



# **Laser femtoseconde à fibre optique émettant dans l'infrarouge moyen**

**Thèse**

**Simon Duval**

**Doctorat en physique**  
Philosophiæ doctor (Ph. D.)

Québec, Canada

© Simon Duval, 2019

# **Laser femtoseconde à fibre optique émettant dans l'infrarouge moyen**

**Thèse**

**Simon Duval**

Sous la direction de:

Michel Piché, directeur de recherche  
Réal Vallée, codirecteur de recherche

# Résumé

Le développement de lasers émettant dans l'infrarouge moyen, une région spectrale où l'on retrouve les résonances fondamentales de la plupart des molécules sur terre, est certainement l'une des avenues les plus prometteuses en science laser. La démocratisation de ce type de laser est toutefois nécessaire afin d'exploiter leur énorme potentiel applicatif en santé, en environnement, en industrie et en recherche. En raison de leur simplicité, leur robustesse, leur fiabilité et leurs performances optiques inégalées, les lasers à base de fibres optiques sont parmi les candidats les mieux adaptés pour réaliser ce virage technologique vers l'infrarouge moyen.

Dans le cadre de ce projet de doctorat, le premier laser à fibre optique émettant des impulsions femtoseconde dans l'infrarouge moyen a été réalisé. Ce laser à grande valeur ajoutée offre des propriétés temporelles, spectrales et spatiales exceptionnelles qui ouvrent la voie à de nombreuses applications en spectroscopie et en interaction laser-matière.

La conception, l'optimisation et l'étude théorique du laser femtoseconde émettant à  $2.8 \mu\text{m}$  sont présentées aux chapitres 1 et 2 ainsi qu'à l'annexe B. La génération d'impulsions ultrabrèves avec ce laser est basée sur la synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation dans une fibre de verre fluoré dopée à l'erbium. Des impulsions de durée inférieure à 300 fs, dont la puissance crête estimée est supérieure à 20 kW, ont été obtenues à partir de cet oscillateur.

La deuxième partie de cette thèse (chapitres 3 et 4) présente la conception et l'étude théorique par simulations numériques d'un amplificateur à fibre optique externe permettant d'améliorer les performances de l'oscillateur présenté dans les chapitres précédents. Cet amplificateur employant un seul segment de fibre de verre fluoré dopé à l'erbium permet d'amplifier les impulsions à des puissances crêtes de plus de 200 kW. Grâce au processus d'auto décalage spectral du soliton dans cet amplificateur, la longueur d'onde centrale des impulsions amplifiées peut être accordée de 2.8 à 3.6  $\mu\text{m}$ . Ce système laser femtoseconde accordable dans l'infrarouge moyen, qui constitue une avancée majeure, peut être simplifié et amélioré davantage en plus d'être adapté à plusieurs autres transitions laser dans l'infrarouge moyen. Ces travaux ouvrent la voie à l'émergence de nouvelles applications autrefois difficilement réalisables en recherche et en industrie.

# Abstract

The development of lasers emitting in the mid-infrared, a spectral region where the fundamental resonances of several molecules are found, is one of the most promising avenues in laser science. However, the democratization of these coherent light sources is required for enabling breakthrough applications in healthcare, environment, industry and research. Thanks to their simplicity, robustness, reliability and their unequaled optical performances, fiber lasers are the candidates of choice for enabling this technological shift toward the mid-infrared.

In this project, the first femtosecond fiber laser emitting in the mid-infrared was realized. This high added-value laser offers exceptional temporal, spectral and spatial properties that pave the way for several applications in spectroscopy and laser-matter interaction.

The design, optimization and theoretical study of this femtosecond laser cavity emitting at 2.8  $\mu\text{m}$  are presented in chapters 1 and 2 as well as in appendix B. The generation of ultrashort pulses in this laser relies on a mode-locking technique based on nonlinear polarization evolution of the signal propagating inside an erbium-doped fluoride fiber. Pulses with durations below 300 fs and estimated peak powers above 20 kW were directly generated from this oscillator.

The second part of this thesis (chapters 3 and 4) presents the design and numerical study of an external fiber amplifier that significantly improves the performances of the oscillator. This amplifier that uses only one segment of erbium-doped fluorozirconate fiber enables the generation of ultrashort pulses with peak powers above 200 kW. Due to the soliton self-frequency shift process occurring inside the amplifier, the central wavelength of the output pulses can be tuned from 2.8 to 3.6  $\mu\text{m}$ . This tunable femtosecond system in the mid-infrared can be further simplified and improved and can also be adapted to other novel laser transitions in the mid-infrared. This work paves the way for new applications to emerge both in the scientific and the industrial worlds.

# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>iii</b>
<b>Abstract</b>	<b>iv</b>
<b>Table des matières</b>	<b>v</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>vii</b>
<b>Liste des figures</b>	<b>viii</b>
<b>Remerciements</b>	<b>xiii</b>
<b>Avant-propos</b>	<b>xv</b>
Organisation de la thèse . . . . .	xv
Détails sur les articles et contributions personnelles . . . . .	xvi
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
I.1 Contexte et pertinence du projet . . . . .	1
I.2 La génération d’impulsions ultrabrèves : Le principe de synchronisation modale	9
I.3 Lasers à fibre basés sur la synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation . . . . .	19
I.4 État de l’art des lasers à impulsions ultrabrèves dans l’infrarouge moyen . .	24
I.5 Amplification directe d’impulsions ultrabrèves dans les fibres optiques . . .	34
<b>1 Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared</b>	<b>42</b>
1.1 Résumé . . . . .	42
1.2 Abstract . . . . .	42
1.3 Introduction . . . . .	43
1.4 Experiment . . . . .	44
1.5 Results and discussion . . . . .	45
1.6 Conclusion . . . . .	50
<b>2 23-kW peak power femtosecond pulses from a mode-locked fiber ring laser at 2.8 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>51</b>
2.1 Avant-propos . . . . .	51
2.2 Résumé . . . . .	51
2.3 Abstract . . . . .	52
2.4 Introduction . . . . .	52
2.5 Optimization of the experimental laser output performance . . . . .	53

2.6	Numerical simulations of the laser . . . . .	55
2.7	Comparison between numerical and experimental results . . . . .	58
2.8	Impact of the intracavity atmospheric absorption . . . . .	59
2.9	Conclusion . . . . .	60
<b>3</b>	<b>Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 <math>\mu\text{m}</math></b>	<b>61</b>
3.1	Résumé . . . . .	61
3.2	Abstract . . . . .	61
3.3	Introduction . . . . .	62
3.4	Experiment . . . . .	63
3.5	Results and discussion . . . . .	63
3.6	Conclusion . . . . .	69
<b>4</b>	<b>Numerical modeling of mid-infrared ultrashort pulse propagation in <math>\text{Er}^{3+}</math> : fluoride fiber amplifiers</b>	<b>70</b>
4.1	Résumé . . . . .	70
4.2	Abstract . . . . .	71
4.3	Introduction . . . . .	71
4.4	Fiber amplifier system . . . . .	72
4.5	Numerical model . . . . .	73
4.6	Fiber parameters . . . . .	76
4.7	Comparison with experimental results . . . . .	80
4.8	In-amplifier pulse propagation . . . . .	83
4.9	Influence of the input signal parameters . . . . .	84
4.10	Impact of the fiber parameters . . . . .	90
4.11	Conclusion . . . . .	93
4.12	Rate equations and gain parameters of $\text{Er}^{3+}$ : FZ fibers . . . . .	94
4.13	Pseudo-Voigt fit for the Raman gain in fluorozirconate fibers . . . . .	95
	<b>Conclusion</b>	<b>97</b>
5.1	Résumé . . . . .	97
5.2	Perspectives . . . . .	98
	<b>Bibliographie</b>	<b>103</b>
<b>A</b>	<b>Origine de la synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation</b>	<b>118</b>
A.1	Rotation non linéaire de la polarisation dans les fibres optiques . . . . .	119
A.2	Détermination de la transmission non linéaire . . . . .	123
<b>B</b>	<b>2.8-<math>\mu\text{m}</math> femtosecond soliton fiber laser with peak power exceeding 20 kW</b>	<b>125</b>
B.1	Résumé . . . . .	125
B.2	Abstract . . . . .	125
B.3	Introduction . . . . .	126
B.4	Experiment . . . . .	127
B.5	Results and discussion . . . . .	128
B.6	Conclusion . . . . .	133

# Liste des tableaux

I.1	Résumé des lasers à fibre à synchronisation modale passive aux environs de $3 \mu\text{m}$	32
2.1	Comparison between the output performance in the experiment and in the simulations . . . . .	58
4.1	Spectroscopic and geometric parameters used in the simulations of the erbium-doped fiber amplifier . . . . .	95
4.2	Fitting parameters for the pseudo-Voigt profiles . . . . .	96

# Liste des figures

I.1	Propriétés d'un laser à impulsions ultrabrèves . . . . .	2
I.2	Bande d'absorption associée à la transition vibrationnelle $\nu_3$ du méthane . . . . .	4
I.3	Ablation de tissus biologiques par impulsions ultrabrèves dans l'infrarouge moyen . . . . .	6
I.4	Spectre de transmission typique de l'atmosphère . . . . .	7
I.5	Principe de synchronisation modale active . . . . .	10
I.6	Principe de synchronisation modale passive . . . . .	12
I.7	Historique des absorbants saturables réels . . . . .	14
I.8	Comparaison entre les structures de bande des différents absorbants saturables réels . . . . .	15
I.9	Les absorbants saturables artificiels utilisés dans les lasers à fibre optique . . . . .	18
I.10	Transmission non linéaire pour un tour de cavité en fonction de l'orientation des lames d'onde . . . . .	20
I.11	Illustration de la condition d'accord de phase des bandes latérales de Kelly . . . . .	23
I.12	Sections efficaces d'émission de cristaux de $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ et de $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnS}$ . . . . .	25
I.13	Schéma typique d'un oscillateur femtoseconde à base de $\text{Cr}^3 : \text{ZnSe}$ . . . . .	26
I.14	Techniques de conversion non linéaire dans l'infrarouge moyen . . . . .	27
I.15	Schéma d'un OPCPA pour l'infrarouge moyen . . . . .	27
I.16	Comparaison simplifiée du principe d'émission laser dans un laser à semi-conducteur et dans un laser à cascade quantique. . . . .	29
I.17	Schéma simplifié des principales transitions laser dans l'infrarouge moyen dans les fibres de verre fluoré . . . . .	31
I.18	Schéma de cavité linéaire typique à $2.8 \mu\text{m}$ permettant la génération d'impulsions ultrabrèves. . . . .	33
I.19	Dispersion de la vitesse de groupe dans les fibres de fluorozirconate . . . . .	36
I.20	a) Comparaison entre le coefficient de gain Raman pour des verres de silice et de fluorozirconate. b) Représentation simplifiée de l'auto décalage en fréquence du soliton. . . . .	38
I.21	Décalage en longueur d'onde estimé en fonction de la distance de propagation pour des impulsions solitoniques de durée à mi-hauteur entre 50 fs et 1 ps. . . . .	39
I.22	Évolution temporelle et spectrale d'une impulsion ultrabrève le long d'un amplificateur à fibre optique . . . . .	40
1.1	Schematic of the laser cavity . . . . .	45
1.2	Measured output pulse train with a 2-ns rise time detector . . . . .	46
1.3	Measured AC trace of the output beam . . . . .	47
1.4	Measured output spectrum . . . . .	48
1.5	Measured output spectrum of the SH signal . . . . .	49



2.1	Optimization of the experimental laser . . . . .	54
2.2	Temporal trace of the output pulse train at 2.8 $\mu\text{m}$ and corresponding RF spectrum . . . . .	55
2.3	Optical spectrum and autocorrelation trace of the output pulses . . . . .	55
2.4	Comparison between the gain saturation model presented here and the numerical model based on the rate equations of the energy levels of erbium . . . . .	56
2.5	Absorption coefficient of the atmosphere (lab environment conditions) near the central wavelength of the laser . . . . .	57
2.6	Comparison between the experimental and the simulation results . . . . .	59
2.7	Evolution of the peak power $P_0$ of the initial noise toward a steady-state pulse for three different fiber lengths with or without considering the atmospheric propagation in the simulations . . . . .	60
3.1	Experimental setup . . . . .	64
3.2	Comparison of the measured output spectra and autocorrelation traces for the 1.5-m (blue) and the 5-m (red) amplifiers . . . . .	65
3.3	Measured output spectra as a function of the incident pump power (colored values) for two different fiber lengths : a) $L = 8$ m, b) $L = 22$ m . . . . .	66
3.4	Autocorrelation traces of the main output soliton for the first three pump powers obtained with the 22-m fiber . . . . .	67
3.5	Total average power (black) and average power in the main soliton (red and blue) estimated from the spectra as a function of the incident pump power for both fiber lengths . . . . .	68
3.6	Measured spectra of the 3.4- $\mu\text{m}$ soliton before and after one hour of operation . . . . .	69
4.1	Schematic of the fiber amplifier system . . . . .	73
4.2	Partial energy-level scheme and the relevant energy transfer processes involved in the 2.8 $\mu\text{m}$ laser transition in Er-doped fluoride fibers . . . . .	75
4.3	Properties of the FZ fiber with $\phi_{\text{core}} = 15.5$ $\mu\text{m}$ . . . . .	77
4.4	Emission and absorption cross sections of the 2.8 $\mu\text{m}$ laser transition in heavily-erbium-doped FZ fibers . . . . .	78
4.5	Raman gain spectrum of the FZ fiber amplifier at 2.8 $\mu\text{m}$ . . . . .	79
4.6	Autocorrelation traces (top) and output spectra (bottom) of the experimental (blue) and simulated (red) mode-locked seed . . . . .	80
4.7	Comparison between (a) the experimental results and (b) the numerical model ( $L_a = 1.25$ m, $L_p = 6.2$ m) . . . . .	82
4.8	In-amplifier pulse propagation dynamics . . . . .	83
4.9	Output spectra under different input pulse peak powers and durations ( $L_a = 1.25$ m, $L_p = 6$ m, $f_{\text{rep}} = 58$ MHz) . . . . .	85
4.10	Soliton compression inside the active segment of the fiber amplifier for different input pulse peak powers $P_0$ . . . . .	86
4.11	Relative variation of the peak power (red), the duration (blue) and the central wavelength (green) of the most shifted soliton as a function of the relative variation in the input pulse peak power . . . . .	87
4.12	Effect of the presence of satellite pulses along with the main input pulse . . . . .	88
4.13	In-amplifier supercontinuum generation in a 2-m $\text{Er}^{3+}$ : FZ fiber . . . . .	90
4.14	a) Output spectra for a fiber amplifier with core diameters of 6 $\mu\text{m}$ (red), 12 $\mu\text{m}$ (orange) and 26 $\mu\text{m}$ (green) for $L_a = 1.25$ m, $L_p = 6$ m . . . . .	91

4.15	Pulse evolution and output signal properties of a fiber amplifier with two different fiber sections . . . . .	92
A.1	Modulateur non linéaire basé sur la rotation non linéaire de la polarisation . . .	118
B.1	Schematic of the laser cavity . . . . .	127
B.2	Measured (red) and simulated (blue) output spectra . . . . .	129
B.3	Measured (red) and simulated (blue) autocorrelation of the output signal . . .	129
B.4	Flowchart of the numerical model . . . . .	130
B.5	Comparison between the corrected absorption coefficient from the HITRAN database (blue) and the absorption coefficient retrieved experimentally (red) . .	131
B.6	Impact of the fiber length a) and output coupling b) on the peak power and duration of the highest-energy pulses that can be obtained in the simulations .	133

*À mes parents, Céline et Jacques,  
qui m'ont tout donné dans la vie*

Life is like riding a bicycle, to  
keep your balance you must keep  
moving.

---

Albert Einstein

# Remerciements

Le doctorat a été une étape marquante dans ma vie. C'est certainement dans ces quatre dernières années que je me suis le plus développé tant au niveau professionnel que personnel. Je souhaite remercier plusieurs personnes qui ont grandement contribué à ce développement.

D'abord, mon directeur de recherche depuis le début, Michel Piché, sans lequel je n'aurais probablement pas poursuivi mes études graduées en science laser. Michel est une source d'inspiration pour moi, car il a toujours eu cette grande curiosité et cette passion pour tout ce qui touche l'optique et la physique en général. Au baccalauréat, il m'a proposé un sujet de recherche auquel je n'ai jamais dérogé et auquel je compte m'accrocher encore plusieurs années, celui des lasers à base de fibres optiques. Depuis maintenant plus de 7 ans, j'ai pu bénéficier de son expertise théorique et de ses talents pédagogiques inestimables pour développer une intuition et une compréhension approfondie du domaine. Merci de m'avoir inculqué que l'innovation n'est pas toujours synonyme de complexité, et que de grandes choses peuvent être réalisées à partir d'idées simples.

Au même titre que Michel Piché, mon codirecteur Réal Vallée a été un acteur tout aussi important dans mon cheminement. Réal est un réel bâtisseur de succès et c'est en étant à ses côtés que j'ai réalisé qu'il était possible de créer quelque chose de concret à partir de mes résultats de recherche. Réal a toujours été à la hauteur de mes ambitions en me permettant de participer à des conférences, des formations et des rencontres de haut niveau à l'international.

Martin Bernier, que dire de ce professeur dynamique qui saura toujours nous surprendre. Malgré les discussions explosives qui nous animent, Martin est devenu un partenaire important. C'est en partie grâce à lui que ce projet de doctorat a tant bien fonctionné au laboratoire. Merci d'avoir été présent pour m'aider au laboratoire et pour orienter mon projet de doctorat.

Sur le terrain, deux personnes que j'estime énormément ont toujours été présentes pour répondre à mes questions et pour m'épauler tout au long du projet. Grâce à leur très grande gentillesse, leur profond désir d'aider les autres et leur talent en pédagogie qu'on retrouve rarement en science, Vincent Fortin et Michel Olivier ont su faire la différence dans ce projet tant au niveau théorique que pratique. Merci à vous d'avoir pris le temps de vérifier mes résultats et de corriger si attentivement mes articles, j'en suis énormément reconnaissant. J'espère

que l'amitié que nous avons développée durera encore très longtemps.

J'ai également bénéficié d'une aide incroyable des techniciens les plus compétents que j'ai rencontrés : Marc D'Auteuil et Stéphan Gagnon. Merci d'avoir subi mon mitraillage de questions presque tous les jours où je suis allé au laboratoire et d'y avoir répondu avec une telle patience. Sans vous, je serais encore fort probablement en train de faire des demandes d'achat ou des connexions électriques de piètre qualité.

Je dois également remercier mon associé qui est avec moi dans l'aventure Femtum depuis plus d'un an, Louis-Rafaël Robichaud, qui, par sa présence, m'a grandement motivé dans ce projet d'entreprise maintenant devenu réalité, mais également dans ce projet de doctorat qui en est directement relié. Il m'a amené à développer une façon beaucoup plus optimiste de voir les choses, ce qui m'a permis de me dépasser à plusieurs niveaux et m'a donné beaucoup de confiance.

Un grand merci également à tous les professionnels travaillant au Centre d'optique, photonique et laser (COPL), en particulier Diane Déziel et Martin Blouin, qui ont régulièrement travaillé dans l'ombre pour moi, mais qui m'ont offert leur service inestimable, en plus d'être d'excellents partenaires de course !

Plusieurs amis et collègues au COPL ont grandement contribué à mon bonheur au cours des dernières années. Je souhaite remercier plus spécifiquement Denis Panneton, Frédéric Maes, Jean-Christophe Gauthier, Madison Rilling, Clément Frayssinous, Yigit Ozan Aydin, Vincent Michaud-Belleau, Pascal Paradis et tous les autres du groupe Vallée, Piché et Thibault.

La liste des personnes ayant contribué à mon bonheur en dehors du contexte professionnel est assez exhaustive, mais j'aimerais remercier en particulier mes amis de toujours Marc-Antoine et Élodie, Pier-François et Anissa (+ bébé Félix et Sophia que j'adore tellement), Charles et Ariane, Marie-Pier et Chloé, Joëlle et Pascal, David et Hélyssa, Raphaëlle, Anne-Catherine, Marie-Janick, Marie-Claude et Olivier.

Finalement, je ne peux passer sous silence l'énorme soutien que j'ai reçu de mes parents, Céline Boutin et Jacques Duval, au cours de mon doctorat, mais également au cours de mes études (je devrais dire plutôt au cours de ma vie entière...). Comme je vous l'ai souvent dit, vous êtes les personnes qui m'ont le plus aidé au cours de mes études. Par les petits gestes que vous avez posés au quotidien, vous avez toujours fait en sorte que ma vie soit remplie de bonheur et de réussite. Vous êtes responsables de la personne que je suis devenue aujourd'hui et c'est un peu grâce à vous que les excellents résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus. Je vous aime profondément.

# Avant-propos

Cette thèse porte sur le développement de lasers à fibre optique générant des impulsions ultrabrèves, dont la durée est inférieure à la picoseconde, dans l'infrarouge moyen. Comme aucun laser de ce type n'avait encore été démontré en 2014, l'objectif principal du projet était de concevoir un tel laser et d'en faire la démonstration expérimentale. Les objectifs suivant cette démonstration consistaient à étudier et améliorer les performances du laser en variant les paramètres de la cavité et en amplifiant les impulsions générées au moyen d'un amplificateur externe également à base de fibre optique. En parallèle au volet expérimental, ce projet comportait un volet de modélisation numérique permettant d'étudier la dynamique d'une telle source laser afin d'en optimiser les performances. Ces travaux ont été réalisés sous la supervision de Michel Piché (directeur) et Réal Vallée (Codirecteur) au Centre d'optique, photonique et laser de l'Université Laval.

## Organisation de la thèse

Cette thèse par article comporte cinq chapitres. Le chapitre d'introduction présente les motivations pour le développement de telles sources dans l'infrarouge moyen en plus de détailler les fondements théoriques utiles à la génération d'impulsions ultrabrèves dans les lasers et les amplificateurs à fibre optique. On y présente également une revue de l'art antérieur des lasers à impulsions ultrabrèves émettant dans cette région spectrale. Les concepts exposés dans ce chapitre sont préalables à une bonne compréhension des chapitres suivants.

Chacun des chapitres 1 à 4 correspond à un article qui a été publié dans le cadre du projet de doctorat. Les articles seront présentés en anglais dans leur version originale et selon l'ordre original de publication. À noter que les équations et les figures présentées dans ces articles ont été adaptées de façon à homogénéiser et épurer la mise en page. Les références dans les articles ont été intégrées aux références à la fin de la thèse. Les chiffres correspondant à chacune des références peuvent donc différer par rapport à l'article original.

Le chapitre de conclusion résume les résultats obtenus au cours de ce projet. On y présente également les perspectives du type de laser développé, qui ouvre littéralement la voie à d'importantes avancées tant au niveau fondamental qu'appliqué.

## Détails sur les articles et contributions personnelles

À noter qu'aucune modification n'a été apportée entre les versions des articles publiés au cours du projet et celles intégrées dans cette thèse, mis à part la disposition des figures pour adapter les publications à une mise en page simple colonne ainsi que la numérotation des équations et des références.

### Chapitre 1 : Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared

**Date de publication :** 2 juillet 2015

**Revue scientifique :** *Optica*, vol. 2, p. 623 à 626

**Auteurs :** Simon Duval, Martin Bernier, Vincent Fortin, Jérôme Genest, Michel Piché, et Réal Vallée.

Cet article présente la première démonstration d'un laser à fibre émettant des impulsions femtoseconde à une longueur d'onde de  $2.8 \mu\text{m}$ . Mon apport à cette publication se résume de la façon suivante :

- Conception et démonstration expérimentale du laser
- Réalisation de toutes les mesures expérimentales
- Rédaction de l'article à titre de premier auteur
- Réalisation de toutes les figures présentées dans l'article

### Chapitre 2 : 23-kW peak power femtosecond pulses from a mode-locked fiber ring laser at $2.8 \mu\text{m}$

**Date de publication :** 9 mars 2016

**Revue scientifique :** *Proceeding of SPIE*, vol. 9728, p. 972802-1 à 972802-8

**Auteurs :** Simon Duval, Michel Olivier, Vincent Fortin, Martin Bernier, Michel Piché, et Réal Vallée.

Cet article a été rédigé à la suite d'une présentation que j'ai effectuée à *Photonics West 2016* dans la session *Fiber Lasers XIII* et qui m'a valu le prix de la meilleure présentation étudiante. Celui-ci présente d'importantes améliorations des performances du laser décrit au chapitre 1. Certains paramètres comme le couplage de sortie et la longueur de fibre ont été optimisés pour maximiser la puissance crête des impulsions générées. On y détaille également les simulations numériques réalisées dans le but de modéliser et prédire le comportement du laser en plus de discuter de l'impact de l'absorption atmosphérique sur la dynamique des impulsions dans la cavité. Mon apport à cette publication est identique à celui présenté au chapitre 1. J'ai également réalisé le modèle numérique détaillé dans cette publication.



### **Chapitre 3 : Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 $\mu\text{m}$**

**Date de publication :** 15 novembre 2016

**Revue scientifique :** Optics Letters, vol. 41, p. 5294 à 5297.

**Auteurs :** Simon Duval, Jean-Christophe Gauthier, Louis-Rafaël Robichaud, Pascal Paradis, Michel Olivier, Vincent Fortin, Martin Bernier, Michel Piché, et Réal Vallée.

Ce chapitre présente la deuxième phase de mon projet de doctorat, qui consistait à amplifier les impulsions générées à partir du laser présenté aux premiers chapitres au moyen d'une fibre amplificatrice externe. Grâce aux processus non linéaires présents lors de l'amplification dans la fibre, un important décalage de la longueur d'onde centrale des impulsions est observé. Ce décalage vers les grandes longueurs d'onde est étudié expérimentalement en fonction de la longueur de la fibre et du taux de pompage. Mon apport à cette publication est identique à celui présenté aux chapitres précédents.

### **Chapitre 4 : Numerical modeling of mid-infrared ultrashort pulse propagation in $\text{Er}^{3+}$ : fluoride fiber amplifiers**

**Date de publication :** 31 mai 2018

**Revue scientifique :** JOSAB, vol. 35, p. 1450 à 1462.

**Auteurs :** Simon Duval, Louis-Rafaël Robichaud, Michel Olivier, Vincent Fortin, Martin Bernier, Michel Piché, et Réal Vallée.

Ce chapitre vient clore cette thèse en présentant un nouveau modèle de simulation numérique pour l'étude de la propagation et de l'amplification d'impulsions ultrabrèves dans les fibres de verre fluoré dopées à l'erbium. Ce modèle permet de reproduire précisément les résultats présentés au chapitre 3. L'étude de la dynamique d'amplification met en valeur certaines propriétés très intéressantes de l'amplificateur et oriente le développement futur pour l'amélioration de ce type de source. Mon apport à cette publication se résume comme suit :

- Conception du simulateur présenté dans la publication
- Réalisation de toutes les simulations présentées
- Réalisation des mesures expérimentales de gain de l'amplificateur
- Rédaction de l'article à titre de premier auteur
- Réalisation de toutes les figures présentées dans l'article

Vincent Fortin, Michel Olivier et Sandra Helena Messaddeq (en remerciement) ont réalisé les mesures expérimentales permettant d'obtenir le gain Raman.

# Introduction

## I.1 Contexte et pertinence du projet

"[...] we had no application in mind. If we had, it might have hampered us and not worked out as well."

- Arthur L. Schawlow, à propos du laser

À la fin des années 50, Arthur L. Schawlow et Charles H. Townes avaient de la difficulté à envisager une application pour un nouveau concept qu'ils avaient imaginé, le maser, acronyme pour *Microwave amplification by stimulated emission of radiation*. Ce concept fut rapidement adapté aux longueurs d'onde optiques [1], faisant place à la première démonstration du "maser optique", communément appelé "laser", par Theodore H. Maiman au début des années 60 [2]. Ironiquement, les applications de cette source de lumière cohérente se multiplièrent à une vitesse fulgurante peu de temps après son invention alors que les premières expériences d'usinage laser et de spectroscopie furent réalisées dès les années soixante. Après un peu moins de 60 ans d'existence, les lasers se retrouvent maintenant parmi les outils technologiques les plus révolutionnaires jamais créés par l'homme. Grâce à leur constante amélioration, ces sources de lumière cohérente sont maintenant à la base des techniques de détection et d'analyse, des réseaux de communications et des procédés industriels les plus performants au monde... et ce n'est que le début.

