'infrarouge moyen. Il est à noter que cette figure n'est pas à jour sur les derniers milieux de gain et que des milieux à base de chalcogénure permettent de combler ce trou. Cependant, ceux-ci ne permettent pas encore des impulsions très énergétiques. Pour atteindre ces gammes spectrales avec des impulsions femtosecondes, il faut utiliser des processus non-linéaires qui permettent de changer la fréquence du laser.

Atteindre le moyen infrarouge avec des impulsions intenses de quelques cycles optiques est perti-

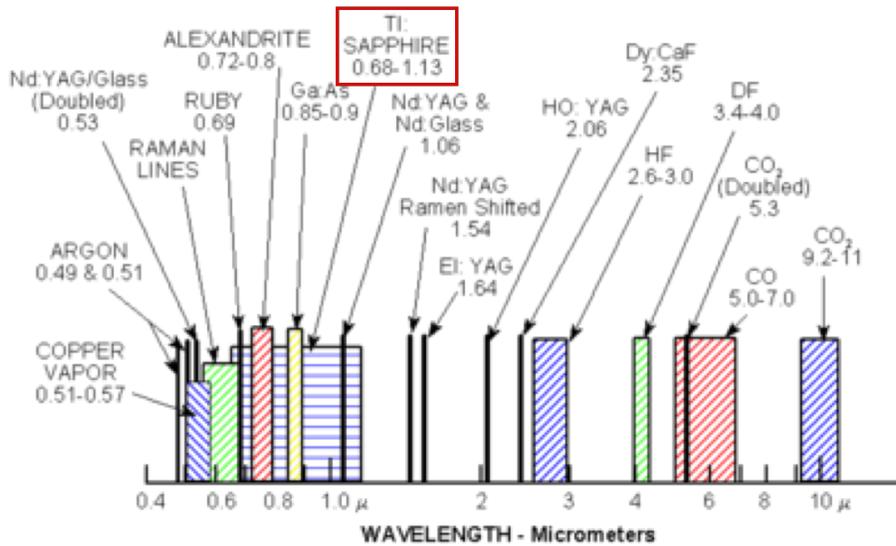


FIGURE 1.2 – Milieux d'amplification laser. Image tirée de [13].

ment en chimie et en physique ultra-rapide. Ces lasers sont utilisés pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz [14–17] et dans les solides [18–20] de même qu'en spectroscopie vibrationnelle [21, 22]. Grâce à la GDF, il est possible d'atteindre le moyen infrarouge et l'OPA permet d'augmenter l'énergie de l'impulsion. Toutefois, des problèmes d'intensité dans les cristaux comme dans l'amplification linéaire surviennent et la même stratégie d'amplification par dérive de fréquences est employée afin de les contourner. Cela donne lieu à un montage dit d'OPCPA [23]. Grâce à cette méthode, des impulsions dans le moyen infrarouge très intenses ont été amplifiées jusqu'au niveau du mJ et avec moins de trois cycles optiques [24–32]. Toutefois, dû à la nature limitative des cristaux non-linéaire, des spectres plus larges et donc des impulsions plus courtes n'ont pas pu être amplifiés directement par cette méthode. Pour réussir cet exploit, il a fallu avoir recours à des montages séquentiels d'OPCPA où chaque amplificateur amplifie sa propre bande spectrale [33–38]. Cependant, ce genre de montage optique est souvent très compliqué et peu polyvalent. Dans ce mémoire, une méthode plus simple et polyvalente est utilisée pour remplir cette tâche et est appelée OPA dans le domaine de Fourier (FOPA). En quelques mots, cette technique permet l'amplification parallèle des différentes composantes spectrales de l'impulsion grâce à un 4-f permettant ainsi l'utilisation de plus d'un cristal à la fois.

La deuxième section de ce mémoire s'attarde à la GSH effectuée dans un 4-f. En optique ultra-rapide, la GSH est un outil utilisé afin d'atteindre des fréquences dans le bleu jusqu'à l'ultraviolet, des gammes spectrales qui sont inaccessibles avec des bandes spectrales femtosecondes par amplification linéaire. Atteindre ces gammes spectrales est pertinent pour exciter des systèmes atomiques et moléculaires en spectroscopie [39, 40], pour imiter des phénomènes d'asymétrie de phases en combinant une onde fondamentale avec sa seconde harmonique [41, 42], pour générer des faisceaux à polarisation circulaire par génération d'harmoniques d'ordre élevé [43, 44] ou pour perturber la génération d'harmoniques d'ordre élevé et obtenir des harmoniques paires et ainsi contrôler *in situ* la génération [19, 45]. En général, ces faisceaux de seconde harmonique sont difficilement manipu-

lables car la plupart des matériaux absorbent dans cette région. Dès lors, il n'existe aucun montage permettant de mettre en forme une impulsion dans cette gamme spectrale. En effectuant la GSH dans un 4-f, ces faisceaux sont manipulés plus aisément et il devrait être possible de transférer directement toute la technologie de mise en forme d'impulsions dans l'infrarouge vers l'ultraviolet.

Afin de bien comprendre le fonctionnement de ces deux phénomènes non-linéaires dans un montage 4-f, les bases de l'optique non-linéaire ainsi que le fonctionnement d'un 4-f sont revus dans la première section de ce mémoire. Puis, les résultats de ces deux expériences sont élaborés. Ce mémoire se conclut sur une discussion plus générale sur l'optique non-linéaire dans le domaine des fréquences.

# CHAPITRE 2

## THÉORIE

### 2.1 Susceptibilité électrique

Cette section vise à expliquer les aspects théoriques d'une onde électromagnétique se propageant dans un milieu polarisable de façon linéaire et non-linéaire. Les démarches suivantes sont inspirées de [46, 47].

#### 2.1.1 Définitions

Lorsqu'un champ électrique oscillant  $E(t)$  se propage dans un milieu, celui-ci déplace les nuages électroniques et forme un dipôle  $p(t) = qx(t)$ , où  $q$  représente la charge électrique et  $x$  le déplacement du nuage électronique par rapport à sa position initiale. Si le champ électrique n'est pas trop intense, alors ce déplacement est proportionnel au champ  $E(t)$  et le dipôle se comporte comme un ressort. C'est cette dynamique qui régit la propagation linéaire de la lumière. Toutefois si le champ électrique devient trop intense, le déplacement du nuage électronique n'est plus proportionnel à  $E(t)$  et des composantes anharmoniques commencent à apparaître. Ce sont ces composantes qui expliquent l'optique non-linéaire. Pour comprendre les effets macroscopiques de ces dipôles, il faut introduire le vecteur polarisation du milieu  $\vec{P}$  qui peut être représenté comme étant une moyenne volumique des dipôles  $\vec{p}$  microscopiques. On exprime ce vecteur en fonction du champ électrique par un développement en puissance comme suit :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left( \chi^{(1)} \cdot \vec{E}(t) + \chi^{(2)} \cdot \vec{E}(t) \otimes \vec{E}(t) + \chi^{(3)} \cdot \vec{E}(t) \otimes \vec{E}(t) \otimes \vec{E}(t) + \dots \right), \quad (2.1)$$

où  $\epsilon_0$  représente la permittivité du vide,  $\chi$  les tenseurs de susceptibilité électrique et  $\otimes$  un produit tensoriel. Le terme en  $\chi^{(1)}$  est responsable de phénomènes de propagation dits linéaires tels que l'indice de réfraction et l'absorption. Les termes  $\chi$  d'ordres supérieurs sont responsables des effets non-linéaires. Les sections suivantes s'intéressent à ce vecteur polarisation du milieu dans son aspect linéaire puis non-linéaire. La suite du développement s'appuiera aussi sur les équations de Maxwell

qui sont rappelées ici :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D}(t) = \rho(t) \quad (2.2a)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(t) = 0 \quad (2.2b)$$

$$\nabla \times \vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t} \quad (2.2c)$$

$$\nabla \times \vec{H}(t) = \vec{J}(t) + \frac{\partial \vec{D}(t)}{\partial t} \quad (2.2d)$$

$$\vec{D}(t) = \epsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}(t) \quad (2.2e)$$

$$\vec{B}(t) = \mu_0 (\vec{H}(t) + \vec{M}(t)) \quad (2.2f)$$

où  $\vec{D}$  est l'induction électrique,  $\rho$  est la densité de charges électriques,  $\vec{B}$  et  $\vec{H}$  sont appelés champs magnétiques,  $\vec{J}$  est la densité de courant,  $\mu_0$  est la perméabilité du vide et  $\vec{M}$  est l'aimantation. Dans le reste de ce mémoire, on considérera que  $\rho$ ,  $\vec{J}$  et  $\vec{M}$  sont nulles. À partir des équations 2.2c et 2.2d, on peut dériver l'équation d'onde en utilisant l'identité vectorielle  $\nabla \times (\nabla \times \vec{E}) = \nabla (\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E}$  :

$$\nabla (\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2}$$

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \quad (2.3)$$

Notons que le premier terme ( $\nabla (\vec{\nabla} \cdot \vec{E})$ ) est nul en optique linéaire à cause des équations 2.2a et 2.2e (en assumant  $\rho = 0$ ) et en optique non-linéaire il est négligeable face au deuxième terme  $\nabla^2 \vec{E}$ .

## 2.1.2 Biréfringence

Pour commencer, considérons uniquement la portion linéaire du vecteur polarisation du milieu. Ainsi, l'équation d'onde peut s'exprimer comme suit :

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (2.4)$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide et  $\epsilon_r = 1 + \chi^{(1)}$  est la permittivité relative du milieu. D'ordinaire, on présente l'indice de réfraction comme étant  $n = \sqrt{\epsilon_r}$ . Toutefois, cette définition est uniquement valide pour des milieux isotropes. Si le milieu est anisotrope, l'indice de réfraction dépend de la direction de l'onde électromagnétique car la permittivité relative s'exprime comme un tenseur d'ordre deux, diagonalisable.

$$\epsilon_r = \begin{bmatrix} n_x^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_y^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_z^2 \end{bmatrix}$$

Pour trouver l'indice de réfraction pour une direction donnée, on peut dériver des équations de Maxwell : l'équation de Fresnel et l'équation des modes. Pour ce faire, on suppose une onde avec un vecteur d'onde  $\vec{k}$ , une pulsation  $\omega$ , une amplitude  $A$  et une polarisation  $\vec{e}$  tels que  $\vec{E}(t) = A\vec{e}\exp^{i(\vec{k}\cdot\vec{r}-\omega t)}$ . Par la suite, on utilise la relation de dispersion  $k/n = k_0 = \omega/c$  et l'équation d'onde 2.3 qui devient

$$-(\vec{k}\cdot\vec{E})\vec{k} + k^2\vec{E} = \mu_0\epsilon_0\epsilon_r\omega^2\vec{E} = k_0^2\epsilon_r\vec{E} \quad (2.5)$$

En développant cette dernière équation, on trouve l'équation de Fresnel :

$$\frac{n_x^2 k_x^2}{n^2 - n_x^2} + \frac{n_y^2 k_y^2}{n^2 - n_y^2} + \frac{n_z^2 k_z^2}{n^2 - n_z^2} = 0 \quad (2.6)$$

où les  $k_i$  représentent les composantes  $i$  du vecteur d'onde  $k$  normalisé. Pour utiliser cette équation, on se place dans la condition où une des composantes  $k_i$  est nulle et on trouve l'équation de deux ellipses dont la distance entre l'origine et la surface représente la valeur de l'indice de réfraction. Le fait que le résultat de l'équation de Fresnel donne deux ellipses est lié au fait que le champ électrique peut avoir deux polarisations différentes : chaque polarisation subit son propre indice de réfraction. Si ces deux indices de réfraction sont identiques pour toutes les directions de l'onde, on parle d'un milieu isotrope. Dans le cas contraire, on parle d'un milieu biréfringent. Il existe deux familles de milieux biréfringents. La première est appelée milieu uniaxial, où  $n_z \neq n_x = n_y$ . Si  $n_z > n_x = n_y$  (resp.  $n_z < n_x = n_y$ ), il s'agit d'un milieu uniaxial positif (resp. négatif). La seconde famille est appelée milieu biaxial, où  $n_z > n_y > n_x$ . Pour tous les milieux biréfringents, si la polarisation subit toujours le même indice de réfraction peu importe la direction de l'onde, on dit qu'elle subit un indice de réfraction *ordinaire*. À l'inverse, s'il varie, on parle d'un indice *extraordinaire*. Il existe dans les milieux biréfringents un axe où les deux polarisations subissent le même indice, on appelle cette direction l'axe optique. Dans un milieu uniaxial, cet axe est confondu avec l'axe  $z$ . Dans un milieu biaxial, il existe deux axes optiques qui sont situés dans le plan  $xOz$ . On peut représenter la variation de l'indice de réfraction avec des surfaces, dites d'indices, comme à la figure 2.1.

Numériquement, résoudre l'équation de Fresnel pour trouver l'indice de réfraction n'est pas aisé à cause de ses nombreuses singularités. Cette tâche est plus aisée en utilisant l'équation des modes. Pour la dériver, il faut repartir de l'équation 2.5 et utiliser la définition du champ électrique en fonction de l'induction électrique  $\vec{E} = \epsilon_r^{-1}\vec{D}/\epsilon_0$ . Ainsi,

$$-n^2 k_0^2 (\hat{k}\cdot\vec{E})\hat{k} + n^2 k_0^2 \vec{E} = k_0^2 \frac{\vec{D}}{\epsilon_0}$$

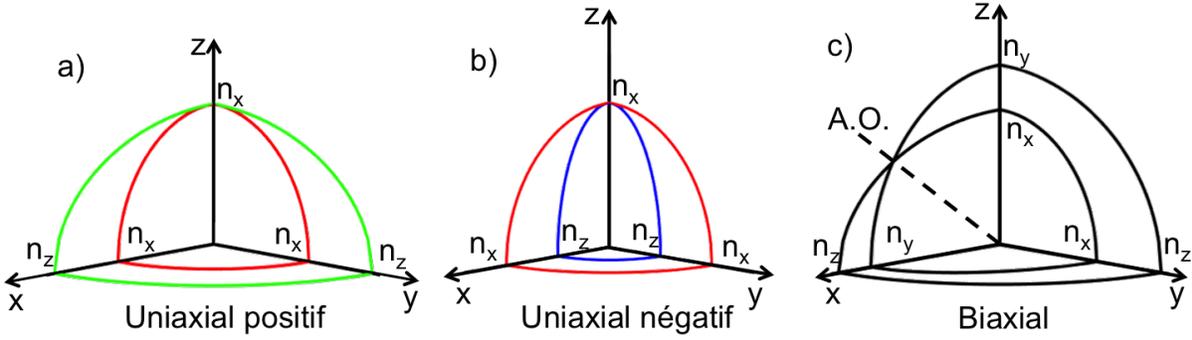


FIGURE 2.1 – Surface d'indice pour un milieu a) uniaxial positif, b) uniaxial négatif et c) biaxial

$$(I - P_k) \cdot \epsilon_r^{-1} \cdot \vec{D} = \frac{\vec{D}}{n^2} \quad (2.7)$$

où,  $I$  est la matrice identité et  $P_k = \hat{k}' \cdot \hat{k}$  est la matrice de projection du vecteur  $\hat{k}$ . Cette équation est une équation au valeur propre ( $\hat{H}|\psi\rangle = \lambda|\psi\rangle$ ) dont les valeurs propres de la matrice  $(I - P_k) \cdot \epsilon_r^{-1}$  sont  $1/n^2$ . Une des trois valeurs propres sera toujours zéro, car un champ électrique ne peut avoir que deux polarisations orthogonales. Les vecteurs propres de cette équation sont les vecteurs  $\vec{D}$  et indiquent la polarisation de l'induction électrique. Il est important de noter que dans un milieu biréfringent le vecteur  $\vec{D}$  n'est plus forcément colinéaire avec  $\vec{E}$ . On peut trouver, en manipulant les équations de Maxwell, que les éléments du triplet  $\vec{k}$ ,  $\vec{D}$  et  $\vec{B}$  sont toujours orthogonaux. Par conséquent, le vecteur de Poynting  $\vec{S}$ , qui est toujours perpendiculaire aux champs  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$ , n'est plus toujours colinéaire avec  $\vec{k}$ . Cette situation apparaît quand la lumière se propage avec une polarisation sur l'axe extraordinaire. Comme le vecteur de Poynting représente la direction du flux de l'énergie, il est possible d'avoir deux faisceaux polarisés orthogonalement qui rentrent avec une incidence normale dans un milieu biréfringent, mais qui en ressortent spatialement séparés. On parle alors de double réfraction telle qu'illustré à la figure 2.2. Ce phénomène est nuisible en optique non-linéaire, car il réduit la longueur d'interaction sur laquelle deux faisceaux ont un bon recouvrement spatial. Pour éviter cet effet nuisible, il faut soit utiliser des cristaux plus courts ou bien des faisceaux plus larges.

### 2.1.3 Dispersion

Dans le vide,  $n(\omega) = 1$ , la relation de dispersion est donc donnée par  $k(\omega) = \omega/c$  et évolue linéairement avec  $\omega$ . Dans des milieux tels que l'air, l'eau ou n'importe quel milieu optique, des effets de dispersion apparaissent, amenant une déformation de l'impulsion. Lorsque la variation de l'indice de réfraction du milieu avec la pulsation est faible, on peut effectuer un développement limité du vecteur d'onde  $k(\omega)$



FIGURE 2.2 – Double réfraction à travers un cristal de calcite, image tirée de [48]

et de la phase spectrale  $\phi(\omega) = k(\omega)L + \phi_0$  au voisinage de la pulsation centrale  $\omega_0$  de l'impulsion :

$$\frac{\phi(\omega) - \phi_0}{L} = k(\omega_0) + \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{d^3k}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.8)$$

Le terme  $\phi_0$  donne la phase de la porteuse du champ électrique au sommet de l'impulsion. Le premier terme d'ordre zéro est lié à la vitesse de phase  $v_\phi = \omega_0/k(\omega_0)$  d'une impulsion. La vitesse de phase représente la vitesse avec laquelle la porteuse en dessous de l'enveloppe se propage. On verra dans une section suivante qu'en optique non-linéaire, il est important de faire coïncider les vitesses de phase des différentes impulsions. Ensuite, le terme de premier ordre est lié à la vitesse de groupe  $v_g = d\omega/dk$  qui représente la vitesse de propagation de l'enveloppe. C'est à cette vitesse que l'énergie dans l'impulsion est transportée. Lors d'un processus non-linéaire, il est nécessaire d'assurer que les différentes impulsions participant au processus aient la même vitesse de groupe, assurant ainsi un recouvrement temporel lors de l'interaction avec le milieu non-linéaire. Ce terme n'a aucune conséquence sur la durée d'une impulsion. Par contre, les termes d'ordre supérieur affectent la durée de l'impulsion. Le terme d'ordre deux, appelé dispersion de la vitesse de groupe, a pour effet d'affecter la phase temporelle d'une impulsion de façon symétrique. Physiquement, on peut expliquer ce phénomène en remarquant que certaines longueurs d'onde se propagent à des vitesses de phase différentes dans le matériau. Si le matériau a une dispersion dite *normale*, les longueurs d'onde bleues se propageront plus lentement que les rouges à l'intérieur de l'impulsion et l'inverse pour une dispersion *anormale*. Si la dispersion initiale à l'intérieur même de l'impulsion est de signe opposé à celle du matériau, il est possible de comprimer l'impulsion temporellement en la propageant dans le matériau. Finalement, le terme d'ordre trois étire une impulsion temporellement de façon asymétrique est généralement positif dans un matériau et difficile à compenser. Ces effets de la phase spectrale sur l'impulsion dans le domaine temporel sont illustrés à la figure 2.3.

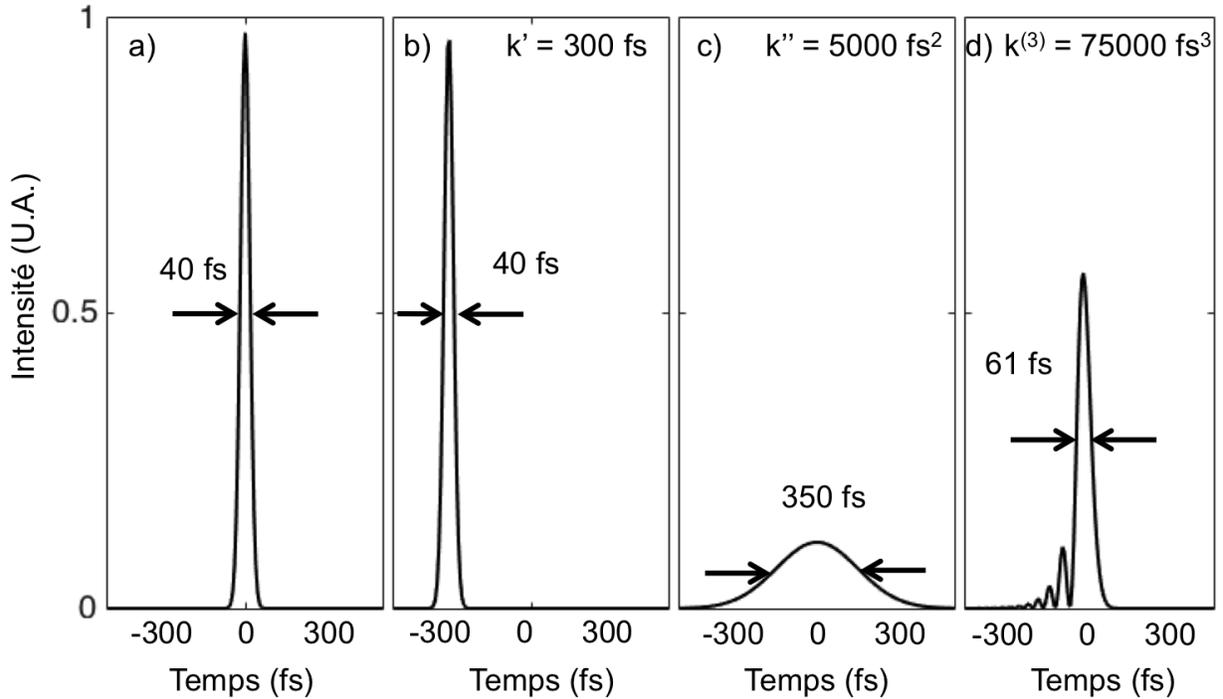


FIGURE 2.3 – Évolution d'une impulsion temporelle avec de la dispersion spectrale : a) sans dispersion, b) dispersion du premier ordre, c) dispersion du deuxième ordre et d) dispersion du troisième ordre

### 2.1.4 Mélange à trois ondes

Dans cette section, on reprend l'équation d'onde 2.3, mais en incluant le vecteur polarisation non-linéaire du milieu  $\vec{P}^{NL}$  d'ordre deux de l'équation 2.1.

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (2.9)$$

Pour simplifier cette équation et comprendre les effets non-linéaires en jeu, on approxime le champ électrique et le vecteur polarisation du milieu comme des ondes planes monochromatiques se déplaçant en  $z$ , i.e.  $\vec{E} = A\vec{e}e^{i(kz-\omega t)}$  et  $\vec{P} = P\vec{e}e^{i(kz-\omega t)}$ . On considère également que l'enveloppe varie lentement par rapport à la longueur d'onde :  $\frac{d^2 A}{dz^2} \ll k \frac{dA}{dz}$ . À cause de ces deux approximations, ces équations sont très mal adaptées pour la propagation non-linéaire d'impulsions ultra-courtes. Néanmoins, ces approximations permettent d'obtenir un résultat analytique qui autrement devrait être trouvé numériquement, comme cela a été fait par Brabec et Krausz [49]. En faisant les approximations décrites plus haut et en supposant que trois champs électriques ( $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$ ) sont impliqués dans la propagation non-linéaire, l'équation d'onde se développe comme :

$$\begin{aligned}
\nabla^2 \vec{E}_3 - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_3}{\partial t^2} &= \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( \chi^{(2)} \otimes \vec{E}_1 \vec{E}_2 \right) \\
\nabla^2 \vec{E}_3 + \frac{\epsilon_r \omega_3^2}{c^2} \vec{E}_3 &= -\frac{\omega_3^2}{c^2} \left( \chi^{(2)} \otimes \vec{E}_1 \vec{E}_2 \right) \\
\left[ \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_3 \frac{\partial}{\partial z} - k_3^2 + k_3^2 \right] A_3 \vec{e}_3 e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} &= -k_{0,3}^2 \chi^{(2)} \otimes \vec{e}_1 \vec{e}_2 A_1 A_2 e^{i((k_1+k_2)z - (\omega_1+\omega_2)t)} \\
\vec{e}_3 \frac{dA_3}{dz} &= \frac{ik_{0,3} \chi^{(2)}}{2n_3} \otimes \vec{e}_1 \vec{e}_2 A_1 A_2 e^{i(\Delta k z - \Delta \omega t)} \tag{2.10}
\end{aligned}$$

où on a introduit les paramètres  $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$  appelé l'accord de phase et  $\Delta \omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$  appelé l'accord d'énergie. Ces paramètres sont le reflet des principes physiques de la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie respectivement. D'ordinaire, on laisse tomber l'aspect vectoriel de cette équation en effectuant les produits avec le tenseur  $\chi^{(2)}/2$  et on introduit le paramètre non-linéaire effectif,  $d_{eff}$ , défini à l'équation 2.11. Les paragraphes suivants vont détailler cette équation en développant les paramètres suivants : le paramètre non-linéaire, l'accord d'énergie, la relation des phases absolues et l'accord de phase.

$$d_{eff} = \vec{e}_3' \cdot \left( \frac{\chi^{(2)}}{2} \otimes \vec{e}_1 \vec{e}_2 \right) \tag{2.11}$$

Le tenseur  $\chi^{(2)}$  est le paramètre qui dicte l'efficacité du processus non-linéaire d'ordre deux. Dans la plupart des matériaux, ce tenseur est nul, car il faut que le milieu soit non-centrosymétrique : il existe une dissymétrie spatiale des charges. Cette condition exprime que le milieu possède une préférence à être polarisé par un champ électrique positif par rapport à un champ négatif. Si cette condition n'est pas remplie, l'onde non-linéaire générée par le champ positif aura tendance à interférer destructivement avec l'onde générée par le champ négatif. Ainsi, les effets non-linéaires d'ordre deux sont effectués dans des cristaux ou dans des zones d'interactions très fines pour éviter ce genre de phénomènes d'interférences destructives. Cet argument est valide pour toute polarisation non-linéaire d'ordre pair. Fait intéressant, une excitation sur un axe peut en générer une autre sur un autre axe car le tenseur d'ordre trois non-linéaire  $d = \chi^{(2)}/2$  possède des termes hors-diagonaux. Comme c'est un tenseur d'ordre trois, il faudrait 27 éléments pour le représenter. Toutefois, à cause de la symétrie du problème comme la permutation des champs électriques, il est possible de diminuer ce nombre à 18 éléments indépendants. Ce nombre peut être encore réduit en utilisant la symétrie du cristal et usuellement un cristal n'a que deux ou trois éléments indépendants. Typiquement,  $d$  est représenté comme une matrice 3x6 où chaque ligne représente les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$  et les colonnes représentent deux champs polarisés en (1)  $x$  et  $x$ , (2)  $y$  et  $y$ , (3)  $z$  et  $z$ , (4)  $y$  et  $z$ , (5)  $x$  et  $z$  et (6)  $x$  et  $y$ . Ce tenseur est utilisé afin de déterminer le vecteur polarisation du milieu à partir des champs électriques incidents comme présenté à l'équation 2.12. En étudiant ce tenseur, on peut savoir la force du phénomène non-linéaire et les polarisations nécessaires pour le réaliser. Par exemple, le paramètre  $d_{16} = d_{21}$  du BBO vaut 2.2 pm/V et  $d_{33}$  du LiNbO<sub>3</sub> vaut 28 pm/V [50] par contre ce dernier est difficile à exploiter à cause

des relations de polarisations comme il sera présenté à la section sur l'accord de phase.

$$\begin{bmatrix} P_{3x} \\ P_{3y} \\ P_{3z} \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{1x}E_{2x} \\ E_{1y}E_{2y} \\ E_{1z}E_{2z} \\ E_{1y}E_{2z} + E_{1z}E_{2y} \\ E_{1x}E_{2z} + E_{1z}E_{2x} \\ E_{1x}E_{2y} + E_{1y}E_{2x} \end{bmatrix} \quad (2.12)$$

Le prochain paramètre étudié de l'équation 2.10 est l'accord d'énergie  $\Delta\omega$ . Pour ne pas obtenir une solution oscillante dans le temps, ce paramètre doit absolument être nul. Cependant, il existe différentes combinaisons qui permettent de remplir cette condition. En fait jusqu'à présent, nous n'avons considéré que des champs électriques complexes et avons omis son complexe conjugué qui transporte une fréquence "négative". En effet, un champ électrique est toujours réel et donc il possède à la fois la fréquence positive et négative. Cet ajout permet de classifier les effets non-linéaires à trois ondes selon la fréquence générée. La figure 2.4 résume toutes ces possibilités dans des diagrammes d'énergie de Jablonski. La définition des acronymes est la suivante : amplification paramétrique optique (OPA, *ang.*), génération par différence de fréquences (GDF), génération de seconde harmonique (GSH), génération par somme de fréquences (GSF), rectification optique (RO) et effet électro-optique (EEO).

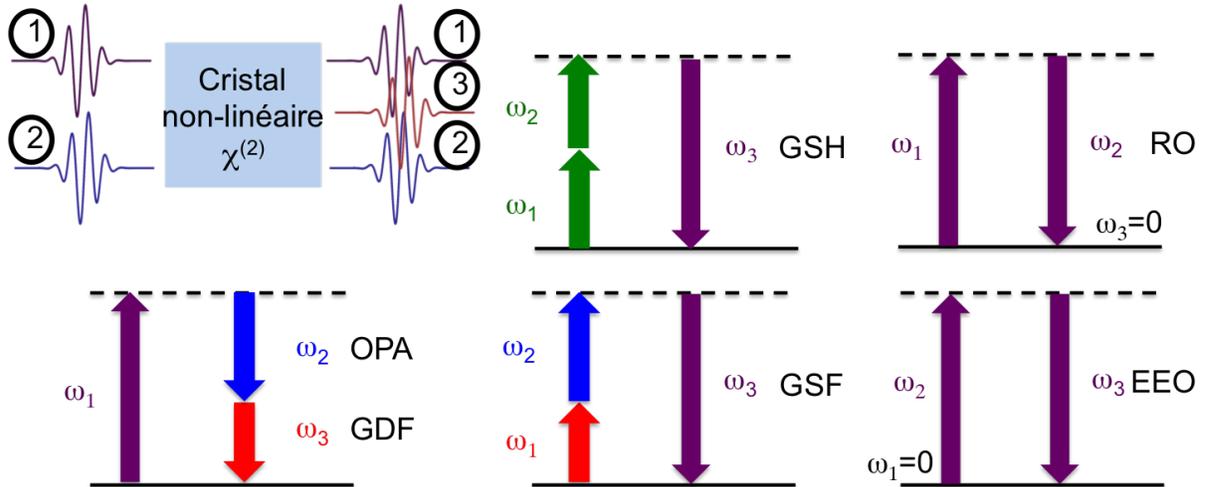


FIGURE 2.4 – Diagramme d'énergie de Jablonski pour les mélanges à trois ondes

Finalement, le dernier paramètre de l'équation 2.10 développé dans cette section est la relation de phase entre les ondes. Dans l'exemple donné dans l'équation 2.10, qu'on peut maintenant identifier comme étant une GSF, on voit que l'amplitude  $A$  complexe du champ 3 dépend du champ 1 et du champ 2 donc on peut écrire que la relation de phase est la suivante [51] :  $\phi_3 = \phi_1 + \phi_2 + \pi/2$ , où  $\pi/2$  provient du fait que les champs 1 et 2 sont multipliés par  $i$ . Pour généraliser cette équation aux autres phénomènes non-linéaires, il suffit de changer le signe de  $\phi_i$  à chaque fois qu'on utilise  $A_i^*$  au lieu de  $A_i$ .

### 2.1.5 Accord de phase

L'accord de phase  $\Delta k$  est le paramètre le plus important expérimentalement de l'équation 2.10. L'accord de phase est un paramètre qui décrit physiquement sur quelle distance les trois ondes restent en phase. Si l'accord de phase est non-nul, alors l'onde générée, en milieu de propagation, par effet non-linéaire commencera à interférer destructivement avec l'onde générée en début de propagation. Comme pour l'accord d'énergie, on va vouloir que ce paramètre soit nul avec une certaine tolérance. Si on développe l'accord de phase  $\Delta k = 2\pi(n_1/\lambda_1 + n_2/\lambda_2 - n_3/\lambda_3) = 0$ , où  $k = n/\lambda$ , on remarque que le seul paramètre libre pour réussir l'accord de phase entre les trois ondes est l'indice de réfraction, les longueurs d'onde sont fixées par l'accord d'énergie. À cause de la dispersion des matériaux exposés à la section 2.1.3 il est quasiment impossible d'obtenir un accord de phase dans un milieu isotrope. La stratégie est alors d'utiliser des cristaux biréfringents et de profiter du fait qu'ils ont deux courbes de dispersion. On oriente ces milieux de façon à ce que l'accord de phase soit réalisé. Pour profiter de ces deux courbes de dispersion, il faut absolument qu'un des champs ait une composante orthogonale aux autres. On classe les interactions non-linéaires selon le schéma des polarisations en jeu. Si les trois champs ont la même polarisation, on parle d'un type 0. Ce type d'interaction est impossible dans un milieu dispersif, donc il n'est pas possible d'utiliser le paramètre non-linéaire  $d_{33}$  du  $\text{LiNbO}_3$  par ce genre de schéma. Si la fréquence la plus élevée est polarisée perpendiculairement aux deux autres, on parle d'une interaction de type I. Enfin, si les deux fréquences les plus faibles sont polarisées perpendiculairement, on parle d'une interaction de type II. Il est à noter que l'accord de phase est en fait une relation vectorielle, il est donc possible de faire interagir des ondes dans des directions différentes tant que la somme vectorielle de l'accord de phase est nulle. Pour une interaction fortement non-colinéaire, le recouvrement spatial lors de la propagation des différents faisceaux est faible. Cela limite la longueur effective de propagation non-linéaire.

Une autre stratégie pour obtenir l'accord de phase est de venir changer périodiquement le signe du champ généré exactement au moment où l'onde commence à interférer destructivement. Pour réussir à changer le signe du champ généré, on inverse le signe du  $\chi^{(2)}$ . Techniquement, on réalise ceci en appliquant un fort champ statique sur un domaine du cristal, on répète cette inversion de façon périodique pour obtenir un accord de phase dit par domaines inversés ou un quasi-accord de phase. On calcule le pas du domaine  $\Lambda$  tel que l'accord de phase soit nul :  $\Delta k = k_1 + k_2 + k_3 + 2\pi/\Lambda = 0$ . Puisqu'on inverse le domaine tout juste avant que l'onde commence à interférer destructivement, le coefficient non-linéaire est légèrement moins efficace par un facteur  $\pi$ . La figure 2.5 présente l'évolution dans un plan complexe de l'onde générée pour les différentes stratégies d'accord de phase.

En règle générale, l'accord de phase n'est parfaitement nul que pour une seule longueur d'onde. Or, une impulsion femtoseconde est large spectralement. Par conséquent, il faut définir un paramètre pour définir l'accord de phase sur une large bande spectrale. Ce paramètre est l'épaisseur du cristal  $L_c$  et s'obtient en intégrant l'équation 2.10 par rapport à  $z$  et en supposant que les enveloppes  $A_1$  et

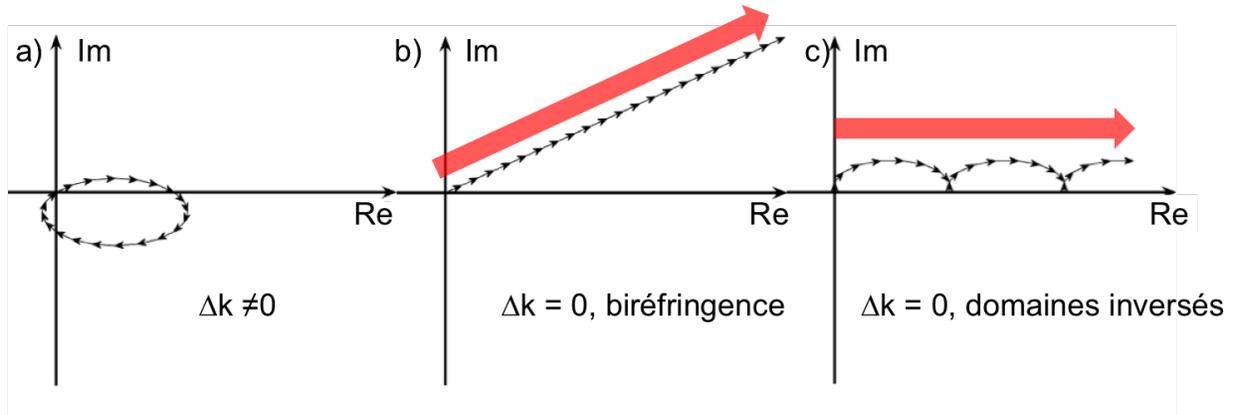


FIGURE 2.5 – Évolution de l’amplitude complexe du champ généré quand a) il n’y a pas d’accord de phase, b) un accord de phase par biréfringence et c) un accord de phase par domaines inversés. Chaque flèche noire représente une onde générée dans le cristal non-linéaire sur une longueur infinitésimal  $dz$  et la flèche rouge représente l’interférence de toutes ces ondes.

$A_2$  varie lentement par rapport à l’exponentielle complexe. On obtient alors l’équation suivante :

$$I_3 \propto \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k L_c}{2} \right) \quad (2.13)$$

où  $I_3 \propto |A_3|^2$  est une intensité. Typiquement, on dit qu’il y a encore accord de phase tant que la valeur  $\text{sinc}^2$  est supérieure à 0.5, ce qui correspond à une largeur spectrale de 70 fs pour doubler du 800nm pour un cristal de BBO épais de 0.5 mm. Pour obtenir une idée de la largeur de bande spectrale, on peut faire un développement de Taylor de  $\Delta k$  autour de  $\omega$ .

$$\Delta k(\omega) = \Delta k(\omega_0) + \left. \frac{d\Delta k}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\Delta k}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (2.14)$$

Le terme à l’ordre zéro,  $\Delta k(\omega_0)$ , sera toujours nul et le terme du premier ordre impliquera des expressions du type  $\frac{dk}{d\omega}$  qui est lié à la vitesse de groupe comme présenté dans la section 2.1.3. De ce développement limité, on comprend que la condition d’un accord de phase large bande repose sur l’accord des vitesses de groupe. Il est très difficile d’avoir à la fois un accord de phase et un accord des vitesses de groupes dans un milieu dispersif pour une géométrie colinéaire. En OPA, on donne un léger angle non-colinéaire entre les faisceaux pour que la projection des vitesses de groupe soient identiques et ainsi avoir un accord de phase large-bande ; on parle alors d’un NOPA (Noncollinear OPA)[52, 53]. La figure 2.6 présente le schéma d’un NOPA.

Finalement, une nouvelle technique a récemment été développée pour un accord de phase très large-bande appelée la conversion de fréquence par processus adiabatique [54]. Elle utilise un cristal avec des domaines inversés dont le pas du domaine varie tout le long du cristal. L’objectif est d’avoir un accord de phase qui varie lentement le long de l’axe de propagation du cristal passant d’une valeur négative à positive. Il faut que l’accord de phase varie lentement le long de l’axe de propagation pour

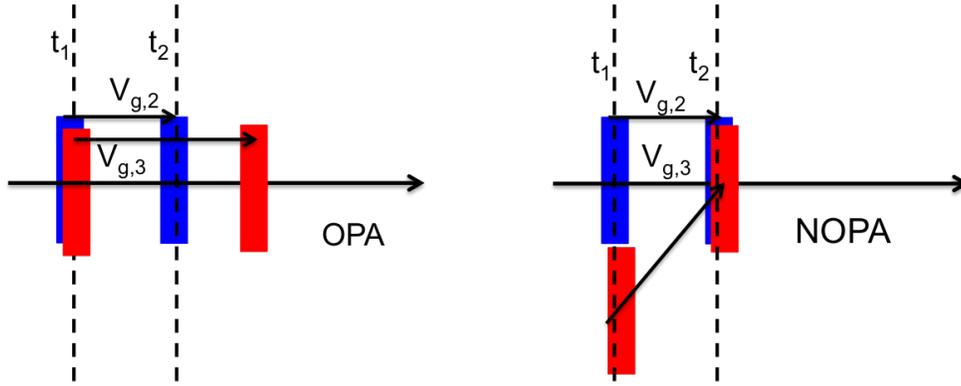


FIGURE 2.6 – Différence entre le schéma d'un OPA et d'un NOPA. Chaque rectangle coloré représente une impulsion laser à une fréquence donnée.

respecter le critère d'adiabaticité :

$$\left| \frac{d\Delta k}{dz} \right| \ll \frac{(\kappa^2 + \Delta k^2)^{\frac{3}{2}}}{|\kappa|} \quad (2.15)$$

où  $\kappa$  est le coefficient de couplage et est lié à  $d_{eff}$ . Pour respecter ce critère, des cristaux longs de quelques cm sont utilisés. Cependant, les impulsions doivent être allongées temporellement jusqu'à plusieurs picosecondes afin d'éviter des effets de vitesses de groupe qui réduisent le recouvrement temporel entre les ondes. Bien que cette méthode soit utilisable dans le cadre de cette maîtrise, elle n'a pas été étudiée.

## 2.1.6 Génération de seconde harmonique

La génération de seconde harmonique est le cas dégénéré des mélanges à trois ondes où deux ondes de même fréquence sont utilisées pour générer une troisième avec le double de la fréquence. Quantiquement, deux photons de pompe fusionnent pour donner un photon deux fois plus énergétique. L'équation 2.10 peut donc se réécrire comme suit :

$$\frac{dA_{2\omega}}{dz} = \frac{ik_{2\omega}d_{eff}}{2n_{2\omega}}A_{\omega}^2 e^{i\Delta kz} \quad (2.16)$$

où les indices  $2\omega$  et  $\omega$  font référence aux faisceaux de seconde harmonique et de pompe respectivement. On peut écrire une équation similaire pour la variation de  $A_{\omega}$ . Cependant, on se place généralement dans la condition de pompe non appauvrie et on approxime cette dérivée comme étant nulle. La condition de pompe non appauvrie correspond à la condition où l'énergie de pompe est des ordres de grandeur supérieure à l'énergie du faisceau de seconde harmonique. Par conséquent, le transfert d'énergie du faisceau de pompe au faisceau de seconde harmonique est négligeable devant l'énergie initiale du faisceau de pompe. Ainsi, l'équation 2.16 se résout avec la condition initiale

$A_{2\omega}(z = 0) = 0$  pour donner :

$$A_{2\omega} = KA_{\omega}^2 \cdot iz \cdot \text{sinc} \left( \frac{\Delta kz}{2} \right) e^{i\Delta kz} \quad (2.17)$$

où  $K$  est un paramètre de couplage. On retrouve le sinc de l'accord de phase comme attendu. On remarque aussi que l'intensité de la seconde harmonique dépend quadratiquement de la longueur du cristal et de l'intensité du faisceau de pompe. Cette relation quadratique avec la pompe se comprend par le fait que la GSH nécessite deux photons de pompe pour générer un photon de seconde harmonique.

### 2.1.7 Amplification paramétrique optique

L'amplification paramétrique peut être vue comme le processus quantique inverse de la génération de seconde harmonique ou plus généralement de la somme de fréquences : un photon de grande énergie est scindé en deux photons d'énergie plus faible. Pour déterminer avec quel ratio l'énergie est distribuée entre ces deux nouveaux photons, on utilise une autre onde comme intrant du système. Cette deuxième onde, appelée signal, est amplifiée car elle gagne des photons aux dépens de la pompe. Par conservation de l'énergie, une nouvelle onde est générée, celle-ci appelée idler. Si on s'intéresse à l'amplification du signal, on dit qu'on fait de l'OPA, par contre si c'est la génération de l'idler qui importe, alors on dit qu'on fait de la GDF. Toutefois, ces deux processus sont indissociables. Les équations du mélange à trois ondes pour ce phénomène peuvent s'écrire sous la forme du système d'équations couplées suivant :

$$\frac{dA_s}{dz} = \frac{ik_s d_{eff}}{n_s} A_p A_i^* e^{i\Delta kz} \quad (2.18a)$$

$$\frac{dA_i}{dz} = \frac{ik_i d_{eff}}{n_i} A_p A_s^* e^{i\Delta kz} \quad (2.18b)$$

$$\frac{dA_p}{dz} = \frac{ik_p d_{eff}}{n_p} A_s A_i e^{-i\Delta kz} \quad (2.18c)$$

où les indices  $s$ ,  $i$  et  $p$  font référence au signal, à l'idler et la pompe respectivement. Pour uniformiser le système d'équations, on peut faire le changement de variables suivants  $\Phi_i = \sqrt{n_i/\omega_i} A_i$  :

$$\frac{d\Phi_s}{dz} = i\kappa \Phi_p \Phi_i^* e^{i\Delta kz} \quad (2.19a)$$

$$\frac{d\Phi_i}{dz} = i\kappa \Phi_p \Phi_s^* e^{i\Delta kz} \quad (2.19b)$$

$$\frac{d\Phi_p}{dz} = i\kappa \Phi_s \Phi_i e^{-i\Delta kz} \quad (2.19c)$$

$$\kappa = \frac{d_{eff}}{c} \sqrt{\frac{\omega_p \omega_s \omega_i}{n_p n_s n_i}}$$

$\Phi$  est l'équivalent du flux de photons. Les intégrales premières, l'équivalent des constantes du mouvement en mécanique, de ces équations permettent de dériver les relations de Manley-Rowe qui stipulent que :

$$m_i = |\Phi_p|^2 + |\Phi_s|^2 \quad (2.20a)$$

$$m_s = |\Phi_p|^2 + |\Phi_i|^2 \quad (2.20b)$$

où  $m_i$  et  $m_s$  sont des constantes. Physiquement, ces constantes stipulent que le nombre de photons doit rester constant : pour chaque photon de pompe scindé, il faut un photon de signal et un photon d'idler. Il est important de noter qu'en OPA, le processus de génération de somme de fréquences est aussi possible comme le décrit l'équation 2.19c. Dans cette situation, il faut qu'un photon de signal et un d'idler soient utilisés pour générer un de pompe. Ces deux processus, l'OPA et la GSF, sont toujours en compétition et c'est l'intensité relative des faisceaux qui détermine lequel de ces deux phénomènes domine. Si la longueur de propagation le permet, l'intensité de chacun des faisceaux oscille car le processus dominant change tout au long de la propagation. La figure 2.7 présente ce genre d'oscillations. Ainsi, la longueur d'un cristal doit être judicieusement choisie pour éviter ces oscillations.

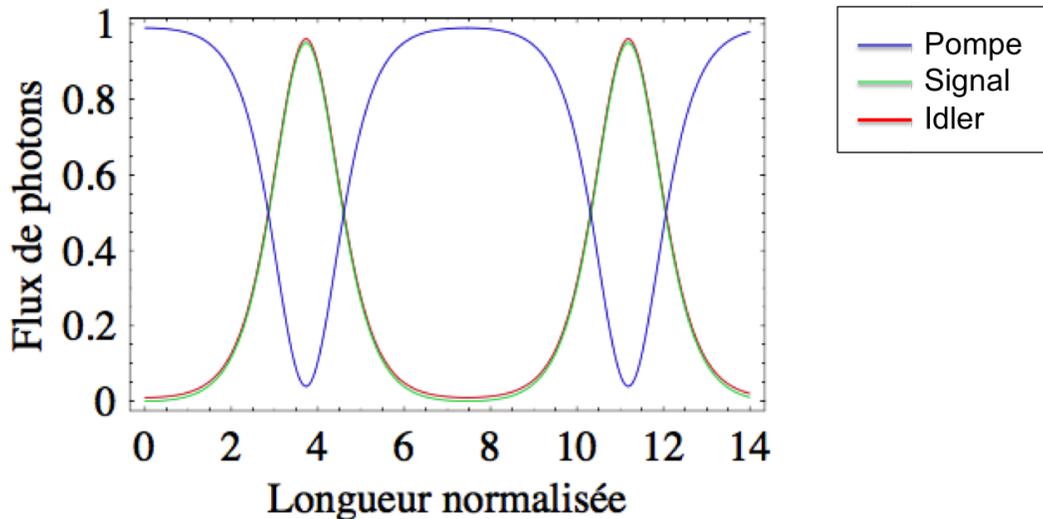


FIGURE 2.7 – Oscillation de l'intensité des faisceaux dans un OPA en fonction de la longueur pour un accord de phase parfait avec les conditions initiales d'une pompe beaucoup plus intense que le signal et un idler d'une intensité nulle.

Un dernier point à noter à propos des équations couplées de l'OPA est la phase de l'idler. Comme on peut le voir dans l'équation 2.19b, l'amplitude de l'idler générée est proportionnel à  $i\Phi_p\Phi_s^*$ . Par conséquent, la phase de l'onde générée peut s'écrire comme  $\phi_i = \phi_p - \phi_s + \pi/2$ , où le  $\pi/2$  provient du  $i$ . Cette relation est très intéressante pour des impulsions de quelques cycles optiques car elle permet de stabiliser la phase de la porteuse sous l'enveloppe (CEP, *ang.*)[51]. En effet, si la phase du signal est dérivée linéairement de la phase de la pompe, alors celle de l'idler est stabilisée passivement

de toutes fluctuations de la phase de la pompe en amont du processus de GDF. Pour s'assurer que la phase du signal reste une relation linéaire de la phase de la pompe, il est important de stabiliser la génération du signal (souvent réalisée grâce à un supercontinuum) et la différence de parcours optique entre ces deux ondes.

Les équations de l'OPA ne peuvent se résoudre analytiquement sans faire des approximations. Normalement, on fait les approximations de la pompe non appauvrie  $\frac{d\Phi_p}{dz} = 0$  et de l'accord de phase parfait  $\Delta k = 0$  et on utilise les conditions initiales  $\Phi_s(z = 0) = \Phi_{s0}$  et  $\Phi_i(z = 0) = 0$  pour résoudre les équations :

$$\Phi_s(z) = \Phi_{s0} \cosh(\kappa |\Phi_p| z) \quad (2.21a)$$

$$\Phi_i(z) = i\Phi_{s0} \sinh(\kappa |\Phi_p| z) \quad (2.21b)$$

Comme on considère l'amplitude de pompe constante, il n'est pas possible de voir les oscillations de la figure 2.7. Par contre, on peut voir que dans le cas limite où  $z$  tend vers l'infini, les flux de photons sont similaires car l'apport initial de  $\Phi_{s0}$  devient négligeable et que les photons de signal et d'idler sont générés en paires (conditions de Manley-Rowe).

Dans la situation où l'accord de phase n'est pas parfait, l'équation a aussi une solution analytique, mais elle n'est pas simple à analyser. À la place, on peut refaire l'approximation qui mène au sinc de l'équation 2.13 et développer le terme  $\Delta k$  en série de Taylor :

$$\begin{aligned} 0 = \Delta k &\approx \Delta k(\omega_s) + \frac{d\Delta k}{d\omega_s} \cdot (\omega - \omega_s) + \dots \\ 0 &\approx -\frac{dk_s}{d\omega_s} - \frac{dk_i}{d\omega_s} \\ 0 &\approx -\frac{dk_s}{d\omega_s} - \frac{dk_i}{d\omega_i} \frac{d\omega_i}{d\omega_s} \\ 0 &\approx \frac{1}{v_{gi}} - \frac{1}{v_{gs}} \end{aligned} \quad (2.22)$$

Ainsi, pour réaliser un OPA large bande, il faut que les vitesses de groupe du signal et de l'idler soient similaires. Cette situation est toujours vraie dans le cas dégénéré où  $\omega_s = \omega_i$ , mais cette situation n'est pas très intéressante parce que les deux ondes n'ont pas les mêmes phases et cela mène à des problèmes de stabilité dû à des interférences entre les deux ondes. Pour réaliser cette condition, on utilise le fait que la relation de  $\Delta k$  est une relation vectorielle et on donne un léger angle non-colinéaire entre ces deux ondes de telle sorte que la projection de la vitesse de groupe selon l'axe  $z$  soit nulle. Cela donne lieu à un schéma d'amplification NOPA comme présenté à la figure 2.6. Techniquement, comme l'idler n'est pas injecté initialement, c'est un léger angle non-colinéaire entre la pompe et le signal qui est réalisé et on choisit un cristal avec un accord de phase de telle sorte que l'idler est généré avec l'angle voulu pour satisfaire la condition de l'équation 2.22.

Finalement, tout comme l'amplification laser linéaire, la technologie OPA a dû évoluer pour faire face aux problèmes d'intensité des impulsions femtosecondes. La solution retenue pour contourner ce problème a été la même que pour les premiers lasers femtosecondes, la CPA. Lorsque cette technique est utilisée dans le cadre d'un OPA, on dit qu'on a un OPCPA [23]. En utilisant intelligemment les courbes de dispersions, des OPCPA amplifiant des impulsions de 10 fs ont été réalisés [27, 37]. Cependant, contrairement à l'amplification laser linéaire qui utilise des cristaux qui emmagasinent l'énergie de pompe, l'amplification non-linéaire possède un gain instantané qui dépend du profil temporel de la pompe. Cette différence fait en sorte qu'en OPCPA, on peut voir apparaître un phénomène de réduction de la bande spectrale par le gain. Comme la pompe a un profil temporel, le gain de l'OPCPA varie temporellement de telle sorte que les ailes de l'impulsion amplifiée subissent moins de gain. Or, les ailes de l'impulsion sont aussi les ailes de son spectre dû à la dispersion d'ordre deux lors de l'étirement. Cette situation est illustrée à la figure 2.8 et a pour effet de diminuer la largeur spectrale et par conséquent d'allonger l'impulsion dans le domaine temporel après recompression. Il est alors très difficile d'amplifier des impulsions de quelques cycles optiques en OPA ou OPCPA. Pour réussir cette tâche en OPCPA, on est obligé de travailler proche du cas de dégénérescence ( $\omega_p = 2\omega_s$ ) afin que le signal et l'idler est la même vitesse de groupe.

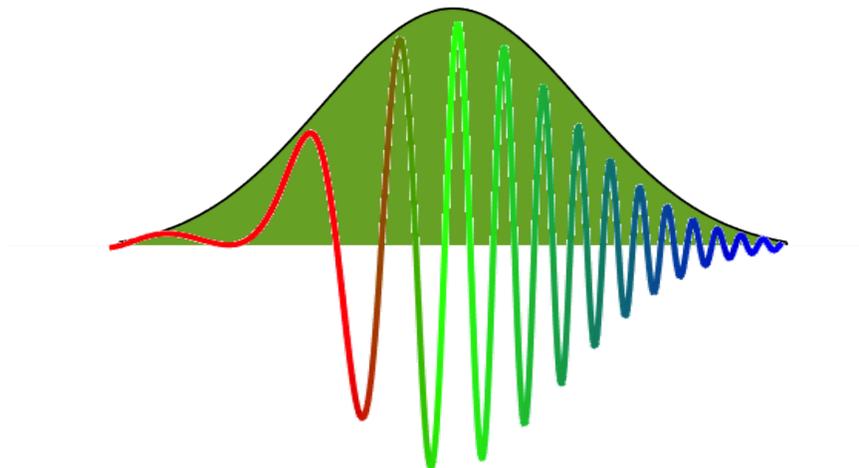


FIGURE 2.8 – Visualisation temporelle d'une amplification en OPCPA. On remarque que les ailes de l'impulsion à amplifier, qui sont aussi les ailes spectrales, voient une intensité de pompe plus faible.

### 2.1.8 Mélange à quatre ondes

Cette section traitera de deux phénomènes non-linéaires d'ordre trois (voir équation 2.1) : l'automodulation de phase (SPM, *ang.*) et les réseaux transitoires (RT). Ces phénomènes impliquent quatre ondes de même fréquence, donc toujours en accord d'énergie et de phase. La susceptibilité d'ordre trois est une propriété qui existe dans tous les matériaux indépendamment de leur symétrie, contrairement à la susceptibilité d'ordre deux. Elle implique trois ondes pour en générer une nouvelle, d'où

son appellation de mélange à quatre ondes.