Parmi les avenues potentielles pour l'avènement de nouvelles applications révolutionnaires, le développement de lasers émettant dans la région spectrale de l'infrarouge moyen (IM) est certainement l'une des plus prometteuses. C'est dans cette région spectrale, qui s'étale de 3 à 50  $\mu\text{m}$  (6-100 THz) [3], que l'on retrouve les résonances ro-vibrationnelles d'une grande majorité des molécules sur terre. La forme, la force et la fréquence de ces résonances sont définies par la nature des liens chimiques formant la molécule. Les spectres d'absorption d'une molécule dans l'infrarouge moyen sont donc propres à ces liaisons chimiques. Au même titre que les transitions électroniques, ces transitions ro-vibrationnelles peuvent être excitées au moyen de photons d'énergie correspondante dans l'IM. L'utilisation de lasers émettant dans cette région spectrale d'intérêt offre donc la possibilité d'interagir fortement et de façon très sélective avec la matière, que ce soit à l'état gazeux, liquide ou solide. Cette interaction est

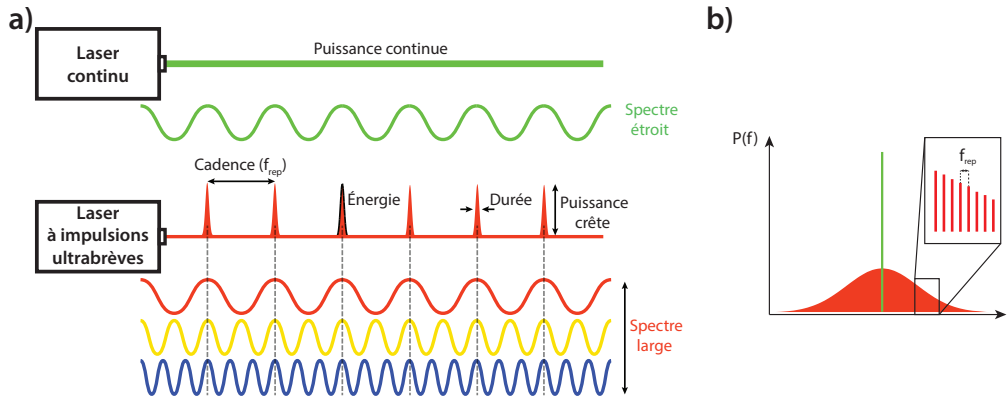


FIGURE I.1 – a) Illustration des propriétés d’un laser à impulsions ultrabrèves en comparaison avec un laser de puissance continue. b) Comparaison entre le spectre d’un laser continu (vert) et celui d’un laser à impulsions ultrabrèves. (rouge)

d’autant plus intéressante lorsque la source laser en question génère un train d’impulsions ultrabrèves, dont la durée est inférieure à la picoseconde ( $< 10^{-12}$  s).

Les propriétés des lasers à impulsions ultrabrèves diffèrent largement des lasers de puissance continue, tel qu’illustré à la figure I.1. Par le principe de synchronisation modale, qui sera détaillé au cours de ce chapitre, ce type de laser émet un train d’impulsions très stables et également espacées en temps. Les impulsions générées directement de la cavité laser ont une cadence fixée par le temps de parcours du signal dans la cavité, qui est typiquement de l’ordre des dizaines de nanosecondes ( $10^{-9}$  s) pour une cavité de quelques mètres de longueur. On définit les impulsions générées par leur énergie, leur durée (à mi-hauteur) et leur puissance crête. Contrairement au laser continu, l’énergie optique générée par ce type de laser est concentrée dans chacune des impulsions, ce qui permet d’obtenir des puissances instantanées considérablement plus élevées.

Ce type de laser se distingue également par ses caractéristiques spectrales. Une impulsion dont la durée est très courte possède un spectre très large. De plus, le spectre de cette impulsion est composé d’une multitude (plusieurs milliers) de raies étroites qu’on associe à des modes longitudinaux respectant la condition d’oscillation du laser. La fréquence centrale de ces modes correspond à un multiple de la fréquence fondamentale (la cadence) du laser. Ces modes sont donc nécessairement séparés en fréquence par la fréquence fondamentale du laser (typiquement de l’ordre de quelques dizaines de mégahertz), tel qu’illustré à la Fig. I.1 b). La largeur à mi-hauteur de chacune des raies dépend grandement des sources de bruit dans l’oscillateur (bruits quantique, thermique, mécanique, etc.), qui peuvent dépendre eux-mêmes des propriétés de l’oscillateur [4; 5]. Un laser à impulsions brèves stabilisé peut générer des raies de largeur inférieure au kilohertz, ce qui correspond à moins d’un femtomètre de résolution spectrale. La

fréquence centrale  $f_n$  de chacune des  $n$  raies est donnée par :

$$f_n = nf_{rep} + f_{CEO}, \quad (1)$$

où  $f_{rep}$  est la cadence du laser et  $f_{CEO}$  est un décalage en fréquence qu'on définit en anglais comme la *carrier-envelope frequency offset*.  $f_{CEO}$  est associé à la différence de vitesse entre le champ électrique de l'impulsion, qui voyage à la vitesse de phase, et son enveloppe, qui voyage à la vitesse de groupe. Cette différence de vitesse crée un déphasage constant  $\Delta\phi$  entre le champ électrique et l'enveloppe d'une impulsion à l'autre, qu'on nomme *carrier-envelope offset* ou CEO. Le terme de phase associé à ce déphasage peut être représenté par  $\exp(-i\Delta\phi f_{rep}t)$ . Comme un déphasage dans le domaine temporel est associé à un décalage dans le domaine spectral, on peut donc relier  $f_{CEO}$  à  $\Delta\phi$  :

$$2\pi f_{CEO} = \Delta\phi f_{rep}. \quad (2)$$

Typiquement,  $f_{CEO}$  varie dans le temps dans une cavité laser à synchronisation modale dû à des perturbations mécaniques, optiques ou thermiques [5]. Dans le cas où il est important de connaître la fréquence de chacune des raies  $f_n$ , le  $\Delta\phi$  doit être contrôlé en temps réel. Comme le suggère l'équation (2), cette stabilisation est effectuée en contrôlant la cadence du laser et en mesurant  $f_{CEO}$  au moyen de techniques interférométriques d'auto référencement [6] ou de référencement avec des sources laser auxiliaires préalablement référencées [7]. Une fois le laser stabilisé, la fréquence de chacune des raies du peigne peut être déterminée avec une précision inégalée ( $< 1$  Hz) [8], ce qui laisse place à un tout nouveau domaine à fort potentiel en métrologie et en spectroscopie : les peignes de fréquence. Ce nouvel axe de recherche a d'ailleurs valu à Theodor W. Hänsch et à John L. Hall le prix Nobel de physique en 2005.

### I.1.1 Applications

Les qualités spectrales et temporelles uniques offertes par les lasers à impulsions ultrabrèves leur procurent un grand avantage par rapport aux autres types de laser dans plusieurs domaines d'applications. Les propriétés de ces lasers sont d'autant plus pertinentes dans l'infrarouge moyen. Cette section introduit brièvement les applications les plus prometteuses dans cette région spectrale.

#### Spectroscopie

De façon générale, on définit la région spectrale de l'infrarouge moyen comme l'empreinte digitale moléculaire par excellence. Comme mentionné précédemment, les molécules possèdent des résonances ro-vibrationnelles qui sont propres à leurs groupes chimiques. À titre d'exemple,

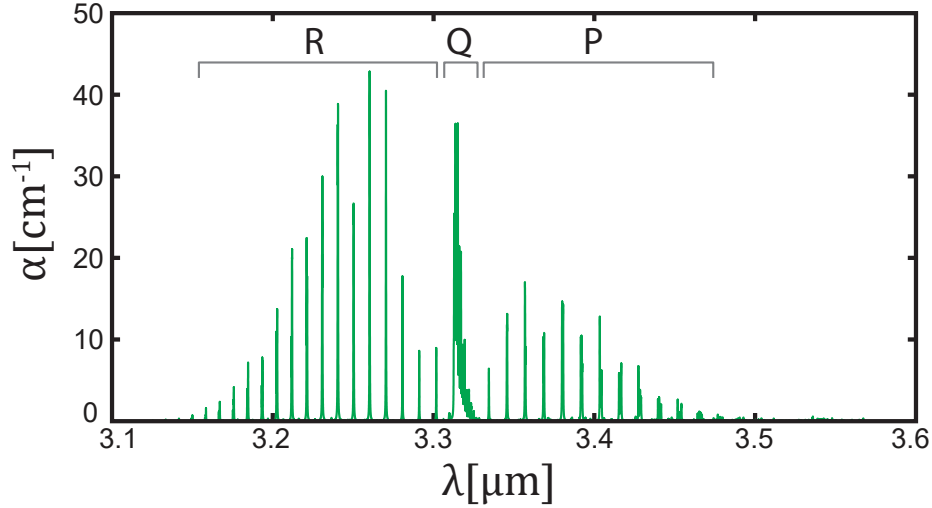


FIGURE I.2 – Bande d’absorption associée à la transition vibrationnelle  $\nu_3$  du méthane. R, Q et P sont les branches permises pour cette transition.

la figure I.2 présente la bande d’absorption correspondant à la transition vibrationnelle asymétrique  $\nu_3$  de la molécule de méthane ( $\text{CH}_4$ ), un polluant atmosphérique important à détecter, car il contribue grandement au réchauffement climatique. Comme chaque état vibrationnel comprend une séquence de sous-états rotationnels, on observe une structure fine (en phase gazeuse) à l’intérieur même de cette bande. Cette bande est séparée en trois branches R, Q et P que l’on associe respectivement aux règles de sélection des transitions permises  $\Delta J = +1, 0$  et  $-1$  entre les états ro-vibrationnels [9]. Ces sous-structures sont propres aux liens chimiques formant la molécule. Cette empreinte spectrale permet ainsi d’identifier les liens chimiques formant la molécule. Les lasers à impulsions ultrabrèves émettant sur ces résonances sont donc des outils de choix pour l’identification et l’évaluation de la concentration de molécules dans un volume donné. La capacité d’obtenir un spectre à la fois large et discrétisé en raies fines dont la fréquence est précisément connue permet de reconstruire de façon quasi instantanée et avec une précision inégalée cette empreinte digitale.

Il existe un grand nombre de techniques de spectroscopie optique. Parmi les plus importantes, on retrouve la spectroscopie par transformée de Fourier dans l’infrarouge (FTIR) [10] et celle par diode laser accordable (TDLAS) [11]. La technique FTIR, acronyme pour *Fourier-Transform Infrared Spectroscopy*, est grandement utilisée pour l’analyse d’échantillons solides ou liquides, mais la résolution et la précision de cette technique est présentement limitée par l’utilisation de source de lumière incohérente dans l’interféromètre. Une technique mieux adaptée pour la détection de gaz est la TDLAS, acronyme pour *Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy*. Cette technique, qui consiste à balayer un laser très étroit autour d’une raie spécifique d’une molécule donnée, permet de mesurer des concentrations de gaz de l’ordre de la partie par milliard (ppt) [12]. En contrepartie, cette technique par balayage est généralement

limitée en couverture spectrale et ne peut pas être utilisée pour la détection simultanée de plusieurs spécimens gazeux dans un volume.

Les techniques de spectroscopie basées sur les peignes de fréquence dans l'infrarouge moyen ont un potentiel énorme pour la détection rapide et simultanée de très faibles concentrations de gaz (ppt). La précision spectrale inégalée et la largeur de bande des sources laser à impulsions brèves utilisées pour ces techniques permettent de reconstruire de façon précise et quasi instantanée les bandes ro-vibrationnelles de plusieurs espèces moléculaires dans un volume donnée. Ces techniques pourraient donc avoir un impact important dans des applications comme la détection de polluants atmosphériques sur de grandes distances [13] et l'analyse de l'haleine humaine pour la détection précoce de maladies [14; 15].

Les lasers à impulsions ultrabrèves sont également à la base de sources laser à très large bande spectrale, communément appelées supercontinuum. Contrairement aux sources de lumière incohérente et diffuse comme les corps noirs, les sources supercontinuum offrent tous les avantages propres aux lasers (cohérence, intensité lumineuse, directionnalité). Celles-ci ont donc un avantage marqué pour des applications d'illumination ou de spectroscopie à distance. Une technique d'imagerie hyperspectrale de tissus biologiques a même été récemment démontrée grâce à l'utilisation de ces sources [16].

## Santé

L'interaction laser avec les tissus biologiques a toujours été d'un intérêt marqué dans le domaine de la santé pour le développement d'outils chirurgicaux efficaces et minimalement invasifs. Cette interaction peut être de nature thermique, photochimique, photomécanique ou peut provenir de la formation d'un plasma [17]. Par contre, ces types d'interaction causent d'importants dommages aux tissus environnants soit par accumulation de chaleur ou de stress excessifs, soit par dénaturation de l'ADN ou des cellules environnantes. Depuis quelques années, une nouvelle technique d'ablation basée sur l'utilisation de laser à impulsions ultrabrèves (10-500 ps) dans l'IM centrées sur la résonance fondamentale de l'eau à  $2.94 \mu\text{m}$  permet de réduire considérablement les dommages collatéraux lors de l'ablation [18]. En excitant sélectivement les modes de vibration (élongation) des liens O-H de la molécule d'eau sur un intervalle de temps suffisamment court pour éviter les effets thermiques et acoustiques, la technique IHDVE (*Impulsive heat deposition through vibrational excitation*) est l'un des processus d'ablation de tissus biologiques les plus précis et les plus efficaces démontrés à ce jour [19]. La figure I.3 résume bien les avantages de cette technique. Une réduction de la zone de dommage accélère le processus de guérison de la zone affectée par rapport aux lasers ou autres outils de découpe conventionnels. Toutefois, ce processus d'ablation requiert une énergie par impulsion supérieure à  $100 \mu\text{J}$ . La durée des impulsions laser utilisées pour l'ablation doit être supérieure à la picoseconde pour éviter d'atteindre des intensités crêtes trop importantes qui causent la formation de plasma et de radicaux libres toxiques pour les cellules environnantes

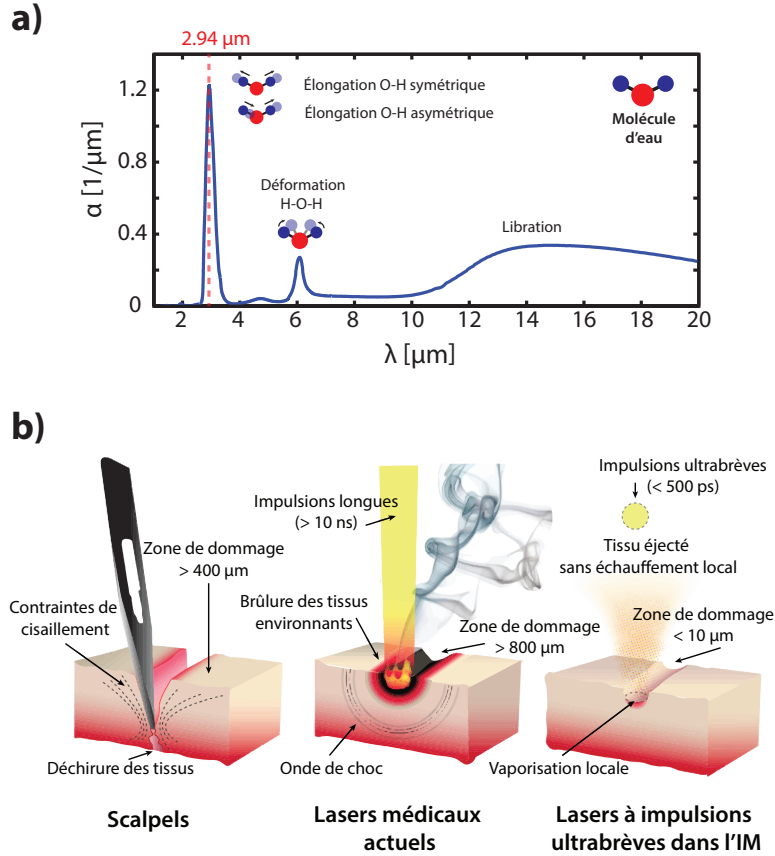


FIGURE I.3 – a) Coefficient d’absorption de l’eau liquide. b) Illustration des techniques d’ablation de tissus biologiques par laser en comparaison avec le scalpel mécanique. Figure adaptée de [19]

[18]. Cette hypothèse reste cependant à être validée puisque les effets d’ionisation diminuent à plus grande longueur d’onde. Cette thèse se concentre sur la génération d’impulsions de durée inférieure à la picoseconde, mais la technique de synchronisation modale présentée dans ce projet peut mener à la génération d’impulsions de plus longue durée (ps) pour des applications de découpe. D’ailleurs, une impulsion femtoseconde peut être facilement étirée en utilisant, entre autres, un filtre spectral ou un élément fortement dispersif.

### Traitement des matériaux

Les polymères sont des chaînes de molécules constituées en grande partie de liaisons carbone-hydrogène (C-H). Ils possèdent donc d’importantes bandes vibrationnelles dans l’IM dont l’une qui est située aux environs de  $3.4 \mu\text{m}$  (élongation du lien C-H) et qui varie légèrement en fonction de la nature du polymère. Quelques démonstrations d’ablation laser résonante sur certains polymères [20; 21] ou de dépôt de couches minces de polymères [22] ont été effectuées,

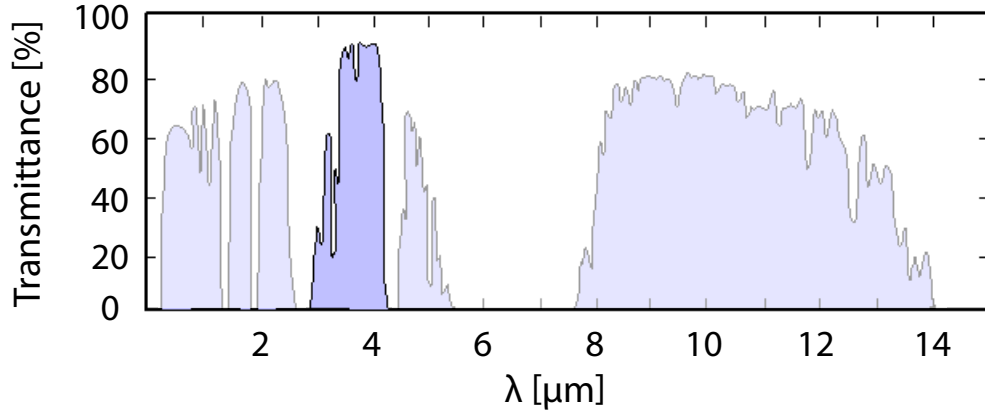


FIGURE I.4 – Spectre de transmission typique de l’atmosphère. Adapté de [25].

mais très peu d’études employant des lasers à impulsions ultrabrèves dans l’IM ont été réalisées jusqu’à présent. L’une des principales raisons est qu’il n’existe encore que très peu de sources laser dans l’IM avec une bonne qualité de faisceau qui sont faciles d’utilisation. La déposition laser contrôlée d’une couche mince de certains polymères ou matériaux organiques conducteurs est une technique très prometteuse pour le développement de l’électronique organique ou de revêtements anti-frottement [22].

### Défense et sécurité

Paradoxalement, la région de l’infrarouge moyen possède deux importantes fenêtres de transmission atmosphérique situées dans la bande 3 - 5  $\mu\text{m}$  et dans la bande 8 - 12  $\mu\text{m}$  (voir Fig. I.4). La bande 3 - 5  $\mu\text{m}$  est une région de choix pour les missiles à tête chercheuse [23] puisque les parties chaudes des véhicules aéroportés (tuyères ou rotors) atteignent des températures de 600 à 700  $^{\circ}\text{C}$ , ce qui équivaut à des pics d’émission de corps noir entre 3 et 4  $\mu\text{m}$ . Les détecteurs utilisés à l’intérieur des missiles à tête chercheuse (GaAs, HgCdTe, etc.) sont également très sensibles dans cette région. De plus, les missiles guidés les plus récents (*Stinger*, *Sidewinder*, etc.) utilisent des systèmes de détection modulés à de grandes cadences ( $> 1$  kHz) pour identifier et contrecarrer les systèmes de contre-mesure. Il faut donc un système laser pouvant être modulé à de telles fréquences [24]. Les lasers à impulsions brèves et principalement celui développé au cours de ce projet sont d’intérêt pour l’éblouissement de ce type de missiles puisqu’ils produisent un signal large bande de puissance moyenne élevée qui peut être modulé et accordable dans cette bande spectrale.

### Recherche et développement

Les sources laser à impulsions ultrabrèves dans l’IM sont des outils à grande valeur ajoutée en recherche et développement. Les intensités élevées produites par ces sources sont grandement



recherchées en optique non linéaire. On peut utiliser ce type de source pour de la conversion non linéaire très efficace à de plus grandes longueurs d'onde [26]. Comme discuté précédemment, la génération de supercontinuum couvrant le proche infrarouge et l'infrarouge moyen est également un sujet de recherche très actuel [27].

Ces sources sont également très prometteuses en physique des champs forts. En effet, l'énergie pondéromotrice pouvant être atteinte par une particule dans un champ électrique de grande amplitude est proportionnelle au carré de la longueur d'onde ( $U_p = I\lambda^2$ ). Plus cette énergie est grande, plus la génération de photons de grande énergie ( $> \text{keV}$ ) est possible par le mécanisme de génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz [28]. La génération d'onde TéraHertz par ionisation d'un gaz est également plus efficace à grande longueur d'onde, avec une dépendance en  $\sim \lambda^5$  [29]. Évidemment, l'utilisation de telles sources dans ce domaine d'applications nécessite des impulsions de quelques cycles optiques dont l'énergie et l'intensité crête sont très importantes. On parle idéalement d'impulsions femtoseconde de plusieurs millijoules d'énergie et d'intensité supérieure à  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Le développement de techniques d'amplification dans l'infrarouge moyen comme l'amplification régénérative [30], l'amplification *Innoslab* [31], ou l'amplification d'impulsions par dérive de fréquence (*Chirped pulse amplification*) [32] pour obtenir de telles intensités est donc primordial. L'utilisation de lasers à impulsions brèves dans plusieurs autres expériences en physique des champs forts a mené à des résultats fort intéressants. Par exemple, la génération de sous-structures temporelles dont la période atteint les zeptosecondes ( $10^{-21} \text{ s}$ ) a été démontrée en utilisant des impulsions ultrabrèves de longueur d'onde centrale située aux environs de  $9 \mu\text{m}$  [33].

L'étude de réactions chimiques accélérées par l'utilisation de sources laser infrarouge est également un sujet de recherche très actif à ce jour [34]. L'utilisation de photons de plus basse énergie (grande longueur d'onde) a le potentiel de simplifier et d'augmenter l'efficacité des méthodes de synthèse de matériaux en photochimie. En excitant un mode de vibration de la molécule au moyen de lasers dans l'IM, on observe un couplage d'énergie vers d'autres modes de rotation/vibration. Ce couplage permet d'accélérer certaines réactions chimiques. Par contre, ces mécanismes d'accélération photochimiques demeurent peu étudiés. Il est maintenant possible d'étudier précisément ces réactions avec une excellente résolution temporelle au moyen de systèmes laser ultrarapides dans l'IM. L'utilisation de tels lasers assure d'isoler la contribution instantanée de l'excitation infrarouge de celle causée par l'accumulation de chaleur dans l'échantillon [34].

Comme ce type de laser dans l'infrarouge moyen est encore peu exploité du point de vue appliqué, l'amélioration en efficacité, en performance, en simplicité et en fiabilité permettra certainement l'arrivée de nouvelles applications scientifiques dans des domaines comme la biologie, la médecine, l'environnement, etc. Les sections suivantes décrivent les concepts clefs qui ont mené au développement du laser à fibre présenté dans cette thèse, qui constitue un grand pas vers la concrétisation des applications discutées dans cette section.

## I.2 La génération d'impulsions ultrabrèves : Le principe de synchronisation modale

La génération d'impulsions ultrabrèves dans une cavité laser repose généralement sur le principe de synchronisation modale, ou *mode locking* en anglais. Cette section décrit de façon détaillée ce principe tout en orientant le contenu vers la conception de lasers à fibre optique émettant dans l'infrarouge moyen.

Une cavité laser sélectionne naturellement son régime d'opération afin de minimiser les pertes du signal par tour de cavité. Les lasers conventionnels émettent donc un signal de puissance continue puisqu'aucun élément dans la cavité ne les force à opérer en régime impulsif. Afin d'opérer sous forme d'impulsions ultrabrèves et intenses, une cavité laser doit donc comprendre un élément qui favorise la génération et le maintien de ces impulsions en régime permanent. Cet élément agit comme un modulateur qui assure une transmission maximale du signal à un endroit dans la cavité sur un intervalle de temps très court. Ce modulateur peut être actif, c'est-à-dire qu'il est contrôlé par un signal électronique externe, ou passif, lorsque la modulation est auto-induite par le signal laser. En fonction de la nature de ce modulateur, on parle de synchronisation modale active ou passive.