On peut reprendre l'équation 2.1 et développer le terme à l'ordre trois pour la SPM et les RT :

$$P = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^* E E e^{i(\Delta k z - \Delta \omega t)} \quad (2.23)$$

Dans une situation complètement colinéaire entre ces quatre ondes et sachant que l'argument de l'exponentielle est nul, on peut faire apparaître une expression qui ressemble à la polarisation linéaire. En effet, si on regroupe la polarisation linéaire et d'ordre trois :

$$D = \epsilon_0 E + P^{(1)} + P^{(3)} = \epsilon_0 \left( \epsilon_r + \chi^{(3)} |E|^2 \right) E, \quad (2.24)$$

on obtient une expression de la permittivité relative augmentée, dont on peut extraire l'indice de réfraction via un développement de Taylor, qui donne  $n \approx n_0 + n_2 |E|^2$  où  $n_2 = \chi^{(3)} / 2n_0$  est l'indice de réfraction non-linéaire. Ainsi, l'indice de réfraction que voit l'onde dépend de l'intensité de celle-ci : c'est ce qu'on appelle l'effet Kerr. Comme l'intensité d'un faisceau n'est pas uniforme dans le temps et l'espace cela donne lieu à deux effets distincts. Dans l'espace, si le faisceau a un profil non-uniforme, disons Gaussien, alors l'indice de réfraction vu par ce faisceau variera dans l'espace et cette variation aura un effet similaire à celui d'une lentille : le faisceau va commencer à s'auto-focaliser. On utilise ce phénomène pour réaliser le blocage de modes dans un oscillateur femtoseconde : en plaçant un diaphragme dans l'oscillateur, on favorise la création d'impulsions intenses qui s'auto-focalisent, car celles-ci subissent moins de perte en passant à travers le diaphragme. Dans le domaine temporel, l'effet Kerr agit sur l'impulsion via l'automodulation de phase (SPM). Puisque l'impulsion a un profil temporel, l'indice de réfraction qu'elle subit varie dans le temps et cela affecte la phase accumulée à l'intérieur même de l'impulsion.

$$\phi = -\omega_0 t + k z = -\omega_0 t + \frac{\omega_0}{c} (n_0 + n_2 |E|^2) z \quad (2.25)$$

On peut associer à cette phase une pulsation instantanée  $\omega_i$ , définie comme :

$$-\frac{d\phi}{dt} = \omega_i = \omega_0 - \frac{\omega_0 n_2 z}{c} \frac{d|E|^2}{dt}. \quad (2.26)$$

Par conséquent, de nouvelles fréquences apparaissent dans l'impulsion. Un décalage des fréquences vers le rouge est observé sur le front montant de l'impulsion, tandis qu'un décalage des fréquences vers le bleu apparaît sur le front descendant. Cela introduit une dispersion normale au sein de l'impulsion. Ce phénomène de SPM est utilisé pour générer des nouvelles fréquences dans une impulsion. De plus, en compensant la dispersion à l'intérieur de l'impulsion, il est possible de raccourcir la durée des impulsions. Cette technique permet d'atteindre des durées d'impulsions de quelques cycles optiques.

Intéressons-nous désormais à la création d'un RT. Pour réaliser un RT, on focalise trois faisceaux séparés spatialement et se propageant non colinéairement, comme indiqué sur le schéma figure

2.9. Au point de focalisation, l'intensité est suffisamment élevée pour réaliser un effet non-linéaire d'ordre trois et l'accord de phase est tel qu'un nouveau faisceau sera généré dans le coin du carré où il manquait un faisceau initialement. Une façon plus intuitive de comprendre ce phénomène est d'imaginer que les deux premiers faisceaux (un et deux dans la figure 2.9) interfèrent entre eux et forment un patron d'interférence de franges linéaires. Ce patron d'interférence est assez intense pour subir de l'effet Kerr et un réseau transitoire d'indice de réfraction est alors généré dans le milieu. Le troisième faisceau voit ce réseau et diffracte pour créer un quatrième faisceau. Cet effet sera utilisé pour créer une porte temporelle très rapide car le réseau n'est présent que pendant la durée des impulsions un et deux.

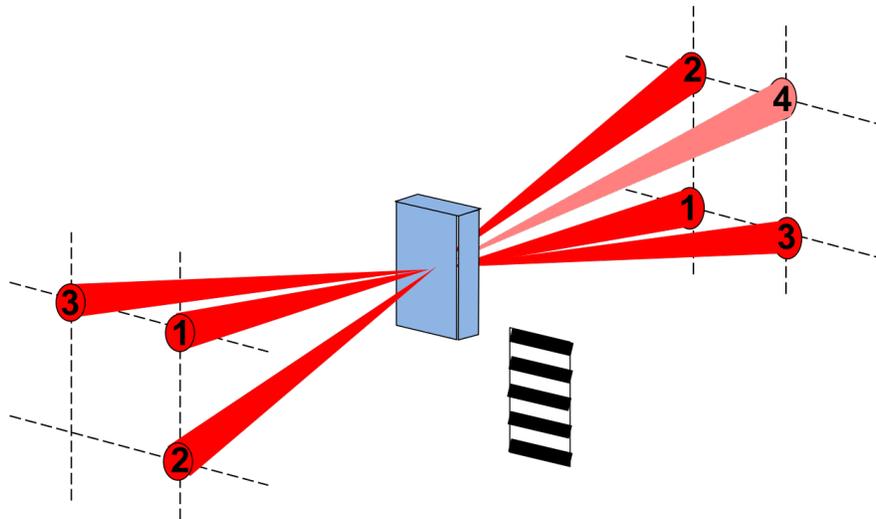


FIGURE 2.9 – Schéma optique d'un réseau transitoire

## 2.2 Mesure de durées par FROG

La mesure de durée d'impulsions femtoseconde n'est pas une tâche triviale. En effet, l'électronique n'est pas en mesure de reconstruire une impulsion ultra-courte car la période d'échantillonnage est au mieux de quelques picosecondes, ce qui est largement insuffisant pour une impulsion femtoseconde. À la place, il faut utiliser des méthodes d'interférence spectrale (ex : SPIDER ou WIZZLER) ou bien, comme il sera développé par la suite, des méthodes d'auto-corrélation résolues spectralement.

### 2.2.1 Fenêtrage optique résolu en fréquences

La technique FROG repose sur la technique d'auto-corrélation d'une impulsion optique avec elle-même pour mesurer sa durée. L'auto-corrélation d'un champ s'exprime comme suit :

$$\int_{-\infty}^{\infty} E(t)E^*(t - \tau)dt \quad (2.27)$$

où  $\tau$  est le délai entre deux impulsions. Expérimentalement, on réalise ce genre de mesure en utilisant un interféromètre de Michelson et en plaçant une photodiode ou tout autre détecteur lent en sortie. On mesure l'énergie totale  $\mathcal{E}$  en fonction du délai  $\tau$  entre les deux impulsions :

$$\mathcal{E}_m(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} |E(t) + E(t - \tau)|^2 dt \quad (2.28)$$

L'expression dans l'intégrale donne trois termes dont deux qui sont les intensités des deux champs et un troisième qui est l'auto-corrélation de l'équation 2.27. Cependant, l'auto-corrélation ne permet pas de connaître la durée d'une impulsion, car elle est en fait une mesure de la longueur de cohérence des champs et elle permet d'obtenir la durée de l'impulsion la plus courte que son spectre lui permet de supporter. On utilise cette mesure de longueur de cohérence pour obtenir la densité spectrale de puissance de l'onde par transformée de Fourier, c'est ce qu'on appelle le théorème de Wiegner-Khintchine. C'est le principe de base qui sous-tend la technique de spectroscopie par transformée de Fourier.

Au lieu de récupérer le signal de l'interféromètre de Michelson, on peut placer à la sortie un cristal doubleur et récupérer le signal de GSH. Afin de récupérer uniquement la contribution provenant des deux impulsions de l'interféromètre, on les fait interagir avec un léger angle non-colinéaire. Le signal collecté provenant de l'interaction de ces deux impulsions s'exprime comme :

$$\mathcal{E}_m(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} |E(t)E(t - \tau)|^2 dt = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (2.29)$$

qui est le signal d'auto-corrélation en intensité. Cette mesure permet d'obtenir le profil auto-convolué d'une impulsion. Cependant, pour pouvoir déconvoluer la mesure, il faut faire des approximations sur la forme de l'impulsion. Par exemple, si l'impulsion a un profil temporel gaussien, son auto-convolution sera plus large d'un facteur  $\sqrt{2}$ , alors que pour un profil de sécante hyperbolique au carré ( $\text{sech}^2$ ) c'est un facteur 1.54. En utilisant un détecteur lent à la sortie, il n'est pas possible de connaître ce profil, il manque des données. Pour trouver ces informations supplémentaires, il faut remplacer le détecteur lent par un spectromètre et faire une mesure appelée fenêtrage optique résolu en fréquences (FROG,

ang.). Son équation générale est la suivante :

$$\mathcal{E}_{FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t) E_{fen}(t - \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (2.30)$$

où un champ  $E$  interagit avec une fenêtre optique  $E_{fen}$ . Une mesure FROG se fait sur deux variables : le délai  $\tau$  et la pulsation  $\omega$ . L'objectif est d'avoir une idée d'où se trouve chacune des fréquences en fonction du temps à l'intérieur de l'impulsion afin de reconstruire le champ électrique de l'impulsion. Le problème de la reconstruction FROG est un problème non-trivial avec théoriquement une seule solution. Cependant, il est parfois pratiquement difficile de converger vers cette solution unique. Il existe uniquement un champ électrique qui respecte à la fois la condition de fenêtrage et le spectrogramme FROG. Pour trouver ce champ, on utilise des méthodes itératives dont le principe dépasse le cadre de ce mémoire. Le choix de la fenêtre optique est important, si elle est trop courte temporellement alors on perdra toute information spectrale ( $\Delta t \Delta E > \hbar/2$ ). À l'inverse si elle est trop longue, elle ne joue plus son rôle de fenêtre et on retrouve l'intensité spectrale de l'impulsion à chaque délai. Si on choisit pour cette fenêtre le champ de l'impulsion elle-même, on fait une mesure GSH-FROG, alors que si cette fenêtre est plutôt l'intensité de l'impulsion, on fait une mesure RT-FROG.

### 2.2.2 Génération de seconde harmonique-FROG

Dans ce type de spectrogrammes FROG, intégrer sur toutes les pulsations  $\omega$  revient à faire une mesure d'auto-corrélation en intensité et intégrer sur tous les délais donne le spectre auto-convolué. Comme la projection sur l'espace des délais est une auto-corrélation, une mesure GSH-FROG est toujours symétrique par rapport à l'axe  $\tau = 0$ . Par conséquent, quand on regarde un spectrogramme GSH-FROG, on ne peut distinguer le signe de la dispersion. Cela est dû au fait que l'avant d'une impulsion interagit avec l'arrière de celle-ci dans le cristal doubleur et vice-versa. La figure 2.10 présente des spectrogrammes GSH-FROG pour différentes dispersions et on voit clairement qu'une mesure GSH-FROG est incapable de résoudre le signe de la dispersion. Pour trouver ce signe, il faut effectuer une nouvelle mesure GSH-FROG en ajoutant un milieu dispersif connu, et observer si l'impulsion s'allonge ou se compresse.

### 2.2.3 Réseau transitoire-FROG

Une autre façon d'obtenir le signe des termes de phase d'ordre supérieur est d'utiliser la technique RT-FROG. Dans cette configuration, le champ électrique de l'impulsion interagit avec son intensité. Comme l'intensité ne transporte aucune information sur la fréquence instantanée, il est possible de distinguer le front de l'impulsion de sa queue. Par conséquent, les spectrogrammes RT-FROG donnent une vision beaucoup plus intuitive de la fréquence instantanée à l'intérieur de l'impulsion

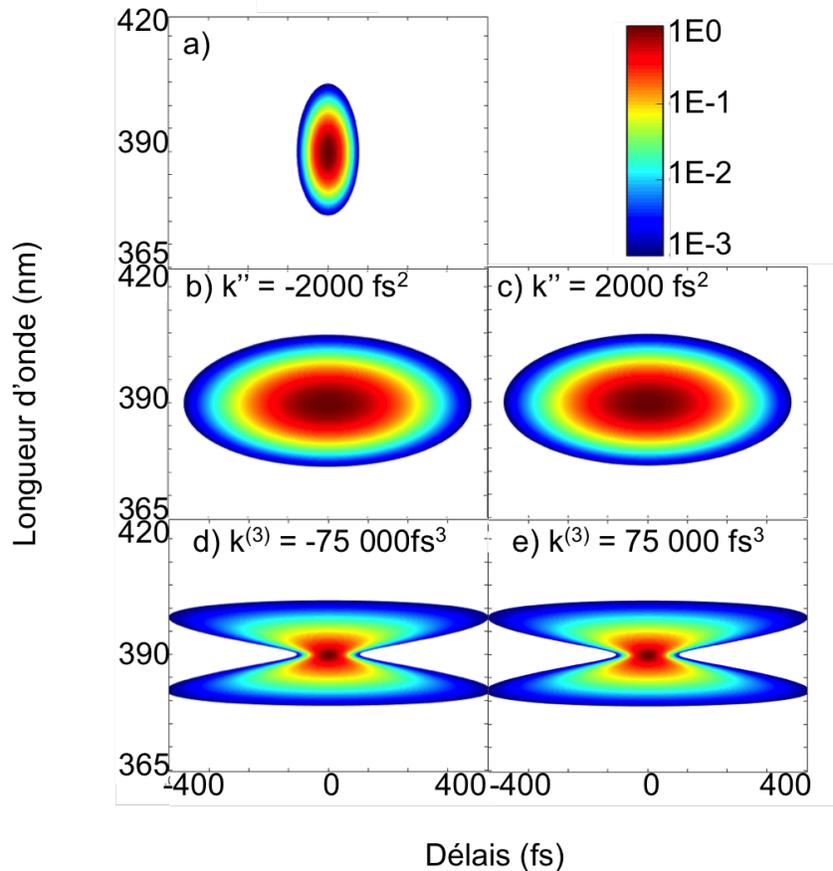


FIGURE 2.10 – Spectrogrammes GSH-FROG pour une impulsion avec une dispersion de a)  $0 \text{ fs}^2$ , b)  $-2000 \text{ fs}^2$ , c)  $2000 \text{ fs}^2$ , d)  $-75\,000 \text{ fs}^3$  et e)  $75\,000 \text{ fs}^3$

comme le démontre la figure 2.11. La projection sur l'axe des délais donne le module carré de la corrélation entre l'intensité et le champ, ce qui signifie que pour une gaussienne ce profil est  $\sqrt{1.5}$  plus large que la réalité.

## 2.3 Étireur 4-f

La dernière section de ce chapitre expliquera le fonctionnement d'un montage 4-f, un montage qui est au coeur de l'optique non-linéaire dans le domaine de Fourier.

### 2.3.1 Fonctionnement

Un montage 4-f est un montage optique composé de deux réseaux identiques et deux optiques focalisantes avec la même longueur focale  $f$ . La figure 2.12 montre le fonctionnement de ce montage : une impulsion large bande est envoyée sur un premier réseau qui disperse ses composantes spectrales

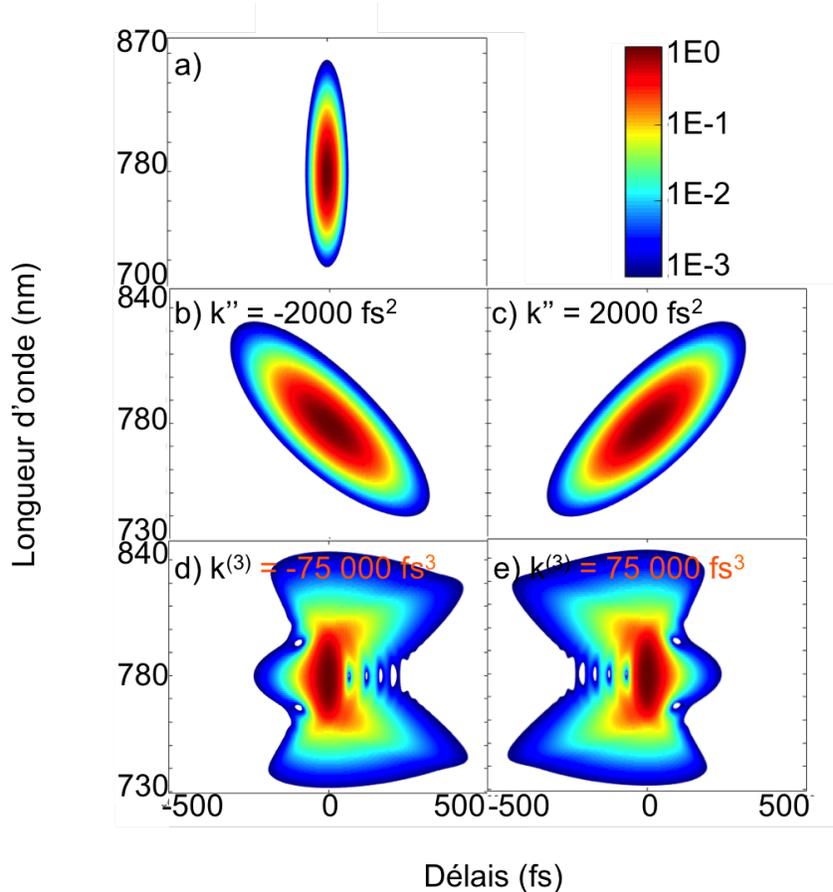


FIGURE 2.11 – Spectrogrammes RT-FROG pour une impulsion avec une dispersion de a) 0 fs , b) -2000 fs<sup>2</sup>, c) 2000 fs<sup>2</sup>, d) -75 000 fs<sup>3</sup> et e) 75 000 fs<sup>3</sup>

selon différents angles, puis un miroir focalisant collimate cette dispersion angulaire et les focalise dans un plan. À ce plan, on retrouve une version approchée de la transformée de Fourier de l'impulsion sur une dimension spatiale, on appelle ainsi ce plan : plan de Fourier (PF). Par la suite, un système symétrique est utilisé pour recombinaison des composantes spectrales en une impulsion. Le montage s'appelle un 4-f car les réseaux sont à une distance focale de leur miroir et les deux miroirs sont séparés par une distance de deux longueurs focales ( $f+2f+f$ ).

Ce montage 4-f s'appelle aussi un étireur à dispersion nulle. En configuration 4-f, le premier réseau est imagé sur le second, on peut toutefois déplacer le second réseau de sorte qu'il y ait une distance non-nulle  $L_{eff}$  entre l'image du premier réseau et le second. Dans cette situation, le parcours optique de chacune des composantes spectrales est différent, il y a donc apparition d'une dispersion dans l'impulsion de sortie. La phase accumulée est alors [55] :

$$\phi = kL_{eff}\cos(\theta_d) \tag{2.31}$$

où  $\theta_d$  est l'angle de diffraction sur le réseau. Ce montage est utilisé car il est capable à la fois de donner de la dispersion positive ou négative selon le signe de  $L_{eff}$ . C'est ce type de dispositif qui est utilisé pour la CPA.

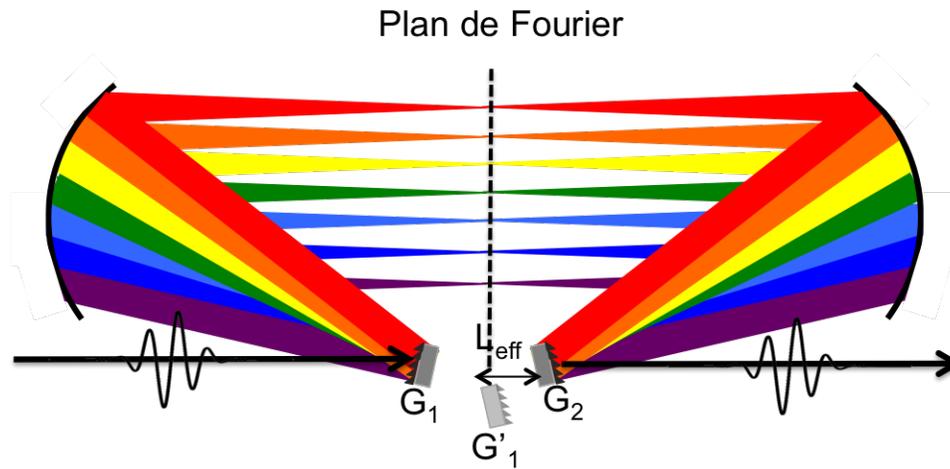


FIGURE 2.12 – Schéma d'un montage 4-f

### 2.3.2 Durée au plan de Fourier

Dans le cadre de ce mémoire, de l'optique non-linéaire sera réalisée au PF et il est d'intérêt de décrire l'état de l'impulsion à cet endroit. Une des premières questions à traiter est : "Quelle est la durée d'une impulsion au plan de Fourier ? Pour répondre à cette question, il faut évaluer le contenu spectral dans un foyer au PF. Pour ce faire, considérons un montage 4-f où le réseau est installé dans une condition de Littrow : l'angle d'incidence est égal à l'angle de diffraction  $\theta_i = \theta_d = \theta_c$  pour la longueur d'onde centrale  $\lambda_c$ . L'angle de diffraction en fonction de la longueur d'onde s'exprime comme :

$$m\lambda = g(\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d)) \quad (2.32)$$

$$\theta_c = \theta_i = \text{asin}\left(\frac{\lambda_c}{2g}\right)$$

$$\theta_d = \text{asin}\left(\frac{\lambda}{g} - \frac{\lambda_c}{2g}\right) \quad (2.33)$$

où  $m$  est l'ordre de diffraction et vaudra 1 sauf avis contraire et  $g$  est le pas du réseau. Ensuite, il faut évaluer la dispersion transversale  $\Delta\lambda/\Delta x$  de chaque longueur d'onde par rapport à l'axe optique au niveau du miroir focalisant. Cette distance  $x$  s'évalue comme suit :

$$x = f \tan(\theta_d - \theta_c) \approx f(\theta_d - \theta_c)$$

où on a fait l'approximation des petits angles. Par la suite, on dérive cette équation par rapport à la longueur d'onde pour connaître la dispersion transversale :

$$\Delta x = f \frac{d\theta_d}{d\lambda} \Delta\lambda = \frac{f \Delta\lambda}{g \cos(\theta_d)}$$

$$\Delta\lambda = \frac{\Delta x g \cos(\theta_d)}{f}$$

Finalement, on évalue  $\Delta x$  comme étant la largeur à mi-hauteur d'un foyer au PF. Pour ce faire, on suppose un faisceau gaussien avec un diamètre à mi-hauteur de  $w_{in}$ .

$$\Delta x = \frac{2\lambda f}{\pi w_{in}} \ln(2)$$

Puis, on évalue la durée de l'impulsion à mi-hauteur  $\Delta t$  :

$$\Delta\omega = \frac{2\pi c}{\lambda^2} \Delta\lambda$$

$$\Delta t = \frac{4\ln(2)}{\Delta\omega}$$

$$\Delta t = \frac{\lambda w_{in}}{gc \cos(\theta_d)} = \frac{\lambda w_{in}}{gc \sqrt{1 - \left(\frac{\lambda}{g} - \frac{\lambda_c}{2g}\right)^2}} \quad (2.34)$$

Notons que cette équation ne dépend pas de la longueur focale des miroirs. Cela s'explique par le fait que la focale a deux rôles qui s'annulent : plus la longueur focale est grande plus le spectre aura une dispersion transversale importante, mais plus la focale est longue et plus le foyer est large. Ces deux effets se compensent et expliquent l'absence du terme  $f$  de l'équation 2.34. Enfin, on voit que la durée au PF dépend linéairement sur la taille du faisceau en entrée. Cette équation illustre bien le couplage spatio-temporel qu'un 4-f génère.

### 2.3.3 Matrice de Kostenbauder

Au-delà de la durée de l'impulsion au PF, il est intéressant aussi de voir comment se propage l'impulsion à travers le 4-f. Pour ce faire, on peut utiliser le formalisme des matrices de Kostenbauder [56, 57]. Ces matrices sont similaires aux matrices ABCD utilisées pour faire de la propagation géométrique de faisceau, en prenant en compte les couplages spatio-temporels. Pour ce faire, elles sont élargies de deux variables : la variation du délai de groupe  $t$  et la variation de la fréquence  $\nu$ . Les matrices de

Kostenbauder sont donc des matrices 4x4, prenant la forme suivante :

$$\begin{bmatrix} x \\ \theta \\ t \\ \nu \end{bmatrix}_f = \begin{bmatrix} \frac{\partial x_f}{\partial x_i} & \frac{\partial x_f}{\partial \theta_i} & 0 & \frac{\partial x_f}{\partial \nu_i} \\ \frac{\partial \theta_f}{\partial x_i} & \frac{\partial \theta_f}{\partial \theta_i} & 0 & \frac{\partial \theta_f}{\partial \nu_i} \\ \frac{\partial t_f}{\partial x_i} & \frac{\partial t_f}{\partial \theta_i} & 1 & \frac{\partial t_f}{\partial \nu_i} \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ \theta \\ t \\ \nu \end{bmatrix}_i = \begin{bmatrix} A & B & 0 & E \\ C & D & 0 & F \\ G & H & 1 & I \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ \theta \\ t \\ \nu \end{bmatrix}_i \quad (2.35)$$

où les indices  $f$  et  $i$  font références aux états final et initial respectivement. Les paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  sont les mêmes que pour des matrices ABCD. Les matrices ABCD sont utilisés pour propager des rayons lumineux dans l'approximation paraxiale. On caractérise ce rayon par sa position par rapport à l'axe optique  $x$  et sa direction  $\theta$ . Le paramètre  $A$  représente le grossissement, le paramètre  $B$  est un changement de position dû à la direction du faisceau, le paramètre  $C$  est le changement de direction en fonction de la position et le paramètre  $D$  représente le grossissement angulaire. Dans les matrices de Kostenbauder, le paramètre  $E$  est un nouveau paramètre qui décrit la dérive de fréquence transverse, le paramètre  $F$  donne la dispersion angulaire, le paramètre  $G$  est relié à l'inclinaison du front de l'impulsion, le paramètre  $H$  est une variation de la direction de l'onde en fonction du temps et le paramètre  $I$  donne la dispersion de la vitesse de groupe. Avec ces nouveaux paramètres, on construit une matrice qui définit les effets d'un réseau de diffraction en dérivant l'équation des réseaux  $\lambda = g(\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d))$  :

$$\begin{bmatrix} \frac{\cos(\theta_d)}{\cos(\theta_i)} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\cos(\theta_i)}{\cos(\theta_d)} & 0 & \frac{\lambda(\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d))}{c \cos(\theta_d)} \\ \frac{\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d)}{c \cos(\theta_i)} & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.36)$$

On observe qu'un réseau introduit une dispersion angulaire comme attendue, mais il y a aussi un effet de grossissement tant spatial qu'angulaire qui est une conséquence du fait que l'onde n'est pas diffractée au même angle que son angle d'incidence contrairement à un miroir plan. Aussi, cette différence entre les angles d'incidence et diffracté causent une inclinaison du front de l'impulsion : l'impulsion ne se propage pas perpendiculairement à sa direction. Cette inclinaison du front d'onde est un phénomène utilisé dans des NOPA afin d'avoir un recouvrement spatial entre la pompe et le signal malgré leur interaction non-colinéaire [58]. Cet effet est aussi utilisé pour générer des ondes THz par GDF [59]. Dû à la forte dispersion qui existe entre les ondes THz et infrarouges, trouver un accord de phase oblige la réalisation d'une interaction hautement non-colinéaire d'où l'utilité d'utiliser des champs avec une inclinaison du front de l'impulsion.