### I.2.1 Synchronisation modale active

La synchronisation modale active repose sur l'intégration d'un modulateur contrôlé activement par un signal électronique rapide. Cet élément actif peut prendre la forme d'un modulateur en amplitude (AM) ou en fréquence (FM). Les modulateurs les plus couramment utilisés sont de nature acousto-optique ou électro-optique. Dans le cas le plus simple d'un modulateur AM, on utilise une cellule de Pockels qu'on place entre deux polariseurs. Le changement d'indice de réfraction causé par un champ électrique appliqué à la cellule induit une biréfringence qui modifie la polarisation du signal dans la cellule. En fonction de ce changement de polarisation, le signal est alors plus ou moins transmis dans le polariseur suivant la cellule de Pockels. Pour sélectionner une ou plusieurs impulsions à chaque tour de cavité, la fréquence de modulation  $\omega_m$  doit être fixée assez précisément à la cadence du laser ( $f_{rep}$ ) ou à un de ses harmoniques :

$$\omega_m = 2\pi n f_{rep} = 2n\pi/T, \quad (3)$$

où  $n$  est un entier et  $T$  est le temps de parcours d'un tour de cavité. Comme illustré à la figure I.5, seulement une fraction du signal circulant dans la cavité subit une transmission maximale dans le modulateur à chaque tour, ce qui mène à l'émergence d'une impulsion à partir du bruit. Le principe de synchronisation modale active peut également être conceptualisé dans le domaine spectral. Lorsqu'un signal initial avec un mode longitudinal de fréquence  $\omega_q$  subit une modulation de fréquence  $\omega_m$ , un transfert d'une partie de son énergie vers des bandes latérales

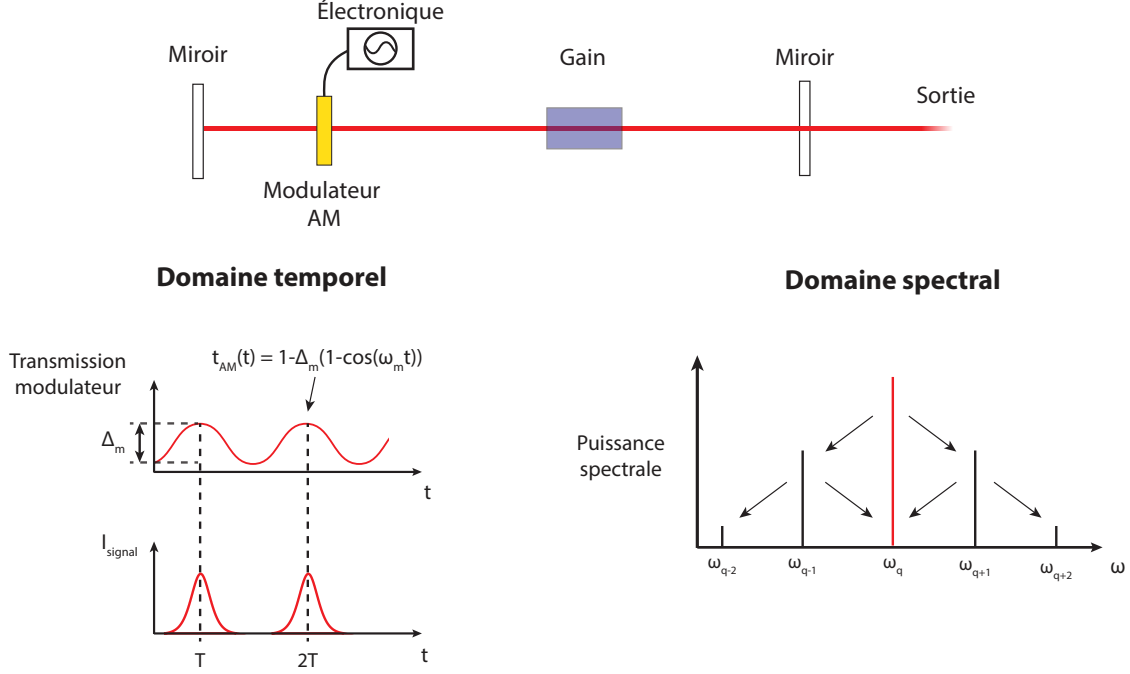


FIGURE I.5 – Schéma simplifié d'un laser fonctionnant sous le principe de synchronisation modale active. L'effet temporel et spectral d'un modulateur en amplitude dans la cavité est également schématisé.

de fréquences  $\omega_{q+1}$  et  $\omega_{q-1}$  est induit. Ces bandes latérales, qui correspondent à d'autres modes longitudinaux de la cavité laser, seront synchronisées en phase avec le mode principal, d'où le terme synchronisation modale. Afin d'illustrer ce principe, considérons le passage d'un signal de champ électrique  $\tilde{E}_{in}(t) = \tilde{A}(t)e^{i\omega_q t}$  dans un modulateur dont la fonction de transfert est donnée par :

$$t_{AM} = \exp[\Delta_m(1 - \cos(\omega_m t))], \quad (4)$$

$$t_{AM} \approx 1 - \Delta_m(1 - \cos(\omega_m t)), \quad (5)$$

$$t_{AM} \approx (1 - \Delta_m) + \frac{\Delta_m}{2}e^{i\omega_m t} + \frac{\Delta_m}{2}e^{-i\omega_m t}, \quad (6)$$

où  $\Delta_m$  et  $\omega_m$  sont respectivement la profondeur et la fréquence de modulation. On suppose ici que la profondeur de modulation est faible. Après être passé à travers le modulateur, le champ électrique du signal est donné par :

$$\tilde{E}_{out}(t) = t_{AM}\tilde{E}_{in}(t), \quad (7)$$

$$\tilde{E}_{out}(t) = (1 - \Delta_m)\tilde{A}(t)e^{i\omega_q t} + \frac{\Delta_m}{2}\tilde{A}(t)e^{i(\omega_q + \omega_m)t} + \frac{\Delta_m}{2}\tilde{A}(t)e^{i(\omega_q - \omega_m)t}, \quad (8)$$

$$\tilde{E}_{out}(t) = (1 - \Delta_m)\tilde{A}(t)e^{i\omega_q t} + \frac{\Delta_m}{2}\tilde{A}(t)(e^{i\omega_{q+1}t} + e^{i\omega_{q-1}t}), \quad (9)$$

où  $\omega_q$  est la fréquence du mode longitudinal  $q$ . À partir de ces équations, on en déduit que le passage dans le modulateur crée de nouveaux modes longitudinaux de fréquences  $\omega_{q+1} = \omega_q + \omega_m$  et  $\omega_{q-1} = \omega_q - \omega_m$ . Vu que l'effet du modulateur est répliqué à chaque tour de cavité, les modes longitudinaux générés dans le tour précédent créent à leur tour de nouveaux modes synchronisés en phase dans les tours suivants, tel qu'illustré à la figure I.5. Évidemment, la condition d'oscillation laser (le gain compense les pertes) pour chacun des modes doit être respectée pour que ceux-ci subsistent dans la cavité. La largeur de bande du gain impose donc une limite à la génération de nouveaux modes longitudinaux. Toutefois, les caractéristiques des impulsions temporelles générées sont principalement dictées par la fréquence du modulateur dans le cas actif. Plus la fréquence est élevée, plus les impulsions générées sont courtes. La fréquence du modulateur ne peut être accordée qu'à la fréquence fondamentale ou à un harmonique de la fréquence fondamentale ( $\omega_m = 2\pi n f_{rep}$ , où  $n$  est un entier) et la rapidité de modulation est limitée par l'électronique ( $>$  picoseconde). Par conséquent, les impulsions générées par cette technique active sont généralement limitées à des durées supérieures à la picoseconde [35]. Pour l'obtention d'impulsions femtoseconde, il est nécessaire d'utiliser une technique de synchronisation modale passive.

## I.2.2 Synchronisation modale passive

Dans le cas de la synchronisation modale passive, la modulation du signal dans la cavité s'effectue de façon passive (sans contrôle électronique) grâce à l'utilisation d'un nouvel élément dans la cavité : un absorbant saturable (voir fig. I.6). On peut diviser les absorbants saturables en deux grandes catégories : réels et artificiels. Les absorbants saturables réels sont des matériaux qui possèdent une absorption non linéaire qui diminue (une transmission non linéaire qui augmente) à mesure que l'intensité du signal augmente. Les absorbants saturables artificiels sont des systèmes non linéaires qui reproduisent l'effet d'un absorbant saturable réel. Dans tous les cas, cet élément clef possède deux fonctions essentielles, illustrées à la figure I.6 b). D'une part, celui-ci favorise l'émergence d'une impulsion à partir du bruit optique généré dans la bande de gain du milieu laser. D'autre part, il assure une auto modulation temporelle et donc une préservation de l'impulsion formée à chaque tour de cavité. La présence d'un tel élément favorise ainsi une opération du laser sous forme d'impulsions brèves et intenses. Lors du passage d'un signal optique d'intensité  $I(t)$  dans cet élément, son coefficient d'absorption  $\alpha(I)$  est décrit par la relation suivante :

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_{sat}}{1 + I(t)/I_{sat}} + \alpha_{non-sat}, \quad (10)$$

où  $\alpha_{sat}$  est le coefficient de pertes saturables ( $\alpha_{sat} \rightarrow \Delta_m$  lorsque  $\Delta_m$  est petit),  $I(t)$  est l'intensité du signal incident,  $I_{sat}$  est l'intensité de saturation et  $\alpha_{non-sat}$  correspond aux

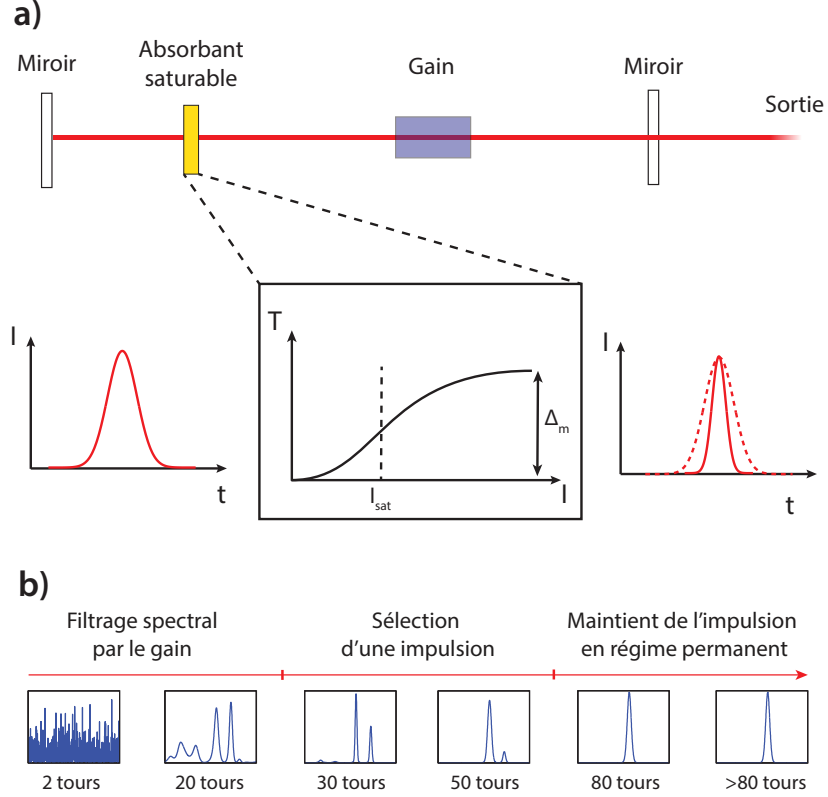


FIGURE I.6 – a) Schéma simplifié d'un laser fonctionnant sous le principe de synchronisation modale passive avec illustration des propriétés d'un absorbant saturable. b) La synchronisation modale en trois étapes.

perles intrinsèques (non saturables) de l'élément. L'intensité de saturation est définie comme :

$$I_{sat} = \frac{h\nu}{\sigma_A \tau_A}. \quad (11)$$

$h\nu$  est l'énergie des photons absorbés,  $\sigma_A$  est la section efficace d'absorption et  $\tau_A$  est le temps de relaxation de l'absorbant.  $\alpha_{sat}$ ,  $\alpha_{non-sat}$  et  $I_{sat}$  ont une influence directe sur la dynamique du laser [36]. Plus les pertes non saturables sont élevées, plus les pertes par aller-retour sont grandes et moins le laser est efficace, ce qui est défavorable à la synchronisation modale. À partir de la figure I.6 a), on peut en déduire que plus l'intensité de saturation est basse, plus la pente de transmission de l'absorbant saturable à faible intensité est grande, ce qui favorise l'émergence d'impulsions à partir de petites fluctuations en intensité du bruit. L'effet est semblable lorsqu'on augmente  $\alpha_{sat}$ . Il y a cependant un compromis à faire. Plus la pente de transmission à basse intensité est élevée, plus le laser aura tendance à opérer en régime de commutation du gain (*Q-Switch* en anglais) vu que la réponse du gain face à ce changement drastique de perte n'est pas assez rapide. Une intensité de saturation trop faible peut également

limiter l'énergie des impulsions générées en régime à une impulsion et favoriser l'apparition d'instabilités ou de multiples impulsions [36].

Le temps de relaxation de l'absorbant saturable est aussi un facteur essentiel à l'atteinte du régime de synchronisation modale. D'ailleurs, on qualifie généralement un absorbant saturable de lent lorsque la valeur de  $\tau_A$  est égale ou supérieure à la durée des impulsions générées et de rapide dans le cas contraire [37]. La réponse d'un absorbant saturable rapide correspond à l'équation (10) alors que celle d'un absorbant saturable lent obéit généralement à la relation suivante, qui tient compte du caractère non instantané de l'absorbant saturable :

$$\frac{d\alpha(t)}{dt} = -\frac{\alpha(t) - \alpha_{non-sat}}{\tau_A} - \alpha(t) \frac{|A(t)|^2}{E_A}, \quad (12)$$

où  $E_A$  est l'énergie de saturation de l'absorbant saturable. À noter que dans la limite où  $\tau_A$  est très petit, la solution à cette équation approche celle d'un absorbant saturable rapide, c'est-à-dire l'équation (10). Dans le cas lent, on réfère à l'énergie de saturation au lieu de la puissance de saturation, puisque la réponse de l'élément est un effet cumulé sur l'ensemble de l'impulsion. Évidemment, plus le temps de réponse de l'absorbant saturable est court, plus la durée des impulsions générées sera courte. Les lasers intégrant des absorbants saturables lents sont également plus propices aux instabilités et à la formation de multiples impulsions dans la cavité vu que la modulation causée par cet élément est plus lente et leur intensité de saturation est plus faible par rapport au cas rapide. Dans certaines conditions, l'utilisation d'absorbants saturables lents peut mener à la formation d'impulsions jusqu'à 10 fois plus courtes que le temps de réponse de l'absorbant [36]. Ceci est possible grâce au modelage de l'impulsion en régime permanent causé par l'équilibre entre la dispersion de la vitesse de groupe et l'auto modulation de phase dans la cavité. Cet équilibre force la formation d'impulsions sous forme de sécante hyperbolique, appelées solitons, dont la durée peut être inférieure à 100 femtosecondes [36]. Le concept de solitons sera détaillé davantage dans les prochaines sections.

### Les absorbants saturables réels dans les lasers à fibre

Plusieurs matériaux ont été utilisés à titre d'absorbants saturables réels pour la génération d'impulsions ultrabrèves. La figure I.7 offre un aperçu de l'historique de ces matériaux. L'effet d'absorption saturable a été observé dans certains colorants au début des années 60, mais leur utilisation n'a mené qu'à des régimes de synchronisation modale partielle dans les lasers à fibre [39]. La dégradation à long terme de ce type de matériau a poussé la conception de matériaux plus sophistiqués. Les absorbants saturables à base de semi-conducteurs, communément appelés SESAM (en réflexion) ou SESAT (en transmission) [36], ont permis l'obtention de régimes stables et demeurent abondamment utilisés encore de nos jours. La possibilité de modifier l'énergie de la bande interdite et la structure de ces semi-conducteurs permet de contrôler les paramètres d'absorption ( $\lambda_c$ ,  $I_{sat}$ ,  $\tau_A$ , etc.) en fonction des performances désirées.

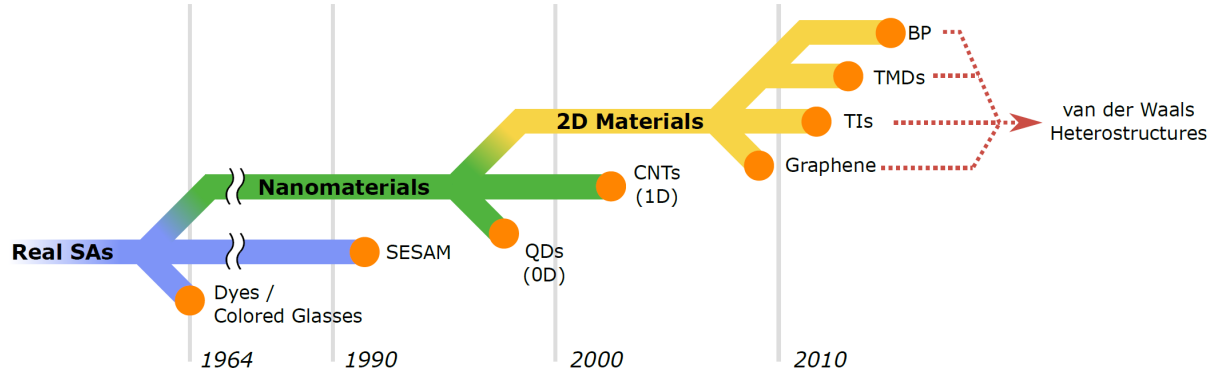


FIGURE I.7 – Historique des absorbants saturables réels. SESAM : Absorbants saturables à base de semi-conducteurs ; QD : Points quantiques ; CNT : Nanotubes de carbone ; TI : Isolants topologiques ; TMD : Dichalcogénures de métaux de transition ; BP : Phosphore noir. Image tirée de [38]

Ce type de matériau possède généralement une réponse temporelle double. En présence d'un champ électromagnétique intense, il y a d'abord création et diffusion de couples de porteurs de charge dans les bandes de valence et de conduction du semi-conducteur. Ce phénomène de thermalisation se déroule sur un intervalle de temps très court (10 à 100 fs). Puis, il y a recombinaison de ces charges entre la bande de valence et de conduction sur un intervalle de temps plus long (picoseconde à la nanoseconde). La réponse temporelle lente facilite la génération d'impulsions à partir du bruit alors que la réponse rapide assure l'obtention d'impulsions ultrabrèves en régime permanent. Grâce à la maturation technologique des techniques de fabrication des semi-conducteurs (épitaxie par jet moléculaire, etc.), la couche absorbante peut être intégrée dans une structure résonante ou antirésonante afin d'augmenter la section efficace d'absorption ou de contrôler la réflectivité et la dispersion de l'absorbant saturable [36]. Les principaux désavantages des SESAMs sont les suivants :

- Les techniques de fabrication sont très dispendieuses.
- Leur bande spectrale d'opération est relativement étroite.
- Leur temps de relaxation est généralement supérieur à la picoseconde.

Vers la fin des années 90, les propriétés exceptionnelles des nanomatériaux ont été mises à profit pour le design de nouveaux types d'absorbants saturables. Selon leur structure, les nanomatériaux sont séparés en 4 grandes catégories : les matériaux 0D (agrégats ou nanoparticules), 1D (nanotubes ou tiges), 2D (couches minces ou plaques) et 3D (assemblage 3D des autres types de nanomatériaux)[40]. Les points quantiques (0D), qui sont des nanostructures à base de semi-conducteurs (PbS, PbSe, CdTe, etc.), ont été intégrés dans des structures vitreuses pour produire des absorbants saturables dans les lasers à fibre [41].

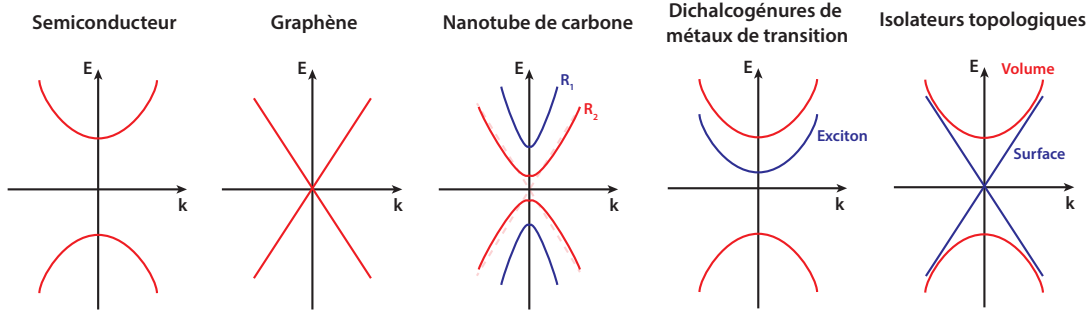


FIGURE I.8 – Comparaison entre les structures de bande des différents absorbants saturables réels.  $E$  : Énergie des électrons;  $k$  : nombre d’onde des électrons;  $R_1$  et  $R_2$  : petit et grand rayons de courbure dans le cas des nanotubes de carbone.

Toutefois, les nanostructures ayant suscité le plus d’intérêt au cours des dernières années sont les nanotubes de carbone (1D) et le graphène (2D) [42]. Ces matériaux à base de carbone et aux propriétés optiques exceptionnelles ont un temps de réponse rapide pouvant avoisiner les 100 fs et une fenêtre d’opération spectrale extrêmement grande tout en étant beaucoup plus simples à fabriquer (exfoliation) et plus facilement intégrables dans des systèmes fibrés que les SESAMs. L’absorption saturable dans ces matériaux provient de leurs propriétés électroniques exceptionnelles. La figure I.8 illustre la structure de bande des différents absorbants saturables réels dans la première zone de Brillouin. Contrairement aux semi-conducteurs, le graphène ne possède aucune bande d’énergie interdite. Ses bandes de conduction et de valence se rencontrent en un point, qu’on nomme le point de Dirac. Cette structure de bande conique procure au graphène des propriétés d’absorption optique exceptionnelles. Une feuille de graphène peut absorber 2.3 % de la lumière incidente, indépendamment de sa longueur d’onde [43]. En présence d’un champ électromagnétique de grande intensité, il y a génération de porteurs de charge qui perdent ensuite rapidement de l’énergie par diffusion avec d’autres porteurs de charge ou des phonons. Ce processus de diffusion intrabande est beaucoup plus rapide que le temps de diffusion/recombinaison interbande, ce qui cause un état en quasi-équilibre des porteurs de charge dans les bandes de conduction et de valence [44]. Dans cet état, le graphène ne peut absorber davantage de photons dû au principe d’exclusion de Pauli, d’où ses propriétés d’absorption saturable. Le principe est semblable dans les nanotubes de carbone à la différence que la courbure des nanotubes influence la structure de bande en créant une bande d’énergie interdite, comme illustré à la figure I.8. Cette bande interdite peut être contrôlée en modifiant le rayon de courbure des nanotubes. Afin d’obtenir une absorption large bande avec les nanotubes de carbone, il est possible d’en amalgamer plusieurs de différents rayons de courbure. D’autres matériaux 2D découverts récemment, comme le phosphore noir, ont des propriétés semblables au graphène et sont donc très prometteurs [45].

Les dichalcogénures de métaux de transition sont également des matériaux 2D comme le



graphène. Ils sont généralement formés par plus de 40 couches de structure chimique  $MX_2$ . Chaque couche consiste en une structure hexagonale de métaux de transition  $M$  (molybdène Mo, tungstène W, etc.) liée en sandwich de façon covalente à deux structures hexagonales de chalcogénure  $X$  (sulfure S, sélénium Se, etc.). Les dichalcogénures de métaux de transition les plus connus sont le  $MoS_2$ , le  $MoSe_2$ , le  $WS_2$  et le  $WSe_2$  [46]. Les couches sont liées faiblement par des forces de Van der Waals [38]. À grande énergie de photon (visible), l'origine de l'absorption saturable dans ces matériaux est semblable à celle dans les semi-conducteurs. Dans le proche et le moyen infrarouge, l'absorption saturable est plutôt liée à la formation d'excitons ou aux effets de bord qui modifient la structure de bande des matériaux, lorsqu'ils sont utilisés sous forme de flocons.

D'autres nanomatériaux ayant généré énormément d'intérêt récemment sont les isolants topologiques. Ces nanomatériaux 2D ou 3D sont isolants en volume, mais ceux-ci agissent comme un matériau de Dirac tel le graphène en surface. Les exemples les plus typiques sont le  $Bi_2Te_3$ ,  $Bi_2Se_3$ . Des plaques très minces de ces matériaux ont donc été utilisées pour produire un effet d'absorption saturable semblable au graphène [47].

Le plus grand désavantage des nanomatériaux est qu'ils sont très fragiles. Comme la plupart de ces matériaux absorbants possèdent une épaisseur très fine (empilement de quelques atomes d'épaisseur), ceux-ci peuvent être grandement endommagés en présence d'instabilités dans le laser. Par exemple, les dommages peuvent être causés par la génération d'impulsions *Q-switch* ou d'impulsions ultrabrèves de grandes énergies ou de grandes puissances crêtes. Ces matériaux ont également une durée de vie limitée (quelques heures à quelques jours) si aucune précaution n'est prise pour supprimer les instabilités dans la cavité laser.

### Les absorbants saturables artificiels dans les lasers à fibre

À la fin des années 80, plusieurs se sont intéressés au développement d'absorbants saturables artificiels. En exploitant les effets non linéaires dans une cavité laser, il est possible de favoriser une transmission accrue pour les signaux de haute intensité et d'ainsi créer un système agissant comme absorbant saturable. Puisque l'absorption saturable n'est pas une propriété intrinsèque d'un matériau dans la cavité, on définit ces systèmes d'absorbants saturables "artificiels".

La majorité des absorbants saturables sont basés sur l'effet Kerr, un effet non linéaire dominant dans les milieux centrosymétriques comme les fibres optiques. Un signal optique de forte intensité qui se propage dans un tel milieu produit un changement d'indice de réfraction de façon quasi instantanée (sous la femtoseconde) [48]. Ce changement d'indice  $\Delta n$  est proportionnel au champ électrique au carré :

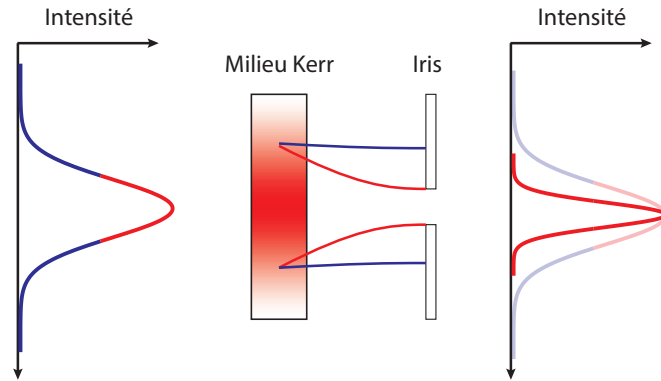
$$\Delta n = n_2 I, \tag{13}$$

où  $n_2$  est l'indice non linéaire du milieu et  $I$  est l'intensité du signal, proportionnelle à  $|E(t)|^2$ . Ce changement d'indice de réfraction peut être exploité afin de créer la modulation en intensité désirée.

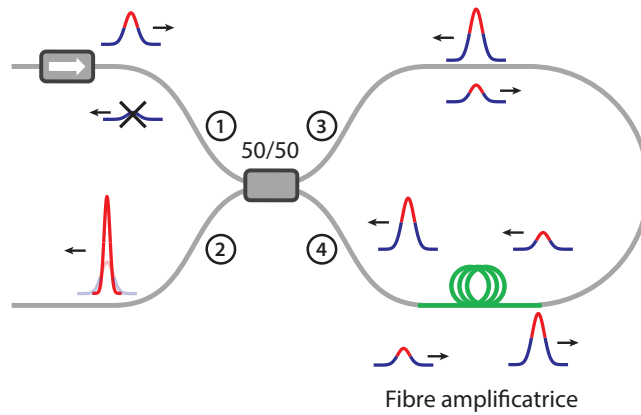
Les principaux systèmes agissant comme absorbants saturables artificiels dans les lasers à fibre optique sont présentés à la figure I.9. Apparue pour la première fois en 1991, la synchronisation modale par lentille Kerr ou *Kerr lens mode-locking* (KLM) en anglais, consiste en la formation d'une lentille Kerr dans un matériau non linéaire qu'on juxtapose ensuite à un iris [49]. Les signaux de grande intensité sont davantage focalisés et subissent ainsi une transmission accrue dans l'iris par rapport aux basses intensités, comme il est présenté à la figure I.9 a). Comme cet effet est spatial, cette technique est davantage utilisée dans les lasers à l'état solide. À titre d'exemple, des impulsions de seulement quelques femtosecondes dans les lasers titane saphir ont été générées grâce à cette technique [50]. Une approche à base de fibre optique a toutefois récemment été proposée en simulation par Wang et al. [51]. On utilise un matériau hautement non linéaire, ici un bloc de chalcogénure (AsSe ou As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>), comme milieu Kerr afin de produire un effet de lentille notable. Ce milieu de quelques millimètres d'épais est placé entre deux fibres préalablement étirées. Dans ce cas, la réinjection dans la fibre suivant le bloc de chalcogénure joue le rôle d'iris. Cette technique semble toutefois difficile à implémenter puisqu'aucune démonstration expérimentale n'a encore été publiée. L'indice très élevé du bloc de chalcogénure ( $n = 2.8$ ) peut créer d'importantes réflexions parasites qui nuisent à la synchronisation modale [52]. La puissance critique d'auto focalisation dans le bloc restreint également les puissances crêtes atteignables par cette approche.

Une approche très utilisée pour la synchronisation modale dans les lasers à fibre optique est l'utilisation d'un miroir en boucle d'amplification non linéaire, ou *Nonlinear amplifying loop mirror* (NALM) en anglais [53]. L'architecture de ces lasers a parfois la forme de huit (*Figure eight*) [54]. Cet interféromètre de Sagnac non linéaire illustré à la figure I.9 b) sépare le signal incident dans le port 1 en deux signaux identiques dans les ports 3 et 4, qui voyagent en sens opposé. La composante issue du port 4 est amplifiée au début de la boucle, ce qui lui permet d'acquérir une phase non linéaire plus importante que le signal voyageant dans le sens inverse, qui n'est amplifié qu'à la fin de la boucle. Ces deux signaux se recombinent ensuite dans le coupleur. Le degré d'amplification de la boucle peut ainsi être ajusté pour que la partie centrale (haute intensité) de l'impulsion amplifiée au début de la boucle subisse un déphasage non linéaire de façon à être transmise dans le port 2 du coupleur 50/50. Les ailes de l'impulsion (basse intensité) subissent moins de déphasage et sont donc réfléchies dans le port 1 pour être ensuite bloquées par l'isolateur. L'avantage de ce système est qu'il peut être réalisé au moyen d'une architecture "toute-fibre" en utilisant uniquement des fibres à maintien de polarisation, ce qui le rend très robuste face aux perturbations externes. Des impulsions de plusieurs nanojoules d'énergie et de durée avoisinant les 100 fs ont été obtenues en utilisant cette approche [55].