Les autres éléments du 4-f sont des matrices ABCD usuelles étendues par une sous-matrice identité pour les variations du délai de groupe et de la fréquence. Pour une propagation dans l'air par une

distance  $L$ , la matrice s'exprime comme :

$$\begin{bmatrix} 1 & L & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.37)$$

et un miroir avec une focale  $f$  comme :

$$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ -1/f & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.38)$$

Pour trouver la matrice finale d'un système optique, il suffit de multiplier les matrices des différents éléments dans l'ordre. Tout comme avec les matrices ABCD, on peut utiliser cette matrice globale afin de propager des faisceaux gaussiens en utilisant cette équation :

$$E = \exp\left(\frac{-i\pi}{\lambda_0} (Q_{xx}^{-1}x^2 + 2Q_{xt}^{-1}xt - Q_{tt}^{-1}t^2)\right) \quad (2.39)$$

$$Q^{-1} = \begin{bmatrix} Q_{xx}^{-1} & Q_{xt}^{-1} \\ -Q_{xt}^{-1} & Q_{tt}^{-1} \end{bmatrix} \quad (2.40)$$

$$Q_f = \frac{\begin{bmatrix} A & 0 \\ G & 1 \end{bmatrix} Q_i + \begin{bmatrix} B & E/\lambda \\ H & I\lambda \end{bmatrix}}{\begin{bmatrix} C & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} Q_i + \begin{bmatrix} D & F/\lambda \\ 0 & 1 \end{bmatrix}} \quad (2.41)$$

où les paramètres  $A, B, C, D, E, F, G, H$  et  $I$  sont les éléments de la matrice du système étudié. La matrice  $Q$  permet de définir une gaussienne et elle est utilisé pour calculer l'état finale  $Q_f$  à partir de l'état initiale  $Q_i$  et de la matrice totale de Kostenbauder du système. Si l'impulsion initiale n'a pas de couplage spatio-temporel ( $Q_{xt} = 0$ ), il est possible de déterminer les éléments diagonaux de la matrice  $Q_i^{-1}$  :

$$Q_{xx}^{-1} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)}$$

$$Q_{tt}^{-1} = \frac{\lambda}{\pi} (\beta + i/\sigma_t^2)$$

où  $R(z)$  est le rayon de courbure du front de phase,  $\beta$  la dispersion temporel et  $\sigma_t^2$  est la largeur à

$1/e^2$  dans le temps de l'impulsion.

En utilisant ces équations, il est possible de construire un système de matrices permettant de calculer la propagation d'une impulsion gaussienne dans un montage 4-f. La figure 2.13 montre un tel calcul dans les quatre domaines  $(x, t)$ ,  $(x, \nu)$ ,  $(k, t)$  et  $(k, \nu)$ .

La figure 2.13 a) montre l'état de l'impulsion initiale, on peut voir qu'elle est gaussienne dans les quatre domaines et il n'y a donc pas de couplage spatio-temporel. La figure 2.13 b) reprend cette impulsion initiale, mais sur une échelle allongée pour pouvoir la comparer avec les états subséquents. Ensuite, en 2.13 c), on peut voir l'effet d'un réseau : l'impulsion a maintenant de la dispersion angulaire  $(k, \nu)$  et par conséquent après un peu de propagation, une dérive de fréquence transverse  $(x, \nu)$ . Ces deux phénomènes sont attendus, mais le phénomène d'inclinaison du front d'onde  $(x, t)$  est moins intuitif et est une conséquence de la loi des réseaux. On voit en 2.13 d) qu'avec la propagation, le faisceau s'élargit  $(x, t)$  et sa dérive de fréquence transverse  $(x, \nu)$  devient plus important. Cela devient plus intéressant après le passage sur le miroir focalisant et un peu de propagation en 2.13 e). On voit que la dérive de fréquence transverse a atteint un maximum et commence à focaliser  $(x, \nu)$  et que toutes les fréquences vont dans la même direction  $(k, \nu)$  : le miroir a bien compensé la dispersion angulaire. De plus, on remarque que l'inclinaison du front d'onde  $(x, t)$  est moins importante qu'à l'étape précédente : l'impulsion donne l'impression de tourner sur elle-même dans le domaine  $(x, t)$  au cours de sa propagation. Cet aspect non-trivial est plus apparent dans le domaine  $(k, t)$  où on remarque que la queue de l'impulsion a une direction de propagation opposée à celle du front de l'impulsion. C'est sur cet aspect que repose l'idée du phare attoseconde [60]. On peut voir l'évolution de cette rotation et de la focalisation dans 2.13 f) jusqu'à ce qu'on arrive au PF en 2.13 g). Au PF, l'impulsion n'a plus d'inclinaison  $(x, t)$  et toutes ses composantes spectrales sont bien focalisées et dispersées sur un axe transverse  $(x, \nu)$ . En faisant une régression gaussienne sur le temps, on trouve une durée d'impulsion au PF qui correspond à l'équation 2.34. Toutefois, la dépendance de la direction de l'impulsion est toujours présente. Ainsi, l'impulsion continue de tourner sur elle-même et recommence à développer une inclinaison du front d'onde  $(x, t)$  après un peu de propagations comme il est visible en 2.13 h). On identifie aisément que 2.13 h) est la version symétrique de 2.13 e), de même que 2.13 i) est la version symétrique de c) et que 2.13 j) est celle de b). L'impulsion ressort comme elle est entrée.

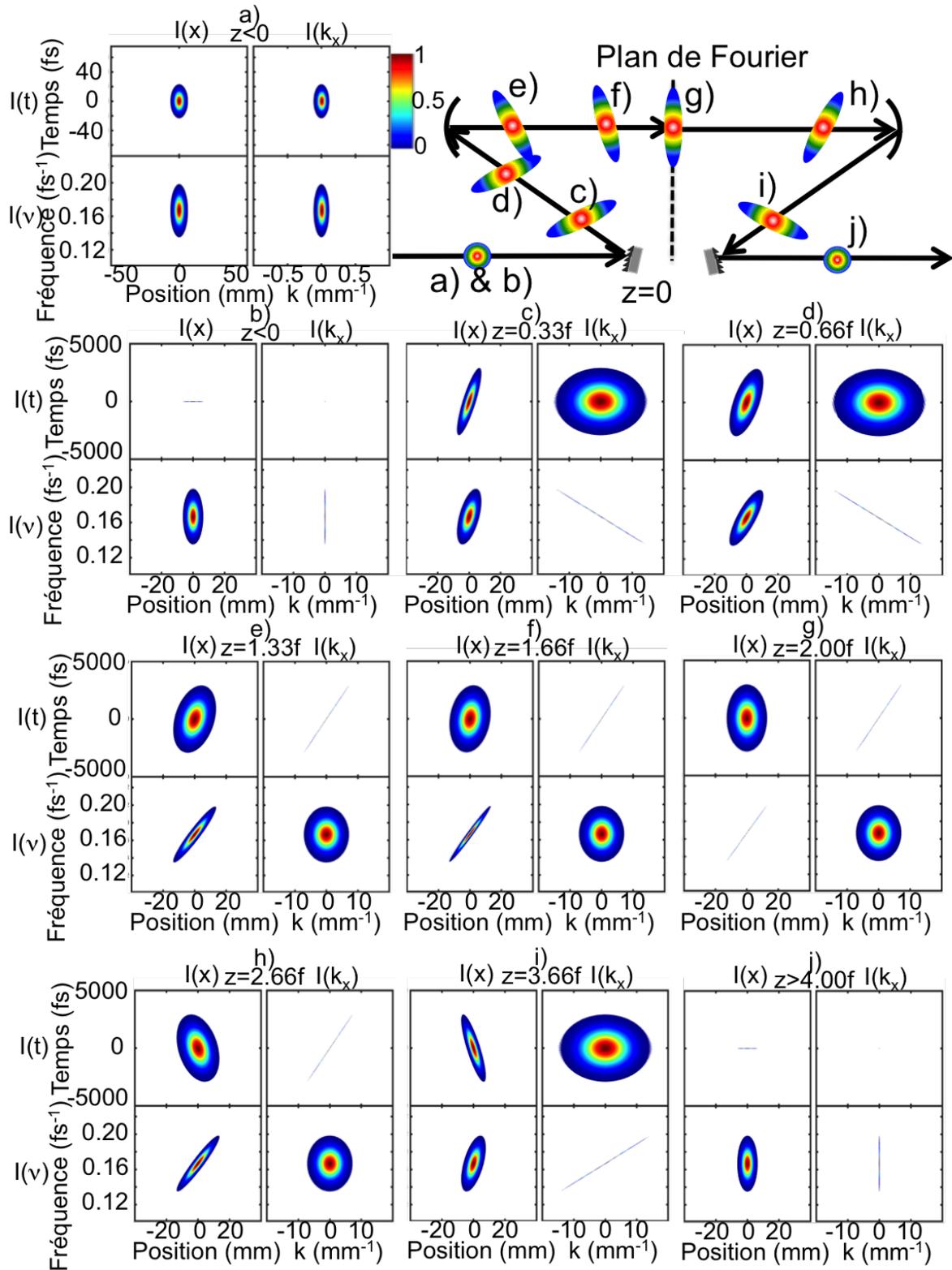


FIGURE 2.13 – Évolution d’une impulsion dans un montage 4-f dans les quatre domaines  $(x, k, t, \nu)$  pour une impulsion se situant à  $z$  (a & b)  $< 0$ , (c) =  $0.33f$ , (d) =  $0.66f$ , (e) =  $1.33f$ , (f) =  $1.66f$ , (g) =  $2.00f$ , (h) =  $2.66f$ , (i) =  $3.66f$  et (j) =  $4.00f$ . Les lignes de contours s’arrêtent à 0.1%.



## CHAPITRE 3

# AMPLIFICATION PARAMÉTRIQUE OPTIQUE DANS LE DOMAINE DE FOURIER (FOPA)

### 3.1 Problématique

Lors du chapitre précédent, nous avons observé via l'équation 2.13 que l'épaisseur d'un cristal affectait la bande spectrale pouvant être amplifiée. Cependant, afin d'obtenir un gain considérable, il est nécessaire d'utiliser un cristal épais. Ce problème rend très difficile l'amplification d'impulsion très large bande dans l'infrarouge moyen à des hautes intensités. Comme nous l'avons vu section 2.1.7, il est possible d'utiliser un OPCPA, mais chacun est adapté à sa situation et difficilement transférable à une autre situation. Cette technique peut aussi réduire la bande spectrale à cause du gain qui varie temporellement.

Ainsi, l'idée est venue d'amplifier "tranches pas tranches" le spectre. Pour accéder à une fraction du spectre, on utilise un montage 4-f et on vient placer les cristaux non-linéaires dans le plan de Fourier. Ensuite, une pompe synchronisée est amenée au PF et on obtient ainsi un OPA dans le domaine de Fourier (FOPA). Le premier FOPA construit a été réalisé à l'INRS par B. E. Schmidt *et al.* [61] et a fait l'objet d'une publication en 2014.

### 3.2 Principe de fonctionnement

La figure 3.1 illustre le montage d'un FOPA. C'est un montage 4-f avec des cristaux non-linéaires au PF auquel on ajoute un faisceau de pompe. Ici, on peut se permettre d'utiliser des cristaux plus épais car la bande spectrale qui passe à travers chacun des cristaux est limitée. On choisit l'épaisseur du cristal pour le gain souhaité puis on choisit l'aire du cristal pour accommoder la bonne bande spectrale. C'est un nouveau paramètre de conception qui était jusqu'à présent inaccessible en OPCPA. Ainsi, il est plus facile d'augmenter les performances de l'amplificateur en intensité ou en largeur de bande spectrale. En choisissant le couple réseau et longueur focale, on peut adapter l'amplificateur à l'impulsion qu'on souhaite amplifier et aux cristaux non-linéaires disponibles. On a aussi toujours l'option d'utiliser plus de cristaux si nécessaire. Un autre aspect limitant dans la conception d'amplificateur non-linéaire est la taille limitée des surfaces des cristaux qui sont en général inférieure à 4 cm<sup>2</sup>. En utilisant plus qu'un cristal, cette limitation n'en n'est plus une.

Le problème de haute intensité que l'OPCPA contournait en allongeant l'impulsion est aussi contourné en FOPA car seulement une fraction de l'intensité se rend dans un cristal à cause de la dispersion

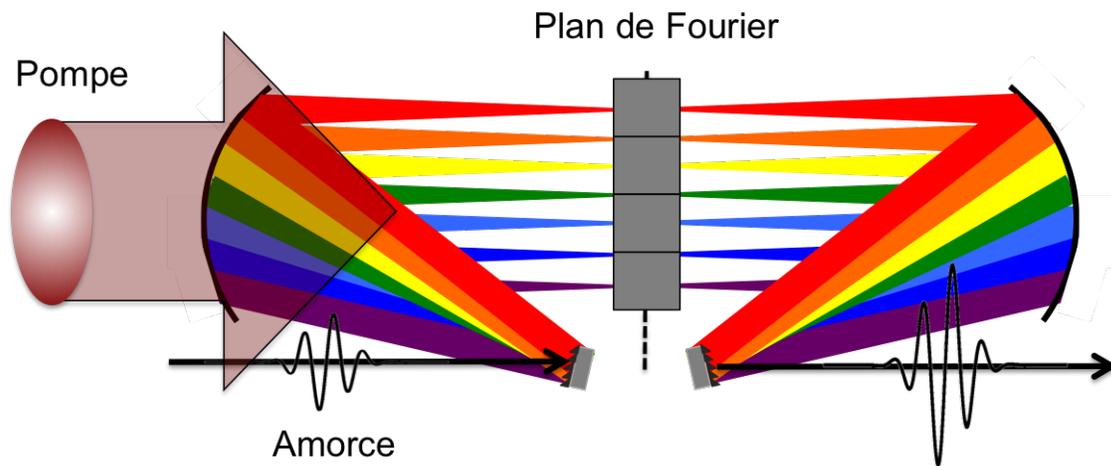


FIGURE 3.1 – Schéma d'un FOPA

spectrale transverse. En fait, si on calcule la durée d'une impulsion au PF avec l'équation 2.34, on trouve typiquement des durées de l'ordre de la picoseconde : les ordres de grandeur d'un OPCPA. Sauf qu'au lieu d'utiliser des étireurs et des compresseurs avec l'amplificateur, le FOPA utilise ses deux réseaux pour compléter cette tâche. Ainsi, tant un FOPA qu'un OPCPA amplifient des bandes spectrales femtosecondes dans un régime temporel picoseconde. Cependant, en OPCPA, c'est une impulsion allongée qui est utilisée alors qu'en FOPA c'est une impulsion limitée en transformée de Fourier de sorte qu'un FOPA n'aura pas ce problème de réduction de la bande à cause du profil temporel de l'impulsion de pompe. Ainsi, en général le FOPA est plus tolérant sur le profil temporel de la pompe. La figure 3.2 illustre cette différence. Néanmoins, puisque le spectre est dispersé sur un axe spatial dans un FOPA, c'est le profil spatial de la pompe qui peut avoir le même effet. Il est toutefois plus facile de manipuler le profil spatial que temporel. En changeant le profil d'intensité de la pompe, on change la courbe de gain spectral, il est donc possible de donner plus de gain dans les ailes du spectre si désiré tel qu'illustré à la figure 3.3.

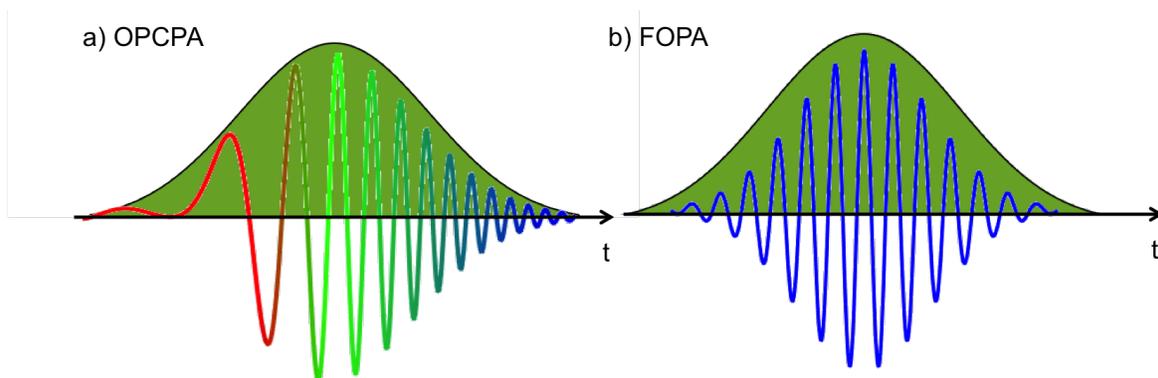


FIGURE 3.2 – Interaction picoseconde dans un a) OPCPA et b) un FOPA

Finalement, le FOPA est aussi avantageux du point de vue de la superfluorescence car elle est diminuée de façon intrinsèque. La superfluorescence est l'équivalent non-linéaire de l'amplification de

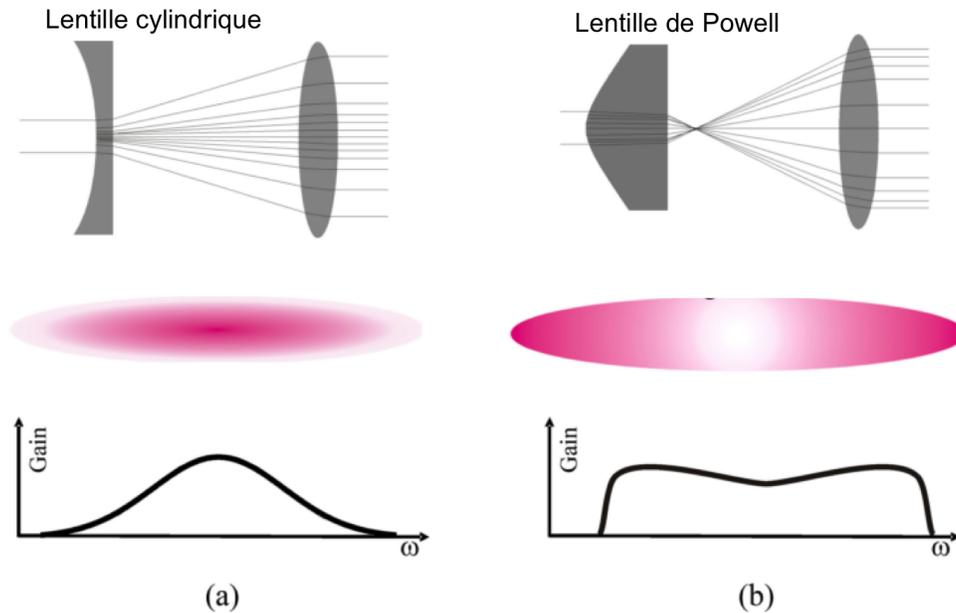


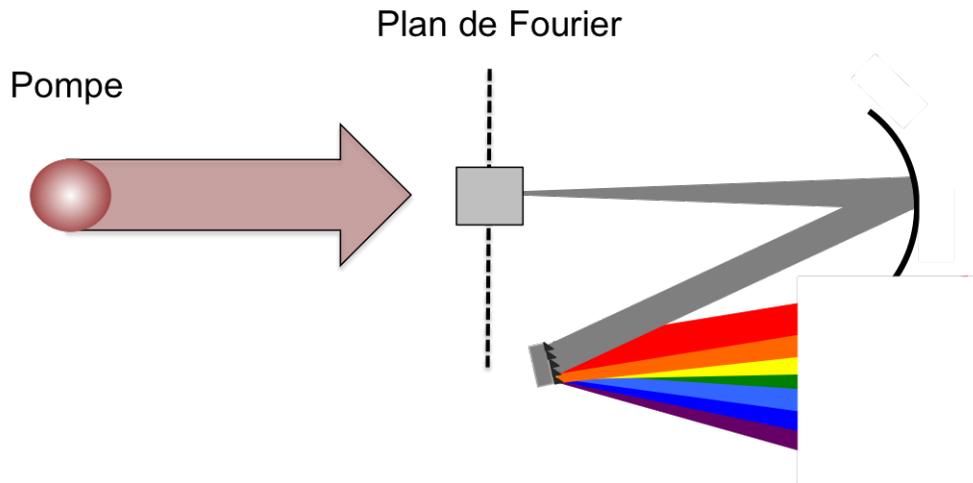
FIGURE 3.3 – Différents profils de spatiaux de pompe pour le FOPA : a) gaussien et b) accru sur les ailes. Adaptée de [62]

l'émission spontanée dans les amplificateurs linéaires et est un effet néfaste sur la qualité de l'impulsion. Physiquement, elle est le résultat de l'amplification des fluctuations du vide. Un haut niveau de superfluorescence affecte le contraste picoseconde de l'impulsion, c'est-à-dire le niveau d'intensité à quelques picosecondes du pic de l'impulsion. La superfluorescence est plus facilement observable lorsqu'on envoie la pompe sans amorce dans l'amplificateur, mais reste tout de même présente lors de l'utilisation normale de l'amplificateur à un niveau plus faible. Pour comprendre la suppression de la superfluorescence dans un FOPA, il faut s'imaginer ce qui se produit lorsque seulement la pompe est envoyée dans le PF. Dans cette situation, tous les cristaux vont émettre un spectre très large de superfluorescence. Toutefois, seulement la fraction spectrale qui correspond à la dispersion du 4-f sera en mesure de se recombinaison à la sortie, le reste ne fera pas partie de l'impulsion finale. C'est-à-dire que les autres composantes spectrales ne se propageront pas dans la même direction que l'onde amplifiée. Cette situation est illustrée à la figure 3.4.

### 3.3 Travaux antérieurs

#### 3.3.1 Montage et résultats expérimentaux

Le premier FOPA construit par Schmidt *et al.* [61] était un FOPA à quatre cristaux de Bêta-borate de baryum (BBO) conçu pour amplifier une impulsion de deux cycles optiques à  $1.8 \mu\text{m}$  avec une pompe à  $800 \text{ nm}$  à  $100 \text{ Hz}$ . Trois cristaux de BBO sont nécessaires pour amplifier une bande de deux cycles



**FIGURE 3.4 – Suppression de la superfluorescence dans un FOPA. La majorité de la superfluorescence ne se propage pas dans la même direction que l’onde amplifiée.**

optiques à  $1.8 \mu\text{m}$ , mais l’objectif de l’expérience était aussi de démontrer le fonctionnement d’un FOPA avec plusieurs cristaux.

Pour ce faire, des réseaux de  $75 \text{ l/mm}$  avec des miroirs sphériques d’une longueur focale de  $800 \text{ mm}$  ont été utilisés pour construire le montage 4-f. Cette combinaison disperse l’impulsion d’amorce sur une surface de  $55 \text{ mm}$  par  $200 \mu\text{m}$  au PF et allonge l’impulsion jusqu’à  $1.4 \text{ ps}$ . Les quatre cristaux utilisés avaient chacun une ouverture de  $4 \times 15 \text{ mm}$ , où  $15 \text{ mm}$  représente la dimension de la dispersion spectrale,  $4 \text{ mm}$  la hauteur du cristal et ces cristaux avaient une épaisseur de  $4 \text{ mm}$ . Ils ont été coupés afin de faire une interaction OPA de type I. Afin d’assurer que chacune des composantes spectrales traverse la même épaisseur de verre, les cristaux ont été polis en même temps. Chacun des cristaux étaient montés sur un goniomètre afin d’ajuster l’angle d’accord de phase finement. Finalement, la pompe était combinée et rejetée dans le 4-f par des dichroïques de sorte que l’interaction non-linéaire soit toute colinéaire. La pompe transportait une énergie de  $12.8 \text{ mJ}$ , était compressée jusqu’à  $2 \text{ ps}$  et possédait un spectre qui supportait une impulsion de  $45 \text{ fs}$ .

L’impulsion d’amorce avait un spectre qui supportait deux cycles optiques à  $1.8 \mu\text{m}$ , possédait une énergie de  $220 \mu\text{J}$  et une CEP stable. Le passage à travers le montage 4-f donnait une transmission de  $48 \%$ . Le FOPA réussissait à amplifier complètement toute la bande spectrale avec un peu plus de gain dans les ailes tel qu’il peut être vu à la figure 3.5. Au maximum d’énergie de pompe, l’impulsion était amplifiée jusqu’à  $1.43 \text{ mJ}$ , ce qui correspondrait à une énergie de  $1.76 \text{ mJ}$  au plan de Fourier. Cela signifie que  $14 \%$  de l’énergie de pompe est transféré dans le signal d’amorce, soit un ratio de photon signal sur pompe de  $31.5 \%$ , ce qui est supérieur aux valeurs rapportées en OPCPA [25, 27] d’environ  $13 \%$ . Malgré l’amplification, l’impulsion de sortie possédait les mêmes propriétés spatiales et temporelles que l’impulsion d’amorce. La durée d’impulsion post-comprimée a été estimée à  $12 \text{ fs}$  avant et après FOPA, le tout CEP stable. Fait intéressant, il est possible de compresser ces impulsions en traversant du verre car à ces longueurs d’onde les verres ont une dispersion anormale. Par ailleurs, aucune superfluorescence n’a été observée.

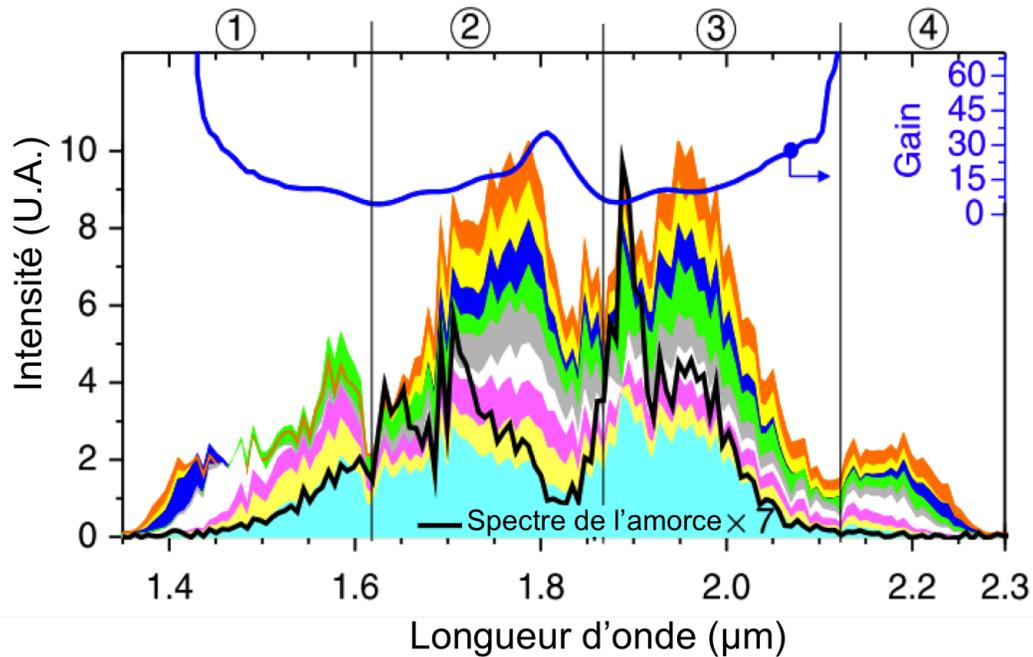


FIGURE 3.5 – Spectre de l'impulsion amplifiée dans le FOPA en fonction du niveau de pompe. Adaptée de [61]

### 3.3.2 Autres FOPA

Suite au premier FOPA de Schmidt *et. al.* qui avait un gain de 7, un deuxième FOPA a été construit à l'INRS par Lassonde *et. al.* [62] afin d'étudier la suppression de la superfluorescence et l'amélioration du contraste picoseconde dans un FOPA. Pour ce faire, un FOPA à haut gain avec un cristal de BBO a été construit à 800 nm et pompé à 400 nm. Malgré un gain de 2000, ils n'ont pas été en mesure de voir une amélioration du contraste picoseconde car la plage dynamique du détecteur ne pouvait se rendre plus loin que 60 dB. Toutefois, ils ont pu conclure qu'un FOPA ne détériore pas le contraste picoseconde.

Finalement, un dernier FOPA a été construit par Phillips *et. al.* à l'ETH en Suisse [63]. Ce FOPA utilisait un cristal à domaines inversés de lithium niobate (LNB) dont la période variait en fonction de la position transverse comme un éventail. Il était conçu pour amplifier une impulsion à 3.2 µm lorsque pompé par une impulsion à 1064 nm. Ils ont réussi à amplifier une bande spectrale correspondant à une limite de Fourier de 5 cycles optiques jusqu'à 20.6 µJ à partir d'une amorce de 0.13 µJ. Ils estiment leur ratio de conversion de photons de pompe en signal à 32 %.

## 3.4 Objectifs

L'objectif de ce projet est de démontrer la capacité d'un FOPA à amplifier des faisceaux de quelques cycles optiques dans le moyen infrarouge à des niveaux d'énergie jamais atteints. Dans le cadre

de ce projet, un puissant laser 3 J à 800 nm servira à pomper deux FOPA en série à 1.8  $\mu\text{m}$  afin d'atteindre 100 mJ à 3 cycles optiques. Le premier FOPA doit utiliser 100 mJ de pompe pour amplifier une impulsion à 1.8  $\mu\text{m}$  de 1 mJ à 10 mJ puis le deuxième FOPA utilise 1 J de pompe pour amplifier ce 10 mJ en 100 mJ. Ces nombres ont été déterminés à partir des travaux sur le premier FOPA de Schmidt *et al.* où 10 mJ de pompe avait servi à amplifier de 0.1 mJ une impulsion à 1.8  $\mu\text{m}$  jusqu'à environ 1 mJ. Pour atteindre des performances similaires au premier FOPA, il a été supposé qu'en amenant la même intensité pour une même dispersion donnée, les FOPA auraient des performances similaires. Ainsi, pour avoir la même intensité avec plus d'énergie, il faut augmenter la surface. Comme on souhaite conserver la même dispersion, il faut utiliser la dimension transverse à celle-ci. Dans le premier FOPA de Schmidt *et al.*, l'impulsion était dispersée sur une surface de 55 mm par 0.22 mm. Par conséquent, le premier FOPA qui doit sortir 10 fois plus d'énergie doit avoir une surface de 55 mm par 2.2 mm et le deuxième FOPA une surface de 55 mm par 22 mm (la limite de taille d'un cristal de BBO). Cette augmentation est illustrée à la figure 3.6 et réalisée expérimentalement en utilisant des miroirs cylindriques au lieu de sphériques. Le travail de ce mémoire était de réaliser à l'INRS ce premier FOPA .

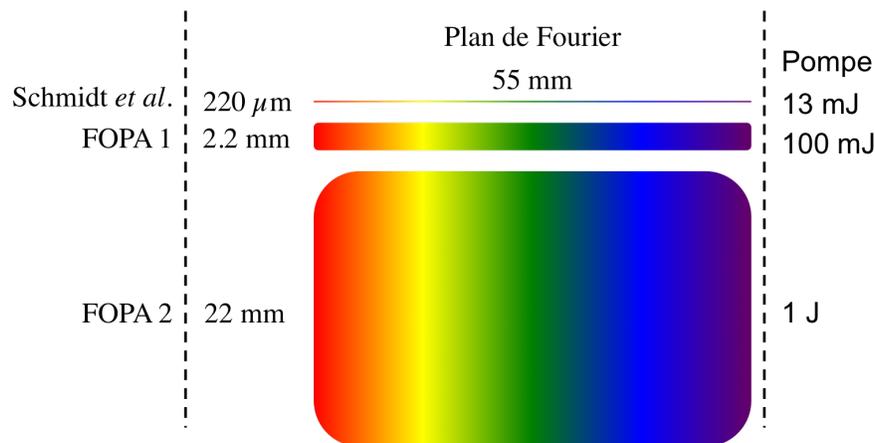


FIGURE 3.6 – Distribution spatiale de l'impulsion au plan de Fourier pour obtenir 100 mJ de moyen infrarouge.

### 3.5 Montage expérimental

Pour réaliser ce projet à l'INRS, deux lasers de l'infrastructure du *Advanced Laser Light Source* (ALLS) ont été utilisés. Un laser à 800 nm, 250 mJ et 10 Hz a été utilisé comme pompe pour le FOPA et un laser à 800 nm 22 mJ et 50 Hz a servi à générer l'amorce. Par conséquent, seulement une impulsion d'amorce sur cinq est amplifiée dans le FOPA. Le schéma laser global de ce projet est présenté à la figure 3.7.

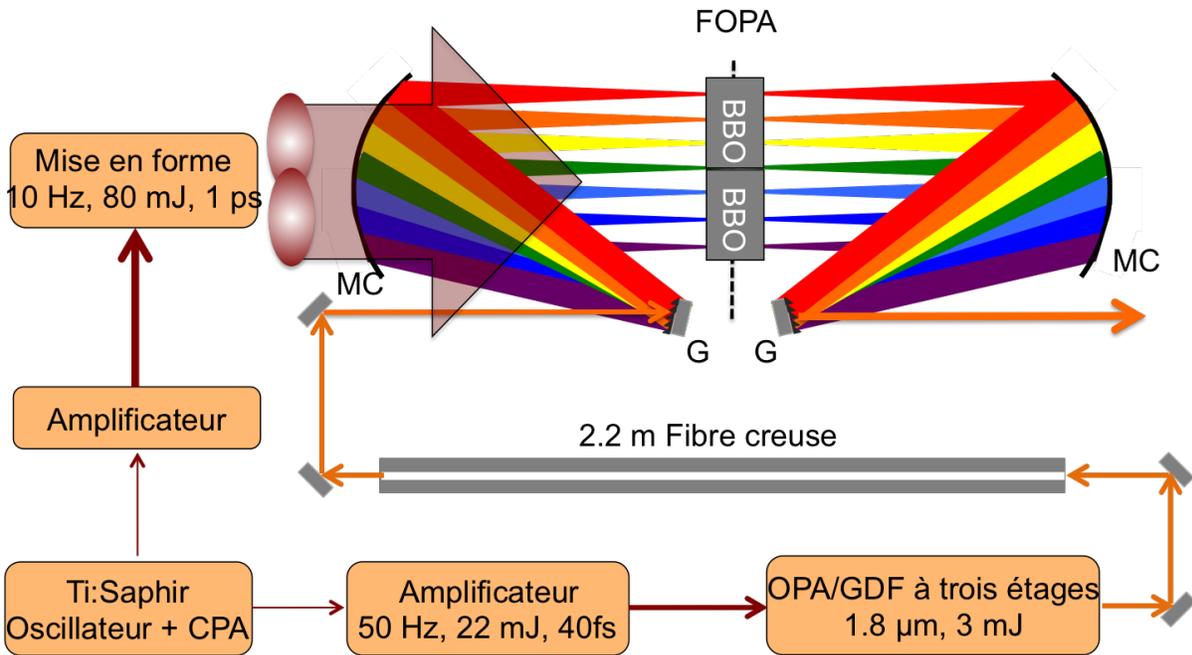


FIGURE 3.7 – Schéma de la chaîne laser pour le FOPA

### 3.5.1 Génération de l'amorce

Le premier objectif est de générer environ 1 mJ de  $1.8 \mu\text{m}$  avec une bande spectrale qui supporte 3 cycles optiques et CEP stable à partir d'un laser de 22 mJ à 800 nm et 40 fs qui n'est pas CEP stable. Pour ce faire, 2 mJ de 800 nm est envoyé dans un système d'OPA commercial appelé TOPAS (*LightConversion*). À l'intérieur du TOPAS, une petite fraction du laser est élargie spectralement par SPM dans une plaque de saphir afin d'obtenir du  $1.4 \mu\text{m}$  dans l'impulsion. Cette nouvelle fréquence interagit avec une fraction de la pompe dans un cristal de BBO pour faire de la GDF afin de générer  $1.8 \mu\text{m}$  CEP stable. Ce  $1.8 \mu\text{m}$  est ensuite amplifié dans un étage d'OPA avec le restant de la pompe jusqu'à 200  $\mu\text{J}$ . Le faisceau de sortie de TOPAS n'a pas un profil spatial satisfaisant, dès lors un filtre spatial sous vide est utilisé afin d'obtenir un profil spatial gaussien. La transmission du filtre spatial permet d'obtenir 140  $\mu\text{J}$  en sortie. Par la suite, cette impulsion est envoyée dans un BBO type I de 1 mm d'épais pour un dernier étage d'amplification avec les 20 mJ restant de 800 nm. Cela permet d'amplifier l'impulsion jusqu'à 3 mJ. Après cet étage, l'impulsion a une durée compressée d'environ 50 fs. Pour obtenir une impulsion à trois cycles optiques, il faut l'élargir spectralement. Pour ce faire, l'impulsion est couplée dans une fibre creuse tendue sur 2.2 m et remplie d'argon. L'argon est introduit par pompage différentiel entre les deux embouts de la fibre creuse. On introduit de l'argon pour augmenter la non-linéarité de troisième ordre du milieu afin d'élargir le spectre par SPM et augmenter le seuil d'ionisation du milieu. Une fibre creuse réussit à élargir un spectre car elle confine toute l'énergie sur une petite surface pendant une longue distance, ce qui permet d'accumuler suffisamment de phase non-linéaire pour que la SPM permette d'obtenir un spectre de trois cycles optiques. En sortie de fibre, on obtient 1.5 mJ et un spectre qui est tracé à la figure 3.8. Une lentille de

collimation placée en sortie de fibre permet d'obtenir un faisceau de diamètre à mi-hauteur de 5mm.

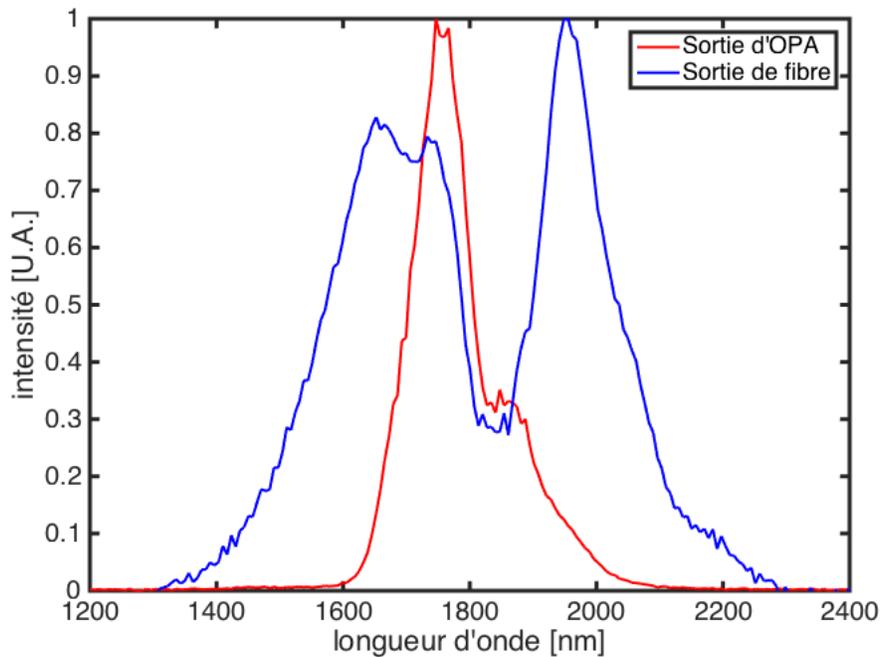


FIGURE 3.8 – Spectres normalisés avant et après la fibre creuse

### 3.5.2 Mise en forme de la pompe

Afin d'éviter les problèmes de diminution de la bande spectrale par le gain dans le FOPA, il faut mettre en forme spatialement la pompe afin d'avoir plus d'intensité sur les bords. Une nouvelle stratégie est testée pour cette expérience : au lieu d'utiliser une lentille de Powell, on utilise deux faisceaux gaussiens côte à côte qui se propagent de façon quasi-colinéaires. Pour ce faire, un module illustré à la figure 3.9 a été utilisé. La légère non-colinéarité est si faible qu'aucune frange d'interférence est visible dans la zone de recouvrement entre les deux faisceaux. Le délai entre ces deux faisceaux est contrôlé en déplaçant finement la lame séparatrice 50/50 et la synchronisation entre le signal et la pompe est assurée par une platine de translation commune aux deux faisceaux de pompe. Aussi, afin d'obtenir un faisceau gaussien elliptique au PF, une paire de lentilles cylindrique afocales (L3 et L4 sur la figure 3.9) a été utilisée. Comme on peut voir dans la figure 3.9 b), le faisceau est légèrement diffracté sur les côtés, mais cela pourrait être réglé en utilisant un autre couple de lentilles L1 et L2. Cette diffraction n'est pas responsable de pertes d'énergie importantes. Toutefois, plusieurs lentilles n'avaient pas de revêtements anti-reflets de sorte que la transmission du montage était de 45 %. Ainsi, 80 mJ de pompe sont amenés au PF avec une durée de 1 ps. Aujourd'hui, nous obtenons des transmissions de 90 %, mais ces résultats ne seront pas présentés dans ce mémoire. Par ailleurs, la pompe est amenée avec un léger angle non-colinéaire dans le FOPA de telle sorte que la pompe rentre en dessous du premier miroir cylindrique et sorte au dessus du deuxième miroir. La figure

3.10 présente la vue de côté du FOPA. Un autre effet bénéfique d'opérer le FOPA avec un angle non-colinéaire est que l'idler est émis avec une dispersion angulaire de telle sorte qu'il est facilement dissociable du signal. Finalement, l'accord de phase choisi est de type I et par conséquent, la pompe est polarisée perpendiculairement au signal. Pour ce faire, une lame demi-onde a été utilisée avant le système afocal cylindrique.

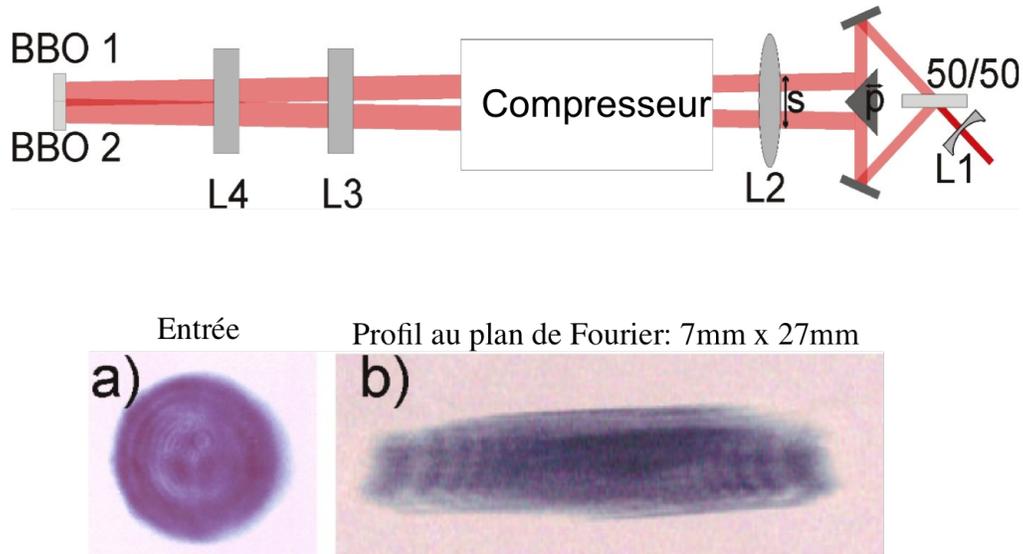


FIGURE 3.9 – Profil spatial de la pompe du FOPA a) avant la mise en forme et b) après la mise en forme

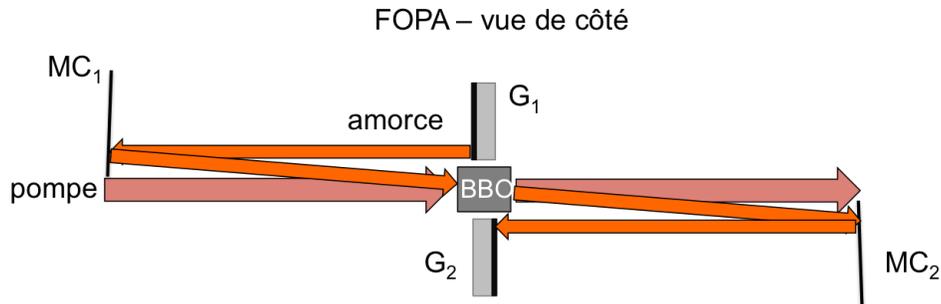


FIGURE 3.10 – Vue de côté du FOPA

### 3.5.3 Composants du FOPA

Pour le montage 4-f, des réseaux de 53 l/mm et des miroirs cylindriques ayant une focale de 600 mm ont été choisis. Cette combinaison réseau-focale étalerait un spectre de 2 cycles optiques, comme celui du FOPA de Schmidt *et. al.*, sur une longueur de 32 mm, mais comme le spectre de l'amorce générée dans le cadre de ce mémoire est légèrement inférieur à trois cycles optiques, il est étalé sur 26 mm. Une nouveauté de ce FOPA est l'utilisation de miroirs cylindriques qui permettent au faisceau de conserver sa dimension transverse à la dispersion. Ainsi, la surface au PF de l'amorce est de 26 par 5 mm soit 130 mm<sup>2</sup>, répondant ainsi à nos attentes, puisque correspondant à plus

de 10 fois la surface du FOPA de Schmidt *et al.*, estimée à  $12.1\text{mm}^2$  ( $55\text{mm}\times 0.22\text{mm}$ ). Le spectre a été dispersé sur une plus petite longueur afin de rentrer aisément dans deux cristaux de BBO. Il a été choisi de prendre uniquement deux cristaux de BBO car ceux-ci peuvent amplifier une bande spectrale correspondant à trois cycles optiques comme le démontre la figure 3.11. Les BBO ont chacun une ouverture de 8 par 20 mm et une épaisseur de 5 mm et sont ajustés individuellement à l'angle d'accord de phase désiré. Ils ont été coupés au même angle et polis ensemble afin de minimiser leur différence d'épaisseur.

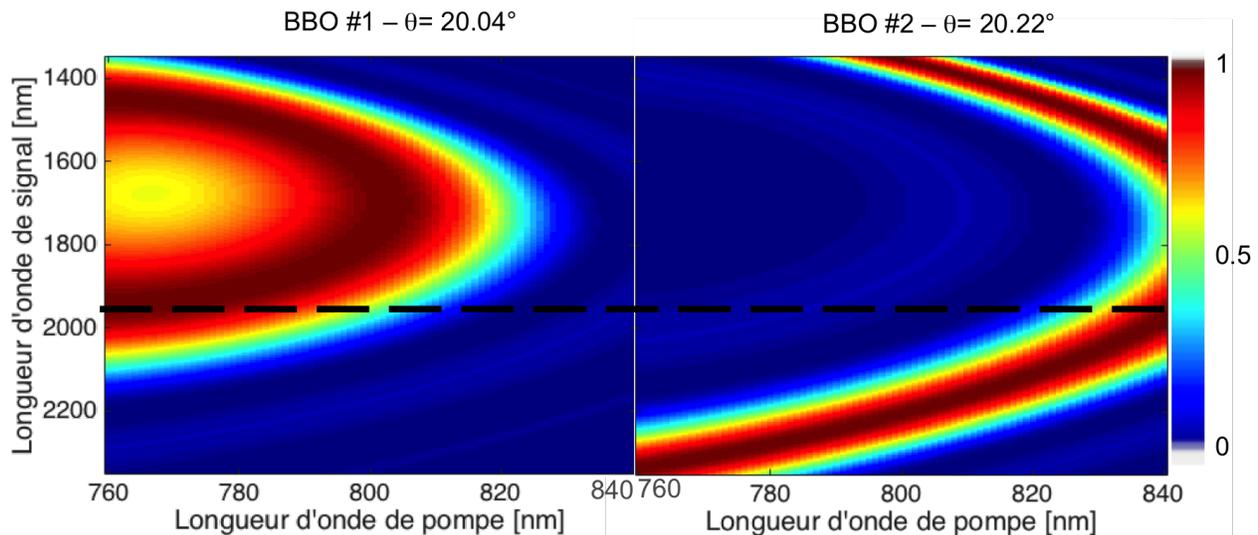


FIGURE 3.11 – Valeur du  $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$  pour les BBO utilisés dans le FOPA. La ligne en tirets délimite la séparation entre les deux cristaux dans le plan de Fourier

## 3.6 Résultats expérimentaux

### 3.6.1 Spectre

Le spectre du faisceau de référence ainsi que de celui amplifié sont présentés à la figure 3.12. L'intégralité du spectre de l'amorce, qui est grossi dix fois dans la figure, est amplifiée avec un peu plus de gain dans les ailes. Il y a plus de gain dans les ailes car le signal est initialement plus faible : dans un amplificateur, le gain à petit signal est toujours plus important qu'à grand signal. Aussi, on peut voir que le trou dans le spectre à 1850 nm de l'amorce causé par la SPM a été rempli et que le gain y est aussi important. Deux raisons expliquent la complétion de ce trou, la première est que c'est la région spatiale où les deux faisceaux gaussiens de la pompe se superposaient, il y avait donc plus d'intensité de pompe présente dans cette zone spectrale. Ensuite, puisque la pompe est large-bande relativement à l'amorce, une sorte de convolution spectrale se produit. Il a été vu dans la section de polarisation non-linéaire que les phénomènes d'ordre non-linéaires sont reliés à une multiplication des champs électriques dans le domaine temporel ou par relation de Fourier à une convolution dans

le domaine spectral. Ainsi, spectralement, la pompe large-bande est convoluée avec le signal qui a une bande étroite pour former un idler qui sera large-bande. Puis, cet idler large-bande est convolué avec la pompe large-bande pour amplifier le signal qui se retrouve alors avec une bande plus large qu'initialement. Bref, comme la pompe est large bande, le signal est amplifié sur une bande plus large qu'initialement. Finalement, les deux cristaux ne se touchaient pas mécaniquement ; il y avait un petit jeu et on peut voir qu'une petite portion spectrale n'est pas amplifiée à cette position.

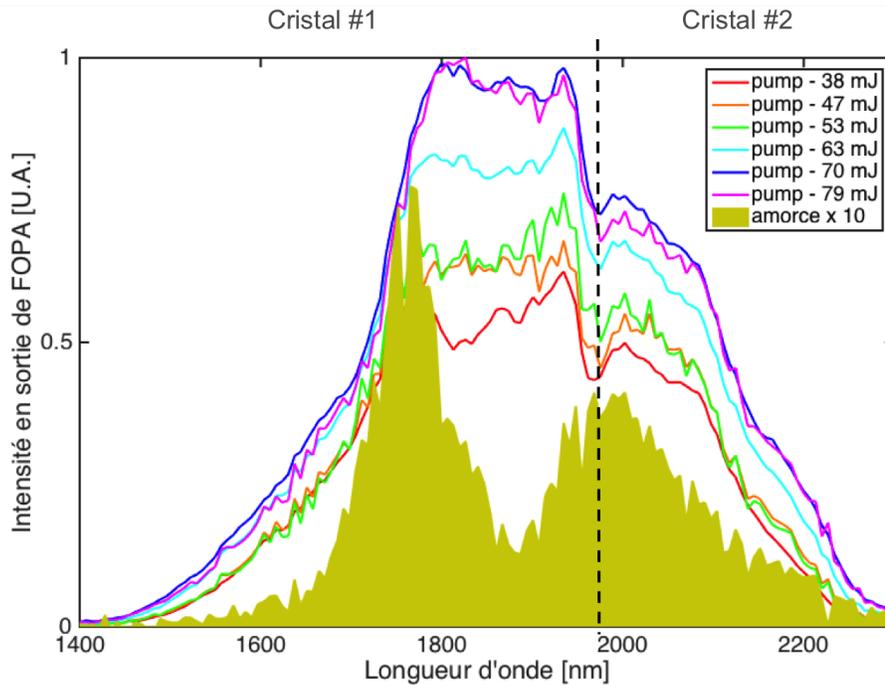


FIGURE 3.12 – Spectres en sortie de FOPA pour différents niveaux d'amplification. La ligne en tirets illustre la séparation entre les deux cristaux

### 3.6.2 Énergie et efficacité

Des 1.5 mJ en sortie de fibre, 1.4 mJ se rendent à l'entrée du FOPA. Surprenamment, la transmission du 4-f n'est que de 33 % de sorte qu'uniquement 460  $\mu$ J sortent du FOPA. Ces pertes proviennent potentiellement de l'état d'un des réseaux (légèrement abîmé lors de l'alignement), ou de l'efficacité large bande, qui n'était pas celle attendue. Pour des expériences futures, il faudrait caractériser la transmission de ces réseaux lorsqu'ils sont encore en parfait état. Si ce test n'est pas concluant, les réseaux de 75 l/mm qui ont été utilisés dans le premier FOPA de Schmidt *et al.* sont toujours une option valide, ceux-ci avaient une transmission de 50 % pour une bande spectrale plus large que celle utilisée ici. Malgré cette très faible transmission, l'objectif des 10 mJ en sortie de FOPA a été atteint et ce même si uniquement 80 mJ et non 100 mJ ont été amenés au plan de Fourier. Le graphique de la figure 3.13 présente les résultats de l'amplification. On peut y voir qu'une énergie de sortie de 13 mJ a été atteinte lorsque l'amplificateur est pompé à 80 mJ. En supposant des pertes identiques entre les deux réseaux, on estime que 22mJ ont été générés dans le PF. Il est à noter que pour mesurer

les énergies en sortie, une mesure de puissance à 10 Hz est faite à laquelle on enlève la puissance de quatre impulsions d’amorce qui se propagent à 50 Hz. Par ailleurs, la figure 3.13 présente aussi l’efficacité du processus et on peut voir que malgré la transmission du 4f, l’efficacité est relativement constante autour de 16 %. Si on applique le même raisonnement pour la transmission sur les réseaux, on peut supposer alors que l’efficacité est de 28 %. Si on prend une valeur conservatrice de 20 %, cela implique une efficacité quantique de 45 % ( $\frac{E_s \omega_p}{E_p \omega_s}$ ) ce qui est très élevée et aucune valeur comparable ne peut être trouvée pour une amplification large bande dans la littérature.

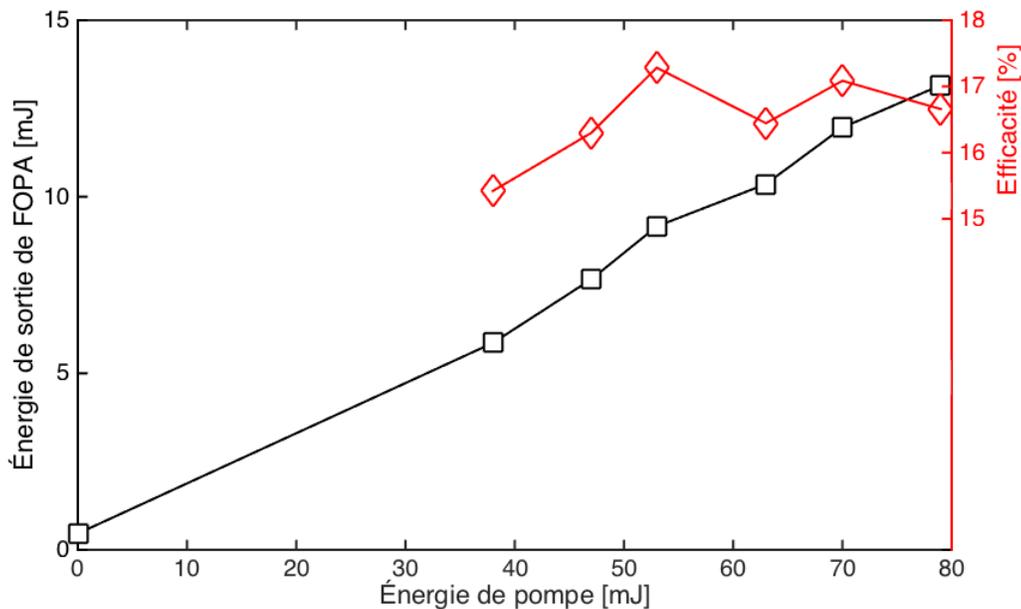


FIGURE 3.13 – Énergie et efficacité en sortie de FOPA en fonction du niveau de pompage

### 3.6.3 Profil spatial

Une autre nouveauté de ce FOPA était d'utiliser des miroirs cylindriques à la place de miroirs sphériques. Il s'est avéré que l'alignement de ces miroirs étaient beaucoup plus critique qu'on ne le pensait. Il a fallu aligner très finement l'axe de ces miroirs cylindriques afin que ceux-ci coïncident avec l'axe de dispersion des réseaux. Un désalignement des miroirs cylindriques causait une dispersion angulaire dans l'axe perpendiculaire à la dispersion et un désalignement des réseaux causait une dispersion angulaire dans l'axe de dispersion des réseaux. Un test simple permettant de vérifier la présence de dispersion angulaire consiste à imager le foyer d'un faisceau à l'aide d'une caméra CCD et de déplacer un objet longiforme dans le PF. S'il y a de la dispersion angulaire, il est possible d'imager l'objet. Inversement, si le faisceau n'a pas de dispersion angulaire, il est impossible d'imager cet objet. Cela s'explique par le fait qu'un faisceau avec de la dispersion angulaire se transpose en dispersion spatiale au foyer. Ainsi, s'il est possible d'imager une composante spectrale au foyer, cela implique que le faisceau a de la dispersion angulaire. Au final, le FOPA a conservé les propriétés spatiales du

faisceau d'amorce comme on peut le voir à la figure 3.14. Il est à noter que ces images ont été prises avec la même lentille avec une caméra CCD en silicium par absorption à deux photons. Cela induit un filtrage non-linéaire sur l'image qui pourrait masquer certains défauts.