**a)** Synchronisation modale par lentille Kerr



**b)** Synchronisation modale par miroir à boucle d'amplification non-linéaire



**c)** Synchronisation modale par rotation non-linéaire de la polarisation

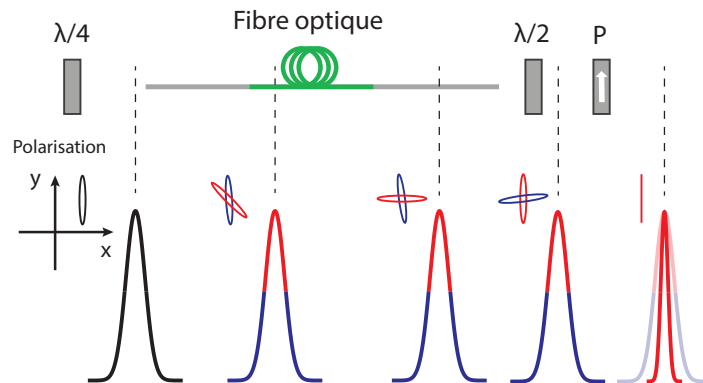


FIGURE I.9 – Les absorbants saturables artificiels utilisés dans les lasers à fibre optique : Synchronisation modale par a) lentille Kerr (KLM), b) miroir en boucle d'amplification non linéaire (NALM) et c) rotation non linéaire de la polarisation (NPE).

La technique la plus ancienne [56] et la plus répandue permettant la génération d'impulsions ultrabrèves est basée sur la rotation non linéaire de la polarisation dans une fibre optique à faible biréfringence. Cette technique est présentée à la figure I.9 c). Puisque cette approche est à la base des lasers développés dans le cadre de cette thèse, celle-ci est détaillée dans la section suivante.

### I.3 Lasers à fibre basés sur la synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation

Une fibre optique monomode est un milieu Kerr (centrosymétrique) dans lequel le mode de propagation est dégénéré en deux composantes de polarisation orthogonales d'amplitude  $E_x$  et  $E_y$ . Dans cette section, nous verrons que la réponse non linéaire de troisième ordre ( $P_{NL}^{(3)}$ ) du milieu qui est induite par le champ  $E_x$  vient affecter la phase de la composante  $E_y$  et vice-versa. Le phénomène non linéaire associé à ce couplage entre les deux ondes se nomme la modulation de phase croisée (XPM). Cette interaction crée ainsi une précession de l'état de polarisation du signal qui dépend de son intensité. Cet effet a été observé à l'époque où le laser en était à ses premiers balbutiements [57]. Comme illustré à la figure I.9 c), il est également possible pour une cavité laser en fibre optique de créer une transmission accrue pour les signaux de haute intensité à chaque tour simplement en utilisant des éléments pour contrôler et sélectionner la polarisation. Par exemple, on peut utiliser des polariseurs, des rotateurs de Faraday et des lames d'onde. À noter qu'il existe plusieurs configurations possibles pour créer l'effet d'absorption saturable désiré [58], mais la configuration la plus simple et la plus employée est présentée à la figure A.1 et ne nécessite que l'utilisation d'une lame demi-onde, d'une lame quart d'onde et d'un polariseur. L'annexe A détaille l'origine de la transmission non linéaire dans un tel système en l'absence de biréfringence dans la fibre optique. Dans cette annexe, on obtient l'équation de transmission en puissance à chaque tour de cavité, qui est donnée par :

$$T = \frac{1}{2} [1 + \cos(2(\alpha - 2\theta + \Delta\Phi)) \cos(2\alpha)], \quad (14)$$

où  $\alpha$  et  $\theta$  représentent respectivement les angles de la lame quart d'onde et de la lame demi-onde par rapport à l'axe du polariseur.  $\Delta\Phi$  est le déphasage non linéaire différentiel qui dépend du paramètre non linéaire de la fibre  $\gamma$ , défini en A.23, de la puissance initiale du signal  $P$  et de la longueur du milieu Kerr  $L$  selon la relation suivante :

$$\Delta\Phi = -\frac{\gamma L}{3} P \sin(2\alpha). \quad (15)$$

Les lames d'onde doivent être orientées précisément pour que le système agisse efficacement à titre d'absorbant saturable. Évidemment, l'effet désiré peut être obtenu avec plusieurs com-

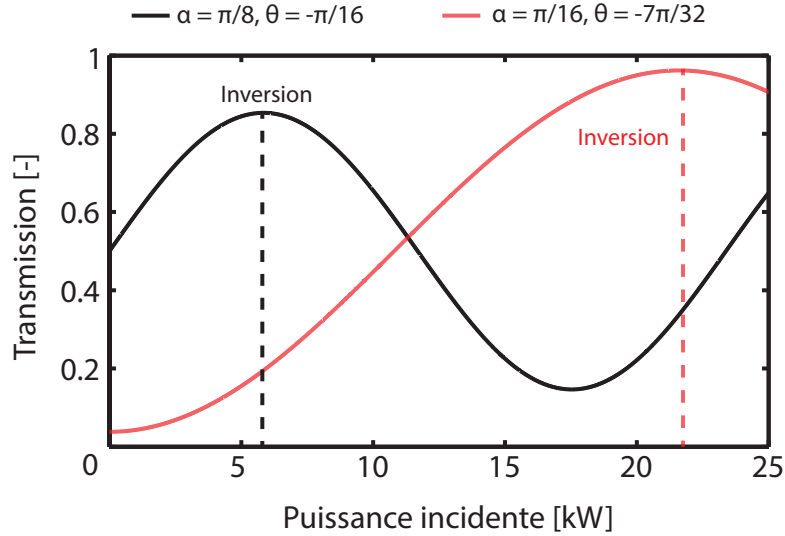


FIGURE I.10 – Transmission non linéaire du système présenté à la figure I.9 c) pour deux combinaisons d’orientations des lames d’onde.

binaisons de l’orientation des lames. La figure I.10 présente les courbes de transmission du système en fonction de la puissance incidente pour deux combinaisons. On suppose un milieu Kerr de longueur  $L = 3$  m avec un paramètre non linéaire  $\gamma = 0.19 \text{ W}^{-1}\text{km}^{-1}$ , qui sont des valeurs typiques pour les lasers présentés dans cette thèse.

À la figure I.10, on remarque que la transmission du système varie de façon sinusoïdale avec la puissance du signal. Ainsi, même si le système agit comme absorbant saturable à basse puissance, celui-ci peut causer l’effet inverse à partir d’une certaine puissance. On définit cette puissance comme le point d’inversion du système. L’allure sinusoïdale de la courbe provient du fait que la rotation non linéaire de la polarisation est en fait un couplage périodique qui dépend de la longueur du milieu Kerr et de l’intensité du signal s’y propageant. L’avantage de ce système est qu’il peut théoriquement produire la courbe de transmission non linéaire désirée en ajustant l’orientation des lames. Par contre, le fait de repousser le point d’inversion de l’absorption saturable à de plus grandes puissances implique nécessairement une pente de transmission beaucoup plus faible à basse puissance (courbe rouge), ce qui nuit à la formation d’impulsions à partie du bruit et donc au caractère auto démarrant du laser.

Évidemment, la théorie présentée dans cette section n’est que conceptuelle, puisque plusieurs autres effets doivent être considérés dans une cavité laser réelle. La biréfringence résiduelle dans la fibre et la dispersion globale de la cavité influencent grandement la rotation non linéaire de la polarisation. L’orientation des lames d’onde doit donc être ajustée par essais et erreurs au laboratoire une première fois pour déterminer un état favorable au régime de synchronisation modale. C’est néanmoins cette technique qui sera utilisée tout au long de cette thèse pour des raisons qui seront détaillées plus loin.

### I.3.1 Les lasers à solitons

Les plus anciens lasers à fibre ultrarapides utilisant un absorbant saturable artificiel sont les lasers à solitons [59].

Le terme *soliton* est employé pour désigner une famille distincte d'ondes solitaires qui voyagent sans se déformer et qui sont solutions de l'équation de propagation d'une onde en présence de dispersion anormale et d'auto modulation de phase. Bien que ces ondes solitaires aient été observées pour la première fois au 19<sup>ième</sup> siècle dans un canal écossais [60], c'est la découverte des solitons optiques dans les fibres dans les années 70 [61] qui a eu un impact considérable en télécommunication pour le transfert de signaux sur de longues distances, mais également pour la génération d'impulsions ultrabrèves dans les cavités laser. Afin de bien décrire les caractéristiques de ces ondes solitaires, l'équation régissant la propagation d'impulsions brèves à l'intérieur d'une fibre optique sans perte est présentée ci-dessous. Dans cette équation, on ne considère que les effets de la dispersion de la vitesse de groupe (GVD) et de l'auto modulation de phase (SPM) :

$$i \frac{\partial A}{\partial z} = \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial T^2} - \gamma |A|^2 A. \quad (16)$$

$A$  est l'enveloppe lente de l'impulsion,  $\beta_2$  est le coefficient de dispersion de la vitesse de groupe et  $\gamma$  est le paramètre non linéaire de la fibre, définie à l'équation (A.23). La variable  $T = t - z/v_g$  réfère au temps relatif à la vitesse de groupe de l'impulsion  $v_g$ . Pour  $\beta_2 < 0$  et  $\gamma > 0$ , les solitons sont solutions de cette équation différentielle et sont représentés par un profil temporel de forme sécante hyperbolique. Dans les lasers à fibre, on s'intéresse plus spécifiquement à la solution d'ordre 1 de cette famille, appelé soliton fondamental. Les solitons d'ordre supérieur sont généralement très sensibles aux perturbations causées par le gain, les pertes, l'effet Raman ou les effets dispersifs d'ordre supérieur. Ces solutions peuvent donc difficilement subsister dans une cavité laser, qui possède plusieurs sources de perturbations. L'amplitude du soliton fondamental est représentée par la relation suivante :

$$A(z, T) = \sqrt{P_0} \operatorname{sech} \left( \frac{T}{T_0} \right) e^{-\frac{iz|\beta_2|}{2T_0^2}}, \quad (17)$$

$$P_0 = \frac{|\beta_2|}{\gamma T_0^2}, \quad (18)$$

où  $P_0$  est la puissance crête,  $T_0$  est la durée caractéristique du soliton ( $\Delta t_{1/2} \sim 1.763T_0$ ;  $\Delta t_{1/2}$  = durée à mi-hauteur). L'énergie du soliton est donnée par :

$$E = 2P_0T_0 = \frac{2|\beta_2|}{\gamma T_0}, \quad (19)$$

Les plus importantes caractéristiques de cette onde solitaire sont déduites des relations (18) et (19). Pour des paramètres de fibre fixes ( $\beta_2$  et  $\gamma$ ), l'énergie du soliton varie de façon inversement proportionnelle à sa durée alors que sa puissance crête est proportionnelle à  $T_0^{-2}$ . Plus l'énergie du soliton est grande, plus celui-ci sera court et intense. Cette propriété, qu'on nomme "contrainte solitonique", aura d'importantes conséquences dans les lasers et les amplificateurs à fibre opérant en régime de dispersion anormale.

La relation (17) est également solution d'une équation différentielle représentant la propagation d'une onde en présence de gain et de pertes, c'est-à-dire dans une cavité laser [35]. Cependant, cette solution représente seulement un profil d'intensité moyen pour l'impulsion voyageant dans la cavité, car l'impulsion subit périodiquement des variations en amplitude à chaque tour de cavité causées par le gain et les pertes. Afin d'avoir une représentation plus juste de la dynamique intracavité dans ce type de laser, on utilise en général des modèles de simulation numérique, qui seront détaillés aux chapitres 2 et 4.

On associe généralement le terme soliton dissipatif à un soliton voyageant dans une cavité laser, car cette impulsion subit des pertes et du gain le forçant à se réajuster constamment afin de respecter la contrainte solitonique. Pour ainsi ajuster sa forme à chaque tour, celui-ci transfère une partie de son énergie à des ondes dispersives lors de son amplification dans le milieu de gain. La constante de propagation de ces ondes dispersives  $k_{OD}$  est donnée par la relation suivante [62] :

$$k_{OD} = -\frac{\beta_2}{2}\Delta\omega^2, \quad (20)$$

où  $\Delta\omega$  est la différence de fréquence entre l'onde dispersive et la fréquence centrale du soliton. Or, pour que ces ondes dispersives puissent subsister dans la cavité, celles-ci doivent être en accord de phase avec le soliton voyageant dans la cavité. La condition d'accord de phase est donnée par :

$$(k_s - k_{OD})L_c = 2\pi m, \quad (21)$$

où  $k_s = |\beta_2|/(2T_0^2)$  est la constante de propagation du soliton,  $m$  est un entier et  $L_c$  est la longueur de la cavité. En utilisant les relations pour  $k_s$ ,  $k_{OD}$  dans la condition d'accord de phase, on obtient que la différence entre la fréquence centrale du soliton  $f_c$  et celles des ondes dispersives  $f_{OD}$  doit respecter la condition suivante :

$$f_c - f_{OD} = \pm \sqrt{\frac{m}{\pi|B_2|} - \frac{1}{4\pi^2 T_0^2}}, \quad (22)$$

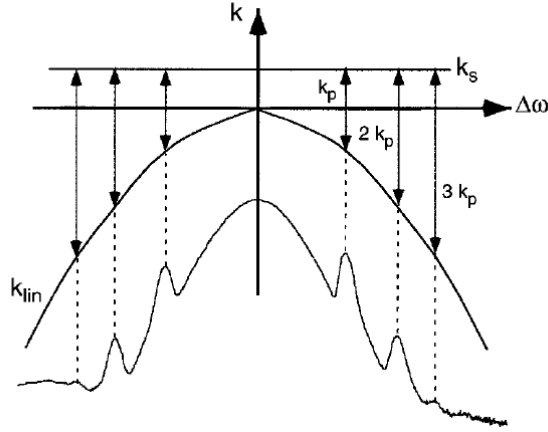


FIGURE I.11 – Illustration d’un spectre typique provenant d’un laser à solitons avec représentation de la condition d’accord de phase pour la génération de résonances de Kelly. Tirée de [62].

où  $B_2 = \beta_2 L_c$  est la dispersion globale de la cavité. Les ondes dispersives respectant cette condition d’accord de phase portent le nom de résonances de Kelly [63]. Comme illustré à la figure I.11, on les retrouve de part et d’autre du centre du spectre du soliton.

Ces ondes dispersives sont l’un des principaux facteurs limitant l’énergie des solitons formés dans la cavité. En 2005, Tang et al. ont découvert l’origine de l’instabilité du soliton fondamental et de la formation d’impulsions multiples dans la cavité lorsqu’on augmente le gain dans ce type de laser [64]. En augmentant le gain, le transfert d’énergie vers les ondes dispersives devient plus important jusqu’à ce qu’un deuxième soliton se forme de ces ondes dispersives par instabilité de modulation. Les énergies des solitons alors formés tendent à s’égaliser en conséquence naturelle à leur compétition pour le gain dans la cavité. C’est ce qu’on nomme la quantification de l’énergie des solitons. Il est possible de placer un filtre dans la cavité pour minimiser la formation de ces résonances spectrales, mais l’amélioration des performances de sortie est minime [65]. En fait, un autre facteur important limite l’énergie des impulsions générées. L’inversion de l’effet d’absorption saturable tend à créer des pertes au centre de l’impulsion lorsque sa puissance crête est trop importante. Il y a alors séparation de l’impulsion en deux impulsions de plus faible énergie et puissance crête. Ces facteurs limitatifs sont également présents dans les lasers incluant des absorbants saturables réels comme les SESAM. D’autres mécanismes présents dans les absorbants saturables réels, comme l’absorption à deux photons, peuvent également être limitatifs [66].

À noter que plusieurs autres schémas de cavité permettent la génération d’impulsions possédant des énergies jusqu’à 100 fois plus élevées que celles d’un laser à solitons. Les principaux schémas sont le laser à impulsions étirées [67], le laser à similaritons passifs [68], les lasers à



solitons dissipatifs [69], le laser à similaritons amplificateurs [70] et les oscillateurs Mamishev [71]. Ces schémas exploitent généralement l'utilisation de fibres à dispersion normale dans la cavité. Dans l'infrarouge moyen, les lasers actuels à base de fibre optique opèrent en régime de dispersion anormale uniquement. Les lasers présentés dans cette thèse seront ainsi uniquement des lasers à solitons. Des idées de schémas permettant d'opérer en régime de dispersion normale seront exposées en ouverture pour la suite du projet, puisqu'ils constituent une étape future à l'amélioration des performances de ces lasers.

D'un point de vue pratique, le caractère auto démarrant des lasers à synchronisation modale passive est un aspect très important. Un laser auto démarrant ne nécessite aucun déclencheur pour la génération d'impulsions brèves, qui fait généralement office de mélangeur de modes par vibration d'un élément ou par élongation rapide de la fibre. Toutefois, l'auto démarrage dans les lasers à synchronisation modale passive avec absorbant saturable rapide s'avère être difficile. L'absorbant saturable rapide est souvent trop peu efficace pour des impulsions longues et peu intenses. La sélection des modulations plus intenses provenant du bruit est donc très faible, ce qui nuit à l'émergence d'impulsions. Le principal mécanisme nuisant à l'auto démarrage de ces lasers est la présence de réflexions parasites dans la cavité. Ces réflexions indésirables créent un effet étalon qui génère des modes parasites de fréquences inégalement espacées. Ces effets étalons s'opposent au rôle de l'absorbant saturable qui tente de synchroniser les modes de la pleine cavité [52]. En général, les cavités en anneau sont plus susceptibles d'être auto démarrantes, car l'utilisation d'un isolateur limite l'effet des réflexions parasites [72].

## I.4 État de l'art des lasers à impulsions ultrabrèves dans l'infrarouge moyen

Ayant maintenant fait un survol des méthodes et concepts permettant la génération d'impulsions ultrabrèves dans les lasers à fibre, cette section propose un survol de l'état de l'art des lasers ou systèmes laser émettant des impulsions ultrabrèves dans l'infrarouge moyen.

### I.4.1 Lasers Cr : ZnS et Cr : ZnSe

Jusqu'à très récemment, la génération directe d'impulsions ultrabrèves au-delà de  $2 \mu\text{m}$  reposait uniquement sur l'utilisation de lasers à l'état solide. Les milieux de gain employés dans ce type de laser sont des cristaux de chalcogénure comme le ZnS et le ZnSe dopés aux métaux de transition tels le chrome ou le fer afin de permettre l'émission laser entre 2 et  $5 \mu\text{m}$  [73]. Les cristaux de chalcogénure peuvent être de nature monocristalline ou polycristalline (céramiques). Ces cristaux de grande qualité optique sont généralement fabriqués au moyen de méthodes physiques ou chimiques de transport à l'état vapeur (*Physical vapor transport* ou *chemical vapor transport*) [74]. Le chrome est ensuite introduit par diffusion thermique d'une source métallique, ce qui permet de contrôler précisément la concentration de dopant dans le

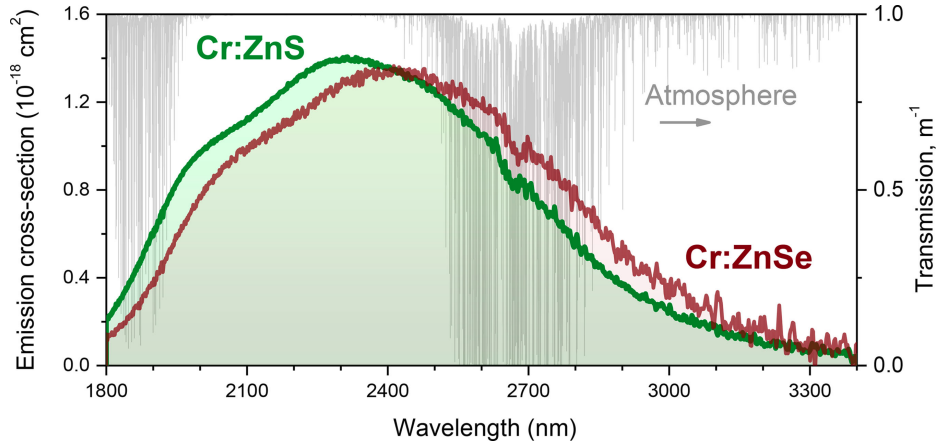


FIGURE I.12 – Sections efficaces d’émission de cristaux de  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$  et de  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnS}$  et transmission de l’atmosphère en condition normale sur 1 m. Tirée de [73].

cristal [75]. Les milieux de gain en  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$  et  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnS}$  sont généralement pompés par des diodes laser ou des lasers à fibre optique dans la région de 1.6 à 1.9  $\mu\text{m}$ . La figure I.12 présente les sections efficaces d’émission de ces cristaux. Leur très large bande d’émission spectrale est non seulement très intéressante pour le développement de lasers accordables s’étalant sur la bande 1.8 à 3.3  $\mu\text{m}$  [76]; cet attribut est important pour le développement de lasers à impulsions ayant des durées de quelques cycles optiques seulement.

Plusieurs techniques de génération d’impulsions ultrabrèves dans ce type de laser ont été utilisées. Le principe de synchronisation modale active avec l’utilisation de modulateur en amplitude a permis la génération d’impulsions de dizaines de picosecondes [77]. Puis, s’en est suivi l’utilisation de SESAM pour la génération d’impulsions de durée avoisinant la picoseconde [78]. Afin d’opérer ces lasers en régime femtoseconde, des compensateurs de dispersion ont dû être intégrés dans l’oscillateur. Comme les cristaux de  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$  possèdent une dispersion normale aux environs de 2.4  $\mu\text{m}$  et que la majorité des matériaux ont une dispersion anormale, il est possible d’utiliser des blocs de matériaux simples comme le saphir afin de compenser la dispersion intracavité. Un schéma typique de ce type de laser est présenté à la figure I.13. Des impulsions de durée  $\sim 100$  fs ont été obtenues à partir de ce laser. Cette démonstration prouve que l’utilisation d’un SESAM avec un temps de réponse  $> 100$  ps ne limite pas la durée des impulsions générées. L’utilisation de miroirs chirpés pour compenser la dispersion d’ordre 3 a également été démontrée, mais sans réduction significative de la durée des impulsions ( $\sim 80$  fs). L’utilisation de graphène en remplacement au SESAM a considérablement réduit la durée minimale des impulsions générées à 41 fs, soit l’équivalent de 5 cycles optiques à ces longueurs d’onde [79]. Comme décrit dans la section précédente, le caractère large bande de l’absorption saturable dans le graphène aide à la formation d’impulsions de très courte durée. Il y a toutefois un risque d’endommager l’absorbant saturable après une opération prolongée ou à grande puissance. Des impulsions de 61 fs ont également été obtenues en

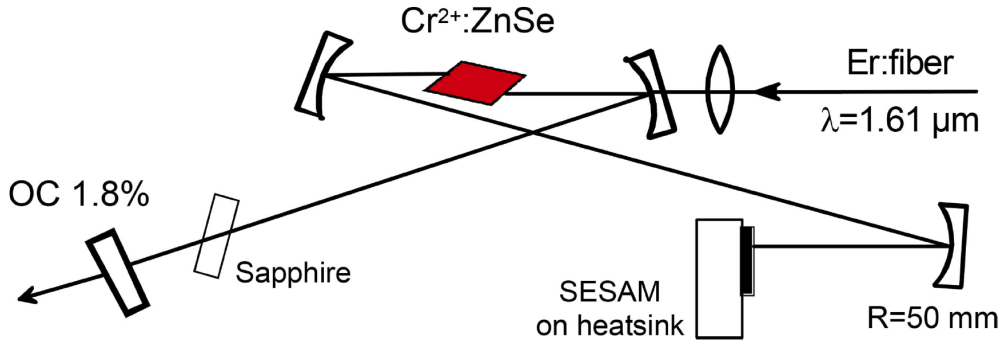


FIGURE I.13 – Schéma typique d’un oscillateur femtoseconde à base de  $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$  utilisant un SESAM comme absorbant saturable et un bloc de saphir comme compensateur de dispersion intracavité. Tirée de [73].

plaçant un absorbant saturable à base de nanotubes de carbone dans la cavité [79]. Dans ces démonstrations, l’énergie des impulsions générées est limitée à quelques nanojoules. Comme attendu, de meilleures performances sont obtenues en opérant le laser en régime de dispersion normale, avec des énergies par impulsion de l’ordre de 15 nJ.

Malgré les progrès faramineux réalisés entre autres par les équipes de Irina T. Sorokina et Evgeni Sorokin, l’opération de ce type de laser est généralement limitée à des longueurs d’onde centrales inférieures à  $3 \mu\text{m}$  alors que la bande spectrale d’intérêt pour la majorité des applications se situe au-delà de  $2.7 \mu\text{m}$ . L’utilisation de lasers à fibre à l’erbium émettant à  $1.6 \mu\text{m}$  comme pompe complexifie également le laser en plus de limiter grandement son efficacité énergétique. Finalement, comme tout autre type de laser à l’état solide, un alignement précis du laser est nécessaire afin d’assurer une opération en régime femtoseconde.

#### I.4.2 Systèmes de conversion non linéaire

La génération directe d’impulsions femtoseconde dans l’infrarouge moyen s’avère être un défi de taille. Comme ce type de laser est une technologie relativement mature dans le proche infrarouge, la conversion non linéaire de ces sources vers l’infrarouge moyen est un moyen de plus en plus populaire. Les techniques de conversion non linéaire les plus utilisées sont schématisées à la figure I.14. Celles-ci sont principalement basées sur l’emploi d’un cristal non linéaire de type  $\chi^{(2)}$  et impliquent un transfert d’énergie entre trois signaux.

Pour la différence de fréquences (DFG), on utilise en général deux signaux issus du même oscillateur, l’un étant décalé en fréquence par rapport à l’autre par conversion non linéaire. En utilisant le même oscillateur, la DFG permet d’annuler les variations aléatoires de la  $f_{CEO}$  (*carrier-envelope frequency offset*) par accord de phase en les signaux  $\omega_1$  et  $\omega_2$  dans le cristal [80]. Les impulsions générées dans l’IM sont ainsi intrinsèquement stabilisées en *CEO*. Des

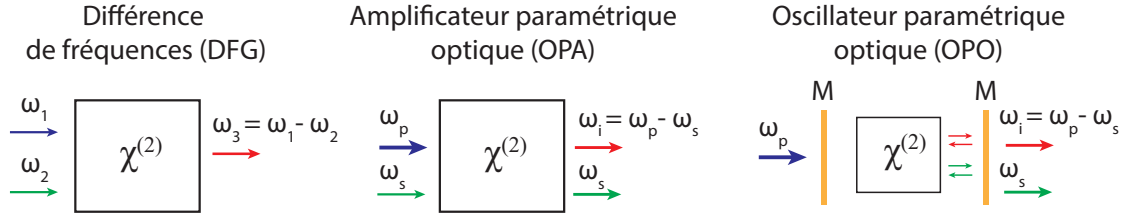


FIGURE I.14 – Techniques de conversion non linéaire dans l’infrarouge moyen

impulsions de quelques cycles optiques (entre 40 et 100 fs) accordables entre 3 et 4.5  $\mu\text{m}$  ont été obtenues par DFG [81; 82]. La fréquence centrale des impulsions générées est contrôlée en modifiant la condition d’accord de phase dans le cristal ou en variant la fréquence centrale d’un des signaux incidents sur le cristal.

Un amplificateur paramétrique optique (OPA) est très semblable au principe de DFG à la différence que l’un des faisceaux, le faisceau *pompe* de fréquence centrale  $\omega_p$ , transfère son énergie au faisceau *signal* de fréquence centrale  $\omega_s < \omega_p$ . Cette conversion implique la création d’un second signal de fréquence  $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ , qu’on définit comme l’onde complémentaire (*idler* en anglais). En ajustant correctement la fréquence des faisceaux incidents, il est donc possible de générer l’onde complémentaire dans l’IM [83]. L’utilisation d’un oscillateur paramétrique optique (OPO) est très semblable à l’OPA, à la différence que le cristal non linéaire est placé dans une cavité résonante pour le signal et l’*idler*. Il est donc possible d’obtenir des efficacités de conversion plus importantes aux dépens d’un contrôle critique de l’alignement, de la dispersion [84] et de la longueur de la cavité.