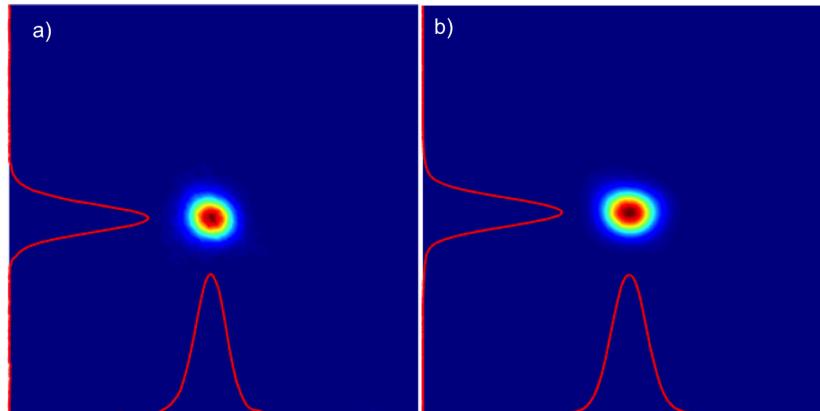


FIGURE 3.14 – Profil spatial au foyer d'une lentille de 50 cm du faisceau a) d'amorce et b) amplifié. Les images sont prises par absorption à deux photons sur une caméra CCD en silicium.

### 3.6.4 Profil temporel

Finalement, les propriétés temporelles du FOPA ont été étudiées. Pour ce faire, un montage GSH-FROG a été utilisé de même qu'un algorithme de reconstruction. L'impulsion en sortie de fibre supporte un spectre qui peut être compressé à un peu moins que trois cycles optiques, mais à cause de la dispersion induite par la SPM, l'impulsion est étirée à 50 fs avec une dispersion normale. Heureusement, à  $1.8 \mu\text{m}$  la plupart des verres ont une dispersion anormale. Ainsi, en utilisant 3 mm de silice fondue, l'impulsion a pu être comprimé à 17.5 fs comme il est illustré à la figure 3.15. On peut voir que le profil temporel de l'impulsion présente encore des traces d'ordre supérieur de dispersion qui n'ont pas été compensées par la fenêtre de verre. En effet, celle-ci est en mesure de compresser uniquement le deuxième ordre de dispersion, car son troisième ordre de dispersion est positif comme pour l'impulsion initiale. Malheureusement, à cause des contraintes liées aux temps d'allocation de faisceaux à ALLS ainsi qu'à la difficulté de discerner le signal à 10 Hz de 50 Hz dans la mesure FROG, nous n'avons pas été en mesure d'enregistrer une trace FROG satisfaisante pour l'impulsion amplifiée. Néanmoins, il devrait être possible d'obtenir une durée similaire à celle présentée à la figure 3.15. De même, pour des raisons de contraintes de temps, aucune mesure sur la CEP n'a été effectuée, mais on est en droit de s'attendre à ce que celle-ci soit stabilisée car un processus de GDF est impliqué dans la génération de l'amorce.

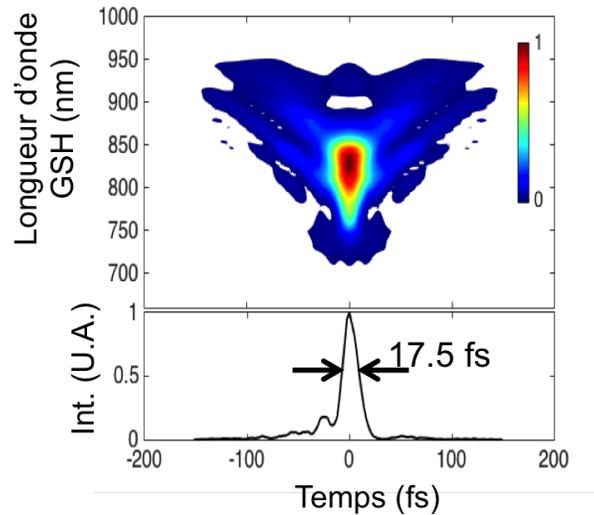


FIGURE 3.15 – Trace FROG reconstituée et profil temporel correspondant de l'amorce

## 3.7 Observations et simulations

Dans cette section, des caractéristiques du couplage spatio-temporel dans un FOPA est abordé. Plus particulièrement, les propriétés du faisceau amplifié en sortie de FOPA en fonction de la durée de la pompe et de la désynchronisation temporelle entre la pompe et l'amorce seront étudiées. Bien que ces phénomènes aient été observés expérimentalement, ils n'ont pas été caractérisés dû à un manque de temps. Pour les illustrer, le formalisme des matrices de Kostenbauder, introduite à la section 2.3.3 sera utilisé.

### 3.7.1 Durée de l'impulsion de pompe

L'équation 2.34 de la durée de l'amorce au PF montre que celle-ci dépend linéairement de la taille du faisceau à l'entrée du FOPA. Ainsi, un phénomène inverse se produit lorsque la durée de la pompe ne correspond pas à la durée de l'amorce au plan de Fourier. Par exemple, si le FOPA est pompé avec une pompe trop courte par rapport à l'amorce, alors le faisceau de sortie amplifié sera plus petit spatialement. Pour illustrer ce problème, on utilise les matrices de Kostenbauder et on propage l'amorce jusqu'au PF. Ensuite, au lieu de simuler la propagation non-linéaire, on impose un fenêtrage optique avec une autre gaussienne plus courte temporellement qui représente la pompe. Enfin, on propage le résultat de ce fenêtrage jusqu'en sortie de FOPA. La figure 3.16 illustre cette situation.

Les sous-figures a) à c) représentent une amplification par une pompe de durée similaire à l'amorce, alors que les sous-figures d) à f) représentent la situation où la pompe est beaucoup plus courte que l'amorce. On observe qu'au PF, l'impulsion amplifiée est beaucoup plus courte lorsque la pompe l'est aussi. C'est une conséquence de la multiplication des deux gaussiennes. Ce modèle n'est pas tout

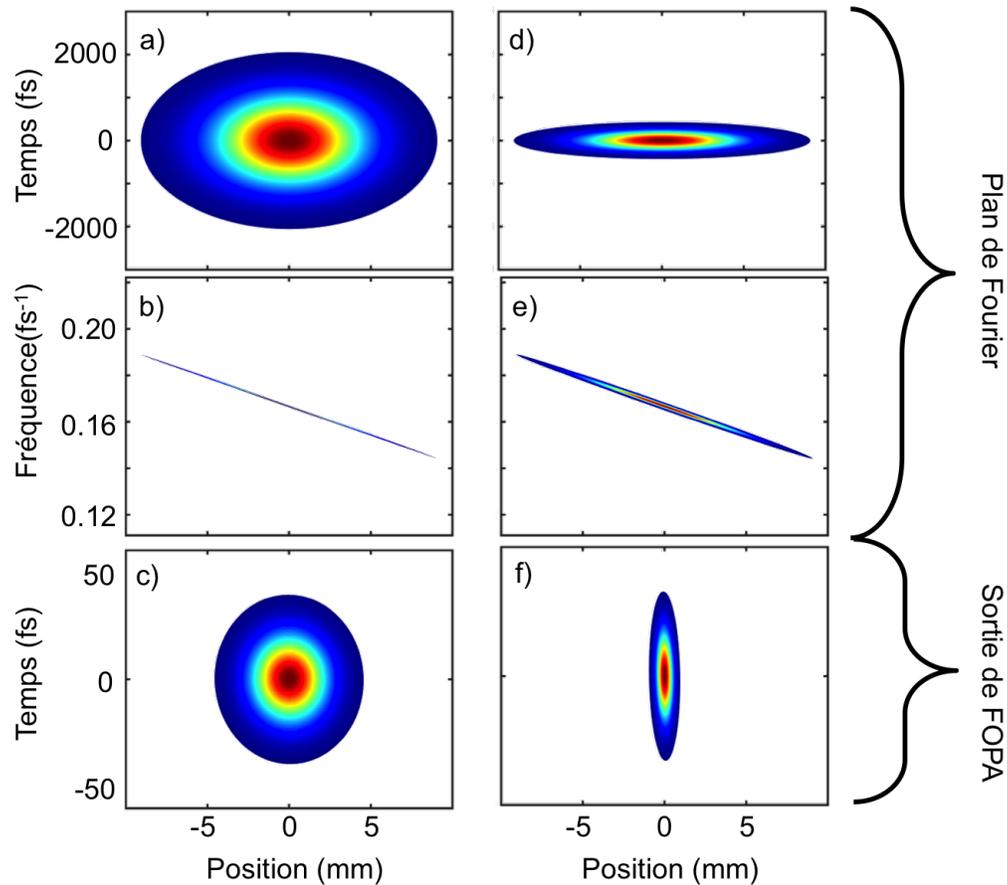


FIGURE 3.16 – Évolution d’une impulsion amplifiée dans un FOPA lorsque la pompe a la même durée que l’amorce (a-c) et lorsqu’elle est plus courte (d-f). a), b), d) et e) présentent l’impulsion au plan de Fourier et c) et f) en sortie.

à fait exact parce que les équations non-linéaires indiquent que la multiplication du signal avec la pompe donne le gain de l’idler et c’est la multiplication de l’idler avec la pompe qui donne le gain du signal. Cependant, si on construisait un modèle simple avec ces deux multiplications en chaîne, on se retrouverait avec un effet similaire à celui observé ici. Pour des fins qualitatives, le modèle utilisé est suffisant. Ainsi, comme l’impulsion est plus courte, on observe que le contenu fréquentiel dans un foyer est plus important lorsqu’on compare les sous-figures b) et e). Cet élargissement spectral est dû à la convolution de la pompe dans le domaine fréquentiel. Dans l’amplificateur, on peut comprendre le phénomène comme une pompe large bande qui interagit avec un signal à bande étroite pour générer un idler large bande. Cet idler large bande interagit avec la pompe large bande pour amplifier le signal sur une large bande : la largeur de bande du signal augmente. Par conséquent, une même longueur d’onde occupe un espace plus important dans le PF, ce qui est l’équivalent d’avoir été focalisé avec une ouverture numérique plus faible. C’est pourquoi aux sous-figures c) et f), le faisceau amplifié ressort beaucoup plus petit lorsque la pompe est très courte. Il est à noter que cet effet ne se produit que sur un des deux axes spatiaux du faisceau puisque le faisceau est dispersé que sur un axe. Aussi, cet effet ne peut se produire que si les nouvelles longueurs d’onde générées sont en accord de phase. Dans le cadre de ce mémoire, c’était le cas car le BBO peut amplifier sur une très large bande. Dans une situation où le FOPA requerrait beaucoup de cristaux à cause de l’accord de phase,

cet effet serait moindre et le design du FOPA imposerait donc une limite inférieure à la durée dans le PF et par conséquent une taille minimale en entrée de FOPA. Cette réalité devait être celle du FOPA de Phillips *et al.* [63] où un cristal à domaines inversés en éventail est utilisé, car ce type de cristal ne permet pas un accord de phase large bande pour chaque position.

### 3.7.2 Synchronisation de l'amorce et de la pompe

Lorsque le délai entre la pompe et l'amorce est changé du point de synchronisation, on observe qu'en plus de la perte d'efficacité d'amplification, le faisceau de sortie se décale latéralement. En balayant des délais positifs à des délais négatifs, le faisceau amplifié se décale de droite à gauche par rapport au cas non amplifié. Pour comprendre ce couplage spatio-temporel non-trivial, numériquement, on construit une impulsion gaussienne qu'on propage jusqu'au PF. Au PF, on la multiplie par une autre gaussienne avec les mêmes largeurs dans l'espace et le temps, mais dont la moyenne est déplacée sur l'axe temporel. Cette deuxième gaussienne représente la pompe qui est désynchronisée. Pour des fins de simplicité, on suppose que cette deuxième gaussienne est purement réelle et n'agit qu'à titre de fenêtrage temporel. Ensuite, une régression gaussienne sera faite sur le résultat du produit des impulsions la pompe et de l'amorce pour ensuite être propagé sur l'autre moitié du 4-f. Bien que ce modèle ne représente pas un phénomène d'amplification puisqu'il n'y a aucune propagation non-linéaire, il permet tout de même de comprendre le phénomène étudié. Cette étude de propagation est illustrée à la figure 3.17.

Les sous-figures a) à c) représente l'impulsion amplifiée par une pompe synchronisée et d) à f) pour une pompe désynchronisée. Lorsqu'on compare les impulsions dans le PF dans le domaine  $(x, t)$ , on voit que la désynchronisation de la pompe, redistribue l'énergie de l'amorce plus dans sa queue. Cependant, au PF, l'impulsion a une dépendance entre sa direction et le temps de sorte qu'une redistribution de l'énergie en faveur de la queue de l'impulsion implique que la direction moyenne de l'impulsion ne suit plus l'axe optique comme on le voit en comparant les sous-figures b) et e). Par conséquent, l'impulsion en sortie n'est plus située sur l'axe optique mais plutôt légèrement décalé comme on le voit lorsqu'on compare les sous-figures c) et f).

En jumelant les deux effets décrits ci-haut, il est aisé de synchroniser les deux pompes du FOPA avec l'amorce. Tout d'abord, un diaphragme de sortie est placé en utilisant la position du faisceau d'amorce non-amplifié comme référence. Ensuite, les deux pompes sont compressées temporellement de telles sortes que le faisceau amplifié en sortie soit très fin spatialement. La désynchronisation des pompes s'observe avec le décalage du faisceau amplifié par rapport au diaphragme de sortie. Chaque pompe produit son propre faisceau amplifié qui est légèrement décalé avec le diaphragme. Pour synchroniser les trois faisceaux ensemble, il faut superposer les deux faisceaux amplifiés sur le diaphragme de sortie. Comme les pompes ont des durées très courtes, il est possible de superposer les faisceaux amplifiés avec une très grande précision puisque ceux-ci sont très fins et ainsi obtenir une synchronisation avec une excellente précision.

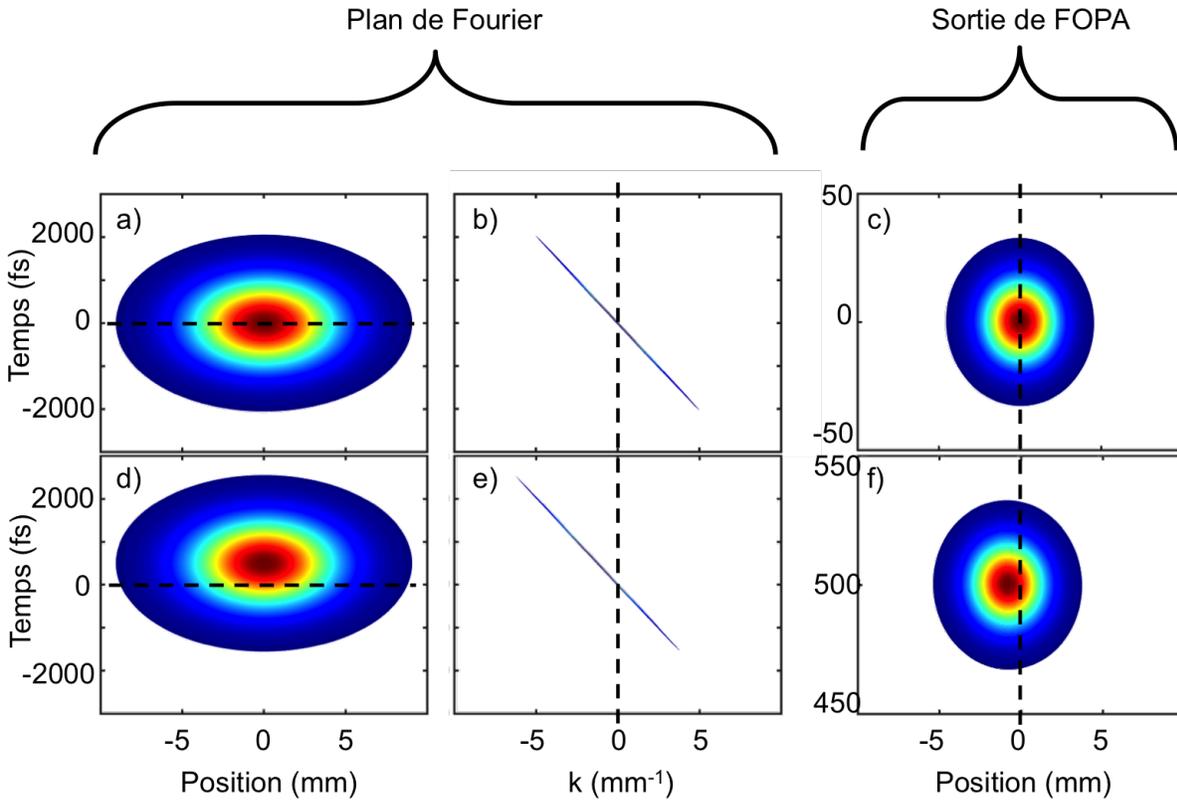


FIGURE 3.17 – Évolution d'une impulsion amplifiée dans un FOPA lorsque la pompe est synchronisée (a-c) et désynchronisée (d-f). a), b), d) et e) présentent l'impulsion au plan de Fourier et c) et f) en sortie.

### 3.8 Considérations futures

En conclusion, ce nouveau FOPA a démontré la possibilité d'augmenter l'énergie simplement en conservant la même intensité au PF. L'objectif de 10 mJ en sortie avec 100 mJ de pompe a été atteint. De plus, si la mesure future du profil temporel de l'impulsion amplifiée est bel est bien de l'ordre de 18 fs, cette source laser serait la source la plus intense dans cette game spectrale et atteindrait presque le TW en puissance crête, ce qui en ferait la source la plus puissante au monde dans cette gamme spectrale. Grâce au processus de générations d'harmonique d'ordre élevé, elle devrait permettre d'atteindre la gamme spectrale de la fenêtre de l'eau avec un flux de photon intéressant. Par ailleurs, il semblerait que l'amplificateur ne soit pas encore saturé car l'efficacité du processus était constant à 16 % en fonction du niveau de pompage, ainsi nous pensons qu'il est possible d'amener presque 200 mJ de pompe et d'obtenir 30 mJ en sortie. Il faudra toutefois garder un oeil sur la possibilité d'atteindre l'intensité critique des cristaux. Si tel est le cas, il faudra concevoir un montage 4-f plus dispersif. Finalement, le projet du deuxième FOPA en chaîne semble toujours réalisable et il devrait permettre d'obtenir 100 mJ de moyen infrarouge ultra-court.



# CHAPITRE 4

## GÉNÉRATION DE SECONDE HARMONIQUE DANS LE DOMAINE DE FOURIER (GSHF)

### 4.1 Objectifs

Tout comme dans l'OPA, la GSH peut profiter de l'utilisation de cristaux multiples dans le plan de Fourier afin de résoudre les problèmes de d'accord de phase sur une large-bande spectrale. Cependant, ce n'est pas ce type de problème qui est étudié dans le cadre de cette expérience. L'objectif de cette expérience est de réaliser un montage non-linéaire dont toutes les composantes spectrales impliquées sont dispersées spatialement. Dans un FOPA seul le signal est dispersé spatialement, la pompe ne l'est pas. Ainsi, l'expérience non-linéaire la plus simple qui impliquerait deux impulsions dispersées spatialement est de faire interagir une impulsion dispersée avec elle-même ce qui donne lieu à de la GSH. L'objectif est d'observer le comportement des processus non-linéaires quand les différentes composantes spectrales n'interagissent qu'avec elles-mêmes. Dans un processus de GSH avec une impulsion femtoseconde, les différentes composantes spectrales sont couplées et il y a à la fois de la GSH et de GSF. Le but d'utiliser une impulsion dispersée est de découpler cette GSF comme l'illustre la figure 4.1. Pour observer ce découplage, deux perturbations seront apportés à l'impulsion : une modulation de la phase spectrale et une modulation de l'amplitude spectrale. Dans ces deux situations, les phénomènes non-linéaires couplés et découplés seront comparés.

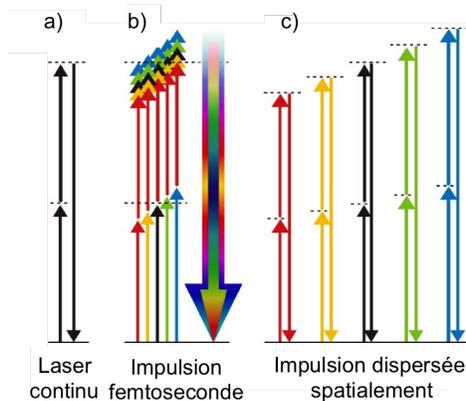


FIGURE 4.1 – GSH pour a) un laser continu, b) une impulsion femtoseconde et c) une impulsion dispersée spatialement

## 4.2 Montage expérimental

Le montage commun aux deux expériences est présenté à la figure 4.2. Un oscillateur Ti :Saph à blocage de modes opérant à 780 nm est envoyé dans un module de mise en forme temporelle de l'impulsion qui est un modulateur acousto-optique commercial (Dazzler, compagnie *Fastlite*). Puis, l'impulsion est envoyée dans une chaîne laser qui amplifie par CPA jusqu'à 1.5 mJ à 1 kHz. L'impulsion est ensuite compressée jusqu'à 33 fs et 1 mJ. Cette impulsion est ensuite envoyée dans un montage 4-f. De la même manière que dans le FOPA, un cristal, cette fois taillé de façon à favoriser l'accord de phase du processus de GSH, est placé dans le PF. On appellera cette interaction GSHF pour domaine des fréquences. Le faisceau de seconde harmonique est recombinaison au deuxième ordre de diffraction de façon à ce que le faisceau de sortie se propage colinéairement avec le faisceau fondamental. Cette condition est nécessaire pour que le faisceau de sortie n'est pas de dispersion angulaire après le dernier réseau. Pour réaliser la GSH couplée, le cristal non-linéaire sera déplacé après le montage 4-f, on appellera cette interaction GSHT pour domaine temporel. Par la suite, on sépare le faisceau fondamental résiduel de celui de seconde harmonique avec un dichroïque. On mesure la phase et l'intensité spectrale avec un RT-FROG afin d'avoir une vision intuitive de la relation de dispersion dans l'impulsion.

Le montage 4-f est constitué de deux réseaux de 600 l/mm et, à la place des miroirs, deux lentilles de longueur focale de 300mm. Le BBO utilisé, d'une épaisseur de 150  $\mu\text{m}$ , est coupé pour un doublement de type I. Par conséquent, l'onde doublée est émise avec une polarisation perpendiculaire à l'onde fondamentale. Cependant, l'efficacité de diffraction d'un réseau est meilleure avec une polarisation perpendiculaire aux lignes. Ainsi, pour augmenter l'efficacité de diffraction de l'onde doublée, une lame demi-onde est ajoutée avant le PF pour tourner la polarisation de 90° de l'onde fondamentale. De plus, cette rotation de la polarisation permet d'avoir l'axe extraordinaire du cristal dans le même axe que la dispersion des réseaux. Cela permet de compenser toute dispersion angulaire supplémentaire lors de la génération avec le réseau de sortie. Finalement, comme des lentilles sont utilisées dans le 4-f, une dispersion résiduelle dû à leur épaisseur est introduite. Celle-ci est compensée par le compresseur en amont et nous avons noté les différentes positions de compresseur qui permettent de compenser la dispersion pour le faisceau fondamental ou pour celui de seconde harmonique.

La mesure de RT-FROG est réalisée à l'aide d'un montage maison où un masque est utilisé afin d'obtenir les trois faisceaux nécessaires à la mesure comme illustrée à la figure 2.9.

Pour la modulation de phase, on utilisera le *Dazzler* afin d'introduire une dispersion d'ordre deux ou trois. La modulation d'amplitude sera réalisée en bloquant certaines composantes spectrales dans le compresseur afin de créer un trou dans le spectre de l'impulsion.

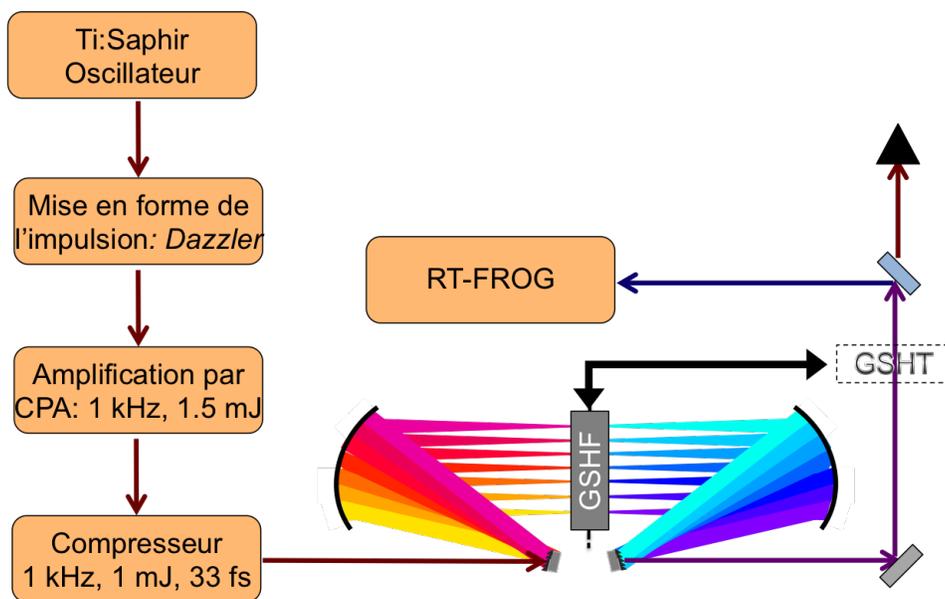


FIGURE 4.2 – Montage expérimental de la GSH dans le plan de Fourier.

## 4.3 Résultats expérimentaux

### 4.3.1 Profil spatial

L'utilisation de lentilles dans ce type de dispositif amènent certaines contraintes, notamment l'apparition de dispersion et d'aberrations chromatiques. Nous avons réglé les problèmes de dispersion grâce à l'ajout d'une phase de compensation via l'utilisation du compresseur en amont du 4-f. Cette phase était différente selon si on souhaitait compenser pour le faisceau fondamental ou de seconde harmonique. De la même manière, l'orientation du second réseau devait être ajustée par rapport à la position de référence définie par le faisceau fondamental afin de recombinaison correctement le faisceau de seconde harmonique. Cette différence est due à la courbe d'accord de phase du BBO qui favorise une génération de seconde harmonique avec une dispersion angulaire. À chaque fréquence est associée un angle pour lequel le désaccord de phase est minimisé, ce qui se traduit par une dispersion angulaire lors de la génération. Ainsi, en utilisant une caméra et en imageant le foyer, une position angulaire idéale du réseau a été trouvée pour corriger cette dispersion angulaire supplémentaire. Le réseau corrige toutes les dispersions angulaires quand la tâche focale est ronde et qu'il n'est plus possible d'imager un objet filiforme placé au PF. À titre d'exemple, le foyer du faisceau de seconde harmonique est imagé à la figure 4.3 lorsque le deuxième réseau est placée à angle non-symétrique au premier et qu'un objet longicorne est présent au PF. L'absence de ligne sombre dans l'image nous indique que la dispersion angulaire est bien compensée. Aussi, comme seconde preuve de l'absence de dispersion spatiale dans le faisceau de seconde harmonique, on peut noter que les mesures RT-FROG subséquentes sont faites à partir de différentes portions du profil spatial. Ainsi, pour obtenir une bonne mesure, il faut absolument que le spectre soit uniforme dans tout le profil spatial. Un pro-

fil inhomogène sera visible sur un spectrogramme par l'absence de symétrie attendue, par exemple une symétrie par rapport à la fréquence centrale pour un spectre gaussien avec une phase spectrale constante.