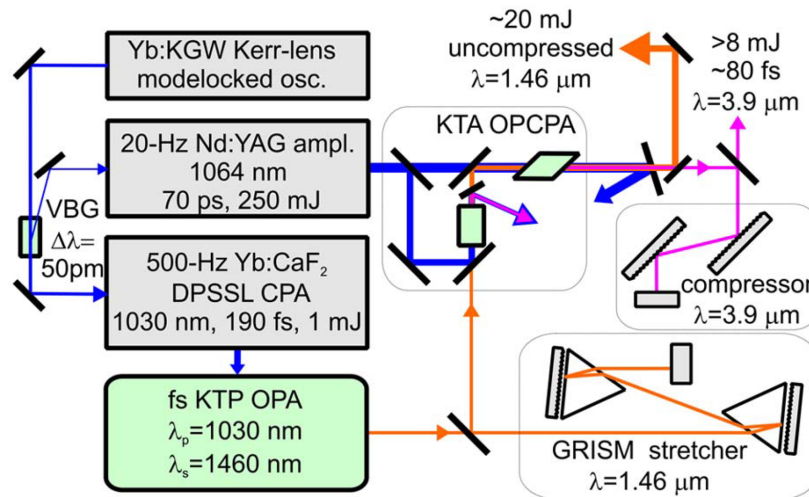


FIGURE I.15 – Exemple d’un système laser ultrarapide émettant dans l’infrarouge moyen basé sur l’utilisation d’un OPCPA. Tirée de [85]

En général, on utilise ces techniques d'amplification paramétrique en cascade dans un même système pour générer la longueur d'onde désirée dans l'IM. Afin d'obtenir des impulsions de très grande énergie ( $> 1 \mu\text{J}$ ), on combine ces techniques avec une amplification d'impulsions préalablement étirées dans le domaine temporel (*Chirped pulse amplification*). Dans ce cas, on parle de OPCPA (*Optical parametric chirped pulse amplification*). Un exemple de ce type de système est présenté à la figure I.15. Malgré la possibilité de générer des impulsions accordables dont la durée est sous la centaine de femtosecondes avec des énergies de plusieurs millijoules et des puissances crêtes de l'ordre des gigawatts [85], la complexité extrême de ces systèmes limite leur utilisation aux laboratoires de recherche très spécialisés.

### I.4.3 Les lasers à cascade quantique

Développés il y a déjà plus de 20 ans par le groupe de Frédéric Capasso à Bell Labs [86], les lasers à cascade quantique sont rapidement devenus des sources de choix dans l'infrarouge moyen. Communément appelés QCLs, ils sont constitués d'un empilement de couches minces semi-conductrices ayant différentes compositions, créant ce qu'on nomme des super-réseaux (*superlattice* en anglais). Ces couches forment alors des puits quantiques dont l'épaisseur est si petite qu'ils affectent la structure de bande des semi-conducteurs. Ces puits quantiques créent des bandes intermédiaires discrètes dont la différence d'énergie est directement dépendante de l'épaisseur des couches. La différence de principe entre un laser à semi-conducteur et un laser à cascade quantique est schématisée à la figure I.16. Dans un QCL, seuls les électrons sont impliqués dans la transition laser (bande de conduction). En appliquant une tension sur le dispositif, les électrons générés dans la bande de conduction subissent une transition radiative de relativement basse énergie dans un des puits de potentiel pour ensuite passer au puits de potentiel adjacent par effet tunnel. Ce processus est cascadié à travers plusieurs bandes intermédiaires, d'où le terme "cascade quantique". Les photons générés sont donc de plus faible énergie que ceux obtenus dans des semi-conducteurs, correspondant à des longueurs d'onde de 3.5 à 100  $\mu\text{m}$  [87; 88]. Comme la structure des bandes intermédiaires est strictement dépendante de l'épaisseur des couches, les QCLs sont très polyvalents en termes de longueur d'onde d'émission. Leur émission à plus faible longueur d'onde ( $\lambda < 3.5 \mu\text{m}$ ) est cependant très difficile, puisqu'elle approche la limite théorique d'épaisseur pouvant être atteinte par épitaxie par jet moléculaire. On a alors recours aux lasers à cascade interbande (ICLs), qui fonctionnent sur un principe cascadié semblable, mais cette fois en faisant intervenir la bande de valence comme niveau inférieur de la transition radiative. Les ICLs peuvent émettre de 2.9 à 5.7  $\mu\text{m}$  à la température de la pièce [89].

Étant très compacts et simples d'opération, les QCLs et ICLs ont un avenir prometteur dans l'infrarouge moyen. Il reste cependant énormément de travail à faire pour la génération d'impulsions ultrabrèves de grande énergie. D'une part, les temps de relaxation des niveaux d'énergie intermédiaires ( $\sim 1\text{-}10 \text{ ps}$ ) sont plus courts que le temps d'un aller-retour dans la cavité laser,

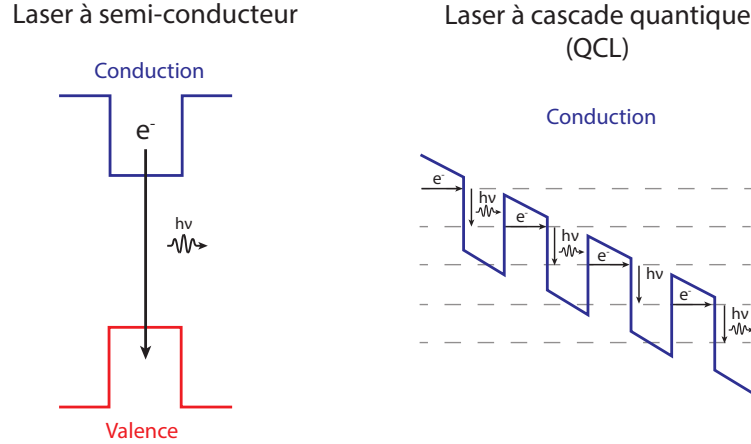


FIGURE I.16 – Comparaison simplifiée du principe d’émission laser dans un laser à semi-conducteur et dans un laser à cascade quantique.

ce qui mène à la formation de plusieurs impulsions. D’autre part, avec des temps de vie si courts, la saturation du gain se produit de façon quasi instantanée le long de l’impulsion. Les ailes de l’impulsion subissent alors plus de gain que la partie centrale plus intense, ce qui inhibe la formation d’impulsions de grande intensité [90]. Récemment, des techniques de modulation du courant dans des QCLs émettant dans les térahertz ont permis la génération d’impulsions de  $\sim 11$  ps [91]. Dû à un plus long temps de relaxation interbande, les ICLs sont plus propices à une opération en régime de synchronisation modale. Bagheri et al. [92] ont démontré un ICL basé sur le principe de synchronisation modale passive pour la génération d’un peigne de fréquences dans l’IM. Le laser est séparé en deux éléments, le premier élément est un ICL qui agit comme milieu de gain alors que le deuxième élément est une structure interbande semblable au ICL, mais avec une tension inversée, qui agit comme absorbant saturable. Quoique la génération d’impulsion de durée  $\sim 750$  fs ait été démontrée, les puissances issues de ce type de laser demeurent extrêmement faibles ( $\sim 1$  mW). D’ailleurs, l’un des défis de taille est d’augmenter la tolérance en puissance de ce type de source, car leur structure en super-réseau et donc leur longueur d’onde d’émission est très sensible aux variations en température.

#### I.4.4 Les lasers à fibre optique

Outre le laser titane-saphir, les sources ultrarapides les plus exploitées à ce jour dans le proche infrarouge sont les lasers à base de fibre optique. La propagation guidée dans une fibre optique leur procure de nombreux avantages par rapport aux lasers à l’état solide et aux lasers semi-conducteurs. Ces sources sont insensibles aux désalignements et peuvent opérer à de très grandes puissances grâce à une dissipation très efficace de la chaleur. La possibilité de doper les fibres optiques avec des ions de terres rares ( $\text{Er}^{3+}$ ,  $\text{Yb}^{3+}$ ,  $\text{Ho}^{3+}$ ,  $\text{Tm}^{3+}$ ,  $\text{Dy}^{3+}$ ,  $\text{Pr}^{3+}$ , etc.) en fait des milieux de gain très efficaces pouvant facilement être pompés en utilisant des diodes

laser standards. L'utilisation de fibres monomodes assure également une excellente qualité de faisceau ( $M^2 < 1.2$ ) tout en procurant un grand confinement du signal. Les cavités fibrées sont donc très efficaces pour l'exploitation de processus non linéaires. Comme discuté dans les sections précédentes, les effets non linéaires dans les fibres peuvent être utilisés pour générer des impulsions de très courte durée à même l'oscillateur.

Or, avant le début de cette thèse, les lasers à fibre émettant des impulsions femtoseconde étaient restreints à une opération dans le proche infrarouge ( $1 < \lambda < 2 \mu\text{m}$ ). Cette restriction est liée à l'utilisation de fibres optiques à base de silice ( $\text{SiO}_2$ ), une technologie mature qui a été grandement développée pour les télécommunications optiques. Grâce à cette technologie, la plupart des composants essentiels à un laser (coupleur de pompe, isolateur, polariseur, coupleur de sortie, etc.) ont été miniaturisés, encapsulés et joints à des fibres optiques. Ces composants sont reliés entre eux en fusionnant leurs extrémités fibrées, ce qui facilite grandement la fabrication d'un laser tout-fibre. Or, les fibres de silice possèdent une énergie de phonon élevée ( $1100 \text{ cm}^{-1}$ ), ce qui les rend opaques dans l'infrarouge moyen (limite supérieure de transmission à  $\lambda_{max} \sim 2.2 \mu\text{m}$ ).

L'émission laser dans l'infrarouge moyen requiert l'utilisation de fibres à base de verres exotiques qui ont une faible énergie de phonon. Grâce à leur énergie de phonon très faible ( $< 400 \text{ cm}^{-1}$ ) et leur transparence s'étalant jusqu'à  $15 \mu\text{m}$ , les verres à base de chalcogénures (l'arsenic, le soufre, le sélénium, etc.) sont de très bons candidats pour la transmission de signaux dans l'IM. Leur principal défaut est qu'ils sont constitués de liens covalents très forts, ce qui rend l'incorporation de dopants pour l'émission laser extrêmement difficile. Malgré les quelques démonstrations récentes de fluorescence dans la bande  $4 - 5.5 \mu\text{m}$  [93; 94] avec des fibres à base d'ions  $\text{Tb}^{3+}$  ou  $\text{Pr}^{3+}$ , la démonstration de laser utilisant ce type de fibre tarde encore. Ces fibres très fragiles possèdent également des pertes très élevées ( $> 1 \text{ dB/m}$ ) et un seuil de dommage très bas. Les fibres de tellurites dopées en ions de terres rares sont également une option prometteuse, mais la difficulté à purifier ces verres pour en diminuer la concentration d'ions  $\text{OH}^-$  est un défi majeur [95].

Depuis leur découverte dans les années 70, les fibres optiques à base de verre fluoré ont atteint un niveau de maturité suffisant pour devenir des milieux amplificateurs très efficaces dans l'infrarouge moyen. Grâce à une énergie de phonon relativement faible ( $565 \text{ cm}^{-1}$ ), ces fibres peuvent transmettre jusqu'à  $\sim 5 \mu\text{m}$  selon leur composition. La composition en verre fluoré la plus connue est celle du ZBLAN (53 % mol. de  $\text{ZrF}_4$ , 20 % mol. de  $\text{BaF}_2$ , 4% mol. de  $\text{LaF}_3$ , 3% mol. de  $\text{AlF}_3$  et 20% mol. de  $\text{NaF}$ ). Cette composition peut être obtenue avec une très grande pureté (faible concentration d'ions  $\text{OH}^-$ ), d'où la possibilité d'obtenir des pertes de fond très faibles ( $\sim 1 \text{ dB/km}$ ) dans l'infrarouge. Les fibres de fluorozirconate possèdent également une grande solubilité aux ions de terres rares pour l'exploitation de transitions laser efficaces dans l'IM. La figure I.17 présente les principales transitions lasers dans l'IM exploitées jusqu'à présent selon le type de dopant et le schéma de pompage utilisé [96]. Grâce

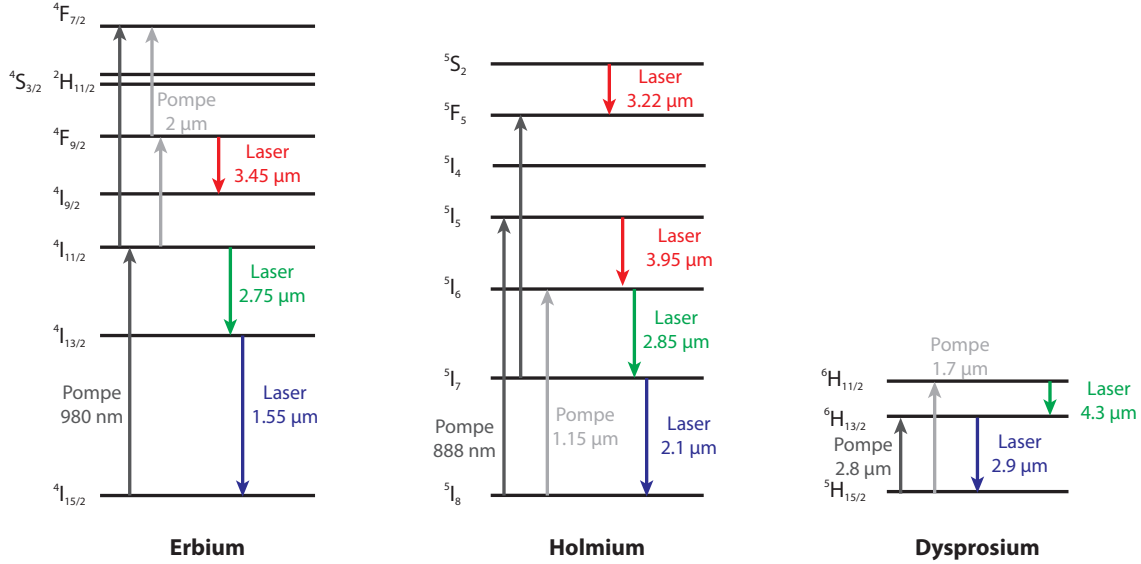


FIGURE I.17 – Niveaux d’énergie des principaux dopants utilisés dans les fibres à base de verre fluoré. Les principales transitions laser ainsi que les schémas de pompage utilisés sont représentés par les flèches. La figure est adaptée de [96]

à de nombreux transferts d’énergie non radiatifs entre les ions et de processus de conversion à partir de niveaux excités, il est possible d’induire différentes transitions laser avec un même ion. Jusqu’à présent, on utilise principalement les ions erbium, holmium et dysprosium pour obtenir une émission stimulée au-delà de 2.5  $\mu\text{m}$ . La transition laser dans l’IM la plus exploitée est celle de l’erbium à 2.8  $\mu\text{m}$ . Tous les lasers et amplificateurs présentés dans cette thèse reposent sur cette transition. Les sections efficaces d’absorption et d’émission ainsi que la dynamique entre les niveaux excités  $^4I_{11/2}$  et  $^4I_{13/2}$  de l’erbium sont présentées en détail au chapitre 4. Les lasers en régime continu basés sur les fibres de fluorozirconate dopées à l’erbium peuvent maintenant émettre plus de 40 W de puissance moyenne avec une efficacité optique globale de plus de 20 % [97]. D’autres transitions laser près de 4  $\mu\text{m}$  dans des fibres de verre fluoré à base d’indium ( $\text{InF}_3$ ) dopées à l’holmium [98] et au dysprosium [99] ont été récemment démontrées. D’ailleurs, la plupart des techniques utilisées dans cette thèse pourront être directement adaptées à ces nouvelles transitions.

Depuis déjà quelques années, plusieurs groupes de recherche se sont intéressés au développement de sources à impulsions ultrabrèves à partir de la transition à 2.8  $\mu\text{m}$  dans les fibres de fluorozirconate dopées à l’erbium. Le tableau I.1 résume les performances des lasers à fibre à synchronisation modale passive démontrés jusqu’à présent dans la littérature, en incluant les résultats présentés dans cette thèse.

La majorité de ces réalisations repose sur la présence d’absorbants saturables réels dans une cavité linéaire. Les cavités en anneau utilisant la rotation non linéaire de la polarisation (NPE)



Références	Cavité	Dopant	Absorbant saturable	Durée des impulsions	Puissance crête
Haboucha et al. 2014 [100]	Linéaire	Er <sup>3+</sup>	SESAM	60 ps	120 W
Hu et al. 2014 [101]	Anneau	Ho <sup>3+</sup> -Pr <sup>3+</sup>	SESAT	6 ps	465 W
Qin et al. 2016 [102]	Linéaire	Er <sup>3+</sup>	Phosphore noir	42 ps	613 W
Tang et al. 2015 [103]	Linéaire	Er <sup>3+</sup>	SESAM	25 ps	1.86 kW
Duval et al. 2015 [104]	Anneau	Er <sup>3+</sup>	NPE	207 fs	3.5 kW
Hu et al. 2015 [105]	Anneau	Er <sup>3+</sup>	NPE	497 fs	6 kW
Zhu et al. 2016 [106]	Linéaire	Er <sup>3+</sup>	Graphène	42 ps	17 W
Duval et al. 2016 [107]	Anneau	Er <sup>3+</sup>	NPE	270 fs	23 kW
Antipov et al. 2016 [108]	Anneau	Ho <sup>3+</sup> -Pr <sup>3+</sup>	NPE	180 fs	37 kW

TABLE I.1 – Résumé des lasers à fibre à synchronisation modale passive aux environs de 3  $\mu\text{m}$

constituent le sujet de cette thèse et seront détaillées dans les prochains chapitres. La figure I.18 présente un schéma simplifié d'une cavité linéaire à 2.8  $\mu\text{m}$  typiquement utilisée dans l'art antérieur pour la génération d'impulsions ultrabrèves. Du côté d'injection de la pompe, on retrouve un réflecteur partiel qui peut être un réseau de Bragg directement inscrit dans la fibre optique ou simplement un miroir semi-réfléchissant. On place l'absorbant saturable à l'autre extrémité, soit en le collant sur le bout de la fibre, soit en utilisant un système d'imagerie à deux lentilles pour davantage de contrôle de l'intensité du signal sur l'AS. Comme démontré au bas de cette figure, ce type de laser possède différents modes d'opération en fonction de l'intensité du signal. En général, pour une position fixe de l'AS, le mode d'opération dépend de la puissance de pompe incidente. Comme discuté à la sous-section I.2.2, l'apparition des différents modes d'opération dépend fortement des propriétés de l'AS. Avant l'apparition du régime de synchronisation modale pur (ML), on observe généralement un régime mixte de commutation du gain avec synchronisation modale sous l'enveloppe (*Q-switched mode-locking* ou QS ML). En général, ce régime apparaît au seuil laser de la cavité, mais il est également possible d'observer un mode d'opération en continu (CW) si le seuil laser est largement inférieur à l'intensité de saturation de l'AS. Les instabilités QS-ML proviennent du fait qu'à basse puissance pompe, les pertes dans la cavité sont trop élevées pour obtenir une synchronisation modale en régime continu. Le laser est donc modulé par une enveloppe de quelques dizaines voir centaines de nanosecondes. Bien que ce mode d'opération puisse être relativement stable, il est en général indésirable et nuit à l'obtention d'un régime de synchronisation modale pur. Honninger et al. [109] ont établi un critère de stabilité pour éviter l'opération en régime QS-ML :

$$NE_p^2 > E_{sat,L}E_{sat,AS}\Delta R, \quad (23)$$

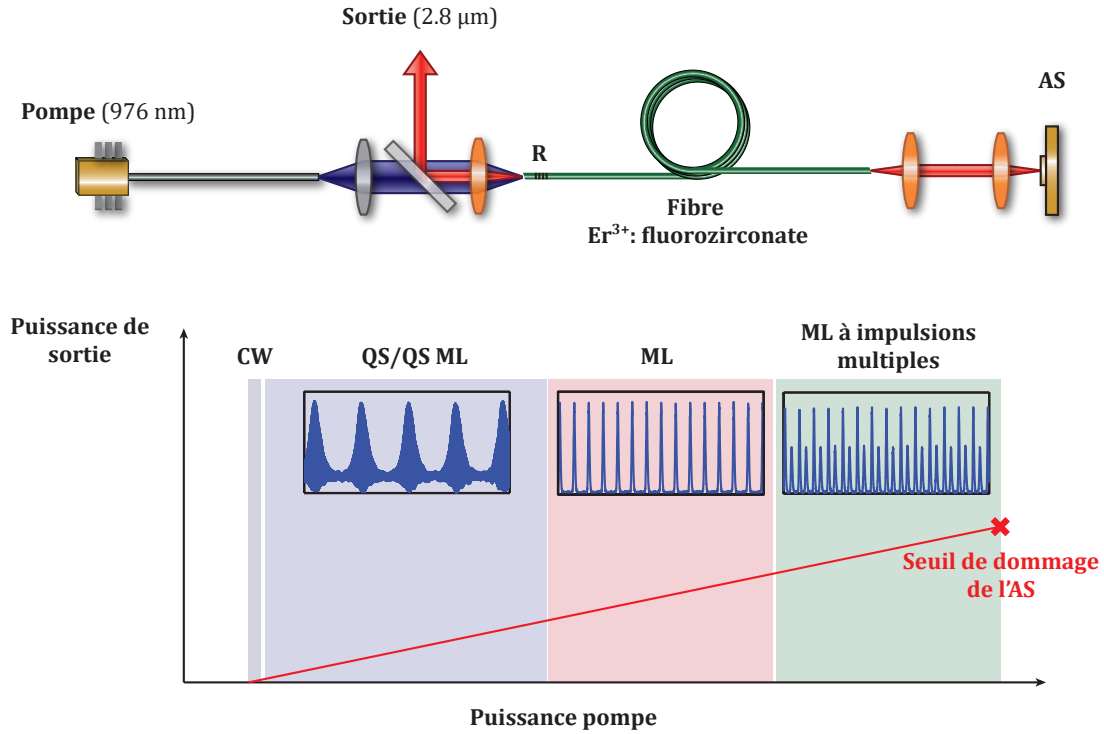


FIGURE I.18 – Schéma de cavité linéaire typique à  $2.8 \mu\text{m}$  permettant la génération d'impulsions ultrabrèves.

où  $N$  est le nombre d'impulsions dans la cavité,  $E_p$  est l'énergie par impulsion,  $E_{sat,L} = F_{sat,L}A_{eff,L}$  est l'énergie de saturation du milieu de gain,  $E_{sat,AS} = F_{sat,AS}A_{eff,L}$  est l'énergie de saturation de l'absorbant saturable et  $\Delta R$  est la profondeur de modulation de l'absorbant saturable.  $F_{sat}$  et  $A_{eff}$  représente la fluence de saturation et l'aire effective du faisceau incident sur l'AS. Lorsqu'une impulsion est générée par l'absorbant saturable, mais que son énergie n'est pas assez importante pour saturer le gain, celle-ci va croître exponentiellement jusqu'à la saturation du gain. Une énergie de saturation trop importante du gain causera ainsi une enveloppe modulant les impulsions ultrabrèves, c'est-à-dire une opération en mode QS-ML. Comme décrit ci-dessus, plus la profondeur de modulation et l'énergie de saturation de l'AS sont élevées, plus le seuil de synchronisation modale sera élevé. De l'équation (23), on remarque que le nombre d'impulsions dans la cavité diminue la tendance du laser à opérer en régime d'instabilité QS-ML.

Lorsque l'intensité des impulsions générées en régime de synchronisation modale devient beaucoup plus importante que l'énergie de saturation de l'absorbant, le laser favorise une opération à impulsions multiples. Vu que la largeur de bande du gain est limitée et que la transmission dans l'absorbant saturable hautement "saturé" n'est plus fonction de l'intensité de l'impulsion, les impulsions très brèves et intenses ne peuvent continuer à croître dans la cavité. La

cavité favorisera plutôt la génération de plusieurs impulsions de plus faible intensité et de plus grande durée (spectre plus étroit). Puisque les absorbants saturables réels sont généralement très minces ( $< 1 \mu\text{m}$  d'épaisseur), la génération d'un signal de trop grande fluence finira par endommager l'élément. Les instabilités de type "Q-switch" peuvent également endommager l'AS.

Comme démontré au tableau I.1, les lasers utilisant des AS réels démontrés jusqu'à présent sont restreints à des durées d'impulsion de plusieurs picosecondes, ce qui limite les puissances crêtes atteignables à quelques kilowatts au maximum. L'origine de cette limitation en durée et en puissance crête demeure encore mystérieuse. Les faibles seuils de dommage de ces absorbants, la dispersion induite par ces composants, les temps de réponse relativement longs ( $> 10 \text{ ps}$ ) ou l'absorption à deux photons dans ces éléments peuvent en être la cause. À noter que Haboucha et al. [100] ont démontré l'utilisation d'un réseau de Bragg comme réflecteur de sortie. Ce réseau de Bragg possède cependant une largeur de bande relativement étroite, ce qui nuit à la formation d'impulsions de courte durée en causant un filtrage spectral à chaque tour de cavité.

## **I.5 Amplification directe d'impulsions ultrabrèves dans les fibres optiques**

Cette section aborde les principaux mécanismes à inclure afin de bien simuler la propagation d'impulsions brèves dans un amplificateur à fibre optique. Cette théorie est préalable à la lecture de la deuxième partie de cette thèse (Chap. 3 et 4).

Malgré la constante amélioration des schémas de cavité laser à fibre dans les dernières années, l'énergie des impulsions générées à partir d'un oscillateur à fibre est souvent limitée à quelques nanojoules. C'est pourquoi on a généralement recours à des techniques d'amplification externes. Nous nous concentrerons ici sur l'amplification d'impulsions femtoseconde initialement non étirées au moyen d'un amplificateur à fibre optique monomode. Dû à l'utilisation de fibre en dispersion anormale dans l'infrarouge moyen, nous aborderons spécifiquement l'amplification en régime solitonique.

Afin de bien comprendre la dynamique d'amplification d'impulsions ultrabrèves dans les fibres, deux concepts clefs doivent d'abord être abordés : les effets dispersifs et non linéaires.

### **I.5.1 Dispersion**

Une fibre optique est un milieu diélectrique possédant des résonances électroniques dont les propriétés (longueur d'onde centrale, largeur de raie, force de l'oscillateur) dépendent de sa composition. Ces résonances induisent une variation de l'indice de réfraction du matériau en fonction de la longueur d'onde. On représente cette variation d'indice par une relation

analytique dans laquelle les résonances sont approximées par des fonctions lorentziennes. Dans le cas de la silice, on utilise les équations de *Sellmeier* pour estimer l'indice de réfraction du verre loin de ces résonances. En ce qui concerne les verres fluorés, dont la composition est beaucoup plus complexe, on utilise la relation tirée de [110], qui est une adaptation des équations de Sellmeier. Cette relation suppose que la relation de dispersion d'un verre fluoré correspond à la somme des contributions dispersives de chacun de ses constituants :

$$n(\lambda)^2 = 1 + \sum_{i=1}^6 \frac{f_i \lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_i^2}, \quad (24)$$

où  $f_i$  et  $\lambda_i$  sont respectivement la force de l'oscillateur et la longueur d'onde centrale associée aux résonances dans l'ultraviolet ( $i = 1, 2, 3$ ) et dans l'infrarouge ( $i = 4, 5, 6$ ) pour chacun des groupes définis dans cette publication [110]. Si un groupe comprend plusieurs composés, les constantes  $f_i$  et  $\lambda_i$  correspondent à la moyenne pondérée selon les concentrations de chaque composé.

À cette dispersion dite matérielle s'ajoute une dispersion de guidage associée au changement d'indice de réfraction effectif du mode se propageant dans la fibre en fonction de la longueur d'onde. La dispersion de guidage est une conséquence de la variation du confinement du mode se propageant dans la fibre en fonction de sa fréquence. Contrairement à la dispersion matérielle, cette contribution de guidage peut être ajustée en fonction de la géométrie de la fibre utilisée. Néanmoins, les fibres de verre fluoré sont contraintes à opérer en régime de dispersion anormale au-delà de  $\sim 1.7 \mu\text{m}$ , à moins de réduire considérablement le diamètre du coeur. À titre d'exemple, la figure I.19 présente les courbes de dispersion de la vitesse de groupe (GVD) en fonction de la longueur d'onde pour une fibre de fluorozirconate monomode avec une composition standard. En diminuant le rayon du coeur  $a$  et en augmentant l'ouverture numérique  $NA$  de la fibre, il est théoriquement possible de concevoir une fibre optique monomode de dispersion normale à  $2.8 \mu\text{m}$ .

La GVD peut induire d'importantes modifications à l'enveloppe d'une impulsion ultrabrève lors de la propagation, car son étalement spectral est grand. En l'absence d'effets non linéaires, la propagation d'une impulsion dans un milieu dispersif entraîne nécessairement un étalement de ces composantes spectrales et donc un étalement de l'impulsion dans le temps sans toutefois affecter son spectre. Dans le cas d'une dispersion dite normale, les composantes de basse fréquence (rouge) voyagent plus rapidement que les composantes de haute fréquence (bleu). On observe le cas contraire en dispersion anormale. Un étalement temporel des composantes spectrales implique que la fréquence instantanée diffère le long de l'impulsion. On utilise couramment le terme *chirp* pour représenter cette variation de fréquence instantanée.

La dispersion de la vitesse de groupe est définie comme la dérivée seconde de la constante de

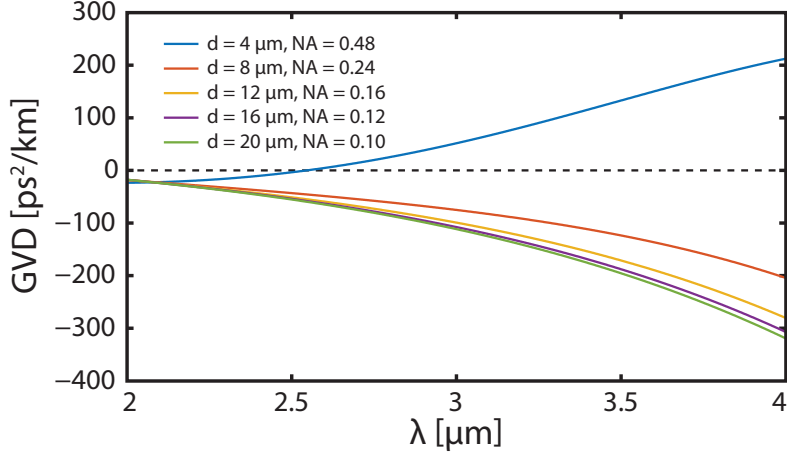


FIGURE I.19 – Courbe de dispersion de la vitesse de groupe (GVD) d’une fibre optique de fluorozirconate monomode en fonction de la longueur d’onde pour différents diamètres de coeur et différentes ouvertures numériques (longueur d’onde de coupure constante à  $2.5 \mu\text{m}$ ).

propagation  $\beta(\omega)$  à la fréquence porteuse  $\omega_0$  du signal dans la fibre optique :

$$\text{GVD} = \beta_2 = \left. \frac{\partial^2 \beta(\omega)}{\partial \omega^2} \right|_{\omega=\omega_0}. \quad (25)$$

De façon générale, il est possible de considérer tous les effets dispersifs d’ordre supérieur en estimant la constante de propagation au moyen d’une série de Taylor autour de la fréquence centrale [111] ou plus simplement en prenant directement la courbe de  $\beta(\omega)$ , comme présenté au chapitre 4. Ces effets d’ordre supérieur sont d’une grande importance pour considérer la variation de la GVD en fréquence dans le cas de signaux dont le spectre est très étalé, comme dans les résultats présentés dans cette thèse.

### I.5.2 Auto modulation de phase

Les effets non linéaires jouent également un rôle primordial dans la propagation d’impulsions ultrabrèves dans les fibres optiques. Lorsqu’un champ électrique intense se propage dans une fibre optique, celui-ci induit un mouvement anharmonique des électrons. Ce mouvement devient ainsi proportionnel aux puissances du champ électrique, d’où le terme non linéaire. La réponse du milieu (ou polarisation électrique  $\mathbf{P}$ ) face à ce champ intense  $\mathbf{E}$  est exprimée par :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \left( \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \right). \quad (26)$$

Dans les milieux centrosymétriques comme les fibres optiques, la contribution en  $\chi^{(2)}$  est nulle. La contribution non linéaire est donc principalement associée au terme de susceptibilité

d'ordre 3, soit  $\chi^{(3)}$ . Cette réponse non linéaire possède une composante électronique quasi instantanée ( $< 1$  fs) [48] et une composante non instantanée ( $> 10$  fs) reliée à l'interaction de l'onde avec les phonons dans le matériau. La composante instantanée crée un effet d'auto modulation de phase (*Self-phase modulation* ou SPM en anglais). En l'absence d'effet dispersif, le milieu non linéaire induit un changement de phase dépendant de l'intensité qui varie le long de l'impulsion sans modifier sa forme temporelle. Ce changement de phase induit donc une variation de la fréquence instantanée dans l'impulsion, ce qui mène à la création de nouvelles fréquences. En présence de SPM uniquement, une impulsion subit ainsi un étalement spectral. Dans le cas extrême où l'impulsion est très courte ( $< 100$  fs) et possède un spectre large, la dépendance spectrale de la SPM doit être considérée. Cette dépendance spectrale cause un auto raidissement de l'impulsion [112]. Comme l'intensité du champ est plus grande dans la partie centrale de l'impulsion, celle-ci subit un retard par rapport à ses ailes, ce qui mène à une distorsion de l'impulsion et à la formation de "choc optique". Dans les fibres optiques, la dépendance spectrale de l'aire effective et de l'indice effectif du mode est la principale cause de cet effet. Lorsque cet effet est présent, on observe également un élargissement spectral asymétrique [112].

### I.5.3 Effet Raman

Un signal intense peut transférer une partie de son énergie à un autre signal de basse fréquence par l'entremise d'une interaction avec les modes de vibration (phonons) du milieu. Ce phénomène découvert en 1928 par Raman et Krishnan a été baptisé l'effet Raman [113]. Le transfert d'énergie du faisceau de pompe vers un faisceau de plus basse fréquence, communément appelé faisceau *Stokes*, crée un battement dans la polarisation non linéaire du milieu, qui correspond à une fréquence de vibration de ce milieu. Ce battement, qui se traduit par l'émission de phonons dans le milieu, stimule davantage le transfert d'énergie entre le faisceau pompe et le faisceau Stokes. Cet effet non-linéaire dépend donc fortement de la structure et des liens moléculaires formant le milieu. La force de ce transfert d'énergie est représentée par le coefficient de gain Raman  $g_R$ . Les courbes de  $g_R$  du faisceau Stokes en fonction de sa fréquence sont représentées à la figure I.20 a) pour un verre de silice et un verre de fluorozirconate. Les mesures de  $g_R$  pour le verre de fluorozirconate ont été mesurées dans le cadre de cette thèse. La méthode pour effectuer la mesure est présentée au chapitre 4. Sur cette figure, on remarque que le profil de  $g_R$  est très différent d'un verre à l'autre et que la valeur maximale du coefficient gain Raman pour un verre de fluorozirconate, situé à 17.4 THz, est légèrement supérieure à celle d'un verre de silice, situé à 13 THz.

Dans le cas d'une impulsion de très courte durée ( $< 1$  ps), le spectre de l'impulsion est suffisamment large pour que les composantes de haute fréquence (bleue) transfèrent leur énergie aux composantes de basse fréquence (rouge) à l'intérieur même de l'impulsion. Ce phénomène cause un auto décalage en fréquence de l'impulsion, schématisé à la figure I.20 b). En régime

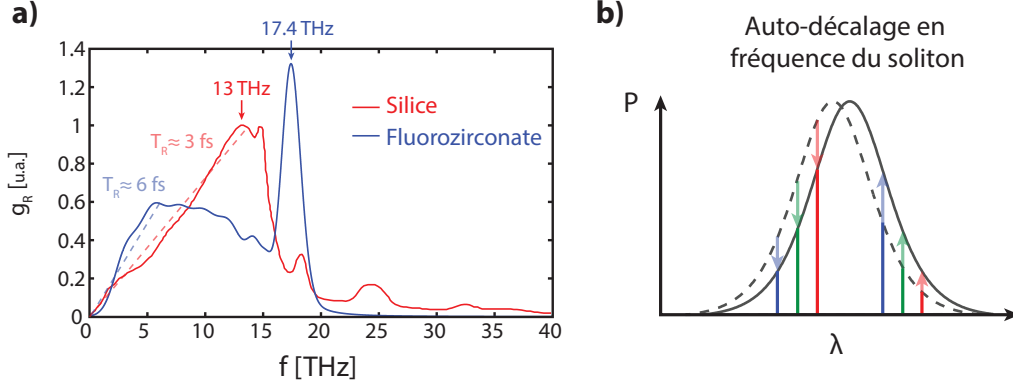


FIGURE I.20 – a) Comparaison entre le coefficient de gain Raman pour des verres de silice et de fluorozirconate. b) Représentation simplifiée de l’auto décalage en fréquence du soliton.

de dispersion anormale, les impulsions formées sont des solitons et cet effet d’auto décalage peut être très efficace. On parle alors de "soliton self-frequency shift". Ce décalage spectral peut être estimé en fonction des paramètres du soliton et de la fibre optique selon la relation suivante [114; 112] :

$$\Delta\lambda(z) = -\frac{\lambda_0^2}{c}\Delta f(z) \approx \frac{4\lambda_0^2 T_R |\beta_2| z}{15\pi T_0^4 c} = \frac{4T_R (\gamma P_0)^2 z}{15\pi |\beta_2| c}, \quad (27)$$

où  $\lambda_0$ ,  $P_0$  et  $T_0$  sont respectivement la longueur d’onde centrale, la puissance crête et la durée caractéristique du soliton initial. Pour obtenir cette équation, on suppose une impulsion relativement longue ( $> 50$  fs), car on ne considère que l’échange d’énergie Raman entre des fréquences relativement rapprochées. En d’autres mots, on modélise les courbes de gain Raman présentées à la figure I.20 comme des droites près de  $f = 0$  via un paramètre Raman  $T_R$  qui est proportionnel à la pente du gain Raman  $g_R(f)$  à une fréquence relative nulle :

$$T_R = \frac{\lambda_0}{8\pi^2 n_2} \left. \frac{d(g_R(f))}{d(f)} \right|_{f=0}. \quad (28)$$

Sur la figure I.20, on remarque que la courbe de gain Raman pour les verres de silice est très bien représentée par une droite associée à un paramètre  $T_R \approx 3$  fs. Dans le cas des verres de fluorozirconate, la courbe de gain Raman est plus complexe vu la composition très variée du verre. En considérant un indice non linéaire de  $n_2 = 2.1 \times 10^{-20}$  m<sup>2</sup>/W, on peut tout de même estimer un paramètre  $T_R \approx 6$  fs pour des fréquences relatives  $< 6$  THz. Un espacement en fréquence de 6 THz pour une impulsion à 2.8  $\mu$ m équivaut à un espacement de  $\sim 160$  nm en longueur d’onde, ce qui est largement supérieur à la largeur spectrale des impulsions générées dans cette thèse, qui est inférieure à 60 nm. Cette approximation pour  $T_R$  nous permet d’évaluer théoriquement le décalage en longueur d’onde en fonction de la durée des

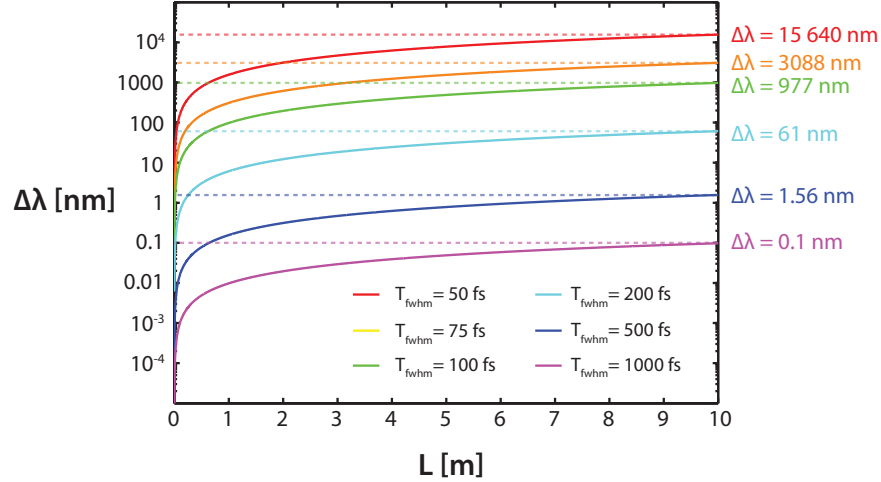


FIGURE I.21 – Décalage en longueur d’onde estimé en fonction de la distance de propagation pour des impulsions solitoniques de durée à mi-hauteur entre 50 fs et 1 ps.

impulsions à l’entrée de la fibre de fluorozirconate utilisée tout au long de cette thèse ( $\beta_2 = -76 \text{ ps}^2/\text{km}$ ) à l’aide de la relation (27). Les résultats sont présentés à la figure I.21. À noter que cette relation ne tient pas en compte les variations spectrales des paramètres dispersifs et non linéaires de la fibre, ce qui entraînera des variations de la durée et de la puissance crête des impulsions à mesure que celles-ci se décalent en longueur d’onde le long de la fibre. En fait, comme nous le verrons au chapitre 4, le décalage du soliton entraînera une augmentation de sa durée et donc une diminution de sa puissance crête. Le décalage obtenu à partir de cette relation est donc surestimé par rapport au cas réel. Néanmoins, on remarque que la durée des impulsions est cruciale pour un important décalage en fréquence. Dans le cas d’impulsions dont la durée moyenne est de 100 fs le long de la fibre, on peut donc s’attendre à un décalage de plusieurs centaines de nanomètres sur 10 m de propagation.

#### I.5.4 Amplification solitonique

Comme décrit précédemment, l’équilibre entre l’effet de la dispersion anormale et celui de l’auto modulation de phase entraîne la formation d’ondes solitaires sous forme de sécante hyperbolique, qu’on nomme solitons. En présence de gain dans la fibre, la dynamique de propagation de soliton devient encore plus complexe. Cette dynamique a été grandement étudiée par Govin P. Agrawal dans les années 90 dans le contexte de transmission de signaux sur de longues distances en télécommunication [115].

La dynamique d’amplification de solitons dans les fibres à dispersion anormale dépend de plusieurs paramètres (gain, dispersion, non-linéarité, longueur de fibre, profil temporel initial, etc.). Certaines grandes lignes peuvent néanmoins être établies afin de bâtir une intuition pour expliquer ce processus d’amplification. Dans un premier temps, on néglige l’effet Raman ainsi



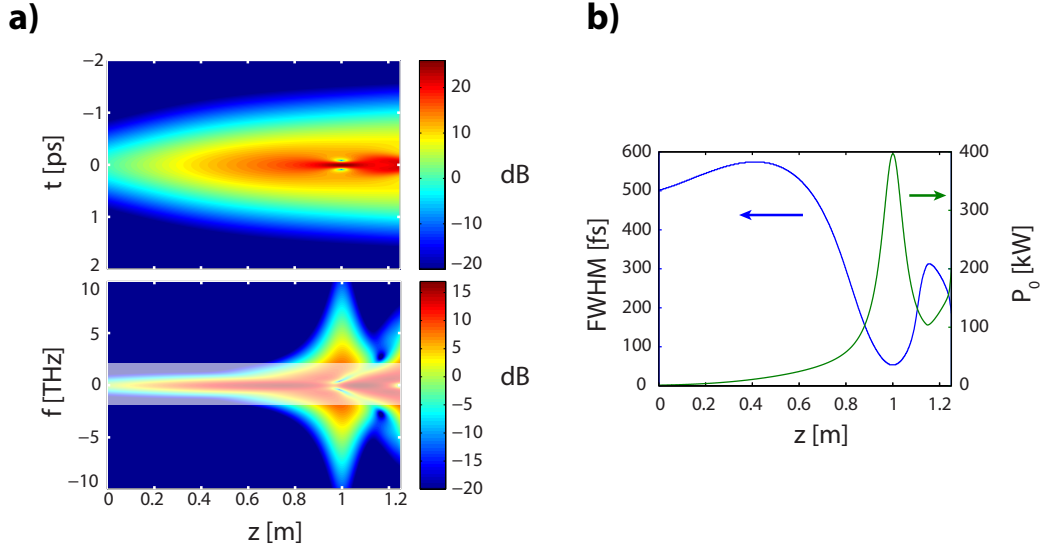


FIGURE I.22 – a) Évolution temporelle et spectrale le long de l’amplificateur à fibre de 1.25 m. La largeur de bande du gain est représentée par le rectangle blanc transparent en fréquence. b) Graphique de la durée à mi-hauteur et de la puissance crête de l’impulsion en fonction de  $z$ .

que les effets non linéaires et dispersifs d’ordres supérieurs pour ne considérer que les effets de base. La considération de ces effets d’ordre supérieur fait l’objet du chapitre 4. La dynamique temporelle et spectrale d’une impulsion initiale en forme de sécante hyperbolique dans un amplificateur à fibre en régime de dispersion anormale est illustrée à la figure I.22.

On suppose ici un gain uniforme de forme lorentzienne le long de la fibre. Les paramètres de simulation ne sont pas décrits ici, car la description de la dynamique d’amplification se veut être simplement qualitative. Sur cette figure, on remarque que le soliton subit d’abord un léger étalement temporel dû au filtrage spectral par le gain. S’en suit une compression importante d’un facteur supérieur à 10 sans perte d’énergie notable dans le soliton. On parle alors d’amplification adiabatique du soliton [116]. Lors de la propagation, le soliton tente d’adapter son profil temporel à son augmentation en énergie de façon à subsister comme soliton fondamental ( $N \sim 1$ ). En présence d’un gain important dans l’amplificateur, l’impulsion ne peut s’adapter assez rapidement et finit par évoluer sous forme d’un soliton d’ordre supérieur. Son évolution devient donc périodique avec des cycles de compression et d’étalement temporels et spectraux.

Cette étape de compression ou cette évolution périodique ne peut perdurer, car la largeur de bande de l’amplificateur est limitée dans les amplificateurs réels. Dans la simulation présentée ci-dessus, la largeur de bande  $\Delta f \sim 4$  THz est indiquée par le rectangle blanc transparent. À un certain endroit lors de la compression, la largeur spectrale de l’impulsion vient à excéder celle du gain. La partie centrale de son spectre subit alors davantage de gain que ses extrémi-

tés, ce qui cause un rétrécissement spectral et un élargissement temporel. L'impulsion devient également chirpée. Après une certaine distance, l'impulsion chirpée ne peut s'amplifier davantage et l'énergie est alors distribuée aux piédestaux accompagnant l'impulsion. Ces piédestaux peuvent alors s'amplifier suffisamment pour former de nouveaux solitons accompagnant l'impulsion principale. Ce processus peut être cascadié à plusieurs reprises et l'on assiste alors à la formation d'impulsions multiples à la sortie de l'amplificateur [115].

Évidemment, la présence d'un soliton d'ordre supérieur n'est que fictive, puisqu'en réalité, l'effet Raman et la dispersion d'ordre supérieur déstabilisent cette propagation périodique. Il reste néanmoins que la formation d'impulsions multiples et plusieurs autres phénomènes peuvent être observés en présence de ces effets non linéaires et dispersifs, comme il sera décrit plus en détail au chapitre 4.

# Chapitre 1

## Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared

**S. Duval**, M. Bernier, V. Fortin, J. Genest, M. Piché, and R. Vallée

Centre d'optique, photonique et laser, Université Laval, Québec G1V 0A6, Canada

Published in *Optica*, vol. **2**, p. 623 - 626 (2015)

### 1.1 Résumé

Les lasers ultrarapides opérant dans le proche infrarouge ont révolutionné le domaine des lasers en permettant de nombreuses avancées en science fondamentale et en industrie. Dans cette publication, nous étendons le contenu spectral de ce type de laser dans l'infrarouge moyen en démontrant le premier laser femtoseconde à fibre optique opérant près de  $3 \mu\text{m}$ . Cette cavité laser en anneau est basée sur le principe de synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation dans une fibre de verre fluoré dopée aux ions  $\text{Er}^{3+}$ . Ce laser génère des impulsions à  $2.8 \mu\text{m}$  de  $207 \text{ fs}$  de durée et  $3.5 \text{ kW}$  de puissance crête estimée. Cette démonstration ouvre la voie au développement d'applications à fort potentiel telles que la spectroscopie par peignes de fréquence dans la région spectrale considérée comme l'empreinte digitale moléculaire par excellence.

### 1.2 Abstract

Ultrafast fiber lasers operating in the near infrared have revolutionized laser science by enabling numerous breakthroughs in both fundamental science and industrial applications. In this paper, we extend the spectral coverage of these laser sources to the mid-infrared by reporting the first femtosecond fiber laser operating near  $3 \mu\text{m}$ . This passively mode-locked fiber ring laser based on nonlinear polarization evolution in an  $\text{Er}^{3+}$ -doped fluoride glass fiber ge-

nerates 207-fs pulses at 2.8  $\mu\text{m}$  with an estimated peak power of 3.5 kW. This demonstration paves the way for further developments of promising applications in the molecular fingerprint region such as frequency comb spectroscopy.

### 1.3 Introduction

Femtosecond fiber lasers emitting in the near-infrared (0.7-2  $\mu\text{m}$ ) have not only fueled the development of ultrafast laser science, but also enabled several promising applications for the broader scientific community. These simple, compact and reliable sources are now in fact routinely used for laser micromachining, biomedical imaging and spectroscopy [117]. However, the spectral coverage of ultrafast fiber lasers is currently limited by the use of silica fibers that are no longer transparent at wavelengths beyond 2  $\mu\text{m}$  [96]. This fundamental issue has hindered the development of femtosecond fiber lasers in the mid-infrared (mid-IR) spectral range (2-20  $\mu\text{m}$ ), also referred to as the molecular fingerprint region [8]. By producing a stable and coherent emission of high-peak-power pulses covering a broad spectrum, mid-IR ultrafast fiber lasers have the potential to become ideal sources for ultrabroad and ultrasensitive molecular spectroscopy [118] through the generation of supercontinuum [27] and optical frequency combs [8]. Medical applications such as minimally invasive skin surgeries [19] or breath analysis [14] could also greatly benefit from these laser sources.

In recent years, the availability of high-purity fluoride glass fibers that transmit at up to 5  $\mu\text{m}$  enabled the development of fiber lasers operating at wavelengths well above the 2.2- $\mu\text{m}$  multi-phonon edge of silica [96]. These lasers have been mainly developed near 3  $\mu\text{m}$  because of the efficient emission bands of  $\text{Er}^{3+}$  (2.75  $\mu\text{m}$ ) and  $\text{Ho}^{3+}$  (2.85  $\mu\text{m}$ ) cations in fluoride glass fibers that can be readily pumped by standard near-infrared laser diodes. For instance, an efficient continuous-wave fluoride glass fiber laser delivering average output powers up to 27 W was demonstrated at 2.8  $\mu\text{m}$  [119].

Pulsed versions of 3- $\mu\text{m}$  fiber lasers were also demonstrated in order to access higher peak powers. Active Q-switching based on acousto-optic modulators was implemented in linear cavities, producing pulses as short as 78 ns [120], with peak powers up to 0.9 kW [121]. Passive techniques were also reported based on various saturable absorbers leading to Q-switching with partial mode-locking operation with pulse durations now on the order of 20 ps [122; 123]. The previous lasers were however reported to be unstable with respect to mode-locking operation due to non-optimal cavity configuration. This issue was addressed more recently by two groups. Haboucha et al. reported a stable mode locking from an  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride glass fiber laser operating at 2.8  $\mu\text{m}$  by using a semiconductor saturable absorber mirror in conjunction with a fiber Bragg grating (FBG) in a linear cavity configuration [100]. In this laser the use of an FBG allowed for the generation of a stable, self-starting pulse train with a repetition rate of 51.75 MHz and an estimated pulse duration of 60 ps. In parallel, Hu et al.

demonstrated the first stable mode-locked fiber ring laser near  $2.9 \mu\text{m}$  using an InAs saturable absorber in transmission and a holmium-praseodymium co-doped ZBLAN fiber [101]. This configuration enabled the generation of 6-ps pulses with a peak power of 465 W. This is, to the best of our knowledge, the shortest pulse ever produced directly from a fiber oscillator at a wavelength above  $2.2 \mu\text{m}$ .

In this Letter, we present the first  $3\text{-}\mu\text{m}$  class femtosecond fiber laser. This laser produces 207-fs soliton pulses at  $2.8 \mu\text{m}$  with a repetition rate of 55.2 MHz. It is also the first demonstration of an  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber-based laser that generates stable mode-locked pulses with peak powers in the kilowatt range ( $P_{\text{peak}} \sim 3.5 \text{ kW}$ ).

## 1.4 Experiment

The schematic of the laser is shown in Fig. 1.1. This simple ring cavity contains 3 meters of double clad  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber (Le Verre Fluoré). The fiber has a 7 mol.%  $\text{Er}^{3+}$ -doped core ( $\text{NA} = 0.12$ ) with a diameter of  $15 \mu\text{m}$  that is surrounded by a  $260\text{-}\mu\text{m}$  diameter cladding. The circular symmetry of the cladding is broken by two parallel flats separated by  $240 \mu\text{m}$ . A fluoroacrylate polymer of lower refractive index surrounds this cladding, enabling multimode propagation of the pump beam ( $\text{NA} > 0.46$ ). The fiber dispersion ( $\beta_2 = -0.086 \text{ ps}^2/\text{m}$  at  $2.8 \mu\text{m}$ ) was estimated based on both its material composition and guidance properties [110]. End caps made of a short segment ( $L \sim 700 \mu\text{m}$ ) of multimode  $\text{AlF}_3$  fiber (FiberLabs AMF-200/240) were spliced on both ends of the fiber to prevent fiber tip degradation. This degradation can arise either from OH diffusion and related thermal runaway [124] or from spurious laser spikes due to Q-switching instabilities. The end caps were angle-cleaved at  $4^\circ$  to avoid parasitic reflections that are detrimental for mode locking. The fiber is pumped with a multimode laser diode that delivers up to 7 W of continuous power at 976 nm. The pump signal is coupled inside the ring cavity through a homemade dichroic mirror that also serves as the output coupler for the  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  laser signal. This dichroic mirror has a transmission of  $> 90\%$  at 976 nm and a reflectivity of 66% at  $2.8 \mu\text{m}$ , extracting 34% of the laser signal out of the cavity. Coupling of both laser and pump signals into the fiber is performed via aspheric ZnSe lenses ( $f = 12.5 \text{ mm}$ ). A cladding mode stripper (CMS in Fig. 1.1) made of a few centimeters of active fiber stripped and recoated with UV-curable high index polymer ( $n = 1.54$ ) is fabricated at the end of the fiber segment in order to reject the residual pump power. Mode locking is initiated and maintained by nonlinear polarization evolution (NPE) [125] via the use of a quarter waveplate, a half waveplate and an optical isolator (Altechna). The isolator based on Faraday rotation also acts as a polarizer and ensures a unidirectional (counterclockwise in Fig. 1.1) propagation of the laser signal in the ring cavity. The total length of the free-space-propagation segment in the cavity is about 90 cm.

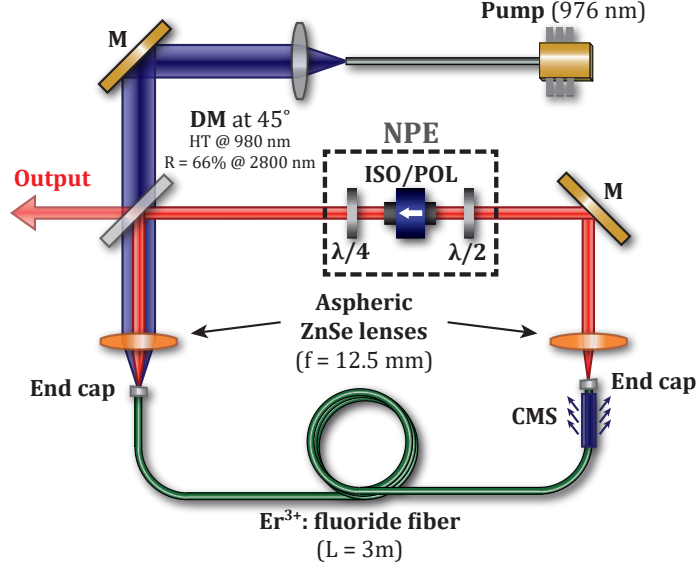


FIGURE 1.1 – Schematic of the laser cavity. DM, dichroic mirror; M, gold-coated mirrors; ISO/POL, optical isolator also used as a polarizer;  $\lambda/4$ , quarter waveplate;  $\lambda/2$ , half waveplate; CMS, cladding mode stripper.