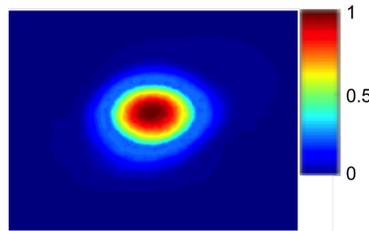


FIGURE 4.3 – Image du foyer du faisceau de seconde harmonique en GSHF.

### 4.3.2 Modulation de phase

Comme indiqué plus haut, la modulation de phase se fait grâce à un *Dazzler*. La première modulation étudiée est une modulation du deuxième ordre. La figure 4.4 présente les spectrogrammes RT-FROG obtenus pour les faisceaux générés par GSHF et GSHT pour une dispersion du second ordre positive et négative. On peut voir que les spectrogrammes entre la GSHF et GSHT ont une forme similaire et il ne semble pas avoir une différence entre les impulsions générés par ces deux méthodes.

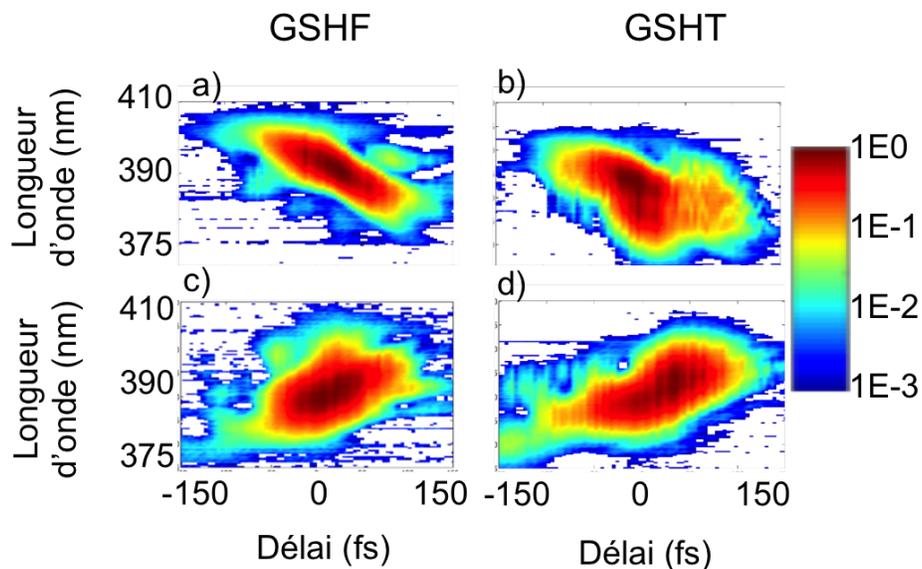


FIGURE 4.4 – Spectrogrammes RT-FROG pour un faisceau avec une dispersion du second ordre négative généré par a) GSHF et b) GSHT et un faisceau avec une dispersion du second ordre positive généré par c) GSHF et d) GSHT

Par la suite, une dispersion d'ordre trois a été ajoutée à l'impulsion. Les résultats sont présentés à la figure 4.5. On note que les spectrogrammes RT-FROG sont très différents entre les deux méthodes. On voit de façon très intuitive la dispersion d'ordre trois dans le spectre fondamental (a) : les ailes du spectre sont envoyées vers la queue de l'impulsion. En GSHF (b), on obtient le même type de

dispersion que l'onde fondamentale car les deux spectrogrammes sont très similaires. On voit très bien qu'il n'y a pas de couplage entre les différentes longueurs d'onde et tout le spectre est doublé fréquence par fréquence et chaque fréquence reprend la même place dans l'impulsion. Le couplage non-linéaire dans la GSHT (c) fait en sorte que les ailes du spectre fondamental interagissent en GSF pour générer la seconde harmonique de la fréquence centrale. Par conséquent le trou spectral dans la queue de l'impulsion fondamentale est comblée. Ces spectrogrammes (b-c) indiquent que la phase spectrale de la GSHF conserve celle de l'onde fondamentale alors que la GSHT ne la conserve pas. Pour s'en convaincre, on peut appliquer l'algorithme de reconstruction FROG pour retrouver les phases spectrales. Ces phases reconstruites sont présentées à la figure 4.6. Sur ce graphique, il est évident que la GSHF conserve la phase spectrale de l'onde fondamentale. Il y a un facteur deux entre les échelles de phases de l'onde fondamentale et des ondes de seconde harmonique car la relation de phase est  $\phi_{GSH} = 2\phi_f$  comme il a été vu à l'équation non-linéaires 2.10. Finalement, la phase en GSHT est très différente de l'onde fondamentale car elle est altérée par le processus de couplage entre les fréquences.

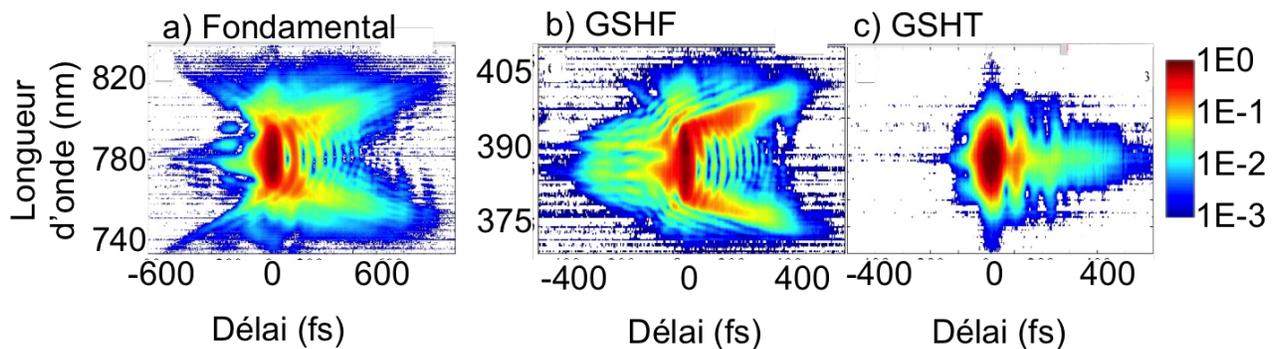


FIGURE 4.5 – Spectrogrammes RT-FROG pour une impulsion avec une dispersion du troisième ordre pour a) l'onde fondamentale, b) l'onde générée par GSHF et c) l'onde générée par GSHT

### 4.3.3 Modulation d'amplitude

Pour la modulation d'amplitude, un trou a été introduit dans le spectre fondamental et le spectre en seconde harmonique a été enregistré. De plus, afin de montrer que le couplage entre les fréquences est responsable des structures observées en GSHT, on a allongé l'impulsion en ajoutant de la dispersion d'ordre deux. La dérive de fréquence induite par la dispersion d'ordre deux devrait empêcher les différentes composantes spectrales de se voir. Cette dispersion a été ajoutée en déplaçant la position des réseaux dans le compresseur car le Dazzler ne pouvait générer une dispersion de cet ordre de grandeur. La figure 4.7 présente les spectres en GSH en fonction de la durée de l'impulsion fondamentale. Une durée négative fait référence à une dispersion négative, toutefois on peut voir que le processus n'est pas influencé par le signe de la dispersion est que le résultat est symétrique par rapport à la durée la plus courte. Comme attendu, en GSHT, le trou dans le spectre est complété par le phénomène de couplage entre les fréquences et il faut étirer l'impulsion jusqu'à 2.5 ps pour commencer à supprimer cet effet de couplage. En GSHF, le trou est toujours conservé et il n'y a pas ce

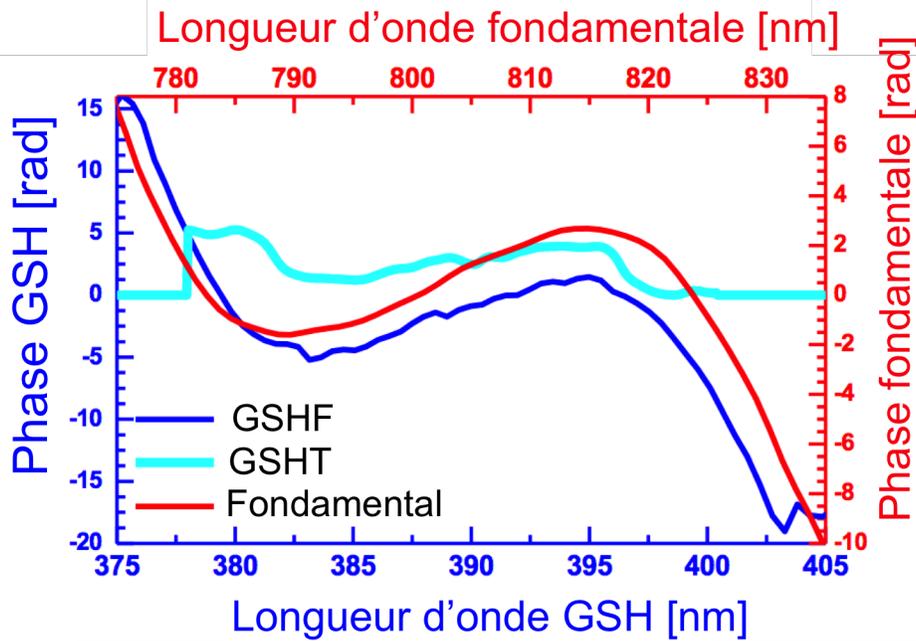


FIGURE 4.6 – Phases spectrales reconstruites des ondes fondamentale et de seconde harmonique. Un facteur deux sur les échelles entre les ondes fondamentale et de seconde harmonique est appliqué à des fins de comparaison.

phénomène de couplage fréquentiel. Par ailleurs, l'étirement de l'impulsion entraîne une diminution de l'efficacité du processus de GSHT, relatif à la diminution de l'intensité pic du fondamental. Il n'y a pas ce problème en GSHF parce que la durée au PF, d'environ 6 ps, est beaucoup plus longue que l'impulsion initiale et par conséquent l'intensité au PF est constante malgré la dispersion introduite par le compresseur.

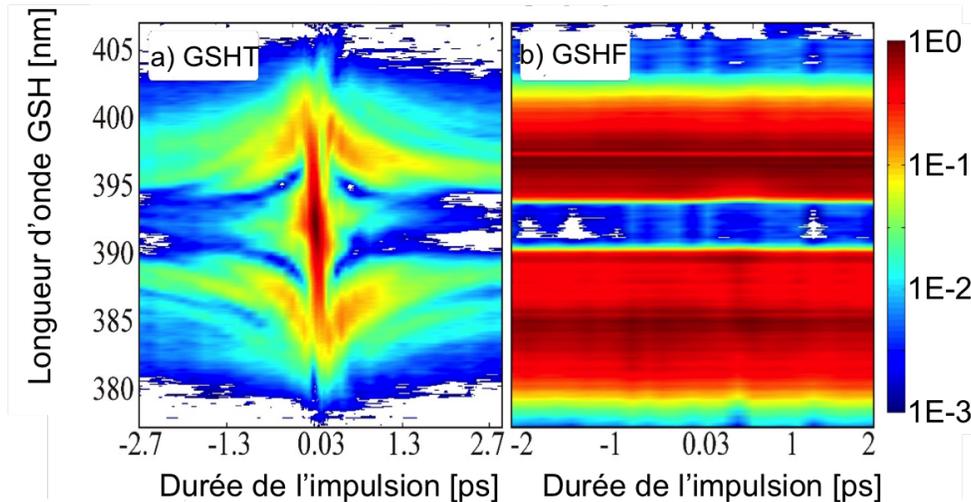


FIGURE 4.7 – Spectres de la GSH en fonction de la durée de l'impulsion fondamentale pour une interaction a) dans le domaine du temps et b) dans le domaine des fréquences.

Finalement, on note que l'efficacité absolue de la GSHF est de 5 % alors qu'elle était d'un peu plus que 30 % pour la GSHT. Cette différence n'est pas une conséquence du système et sera développée plus en profondeur dans la section suivante.

## 4.4 Discussion

### 4.4.1 Modèle mathématique

Pour interpréter les résultats de la section précédente, un modèle mathématique simple est développé pour différencier les interactions dans le domaine temporel et fréquentiel. Pour ce faire, on utilise l'équation 2.1 de la polarisation non-linéaire d'ordre deux qui dit que le champ généré en seconde harmonique est dû à un produit de deux champs électriques dans une représentation temporelle. Dans les paragraphes suivants, il peut rapidement y avoir une confusion entre les termes temporels et fréquentiels à savoir s'il est question de l'interaction non-linéaire ou bien du domaine de la représentation du champ électrique. Pour les distinguer, il faut observer si le terme interaction ou représentation est utilisé.

$$E_{GSHT}(t) \propto E_f(t) \cdot E_f(t) \quad (4.1)$$

est l'équation qui décrit l'interaction dans le domaine temporel. Son équivalent en représentation fréquentielle est :

$$E_{GSHT}(\omega) \propto E_f(\omega) * E_f(\omega) \quad (4.2)$$

où  $*$  dénote un produit de convolution. C'est cette convolution spectrale qui est responsable de tous les effets de couplages observés et qui expliquent qu'on a simultanément de la GSH et de la GSF.

Pour l'interaction dans le domaine fréquentiel, il faut trouver une équation qui imite le comportement d'un montage 4-f. Tout d'abord, il faut utiliser un filtre spectral,  $F_i$ , pour obtenir une bande réduite comme celle présente au PF :  $E(\omega) \cdot F_i$ . Ensuite, il faut appliquer le processus non-linéaire de seconde harmonique, c'est-à-dire une auto-convolution spectrale :  $(E(\omega) \cdot F_i) * (E(\omega) \cdot F_i)$ . Finalement, il faut appliquer tous les filtres fréquentiels possibles et faire la somme de ces interactions :  $\sum_{i=0}^n (E(\omega) \cdot F_i) * (E(\omega) \cdot F_i)$ . Afin d'obtenir un résultat analytique, on utilise le filtre le plus fin possible soit un delta de Dirac  $\delta(\omega)$ . Par conséquent la somme devient une intégrale :

$$E_{GSHF}(\omega) \propto \int_{-\infty}^{\infty} (E_f(\omega)\delta(\omega - \omega_i)) * (E_f(\omega)\delta(\omega - \omega_i)) d\omega_i \quad (4.3)$$

$$E_{GSHF}(\omega) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_f(\omega_i)E_f(\omega_i)(\delta(\omega - \omega_i) * \delta(\omega - \omega_i))d\omega_i$$

$$E_{GSHF}(\omega) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_f^2(\omega_i)\delta(\omega - 2\omega_i)d\omega_i$$

$$E_{GSHF}(\omega) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_f^2(\omega_i)\delta\left(-2\left(\omega_i - \frac{\omega}{2}\right)\right) d\omega_i$$

$$E_{GSHF}(\omega) \propto E_f\left(\frac{\omega}{2}\right) E_f\left(\frac{\omega}{2}\right)$$

$$E_{GSHF}(2\omega) \propto E_f(\omega)E_f(\omega) \quad (4.4)$$

On voit que ce qui était une convolution spectrale pour une interaction dans le domaine temporel est devenue une multiplication pour une interaction dans le domaine fréquentiel. Le facteur 2 dans l'argument de l'équation 4.4 est présent pour déplacer la fréquence centrale de  $\omega_0$  à  $2\omega_0$  : un phénomène attendu en GSH. Aussi, ce facteur 2 a pour effet d'élargir le spectre fondamental par un facteur 2 tel que le ratio largeur spectrale sur fréquence centrale de l'impulsion reste constant. Toutefois, puisque le spectre fondamental est mis au carré, la plupart du temps la largeur spectrale en seconde harmonique est plus faible qu'un facteur 2. Pour une gaussienne, le spectre est plus large d'un facteur  $\sqrt{2}$ , on obtient le même résultat pour une gaussienne interagissant dans le domaine temporel. L'équivalent dans la représentation temporelle de l'équation 4.4 est :

$$E_{GSHF}(t) = E_f(2t) * E_f(2t) \quad (4.5)$$

En résumé, la GSHT conserve l'amplitude complexe temporelle, mais convolue l'amplitude complexe spectrale, alors que la GSHF conserve l'amplitude complexe spectrale et convolue l'amplitude complexe temporel.

#### 4.4.2 Modulation de phase

En utilisant ce modèle mathématique, on peut reproduire les spectrogrammes RT-FROG obtenus expérimentalement. On rappelle qu'un spectrogramme RT-FROG est obtenu en résolvant cette intégrale :

$$I_{RT-FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \cdot I(t - \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (4.6)$$

Il est attendu que la phase spectrale soit transférée linéairement en GSHF et que la phase temporelle le soit en GSHT :

$$E_{GSHT}(t) = |E_{GSHT}| e^{i\phi_{GSHT}(t)} \propto E_f^2(t) = |E_f|^2 e^{i2\phi_f(t)} \quad (4.7)$$

$$E_{GSHF}(2\omega) = |E_{GSHF}| e^{i\phi_{GSHF}(\omega)} \propto E_f^2(\omega) = |E_f|^2 e^{i2\phi_f(\omega)}. \quad (4.8)$$

Pour la dispersion de second ordre, présentée à la figure 4.8, on retrouve la similarité des spectrogrammes en GSHT et en GSHF comme pour les spectrogrammes expérimentaux présentée à la figure 4.4. Ces spectrogrammes sont identiques et ne mettent pas en évidence toutes les conséquences du modèle mathématique. Cela s'explique par le fait que pour une impulsion gaussienne la phase spectrale d'ordre deux est directement reliée à la phase temporelle d'ordre deux. Ainsi même si la GSHT ne transfère que la phase temporelle, la phase spectrale est aussi transférée à cause de cette relation particulière entre les phases du second ordre pour impulsion gaussienne et vice-versa pour la GSHF.

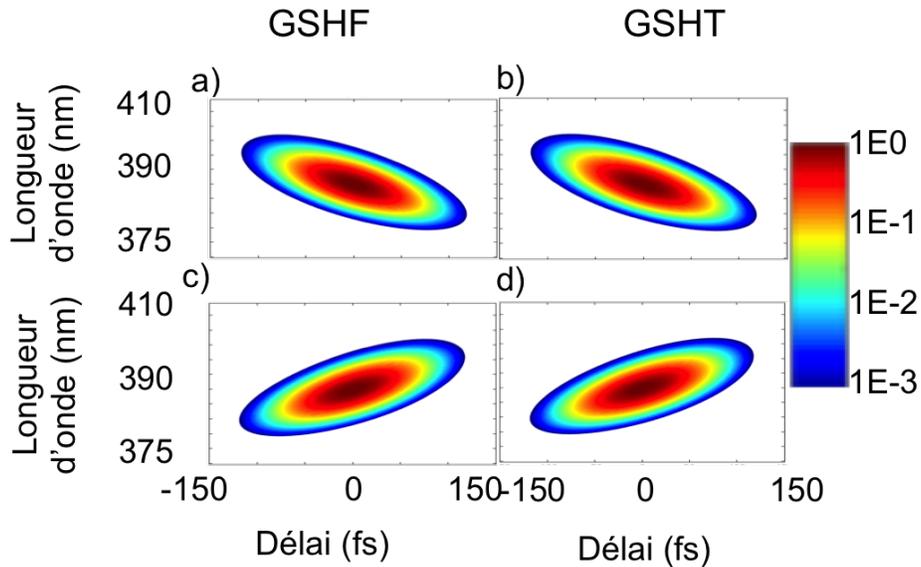


FIGURE 4.8 – Spectrogrammes RT-FROG théoriques pour un faisceau avec une dispersion du second ordre négative généré par a) GSHF et b) GSHT et un faisceau avec une dispersion du second ordre positive généré par c) GSHF et d) GSHT.

Il a été vu qu'il est plus aisé de faire ressortir la différence entre les deux processus en ajoutant de la dispersion d'ordre trois. Les spectrogrammes théoriques présentés à la figure 4.9 suivent très bien les résultats expérimentaux présentés à la figure 4.5. Le RT-FROG qui est sensible à la phase spectrale montre très bien expérimentalement et théoriquement qu'en GSHF la phase spectrale est transférée linéairement et que la GSHT est spectralement une convolution du spectre fondamental. C'est la première fois qu'un transfert linéaire de la phase est montré en GSH et nous nommons ce phénomène la linéarisation du non-linéaire. Cette linéarisation est très évidente dans le graphique de la phase reconstituée des spectrogrammes RT-FROG à la figure 4.6.

Pour expliquer la transition entre GSHF et GSHT, on s'intéresse désormais à l'influence de la largeur de la fenêtre  $F_i$ . Pour cela, on augmente progressivement sa largeur, en passant d'un delta de Dirac à une gaussienne correspondant à l'intégralité du spectre. Ces résultats sont présentés figure 4.10.

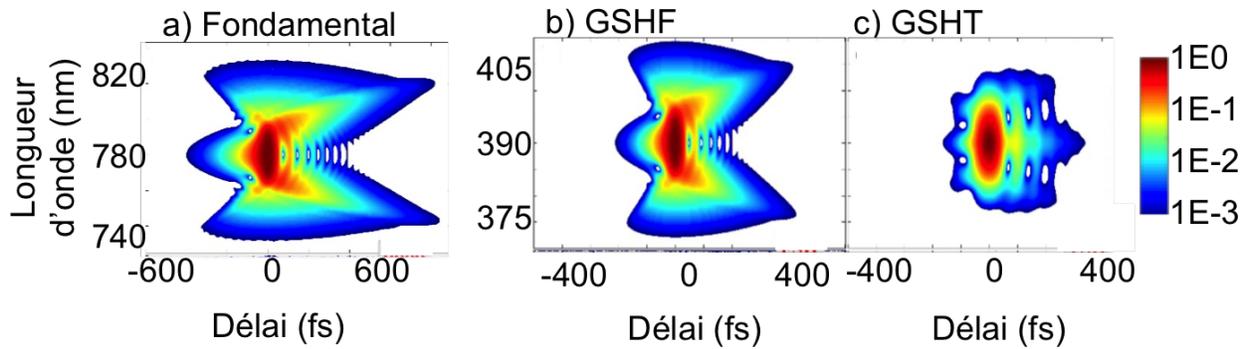


FIGURE 4.9 – Spectrogrammes RT-FROG théorique pour une impulsion avec une dispersion du troisième ordre pour a) l’onde fondamentale, b) l’onde générée par GSHF et c) l’onde générée par GSHT.

Le spectrogramme du fondamental est présenté à la figure 4.10 (a). Les figures 4.10(b) à (i) correspondent à des fenêtres spectrales d’une largeur de 0.2nm à 200nm FWHM. La figure 4.10 (j) présente le spectre obtenu par GSHT. On observe une modification notable du spectrogramme pour une largeur de 20nm FWHM, tandis que dans le cas d’une largeur de 200nm FWHM (figure 4.10 i)), on retrouve le spectrogramme obtenu par GSHT. Au fur et à mesure que la largeur du filtre augmente, on commence à voir les phénomènes de couplages fréquentiels. À partir d’une largeur de filtre 20 nm, seulement les fréquences spectralement proche se couplent entre elles pour générer la fréquence centrale, mais cet effet augmente en portée avec la largeur du filtre. Dans le cadre de l’expérience, la largeur à mi-hauteur du spectre à un foyer au PF était de 0.1 nm. On voit que pour cette résolution, l’approximation du delta de Dirac est valide. Cette étude confirme que l’équation de la GSHF 4.3 est une généralisation de l’équation 4.2 de la GSHT.

En résumé, le modèle mathématique permet d’expliquer les spectrogrammes obtenues en RT-FROG et les différences observées en GSHT et GSHF. Le modèle mathématique montre qu’il y a un transfert linéaire de la phase spectrale en GSHF et que ce transfert n’est pas possible en GSHT à cause de la convolution spectrale.

#### 4.4.3 Modulation d’amplitude

Le modèle mathématique permet aussi d’expliquer ce qui a été observé en modulation d’amplitude. Le trou dans le spectre de l’onde fondamentale est rempli par la convolution spectrale de l’interaction temporelle, alors qu’il est conservé pour une interaction fréquentielle, car le spectre initial est uniquement mis au carré. Pour s’en convaincre, le spectre initial au carré est tracé avec les spectres de GSH à la figure 4.11. Le spectre de GSHT est tracé à la fois lorsque celui-ci est obtenu avec une impulsion initiale de 2 ps (gris) et pour une impulsion initiale limitée en transformée de Fourier (violet). On remarque que le spectre de l’impulsion initiale au carré (jaune) ne correspond pas tout à fait au spectre de GSHF (noire). Toutefois lorsqu’on tient compte de l’accord de phase du cristal comme il a été vu à l’équation 2.17 ( $I_{GSH} = K^2 I_f^2 \text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ ), on remarque que le spectre fondamental (orange) suit très fidèlement le spectre de GSHF. Ceci constitue une preuve supplémentaire que la GSHF est une

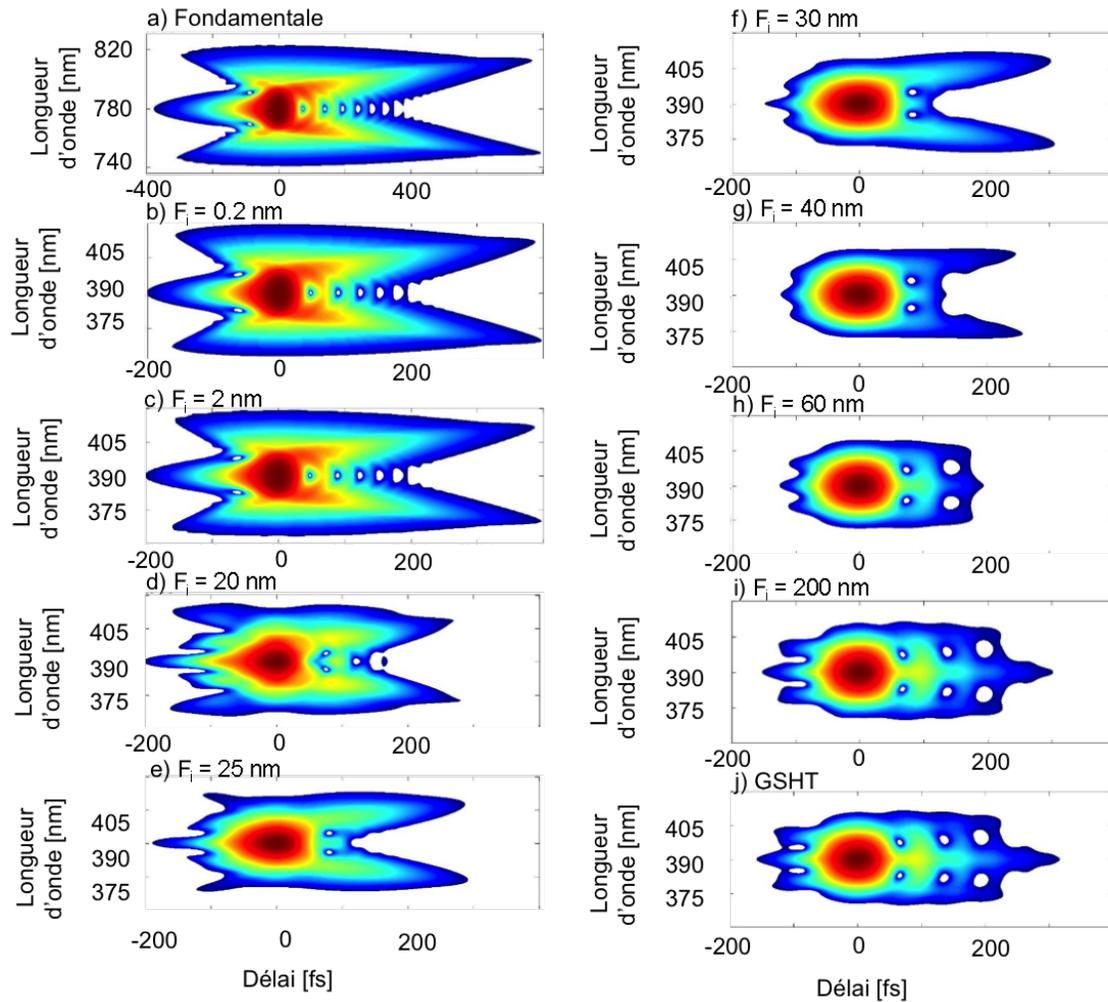


FIGURE 4.10 – Spectrogrammes RT-FROG théoriques pour la (b-i) GSHT avec un filtre fréquentiel  $F_i$  allant de 0.2 nm à 200 nm. a) présente le spectrogramme RT-FROG pour l'onde fondamentale et j) celui de la GSHT.

multiplication spectrale. Une représentation visuelle de l'effet de la fonction  $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$  est obtenue en plaçant un cristal plus épais (1mm) au PF et est illustré à la figure 4.12.