## 1.5 Results and discussion

For a proper adjustment of the waveplates, the laser produces a stable, self-starting mode-locked pulse train. Mode-locked operation is maintained over several hours, with an rms fluctuation of the average output power of less than 1%. Also note that no noticeable degradation of the laser output performances was observed after several months of use. The temporal trace of the output signal is shown in Fig. 1.2a and was measured with a nitrogen-cooled HgCdTe photodiode connected to a preamplifier (Kolmar Technologies, bandwidth  $\sim 1$  GHz, rise time  $< 2$  ns). Since faster photodiodes are available at  $1.5 \mu\text{m}$ , the second harmonic (SH) signal was generated by focusing the output beam through a BBO crystal. The SH signal was then monitored with a photodetector (Alphasas, bandwidth  $\sim 4$  GHz, rise time  $< 100$  ps). As shown in Fig. 1.2b, both  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  and SH signals show no evidence of multi-pulsing in the cavity. The repetition rate of the laser as measured with a radio-frequency spectrum analyzer is 55.2 MHz, in agreement with the effective cavity length of about 5.4 m.

To further confirm single pulse operation and to measure the pulse temporal profile, the autocorrelation (AC) of the output signal was performed using a commercial autocorrelator covering wavelengths up to  $3 \mu\text{m}$  (Femtochrome FR-103XL/IR/1700). The autocorrelation trace is shown in Fig. 1.3 along with the computed AC trace of an ideal  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile. The corresponding pulse full width at half maximum (FWHM) is 207 fs. It is worth mentioning that the calibration factor of the autocorrelator was verified experimentally to ensure the validity of the measurement. No secondary peaks were observed over the total 200-

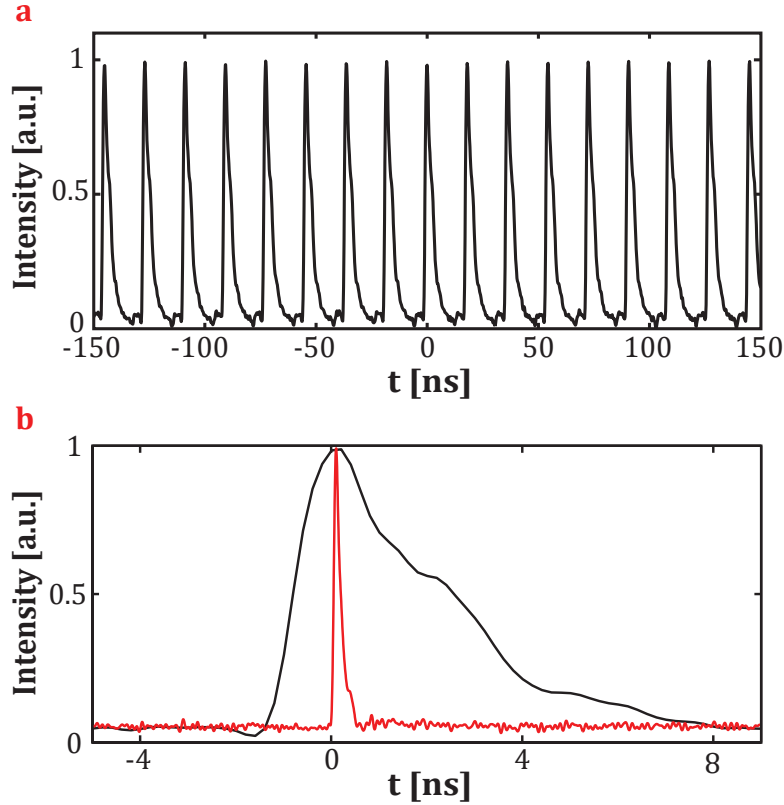


FIGURE 1.2 – a) Measured output pulse train with a 2-ns rise time detector. The corresponding repetition rate is 55.2 MHz. b) Zoom on one pulse of the 2.8- $\mu\text{m}$  output (black) and the second harmonic (red) signal measured with a 100-ps rise time detector.

ps scan range of the autocorrelator. The autocorrelation along with the measured pulse trains of both the mid-IR and SH signals confirm altogether that only one pulse is circulating in the cavity. The measured average output power is 44 mW, corresponding to a pulse energy of 0.8 nJ. Assuming a  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile with a FWHM of 207 fs, the estimated pulse peak power is 3.5 kW.

The output spectrum presented in Fig. 1.4 (blue curve) was obtained using an optical spectrum analyzer (OSA) that covers wavelengths from 1.9 to 3.4  $\mu\text{m}$  (Yokogawa, AQ6375L). The long free-space propagation ( $\sim 2$  m) in the OSA greatly affects the spectrum of the signal because of environmental water vapor absorption near 2.8  $\mu\text{m}$ . To quantify this impact, we monitored with the OSA the spectrum from a homemade flat mid-IR supercontinuum source and subtracted the environmental absorption background (black curve) from the signal. By doing so, the actual fiber laser spectrum impinging on the OSA could be inferred (red curve).

The output spectrum contains strong spectral peaks symmetrically located on both sides of the central wavelength  $\lambda_c = 2805$  nm. These spectral features, referred to as Kelly sidebands, are clear evidence that the laser operates in the soliton regime [63]. From the temporal viewpoint,

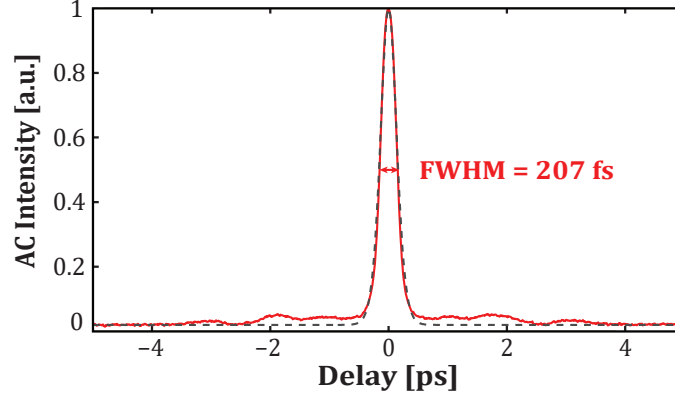


FIGURE 1.3 – Measured AC trace of the output beam (red) and the corresponding AC trace of a theoretical pulse with a  $\text{sech}^2(t)$  shape and a FWHM of 207 fs (dashed gray).

the Kelly sidebands correspond to resonant dispersive waves that copropagate with the soliton inside the cavity. The temporal modulations that are visible on either side of the central peak in the AC trace (Fig. 1.3) are likely associated with the cross-correlation of the main soliton pulse with these dispersive waves [65]. Mode locking in the soliton regime was expected because the dispersion of the fluoride fiber is highly anomalous at  $2.8 \mu\text{m}$  whereas no dispersion compensation was added to the laser cavity. Knowing the frequency associated with each sideband, the overall dispersion of the cavity and the average pulse width of the circulating pulse can be inferred using the following equation [63] :

$$(f_m - f_c)^2 = \frac{m}{\pi|B_2|} - \frac{1}{4\pi^2\tau^2}, \quad (1.1)$$

where  $m$  is the order of the sideband,  $f_m$  corresponds to the frequency of the sideband,  $f_c = 1.07 \times 10^{14}$  Hz is the carrier frequency,  $B_2$  is the overall cavity dispersion and  $\tau$  is the average pulse duration (FWHM  $\sim 1.763 \tau$ ). By performing a linear regression of the frequency differences  $(f_m - f_p)^2$  as a function of the integer  $m$  and using (1.1), we find an overall cavity dispersion  $B_2 = -0.282 \text{ ps}^2$ . Assuming that the cavity dispersion is mostly governed by the dispersion of the 3-m segment of fluoride fiber, the fiber dispersion can be approximated by  $\beta_2 = B_2/3m = -0.094 \text{ ps}^2/\text{m}$ , which is in good agreement with our previous estimation of  $\beta_2 = -0.086 \text{ ps}^2/\text{m}$ .

The estimated average FWHM of the pulse in the cavity, also calculated from (1.1), is 328 fs. The production of output pulses (207 fs) shorter than the average soliton in the cavity is expected considering the relation between the energy of a soliton  $E_s$  and its duration  $\tau$  [112] :

$$E_s = 2P_s\tau = \frac{2|\beta_2|}{\gamma\tau}, \quad (1.2)$$



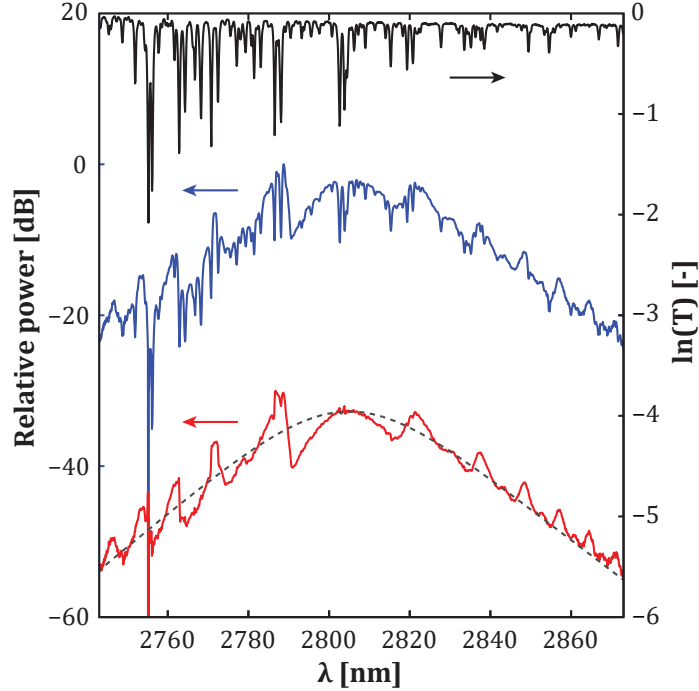


FIGURE 1.4 – Measured output spectrum (blue), natural logarithm of the atmospheric transmission for a 1-m propagation inside the OSA (black), reconstructed spectrum before the OSA (red) and theoretical spectrum of a  $\text{sech}^2(t)$  shape with a FWHM of 230 fs (dashed gray).

where  $P_s$  is the peak power,  $\gamma$  and  $\beta_2$  are respectively the nonlinear and the dispersion parameters of the fiber. This relation indicates that the soliton duration gets shorter as its energy increases. The circulating pulse therefore reaches maximum energy and thus shorter duration at the end of the gain fiber. Consequently, a pulse of minimum duration will be extracted out of the cavity at each roundtrip because the free space propagation through the NPE system can only further reduce its duration.

The best fit for the reconstructed output spectrum was obtained with the spectrum corresponding to an ideal soliton pulse with a  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile and a FWHM of 230 fs (dashed gray curve). Both spectra are in good correspondence, except near the center, where strong modulations are observed in the experimental spectrum. These modulations are actually resulting from the interference between the main pulse and the dispersive waves. Since the most intense sidebands are very close to the center of the spectrum because the overall dispersion of the cavity is high (see (1.1)), these modulations are more pronounced near its center. Since second harmonic generation filters the low-intensity components of a signal, we measured the spectrum of the SH signal in order to get a better idea of the spectral properties of the output pulse without interference from dispersive waves. As shown in Fig. 1.5, the SH signal spectrum is consistent with the computed SH signal of an ideal 207-fs soliton pulse, which is in agreement with the temporal characteristics of the pulse inferred from the autocorrelation.

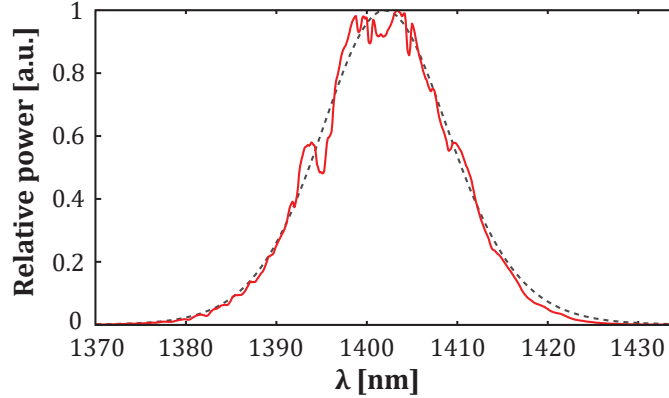


FIGURE 1.5 – Measured output spectrum of the SH signal (red) and the calculated SH signal of a theoretical pulse with a  $\text{sech}^2(t)$  shape and a FWHM of 207 fs (dashed gray).

Interesting features stand out from these results. First, the intracavity water vapor absorption around  $2.8 \mu\text{m}$  does not inhibit the formation of femtosecond pulses with a spectrum extending over more than 100 nm. This observation was also made in  $\text{Cr}^{2+}$ -based solid-state femtosecond lasers and can be turned into an advantage for intracavity spectroscopy with enhanced sensitivity [73]. Preliminary numerical simulations of the laser dynamics suggest that soliton shaping in the fiber segment compensates for this absorption, leading to a stable steady-state mode-locked operation. Another important feature is that high-energy solitons (0.8 nJ) are generated from this fiber laser operated in the highly anomalous dispersion regime. This can be understood knowing that pulse-shaping in the cavity strongly depends on the nonlinear parameter  $\gamma$ , which scales as  $\lambda^{-3}$  [96; 112]. Therefore, with the use of fluoride fibers that have dispersive and nonlinear properties similar to silica fibers, pulses of higher energy are expected for lasers emitting at longer wavelengths. We can thus expect to develop mid-IR fiber lasers with improved performances compared to those in the near-IR. Nevertheless, dispersion management in mid-IR fiber oscillators for the generation of shorter pulses remains the biggest challenge as fluoride fibers possess a highly anomalous dispersion at these wavelengths.

Further performance improvements are expected in the near future with this fiber ring laser. Numerical modeling will offer good indications for determining the optimal fiber length and laser output coupling required in order to attain the highest peak power and shortest pulse duration. External amplification of these pulses with an  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber is also very promising for reaching the higher peak powers required for some applications such as supercontinuum generation [27]. Coherent spectral broadening of the laser output signal over more than one octave using for example a tapered chalcogenide fiber [126] combined with the recent demonstration of an active frequency reference operating near  $3 \mu\text{m}$  [127] could provide the conditions to perform fully self-referenced frequency comb spectroscopy in the mid-infrared [8; 128].

## 1.6 Conclusion

In summary, we demonstrated the generation of stable soliton pulses from a passively mode-locked ring laser that includes a 3-m piece of  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber. The simple mode-locking system based on NPE in the fiber enables the production of 207-fs pulses with  $\sim 3.5$  kW of peak power, surpassing all previous performances of mode-locked fiber lasers emitting around  $3 \mu\text{m}$ . Dispersion of the fluoride fiber at  $2.8 \mu\text{m}$  ( $\beta_2 \sim -0.094 \text{ ps}^2/\text{km}$ ) was also evaluated experimentally for the first time using the spectral positions of the Kelly sidebands. This demonstration clearly constitutes a major step toward the development of efficient femtosecond fiber sources operating in the mid-IR.

## Aknowledgments

The authors thank Adil Haboucha and Michel Olivier for helpful discussions, and Marc D'Auteuil and Souleymane Toubou Bah for the fabrication of the dichroic mirror at the COPL.

## Chapitre 2

# 23-kW peak power femtosecond pulses from a mode-locked fiber ring laser at 2.8 $\mu\text{m}$

**S. Duval**<sup>1</sup>, M. Olivier<sup>1,2</sup>, V. Fortin<sup>1</sup>, M. Bernier<sup>1</sup>, M. Piché<sup>1</sup>, and R. Vallée<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Centre d'optique, photonique et laser, Université Laval, Québec G1V 0A6, Canada

<sup>2</sup>Département de physique, Cégep Garneau, Québec G1S 4S3, Canada

Published in Proc. of SPIE vol. 9728, p. 672802-2- 672802-8 (2016)

### 2.1 Avant-propos

À noter que ce résumé de conférence publié dans la revue Proc. of SPIE est directement associé à un manuscrit soumis à *Optics Letters* en janvier 2016. Comme ce manuscrit est complémentaire à l'article présenté dans ce chapitre, celui-ci est présenté à l'annexe B.

### 2.2 Résumé

Le développement récent de lasers à solitons émettant des impulsions femtoseconde à 2.8  $\mu\text{m}$  ouvre de nouvelles avenues pour la génération d'impulsions ultrabrèves dans l'infrarouge moyen. Dans cette publication, nous examinons le potentiel en puissance de ce type de laser. En optimisant le couplage de sortie et la longueur de la fibre d'erbium utilisée dans la cavité, nous démontrons la génération d'impulsions de 270-fs avec une énergie de 7 nJ et une puissance crête estimée de 23 kW. Ces performances records à 2.8  $\mu\text{m}$  surpassent grandement celles obtenues par les lasers à solitons standards émettant dans la région de 1.55  $\mu\text{m}$ . Nous présentons également un modèle numérique permettant de simuler la dynamique de l'oscillateur qui

inclut l'absorption atmosphérique intracavité. Les résultats de simulations correspondent très bien avec les résultats expérimentaux et suggèrent que la propagation atmosphérique dans la cavité nuit à l'auto démarrage du laser en régime de synchronisation modale. Ce laser à fibre femtoseconde pourrait être un élément clef dans la conception de système de lasers simples et compacts pour la génération de peignes de fréquences et de supercontinuum dans l'infrarouge moyen.

## 2.3 Abstract

The recent development of soliton femtosecond fiber lasers emitting at  $2.8 \mu\text{m}$  opens a new avenue for the generation of ultrashort pulses in the mid-infrared spectral region. In this paper, we investigate the peak power scalability of such lasers. By optimizing the output coupling ratio and the length of the  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber in the cavity, we demonstrate the generation of 270-fs pulses with an energy of 7 nJ and an estimated peak power of 23 kW. These record performances at  $2.8 \mu\text{m}$  surpass by far those obtained from standard soliton lasers at  $1.55 \mu\text{m}$ . A numerical model of the laser including the effect of the intracavity atmospheric absorption is also presented. Numerical simulations agree well with the experimental results and suggest that the atmospheric propagation in the cavity could prevent the laser from self-starting in a mode-locked regime. This femtosecond laser could be the building block for simple and compact mid-infrared frequency combs and supercontinuum sources.

## 2.4 Introduction

Ultrafast laser technologies in the mid-infrared (2-20  $\mu\text{m}$ ) will lead to important developments in many scientific areas. On one hand, the broad spectrum of mode-locked femtosecond pulses is composed of evenly distributed comb lines whose frequencies and linewidths can be measured with an extreme accuracy [8]. By generating such coherent pulses in the mid-IR, a spectral region where the most important molecules on earth possess strong fundamental ro-vibrational resonances, these sources will be the basis of several tools for spectroscopy and remote sensing. On the other hand, the generation of ultrashort pulses with high peak powers in the mid-IR will lead to the development of novel supercontinuum sources extending further into the mid-IR [27]. Precise ablation of biological tissues or polymers can also be performed using high peak power mid-IR pulses when the spectrum of these pulses coincide with the strong absorption bands of the material's molecular bonds [129].

Until recently, mid-IR ultrafast laser sources relied exclusively on the use of complex solid-state laser systems [129]. With the recent demonstrations of ultrafast fiber lasers at  $2.8 \mu\text{m}$  [104; 105], many new exciting developments in the applications listed above are to be expected in the near future. These fiber-based sources have not only the potential to become simple, compact and rugged, they are the only oscillators that can directly produce femtosecond pulses

as far in the mid-IR without the use of external nonlinear conversion techniques such as optical parametric oscillation or difference frequency generation.

Two groups independently showed the possibility of generating sub-picosecond pulses from a fiber ring laser at  $2.8 \mu\text{m}$  based on the nonlinear polarization evolution (NPE) mode-locking technique. In previous work, we demonstrated the generation of 207-fs pulses with 3.5 kW of peak power [104]. In parallel, Hu et al. were able to produce 6-kW peak power, 497-fs pulses from a similar cavity design [105]. These sources both relied on the use of an  $\text{Er}^{3+}$ -doped fluorozirconate fiber that has a strong anomalous dispersion at  $2.8 \mu\text{m}$ , causing them to operate in the soliton regime [130]. However, even in the anomalous dispersion regime, mid-IR fiber lasers are expected to outperform near-IR soliton fiber lasers by almost an order of magnitude in terms of pulse energy and peak power. The main reason is that soliton dynamics in fiber lasers strongly depends on the nonlinear parameter of the fibers used in the cavity ( $\gamma$ ), which is proportional to  $\lambda^{-3}$  for single mode fibers [112].

We investigate in this report the peak power scalability of the  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  soliton fiber laser presented in reference [104] by changing the location of the output coupler in the cavity and by varying the gain fiber length and the output coupling ratio. Stable 270-fs pulses with an energy of 7 nJ and an estimated peak power of 23 kW were generated at a repetition rate of 96.6 MHz. A numerical model of the laser including the intracavity atmospheric absorption is also presented and shows excellent agreement with the experimental results. It is shown that the intracavity atmospheric absorption due to the strong absorption of water vapor lines at  $2.8 \mu\text{m}$  is likely to limit the self-starting operation of the mode-locked regime when using short lengths of active fiber, preventing the generation of even more energetic pulses from the cavity.

## 2.5 Optimization of the experimental laser output performance

Starting from the cavity configuration in Duval et al. [104], the experimental laser cavity was modified in three simple steps in order to optimize the peak power of the generated pulses (see Fig. 2.1). First, we inverted the direction of propagation of the signal in the cavity so that the output coupling occurs right after the propagation along the gain fiber. In this configuration, the losses caused by the other free-space elements in the cavity are avoided before the output coupling of the pulse. The second step was to reduce the gain fiber length since it reduces the nonlinear effects at each roundtrip and decreases the global dispersion of the cavity. We can thus expect the generation of soliton pulses with higher peak powers and shorter durations. Three fiber lengths were tested :  $L = 3.1, 1.6$  and  $1$  m. Third, the output coupling ratio was increased by using dichroic mirrors with lower reflectivities at  $2.8 \mu\text{m}$ . For each fiber length, three dichroic mirrors  $\text{DM}_1$  were tested with output coupling ratios of 37%, 65% and 84 %.

When using the 1-m fiber in the cavity, operation in the mode-locked regime could not be achieved. The best performances were obtained with a fiber length of 1.6 m and an output coupling ratio of 65%. Compared with the design presented in reference 4 ( $L = 3.1$  m and  $OC = 37\%$ ), mode-locking operation was more difficult to obtain. The waveplate orientations had to be adjusted extremely precisely ( $\pm 1$  deg.) to find the mode-locked regime and the laser was no longer self-starting. In fact, the pump power had to be increased to  $\sim 17$  W to find a single pulse regime along with a strong CW signal. Then, the pump power was reduced to  $\sim 12$  W to eliminate the CW signal and obtain a pure single pulse regime. The output characteristics of this regime are shown in Figs. 2.2 and 2.3 respectively. Figure 2 a) presents the temporal trace of the output pulse train measured with a nitrogen-cooled HgCdTe detector (Kolmar technologies,  $> 2$ -ns rise time). The corresponding RF spectrum presented in Fig. 2.2 b) confirms a stable operation at a repetition rate of 96.6 MHz with a signal-to-noise ratio of  $\sim 70$  dB. Although not self-starting, this regime of operation could be maintained over several hours.

The output spectrum measured with an optical spectrum analyzer (OSA, Yokogawa AQ6375L) is shown in Fig. 2.3. The presence of Kelly sidebands visible on either side of the spectrum clearly indicates that the laser operates in the soliton regime [63]. The spectrum is also modulated by strong spectral dips due to the presence of atmospheric absorption during the free-space propagation of the signal inside and outside the laser cavity. The presence of water

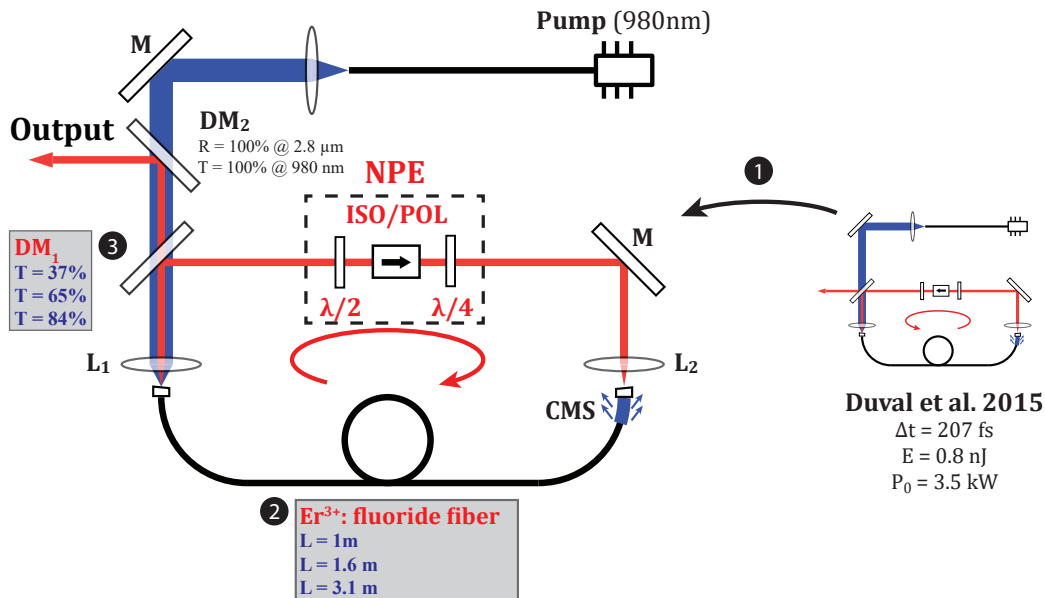


FIGURE 2.1 – Optimization of the experimental laser by 1) changing the direction of propagation of the signal in the cavity and varying 2) the gain fiber length and 3) the output coupling ratio. M : Gold-coated mirrors ;  $DM_1$  and  $DM_2$  : Dichroic mirrors ;  $L_1$  and  $L_2$  : ZnSe lenses ( $f = 12.5$  mm) ;  $\lambda/2$  : Half waveplate ;  $\lambda/4$  : Quarter waveplate ; ISO/POL : Isolator/Polarizer.

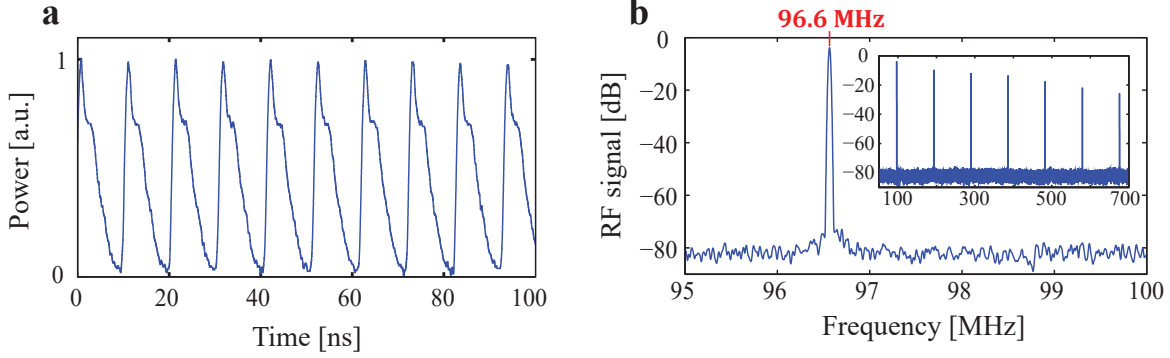


FIGURE 2.2 – a) Temporal trace of the output pulse train at  $2.8 \mu\text{m}$ . b) Zoom on the fundamental RF peak corresponding to a repetition rate of 96.6 MHz. Inset : Extended RF spectrum up to 700 MHz.