La taille minimale du trou dans le spectre de l'impulsion fondamentale qui peut être transféré est directement liée à la résolution spectrale du 4-f. Si le trou est trop fin par rapport à la résolution spectrale au PF et que les fréquences de part et d'autre du trou sont en mesure d'interagir entre elles dans un foyer, alors le trou sera comblé même en GSHT. On peut aussi voir cet énoncé dans une représentation temporelle, toute modulation d'amplitude spectrale qui correspond à une impulsion plus longue que celle au PF ne pourra être transférée. Dans le cadre de cette expérience, la durée au PF était de 6 ps et la modulation spectrale correspondait à un spectre d'une impulsion de 360 fs. Cette durée au PF explique aussi la constance du processus en fonction de l'allongement de l'impulsion initiale. Tant que l'impulsion initiale est d'une durée inférieure au PF, l'intensité au cristal n'est pas affectée ou dans d'autres termes tant que la dispersion au PF est dominée par le montage 4-f et non celle de l'impulsion initiale, l'intensité est constante au PF.

Finalement, la question de l'efficacité absolue est abordée. La GSHT avait une efficacité plutôt faible

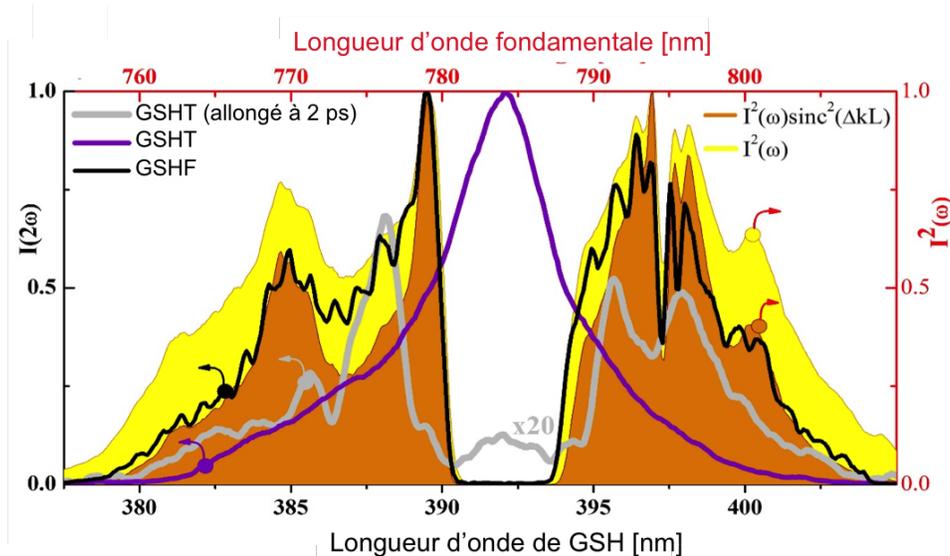


FIGURE 4.11 – Spectres de l'impulsion fondamentale mis au carré (jaune) et lorsqu'on tient compte de sa courbe d'accord de phase (orange), de l'onde de GSHF (noire) et de l'onde de GSHT lorsque l'impulsion initiale n'est pas allongée (violet) et lorsqu'elle l'est à 2 ps (gris).

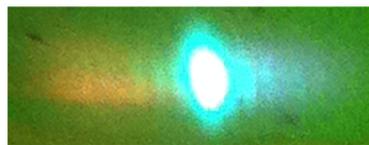


FIGURE 4.12 – Spectre de seconde harmonique sur une carte fluorescente pour un cristal au plan de Fourier trop épais. On observe la fonction  $\text{sinc}^2$  en fonction de la fréquence.

de 5 % alors que celle de la GSHT était supérieure à 30 %. La raison principale de cette différence est la faible intensité au PF. Typiquement, pour avoir une bonne conversion, il faut obtenir une intensité d'environ  $100 \text{ GW/cm}^2$ . Dans le cadre de cette expérience, l'intensité au PF était légèrement inférieure à  $1 \text{ GW/cm}^2$ . En augmentant l'intensité, l'efficacité de conversion devrait augmenter. Une si faible intensité au PF est obtenue car le spectre est dispersé sur 15 mm et focalisé sur  $25 \mu\text{m}$  dans la dimension transverse. Puisque le spectre est dispersé sur une surface relativement grande la GSHF est tout à fait appropriée pour doubler des faisceaux avec beaucoup d'énergie ou avec une large bande-spectrale.

## 4.5 Considérations futures

Dans cette section, quelques idées sur la génération de seconde harmonique dans le domaine fréquentiel sont développées.

Premièrement, toutes les expériences réalisées ont été faites avec des impulsions gaussiennes car elles forment la base naturelle de la propagation laser linéaire. La théorie montre que tant en GSHF qu'en GSHT, l'impulsion de seconde harmonique est plus courte d'un facteur  $\sqrt{2}$  par rapport à l'impulsion fondamentale pour une impulsion gaussienne. Cet aspect a été observé, mais pas suffisamment

étudié pour montrer des résultats expérimentaux. Toutefois, il devrait être possible d'utiliser d'autres formes d'impulsions pour tenter d'obtenir des impulsions plus courtes en GSHF. Par exemple, si un spectre avec un profil rectangulaire est utilisé, le spectre doublé serait deux fois plus large (le facteur 2 dans les équations 4.4 4.5) et le fait qu'il soit au carré ne réduirait pas la bande spectrale. Ainsi, sa durée temporelle serait réduite d'un facteur 2.

Deuxièmement, tout comme dans le FOPA, plusieurs cristaux peuvent être utilisés dans le PF afin de doubler correctement toute la bande spectrale. Une autre approche est d'utiliser des cristaux à domaines inversés dont la période varie transversalement pour former un éventail comme dans le FOPA de Phillips *et al.* [63]. Cela permettrait d'obtenir des impulsions de quelques cycles-optiques dans l'ultraviolet à partir d'impulsions ultra-courtes dans l'infrarouge. Cela est intéressant dans la mesure où les optiques et les phénomènes non-linéaires pertinents ont été très bien développés dans la dernière décennie afin d'obtenir des impulsions ultra-courtes dans l'infrarouge [10, 64]. Cette technologie peut être directement transférable dans l'ultraviolet en ajoutant un module de GSHF en aval. En fait, d'une façon beaucoup plus générale, il est possible de directement transférer la phase spectrale à des plages de longueurs d'onde où aucun module de mise en forme de l'impulsion existe. Par exemple, on pourrait penser à doubler dans deux PF successifs une impulsion  $Ti$  :Saph afin d'atteindre la plage de longueur d'onde autour de 200 nm et pouvoir mettre en forme cette impulsion à partir des modules de mise en forme à 800 nm qui seraient installés en amont des deux montages de GSHF. Actuellement, aucune technologie ne permet d'obtenir un effet similaire.

Troisièmement, toute la théorie développée pour la seconde harmonique pourrait être réutilisée pour d'autres phénomènes non-linéaires. La seule restriction est que toutes les ondes impliquées doivent être dispersées spatialement dans le PF. Pour cette raison, cette théorie n'est pas applicable au FOPA où une pompe large bande dispersée temporellement est utilisée. Néanmoins, la théorie développée se généralise aisément à des processus non-linéaires d'ordres supérieurs. Un processus non-linéaire d'ordre trois d'intérêt, qui n'a pas été développé dans ce mémoire, est la conjugaison de phases optiques. Il est utilisé pour inverser la phase spatiale d'une onde. Il serait intéressant de voir si sa généralisation dans le plan de Fourier permettrait d'inverser la phase temporelle et ainsi obtenir une impulsion dispersée anormalement à partir d'une impulsion dispersée normalement.

Enfin, concrètement, il manque une explication pour la représentation temporelle de l'interaction dans le domaine des fréquences. L'équation 4.5 montre que le champ électrique de seconde harmonique en sortie de 4-f est une convolution des champs électriques de l'onde fondamentale compressé par un facteur 2. Le terme facteur 2 peut s'expliquer par le fait que le champ électrique en seconde harmonique doit osciller deux fois plus vite que celui de l'onde fondamentale. Toutefois, l'opérateur convolution semble mystérieux car il implique mathématiquement qu'une réplique symétrique de l'onde a été créée et inversée et que celle-ci ait été intégrée pour tous les délais possibles. Cette réplique de l'impulsion n'est créée par aucun élément optique dans le montage 4-f. De plus, qu'est-ce qui définit le zéro de l'axe du temps pour créer cette réplique? Je n'ai trouvé aucune explication satisfaisante pour ce problème hors mis le fait qu'elle est la contrepartie de la multiplication dans la représentation fréquentielle.



## CHAPITRE 5

### CONCLUSION

Ce mémoire présente les résultats de propagations non-linéaires dans le domaine fréquentiel. Au coeur de toutes ces expériences, on retrouve un montage 4-f dont le rôle est de faire une transformée de Fourier temporelle d'une impulsion laser et de projeter sur un axe spatial le résultat tel que le domaine fréquentiel soit accessible. Cet aspect est réalisé grâce à des réseaux qui dispersent la lumière angulairement et des miroirs focalisants qui collimatent cette dispersion angulaire et focalisent les différentes composantes spectrales dans un plan appelé plan de Fourier. C'est dans ce plan que toutes les expériences non-linéaires présentées dans ce mémoire ont été réalisées. Afin de mieux comprendre le comportement d'une impulsion laser au PF, les matrices de Kostenbauder ont été utilisées. Celles-ci ont permis d'illustrer tous les couplages spatio-temporels que l'impulsion subit lors de la propagation dans un 4-f. De plus, une équation a été dérivée afin d'évaluer la durée de l'impulsion au PF en calculant les composantes spectrales contenues dans un des multiples foyers de ce plan :

$$\Delta t = \frac{\lambda w_{in}}{gc \cos(\theta_d)}$$

Cette expression analytique a été comparée à la durée obtenue via le formalisme de Kostenbauder, montrant un excellent accord.

La première expérience non-linéaire a été de construire un OPA dans un 4-f afin d'obtenir un FOPA. Le FOPA est une technique qui a été développée à l'INRS et publiée en 2014 qui permet de résoudre les problèmes de largeur de bande dans les OPA pour les impulsions ultra-courtes. En effet, pour des impulsions ayant des plages spectrales s'étendant sur plus qu'un octave, il est très difficile de trouver une longueur de cristal non-linéaire qui permet d'amplifier toute la bande avec un gain raisonnable. Ainsi, l'idée du FOPA est apparue comme étant une solution idéale puisqu'elle permet d'utiliser au PF plusieurs cristaux où chacun d'eux est adapté à la bande spectrale pertinente. Grâce à cette technique, de très larges spectres peuvent être amplifiés sans perdre de la bande spectrale. Dans le cadre de cette maîtrise, l'objectif du FOPA construit était de montrer la capacité d'augmenter l'énergie de sortie par rapport au premier FOPA construit à l'INRS. Pour ce faire, l'idée était d'obtenir la même intensité au PF, mais en apportant dix fois plus d'énergie. Cela a été réalisé en utilisant des miroirs cylindriques au lieu de sphérique. Aussi, un nouveau schéma de pompage a été utilisé avec deux faisceaux de pompe gaussiens se propageant de façon presque colinéaire côte-à-côte et interagissant de façon non-colinéaire avec l'amorce dans les cristaux. Cela a permis d'utiliser uniquement deux cristaux au lieu de quatre par rapport au premier FOPA. En appliquant tous ces changements, une amplification de 0.4 mJ à 13 mJ d'une amorce à 1.8  $\mu\text{m}$  supportant un spectre de moins de trois cycles optiques a été réalisée à l'aide de 79 mJ de pompe. Tout le spectre a été amplifié sans perte

dans les ailes et avec une efficacité au PF de plus de 20 % soit une efficacité de photons à photons de 45 %. Cette excellente efficacité est légèrement ternie par le fait que le montage 4-f a une faible transmission de 33 %. Un des réseaux a été légèrement endommagé lors de l'alignement du FOPA et pourrait expliquer cette faible valeur. Si ce n'est pas le cas, alors probablement que les réseaux sont mal adaptés pour diffracter toute la bande spectrale de façon efficace. Néanmoins, il devrait être possible d'obtenir plus d'énergie en sortie de ce FOPA en utilisant plus d'énergie de pompe car l'efficacité de l'amplification est constante avec l'énergie de la pompe ce qui laisse présager que le seuil de saturation de l'amplificateur n'a pas été atteint. Afin d'amener plus d'énergie de pompe, il faut améliorer la transmission du module de mise en forme spatial de la pompe qui n'était que de 45 % à cause de ratio de lentilles inadéquates et de manque de revêtement anti-reflet sur celles-ci. Par ailleurs, l'amplification ne semble pas avoir affecté le profil spatial du faisceau puisque celui-ci semble similaire à celui de sortie. De même, la synchronisation des pompes et leur durée doivent être suffisantes puisqu'aucun effet de couplage spatio-temporel qui altère le faisceau n'a été observé lors de l'amplification. Cependant, à cause de manque de temps et à la nature de distributions de temps de faisceau au laboratoire ALLS, la caractérisation temporelle n'a pu être complétée et il se pourrait que des couplages spatio-temporelles non diagnostiqués soient présents. L'impulsion d'amorce a été compressée dans du verre jusqu'à 17.5 fs, mais la durée de l'impulsion amplifiée n'a pu être mesurée ni la stabilité de la CEP. Si, comme dans le premier FOPA, les propriétés temporelles du faisceau amplifié sont similaires à ceux du faisceau d'amorce, alors ce laser serait le laser le plus intense au monde dans sa gamme spectrale.

La deuxième expérience réalisée a été de construire un module de GSH et de comparer son comportement pour une interaction dans le domaine temporel et dans le domaine spectral. Il était attendu que dans le domaine spectral, le couplage fréquentiel soit presque inexistant et qu'il soit prédominant dans le domaine temporel. Afin de mieux comprendre les phénomènes en jeu, un simple modèle mathématique a été dérivé :

$$\begin{array}{l} \text{GSHT} \\ \text{GSHF} \end{array} \left| \begin{array}{l} E_{GSHT}(t) \propto E_f(t) \cdot E_f(t) \\ E_{GSHF}(t) \propto E_f(2t) * E_f(2t) \end{array} \right. \begin{array}{l} \iff \\ \iff \end{array} \begin{array}{l} E_{GSHT}(\omega) \propto E_f(\omega) * E_f(\omega) \\ E_{GSHF}(2\omega) \propto E_f(\omega) \cdot E_f(\omega) \end{array}$$

De ce modèle, il est aisé de voir qu'en GSHT l'amplitude et la phase temporelles sont transférées dans l'onde de seconde harmonique, mais que l'amplitude et la phase spectrale sont perdues à cause de la convolution, tandis qu'en GSHF c'est le comportement opposé qui est obtenu. Ce modèle mathématique a été confirmé par des expériences dans lesquelles la phase spectrale et l'amplitude spectrale de l'onde fondamentale ont été modulées. La première modulation a été d'introduire de la dispersion d'ordre deux. Toutefois, il n'y a eu aucune différence sur les spectrogrammes RT-FROG entre la GSHF et la GSHT. Cela s'explique par le fait que pour des impulsions gaussiennes, la phase spectrale d'ordre deux est directement reliée à la phase temporelle d'ordre deux, ainsi les deux types d'interactions conservent les propriétés spectrales. En ajoutant à la place de la dispersion spectrale d'ordre trois, une différence notable a été observée dans les spectrogrammes. Le spectrogramme de la GSHF et de l'onde fondamentale étaient équivalents. En effet, les ailes du spectre se retrouvaient

en queue d'impulsion et les fréquences centrales dans le front. En GSHT, le couplage fréquentiel était responsable de GSF en queue d'impulsion et dès lors le spectrogramme indiquait que la fréquence centrale était présente dans toute l'impulsion. Ces spectrogrammes RT-FROG étaient en excellent accord avec le modèle mathématique. Subséquemment, une modulation d'amplitude a été réalisée en introduisant un trou dans le spectre de l'impulsion fondamentale. À cause, du couplage fréquentiel ce trou était comblé dans le spectre de la GSHT. Pour inhiber ce couplage fréquentiel, il a fallu allonger l'impulsion fondamentale de 33 fs à 2 ps. En GSHF, le couplage était intrinsèquement absent, par conséquent le trou dans le spectre était conservé. Un excellent accord entre le spectre fondamental et celui de GSHF a été obtenu pour cette expérience lorsqu'on tient compte de la courbe d'accord de phase pour le cristal de BBO de 150  $\mu\text{m}$  utilisé. De plus, il a été observé que l'efficacité du processus de GSH pour une interaction dans le domaine fréquentiel n'est pas affectée par la durée de l'impulsion fondamentale tant que celle-ci est inférieure à celle au PF. Ce n'est pas le cas en GSHT, où l'efficacité est directement liée à l'intensité de l'impulsion. Il faut toutefois noter que pour l'impulsion fondamentale la plus courte, une efficacité de plus de 30 % a été obtenue en GSHT alors qu'elle n'était que de 5 % en GSHF. Cette différence est due à la faible intensité qui a été obtenue au PF à cause de la dispersion des composantes spectrales sur un axe spatial. Cet aspect est un avantage si l'impulsion à doubler est de haute énergie. Aussi, tout comme dans un FOPA, plusieurs cristaux peuvent être utilisés pour obtenir une meilleure efficacité sans rien compromettre sur la bande spectrale doublée. Finalement, comme la GSHF conserve l'amplitude et la phase spectrale, elle pourrait être utilisée deux fois de suite en aval d'un module de mise en forme temporelle d'impulsion infrarouge afin d'obtenir un module de mise en forme temporelle d'impulsion dans l'ultraviolet, un dispositif qui n'existe pas actuellement.

Finalement, les interactions non-linéaires dans le domaine de Fourier permettent d'outrepasser la limite fondamentale entre gain et bande spectrale en permettant l'utilisation de plus d'un amplificateur en parallèle. Aussi, les propriétés des faisceaux obtenus sont différentes de leurs équivalents dans le domaine temporel lorsque tous les faisceaux impliqués dans le processus non-linéaire sont dispersés. Ainsi, tous les phénomènes non-linéaires pourraient être revisités afin de les observer dans le domaine fréquentiel. Un des phénomènes d'intérêt serait la conjugaison optique de phase et d'observer si la phase temporelle tout comme la phase spatiale pourrait être inversée. Cela permettrait d'obtenir des impulsions dispersées anormalement à partir d'impulsions dispersées normalement.



## RÉFÉRENCES

- [1] A. EINSTEIN. “Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt”. *Annalen der Physik* 17 (1905), p. 132.
- [2] M. GÖPPERT-MAYER et M. BORN. “Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen”. *Annalen der Physik* 401 (1931), p. 273.
- [3] T. MAIMAN. “Stimulated optical radiation in ruby” (1960).
- [4] W. KAISER et C. GARRETT. “Two-Photon Excitation in  $\text{CaF}_2 : \text{Eu}^{2+}$ ”. *Physical Review Letters* 7 (1961), p. 229.
- [5] P. FRANKEN et al. “Generation of Optical Harmonics”. *Physical Review Letters* 7 (1961), p. 118.
- [6] E. IPPEN, C. SHANK et A. DIENES. “Passive mode locking of the cw dye laser”. *Physical Review Letters* 21 (1972), p. 348.
- [7] D. STRICKLAND et G. MOUROU. “Compression of amplified chirped optical pulses”. *Optics Communications* 56 (1985), p. 219.
- [8] A. WEINER. *Femtosecond optical pulse shaping and processing*. T. 19. 1995, p. 161–237.
- [9] A. BALTUSKA, T. FUJI et T. KOBAYASHI. “Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control.” *Optics letters* 27 (2002), p. 306–308.
- [10] E. MATSUBARA et al. “Generation of 2.6 fs optical pulses using induced-phase modulation in a gas-filled hollow fiber”. *Journal of the Optical Society of America B* 24 (2007), p. 985.
- [11] C. GU et al. “Digital micromirror device-based ultrafast pulse shaping for femtosecond laser”. *Optics Letters* 40 (2015), p. 2870–2873.
- [12] R. A. BAUMGARTNER et R. L. BYER. “Optical Parametric Amplification”. *IEEE Journal of Quantum Electronics* 15 (1979), p. 432–444.
- [13] N. W. ENCYCLOPEDIA. *Gas lasers*. 2014.
- [14] P. B. CORKUM. “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”. *Physical Review Letters* 71 (1993), p. 1994–1997.
- [15] P. COLOSIMO et al. “Scaling strong-field interactions towards the classical limit”. *Nat Phys* 4 (2008), p. 386–389.
- [16] B. SHAN et Z. CHANG. “Dramatic extension of the high-order harmonic cutoff by using a long-wavelength driving field”. *Physical Review A* 65 (2001), p. 20–23.
- [17] B. E. SCHMIDT et al. “High harmonic generation with long-wavelength few-cycle laser pulses”. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* 45 (2012), p. 074008.
- [18] S. GHIMIRE et al. “Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal”. *Nature Physics* 7 (2011), p. 138.
- [19] G. VAMPA et al. “Linking high harmonics from gases and solids”. *Nature* 522 (2015), p. 462–464.
- [20] M. HOHENLEUTNER et al. “Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation.” *Nature* (2015).
- [21] P. MAZZONE et J. THORAC. “P. Mazzone, J. Thorac. *Oncol.* 3, 774 (2008)”. *Oncol.* 3 (2008), p. 774.
- [22] K. NAMJOU et al. “Determination of exhaled nitric oxide distributions in a diverse sample population using tunable diode laser absorption spectroscopy”. *Applied Physics B : Lasers and Optics* 85 (2006), p. 427–435.

- [23] A. DUBIETIS, G. JONUSAUSKAS et A. PISKARSKAS. "Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal". *Optics Communications* 88 (1992), p. 437.
- [24] D. HERRMANN et al. "Generation of sub-three-cycle, 16 TW light pulses by using noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification." *Optics letters* 34 (2009), p. 2459–2461.
- [25] X. GU et al. "Generation of carrier-envelope-phase-stable 2-cycle 740- $\mu$ J pulses at 2.1- $\mu$ m carrier wavelength". *Optics Express* 17 (2009), p. 62–69.
- [26] C VOZZI et al. "Millijoule-level phase-stabilized few-optical-cycle infrared parametric source". *Optics Letters* 32 (2007), p. 2957–2959.
- [27] Y. YIN et al. "High-efficiency optical parametric chirped-pulse amplifier in BiB<sub>3</sub>O<sub>6</sub> for generation of 3 mJ, two-cycle, carrier-envelope-phase-stable pulses at 17  $\mu$ m". *Optics Letters* 41 (2016), p. 1142.
- [28] S WITTE et al. "A source of 2 terawatt, 2.7 cycle laser pulses based on noncollinear optical parametric chirped pulse amplification." *Optics express* 14 (2006), p. 8168–8177.
- [29] Y. DENG et al. "Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1  $\mu$ m". *Optics Letters* 37 (2012), p. 4973.
- [30] O. D. MÜCKE et al. "Scalable Yb-MOPA-driven carrier-envelope phase-stable few-cycle parametric amplifier at 1.5  $\mu$ m". *Optics letters* 34 (2009), p. 118–120.
- [31] C. LI et al. "Generation of carrier-envelope phase stabilized intense 1.5 cycle pulses at 1.75  $\mu$ m." *Optics express* 19 (2011), p. 6783–6789.
- [32] K.-H. HONG et al. "High-energy, phase-stable, ultrabroadband kHz OPCPA at 2.1  $\mu$ m pumped by a picosecond cryogenic Yb :YAG laser". *Optics Express* 19 (2011), p. 15538.
- [33] G. KRAUSS et al. "Synthesis of a single cycle of light with compact erbium-doped fibre technology". *Nat Photon* 4 (2010), p. 33–36.
- [34] S.-W. HUANG et al. "High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics". *Nat Photon* 5 (2011), p. 475–479.
- [35] C. MANZONI et al. "Coherent pulse synthesis : Towards sub-cycle optical waveforms". *Laser and Photonics Reviews* 9 (2015), p. 129–171.
- [36] C. MANZONI et al. "Coherent synthesis of ultra-broadband optical parametric amplifiers". *Optics Letters* 37 (2012), p. 1880.
- [37] A. HARTH et al. "Two-color pumped OPCPA system emitting spectra spanning 15 octaves from VIS to NIR". *Optics Express* 20 (2012), p. 3076.
- [38] D. HERRMANN et al. "Investigation of two-beam-pumped noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification for the generation of few-cycle light pulses." *Optics express* 18 (2010), p. 4170–4183.
- [39] H. IBRAHIM et al. "Tabletop imaging of structural evolutions in chemical reactions demonstrated for the acetylene cation." *Nature communications* 5 (2014), p. 4422.
- [40] W. J. SCHREIER et al. "Thymine dimerization in DNA is an ultrafast photoreaction." *Science* 315 (2007), p. 625–9.
- [41] B SHEEHY, B WALKER et L. F. DIMAURO. "Phase Control in the Two-Color Photodissociation of HD<sup>+</sup>". *Physical Review Letters* 74 (1995), p. 4799–4802.
- [42] D. RAY et al. "Ion-energy dependence of asymmetric dissociation of D<sub>2</sub> by a two-color laser field". *Physical Review Letters* 103 (2009), p. 1–4.

- [43] A. FLEISCHER et al. "Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation". *Nat Photon* 8 (2014), p. 543–549.
- [44] O. KFIR et al. "Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics". *Nat Photon* 9 (2015), p. 99–105.
- [45] N DUDOVICH et al. "Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses". *Nat Phys* 2 (2006), p. 781–786.
- [46] R. W. BOYD. *Nonlinear optics*. 2nd. Academic press, 2003.
- [47] N. GODBOUT. *Note de cours de Fondements de photonique*. Laboratoire des fibres optiques, 2014.
- [48] J. DEROCHETTE. *Raman Spectra of Carbonates*. 2015.
- [49] T. BRABEC et F. KRAUSZ. "Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime". *Physical Review Letters* 78 (1997), p. 3282–3285.
- [50] D. N. NIKOGOSYAN. *Nonlinear Optical Crystals : A Complete Survey*. Springer, 2005.
- [51] A. BALTUŠKA, T. FUJI et T. KOBAYASHI. "Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers". *Physical Review Letters* 88 (2002), p. 133901.
- [52] T. WILHELM, J. PIEL et E. RIEDLE. "Sub-20-fs pulses tunable across the visible from a blue-pumped single-pass noncollinear parametric converter". *Optics letters* 22 (1997), p. 1494.
- [53] a DUBIETIS, R BUTKUS et A. PISKARSKAS. "Trends in chirped pulse optical parametric amplification". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 12 (2006), p. 163–172.
- [54] H. SUCHOWSKI, G. PORAT et A. ARIE. "Adiabatic processes in frequency conversion". *Laser and Photonics Reviews* 8 (2014), p. 333–367.
- [55] Z. CHANG. *Fundamentals of Attosecond Optics*. CRC Press, 2011.
- [56] G. A. KOSTENBAUDER. "Ray-pulse matrices - a simple formulation for dispersive optical systems". *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26 (1990), p. 1148.
- [57] S. AKTÜRK et al. "First-order spatiotemporal distortions of gaussian pulses and beams". *Optics express* 13 (2005), p. 8642.
- [58] J. H. ODHNER et R. J. LEVIS. "High-energy noncollinear optical parametric amplifier producing 4 fs pulses in the visible seeded by a gas-phase filament". *Optics Letters* 40 (2015), p. 3814–3817.
- [59] J. HEBLING et al. "Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities". *Journal of the Optical Society of America B* 25 (2008), B6.
- [60] H. VINCENTI et F. QUÉRÉ. "Attosecond lighthouses : How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses". *Physical Review Letters* 108 (2012), p. 1–5.
- [61] B. E. SCHMIDT et al. "Frequency domain optical parametric amplification". *Nature Communications* 5 (2014), p. 1–8.
- [62] P. LASSONDE et al. "High Gain Frequency Domain Optical Parametric Amplification". *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 21 (2015).
- [63] C. R. PHILLIPS et al. "Frequency-domain nonlinear optics in two-dimensionally patterned quasi-phase-matching media". *Optics express* 24 (2016), p. 15940.
- [64] M NISOLI et al. "Compression of high-energy laser pulses below 5 fs." *Optics letters* 22 (1997), p. 522–524.