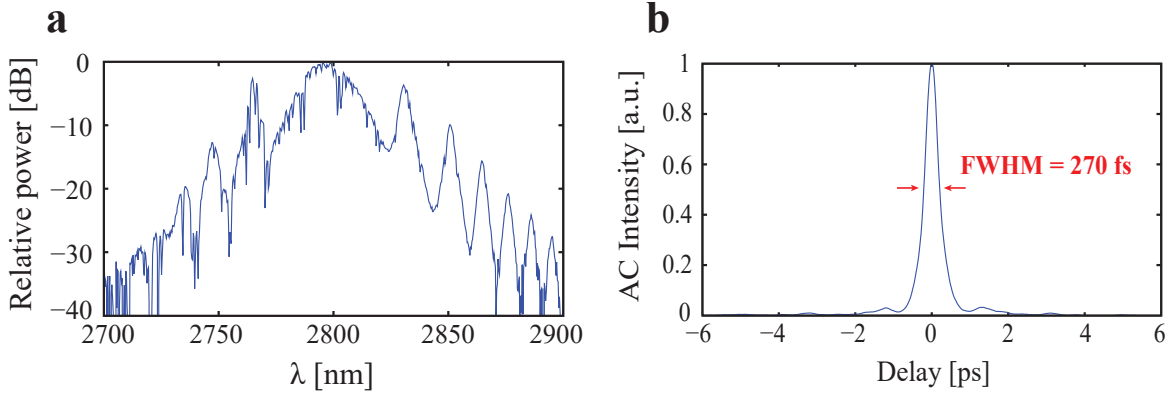


FIGURE 2.3 – a) Optical spectrum of the output pulses. b) Autocorrelation of the output signal. The pulse full width at half maximum (FWHM) estimated from the AC trace is 270 fs, assuming an ideal  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile.

vapor in the lab environment ( $\sim 40\%$  humidity) is mainly responsible for this absorption. Figure 2.3 b) displays the autocorrelation (AC) trace of the output pulse obtained from a commercial autocorrelator (Femtochrome FR-103XL/IR/1700). Assuming an ideal  $\text{sech}^2(t)$  temporal pulse shape, the pulse duration is estimated to  $\sim 270$  fs.

## 2.6 Numerical simulations of the laser

We developed a numerical model of the laser to study the intracavity dynamics. Each element of the cavity is modeled as a matrix acting upon the two polarization components of the field amplitude  $A_x(z, t)$  and  $A_y(z, t)$ . A generalized vector nonlinear Schrödinger equation [112] (NLSE) is used to accurately simulate the nonlinear polarization evolution along the gain fiber ( $\beta_2 = -0.086 \text{ ps}^2/\text{km}$ ,  $\gamma = 0.23 \text{ W}^{-1}\text{m}^{-1}$ ). The gain along the fiber is represented by the



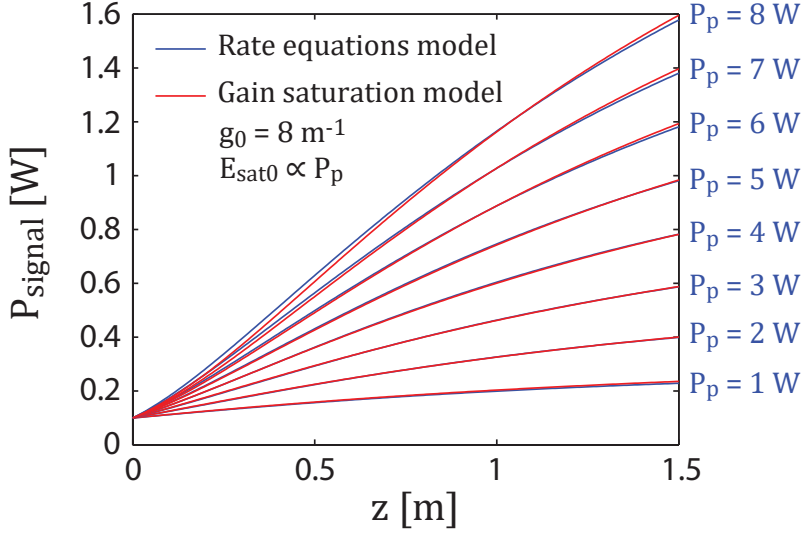


FIGURE 2.4 – Comparison between the gain saturation model presented here and the numerical model based on the rate equations of the energy levels of erbium [123]. The graph presents the evolution of the signal power along a 1.5-m fiber for different input pump powers  $P_p$ . The initial average power of the signal is 100 mW.

following gain saturation equation in the spectral domain :

$$g(\omega, z) = \frac{g_{ns}(\omega)}{1 + \frac{E_p}{E_{sat}(z)}}, \quad (2.1)$$

where the small signal gain  $g_{ns}(\omega)$  is given by :

$$g_{ns}(\omega) = \frac{g_0}{1 + 4 \left( \frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega} \right)^2}. \quad (2.2)$$

In this equation,  $\omega_0$  is the central frequency of the gain, which is assumed to coincide with the pulse carrier frequency. The gain bandwidth  $\Delta\omega = 2.4 \times 10^{13}$  rad/s were estimated from the FWHM of the laser amplified spontaneous emission (ASE) in the pump power range of interest ( $\sim 100$  nm). The values of the maximum small signal gain  $g_0$  and the saturation energy  $E_{sat}$  were estimated from a comparison between this simple model and a more accurate model based on the energy levels rate equations of erbium ions in fluoride glasses [123]. In way similar to the treatment of the saturation for the 1.55- $\mu\text{m}$  transition [70], we fixed  $g_0$  to a value of 8  $\text{m}^{-1}$  and varied  $E_{sat}$  with the pump power along  $z$  :

$$E_{sat}(z) = E_{sat0} e^{-\alpha_p z}. \quad (2.3)$$

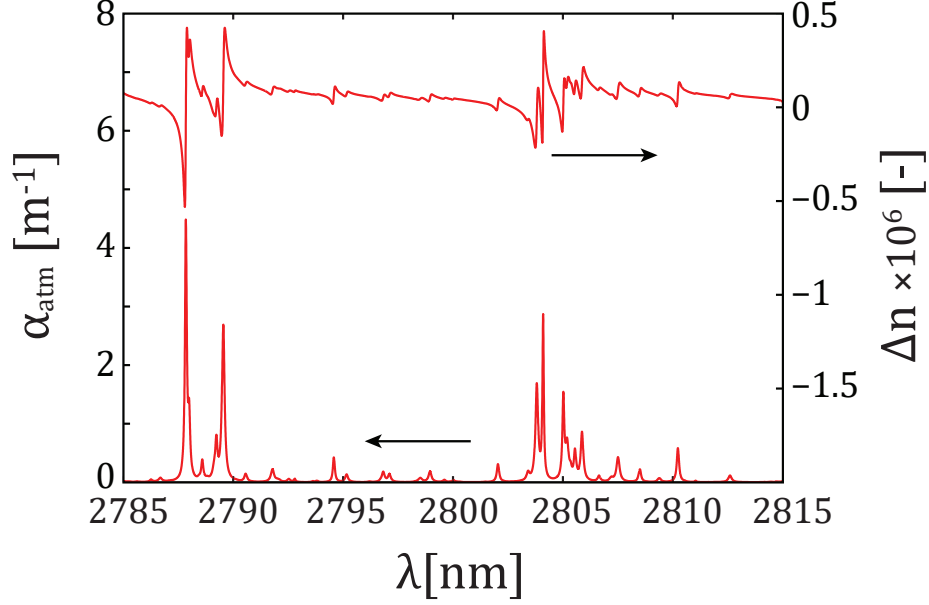


FIGURE 2.5 – Absorption coefficient of the atmosphere (lab environment conditions) near the central wavelength of the laser. The phase distortion calculated from this absorption spectrum is also presented.

$E_{sat0}$  is proportional to the incident pump power and  $\alpha_p = 0.693 \text{ m}^{-1}$  is the measured absorption coefficient at the pump wavelength. Unlike for the  $1.55 \text{ }\mu\text{m}$  transition, the  $2.8 \text{ }\mu\text{m}$  transition involves many linear and nonlinear processes that increase the complexity of the gain dynamics. Nevertheless, our simple model provides a good estimation of the gain along the fiber in the signal and pump power ranges of interest, as shown in Fig. 2.4.

The presence of a strong atmospheric absorption in the free-space part of the experimental cavity is included in the simulations in a way similar to that used by Gebhardt et al.[131]. Figure 2.5 shows the atmospheric absorption coefficient in the lab environmental conditions. The absorption data were generated from a modeling tool of the HITRAN database [132]. The change in the refractive index  $\Delta n(\omega)$  associated to this absorption was calculated using the Kramers- Kronig relation and the McLaurin's formula [133] and is also presented in Fig. 2.5. This effect is considered by using the following equation in the spectral domain :

$$A_{k,out(\omega)} = A_{k,in(\omega)} \exp \left[ - \left( \frac{i\omega}{c} n(\omega) + \frac{\alpha_{atm}(\omega)}{2} \right) L_{atm} \right]. \quad (2.4)$$

The passage through the NPE system that consists of a half waveplate, an isolator/polarizer and a quarter waveplate is modeled as follows for both field components :

<b>Output performance</b>	<b>Experiment</b>	<b>Simulations</b>
Pulse duration	270 fs	212 fs
Pulse energy	7 nJ	6.9 nJ
Pulse peak power	23 kW	22.8 kW

TABLE 2.1 – Comparison between the output performance in the experiment and in the simulations.

$$A_{x,out} = [\cos(2\theta - \delta) \cos(\delta) - i \sin(2\theta - \delta) \sin(\delta)] A_{x,in}, \quad (2.5)$$

$$A_{y,out} = [\sin(2\theta - \delta) \cos(\delta) - i \cos(2\theta - \delta) \sin(\delta)] A_{y,in}, \quad (2.6)$$

where  $\delta$  and  $\theta$  are respectively the angles of the principal axis of the quarter waveplate and the half waveplate relative to the polarizer axis.

The losses in the cavity including the losses of the free-space elements and the injection losses are estimated to be  $\sim 70\%$  and are treated as a single block at each roundtrip in the simulations.

## 2.7 Comparison between numerical and experimental results

Numerical simulations of the laser were performed under the same cavity parameters than the experimental laser presented above ( $L = 1.6$  m, output coupling = 65 %,  $L_{atm} = 0.64$  m). For a value of  $E_{sat0} = 0.85$  nJ, we obtained an excellent agreement between the experimental and the numerical results (see Fig. 2.6). In these simulations, we also considered the external atmospheric propagation to the OSA ( $L_{atm} \sim 3$  m) and the autocorrelator ( $L_{atm} \sim 1.5$  m) since it affects the spectral and temporal characteristic of the output pulse. The simulated spectrum shows deeper spectral dips due to the high resolution data that were used in the model as compared to the limited experimental resolution. Although the AC traces agree very well, the corresponding duration of the simulated pulse (212 fs) is shorter than that estimated from the experimental trace (270 fs). This small discrepancy can be attributed to the fact that the assumed temporal shape ( $\text{sech}^2(t)$ ) to retrieve the experimental pulse duration probably differs from the real temporal pulse profile. Simulations also indicate that the subtle temporal modulations visible on both sides of the AC traces are a consequence of the interference between the Kelly sidebands generated in the oscillator and the small satellite pulses formed during the external atmospheric propagation. These small modulations are almost negligible compared to the main pulse, as it can be seen on the simulated temporal profile (inset of Fig. 2.6 b). Table 1 summarizes the output performance of the simulated and the experimental lasers

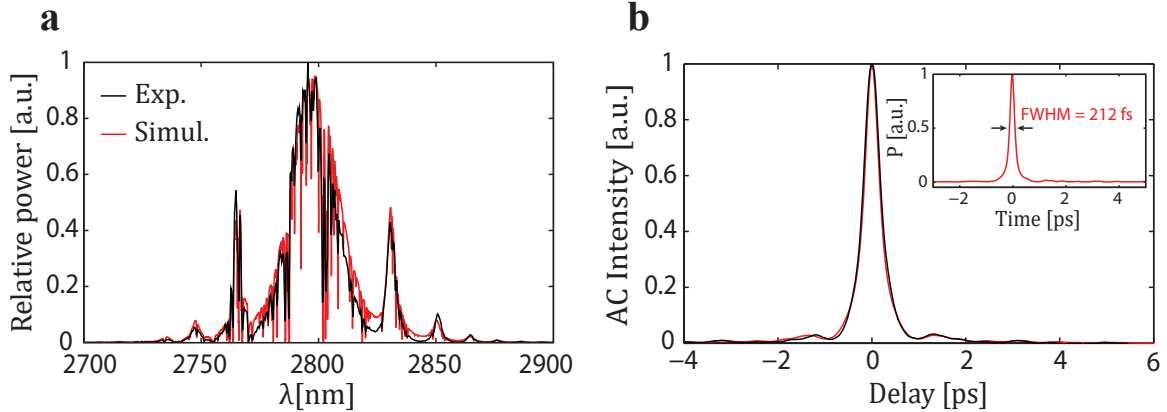


FIGURE 2.6 – Comparison between the experimental (black) and the simulation (red) results for both the a) spectrum and b) the autocorrelation of the output pulse. The inset in b) shows the simulated temporal profile of the output pulse incident on the autocorrelator.

## 2.8 Impact of the intracavity atmospheric absorption

Free-space propagation of ultrashort pulses in the cavity is likely to play an important role on the laser dynamics when the operating wavelength is near strong atmospheric resonances, such as the ones around  $2.8 \mu\text{m}$ . Surprisingly, extensive numerical simulations under different cavity parameters (variable fiber lengths and output coupling ratios) show that the characteristics of the generated pulse in the steady-state regime (peak power, energy and duration) are not significantly affected by the presence of atmospheric absorption in the cavity. However, this effect has a clear impact on the convergence of the laser to a steady-state mode-locked regime. Starting from white noise, we studied the pulse evolution towards the mode-locked regime for three different fiber lengths in the cavity ( $L = 1, 2$  and  $3$  m). Simulations were performed with and without including the atmospheric absorption in the cavity to clearly isolate its impact. The results are presented in Fig. 2.7. In the absence of atmospheric propagation, the number of roundtrips before convergence is comparable for the different fiber lengths. However, when considering this effect, the number of roundtrips before convergence increases dramatically as the fiber length is reduced. For a 1-m fiber, the steady-state mode-locked regime could not be reached even after more than 1500 roundtrips when it can be reached easily after  $\sim 250$  roundtrips without taking into account the atmospheric absorption. A possible explanation for this behavior is that the filtering effect and the local phase distortion caused by the strong atmospheric lines may impede the temporal compression and the spectral broadening of the initial noise burst that lead to a steady-state mode-locked pulse. This behavior can partly explain the increasing difficulty, or even the impossibility, of obtaining a mode-locked regime when using shorter fiber lengths in the experimental laser.

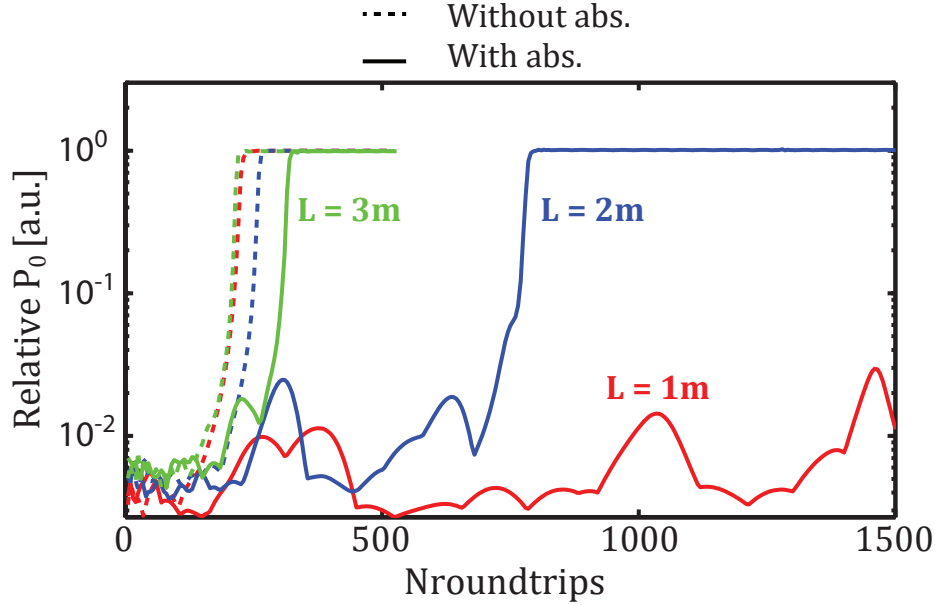


FIGURE 2.7 – Evolution of the peak power  $P_0$  of the initial noise toward a steady-state pulse for three different fiber lengths with or without considering the atmospheric propagation in the simulations.

## 2.9 Conclusion

In conclusion, we demonstrated the peak power scalability of a 2.8- $\mu\text{m}$  mode-locked fiber laser by reporting the generation of 270-fs, 7-nJ pulses with a peak power of 23 kW. Although not self-starting, this fiber laser source produces a very stable output train in the single pulse regime at a repetition rate of 96.6 MHz. Numerical simulations of the laser dynamics accurately reproduce the output performance of the laser. They also suggest that the presence of atmospheric absorption mainly caused by the strong resonance of water vapor around 2.8  $\mu\text{m}$  may prevent the laser from mode locking when short fiber lengths ( $< 2$  m) are used in the cavity. Significant performance improvements should be feasible by eliminating the atmospheric propagation in the cavity and by accessing other dispersion regimes through the use of dispersion compensation systems. Nonetheless, this simple fiber-based source could be readily used for the generation of optical frequency combs or supercontinuum in the mid-infrared.

## Aknowledgments

The authors would like to thank Marc D’Auteuil and Souleyman Toubou Bah for the fabrication of the dichroic mirrors at the Centre d’optique, photonique et laser (COPL).

## Chapitre 3

# Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 $\mu\text{m}$

**S. Duval**<sup>1</sup>, J.R. Gauthier<sup>1</sup>, L.R. Robichaud<sup>1</sup>, P. Paradis<sup>1</sup>, M. Olivier<sup>1,2</sup>, V. Fortin<sup>1</sup>, M. Bernier<sup>1</sup>, M. Piché<sup>1</sup>, and R. Vallée<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Centre d'optique, photonique et laser, Université Laval, Québec G1V 0A6, Canada

<sup>2</sup>Département de physique, Cégep Garneau, Québec G1S 4S3, Canada

Published in Optics Letters, Vol. 41, p. 5294 - 5297 (2016).

### 3.1 Résumé

Le développement de sources laser ultrarapides émettant dans l'infrarouge moyen qui sont compactes et fiables peut mener à d'importantes avancées tant au niveau des sciences fondamentales qu'appliquées. Dans cette lettre, nous décrivons un système laser simple et efficace qui est entièrement basé sur l'utilisation de fibre de verre fluoré dopée à l'erbium. Ce système génère des solitons Raman de grande énergie qui sont accordables de 2.8 à 3.6  $\mu\text{m}$  à des puissances moyennes très élevées. Des impulsions de 160 fs de durée à 3.4  $\mu\text{m}$  et une puissance crête de 200 kW sont démontrées. Ces impulsions possèdent une énergie maximale de 37 nJ, ce qui correspond à une puissance moyenne de plus de 2 W. Cette source accordable promet des applications directes dans le traitement de polymères et de tissus biologiques.

### 3.2 Abstract

The development of compact and reliable ultrafast sources operating in the mid-infrared region could lead to major advances in both fundamental and applied sciences. In this Letter, we report on a simple and efficient laser system based entirely on erbium-doped fluoride glass

fibers that generates high-energy Raman soliton pulses tunable from 2.8 to 3.6  $\mu\text{m}$  at a high average output power. Stable 160 fs pulses at 3.4  $\mu\text{m}$  with a maximum energy of 37 nJ, a corresponding average output power above 2 W, and an estimated peak power above 200 kW are demonstrated. This tunable source promises direct applications in laser processing of polymers and biological materials.

### 3.3 Introduction

There is a growing number of application-based incentives for the development of ultrafast laser sources operating in the mid-infrared (MIR) spectral range (2-20  $\mu\text{m}$ ). Spectroscopy and remote sensing [118] would greatly benefit from the high spectral density and relatively large bandwidth provided by such sources. The use of high-energy intense laser pulses centered on molecular resonances has enormous potential for laser-matter interaction related applications such as polymer processing near 3.4  $\mu\text{m}$  [134] and the ablation of biological tissues near 2.94  $\mu\text{m}$  [19]. Until recently, femtosecond oscillators were limited to the visible and near-IR spectral range with the exception of Cr<sup>2+</sup>-based solid-state lasers that can emit up to 2.5  $\mu\text{m}$  [73]. In order to emit in the MIR, such oscillators must be used in combination with bulk parametric nonlinear devices [84; 82] which adds to the complexity of these systems. Alternatively, ultrafast fiber lasers, with their compactness, high efficiency and high output beam quality, are very promising candidates for these applications.

Ultrafast fiber lasers have now become a serious alternative thanks to the recent development of low-loss and tailorable double-clad fluoride fibers that can host rare-earth dopants such as erbium, holmium and dysprosium providing efficient gain in the 2.7-4  $\mu\text{m}$  region [96]. For instance, CW erbium fiber lasers emitting more than 30 W at 2.94  $\mu\text{m}$  [135] and more than 1.5 W at 3.5  $\mu\text{m}$  [136; 137] have been demonstrated. Mode-locked lasers based on nonlinear polarization evolution (NPE) and emitting sub-500-fs pulses at 2.8  $\mu\text{m}$  with energies up to 7 nJ were also recently reported [104; 105; 107]. In the MIR region, fluoride glass fibers generally present anomalous dispersion ( $\beta_2 < 0$ ), forcing these lasers to operate in the soliton regime. This regime has proven to limit the duration, energy and peak power of the generated pulses in the near-IR [130]. However, since the fundamental soliton energy is given by [112] :  $E_s = \lambda|\beta_2|A_{eff}/(\pi\tau_0n_2)$  ( $\tau_0$  : pulse width,  $n_2$  : nonlinear refractive index,  $A_{eff}$  : effective mode area, scaling as  $\lambda^2$ ), meaning the energy scales as  $\lambda^3$ , significant improvements are expected in terms of output pulse energy as one shifts further into the MIR.

The anomalous dispersion regime can also be instrumental for controlling the central wavelength of the pulses through the process known as soliton self-frequency shift (SSFS) [114; 138]. Such technique was already exploited to generate MIR soliton pulses up to 3.42  $\mu\text{m}$  in chalcogenide fibers [139] and up to 2.65  $\mu\text{m}$  in tellurite fibers [140], but with energies limited to tens of picojoules. The use of fluoride fibers seems more promising for efficiently reaching the 3-5

$\mu\text{m}$  band through SSFS as these fibers possess a relatively low nonlinear refractive index and large anomalous dispersion. An impressive soliton shift up to  $4.3 \mu\text{m}$  in an indium-fluoride glass fiber was recently obtained by Tang et al. [141] using a  $1.9\text{-}\mu\text{m}$  fiber laser system as the pump source. However, the lack of efficient MIR femtosecond laser sources in these previous experiments implies the use of microstructured fibers or complex high-power laser systems operating in the near-IR in order to produce a spectral shift important enough to reach the mid-IR. Moreover, these shifts are generally associated with the generation of dispersive waves or secondary solitons as well as losses through the SSFS process that reduces significantly the energy transfer into the MIR and thus limits the power scalability of these systems.

In this Letter, we used an ultrafast fiber oscillator followed by a fiber amplifier both operating at  $2.8 \mu\text{m}$  to demonstrate the enormous potential of the SSFS approach for the MIR. Accordingly, a watt-level fluoride fiber based femtosecond source tunable from  $2.8$  to  $3.6 \mu\text{m}$  is demonstrated. This system, which relies solely on the use of erbium-doped zirconium fluoride fibers, allows for the generation of stable sub-250-fs solitons with energy and estimated peak power up to  $37 \text{ nJ}$  and  $212 \text{ kW}$ , respectively. More than  $45 \%$  of the output spectral power lies within the main shifted soliton, corresponding to an average output power of up to  $2 \text{ W}$  above  $3.2 \mu\text{m}$ , a 20-fold improvement over previous SSFS demonstrations in terms of average power.

### 3.4 Experiment

A schematic of the laser system is presented in Fig. 3.1. The fiber ring oscillator mode-locked by NPE is similar to that presented in [107]. The  $3\text{-m}$  fiber length and the  $65 \%$  output coupling in the cavity were chosen to ensure a self-starting operation of the laser.  $440\text{-fs}$ ,  $4.7\text{-nJ}$  pulses with a peak power of  $9.5 \text{ kW}$  are generated from this source at a repetition rate of  $57.9 \text{ MHz}$ . In the laser cavity as well as in the external amplifier, the gain is provided by a double-clad zirconium fluoride fiber (*Le Verre Fluoré*) that consists of a  $7 \%$  mol. Er-doped core ( $\phi = 15 \mu\text{m}$ ,  $\text{NA} = 0.12$ ) surrounded by a truncated  $260\text{-}\mu\text{m}$  diameter inner cladding ( $\text{NA} > 0.46$ ) that guides the pump beam. Both fibers are pumped via CW multimode laser diodes providing up to  $30$  and  $50 \text{ W}$  for the oscillator and the amplifier respectively. The laser output is separated from the pump beam via a dichroic mirror ( $\text{DM}_2$ ) and then passes through an optical isolator at  $2.8 \mu\text{m}$  (*Thorlabs*) to prevent backward reflections in the amplifier from destabilizing the mode-locked oscillator.

### 3.5 Results and discussion

The external amplifying system was first tested with different lengths of Er-doped fibers. Each gain fiber is angle-cleaved ( $\sim 4^\circ$ ) at the input and is terminated by an angle-cleaved  $\text{AlF}_3$  endcap to prevent the fiber tips from degradation at high average and peak powers [124]



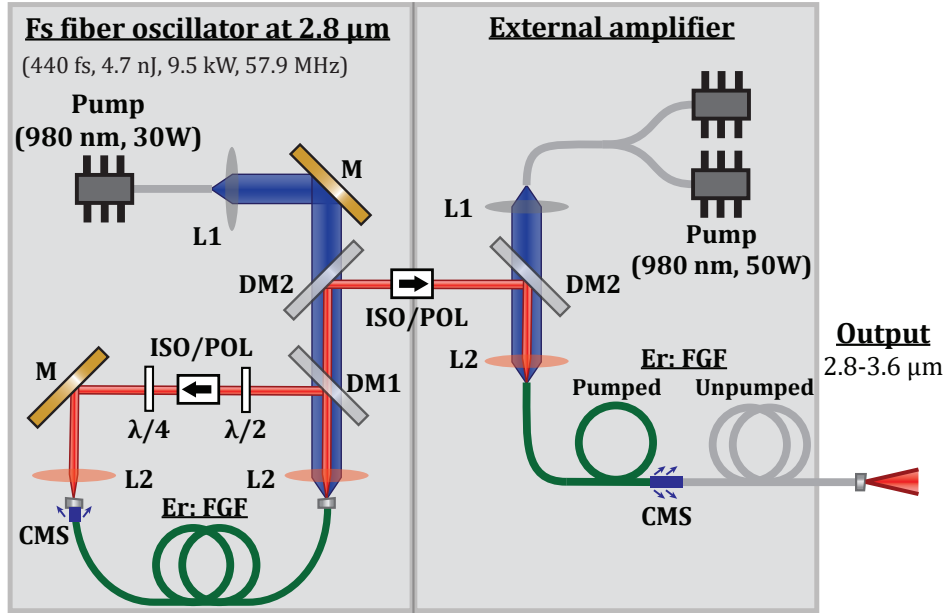


FIGURE 3.1 – Experimental setup.  $L_1$ , collimation lenses for the pump beam;  $L_2$ , aspheric ZnSe lenses ( $f = 12.5$  mm); Er :FGF, erbium-doped fluoride glass fiber. M, gold mirrors; DM, dichroic mirrors;  $DM_1$ ,  $R = 35\%$  at  $2.8\ \mu\text{m}$ , HT at  $980$  nm;  $DM_2$ , HR at  $2.8\ \mu\text{m}$ , HT at  $980$  nm; ISO/POL, isolator that also acts as a polarizer;  $\lambda/2$  and  $\lambda/4$ , half waveplate and quarter waveplate. CMS, cladding mode stripper.

and also to avoid early CW lasing in the amplifier by reducing the feedback. The remaining pump signal at the end of the amplifier is removed via a cladding mode stripper (CMS). Figure 3.2 compares the resulting output spectra and autocorrelation traces for an average power of  $\sim 2.4$  W at the output and for amplifier lengths of 1.5 m and 5 m respectively. The spectra were obtained using a commercial optical spectrum analyzer that covers the wavelength range from 1.5 to  $3.4\ \mu\text{m}$  (Yokogawa, AQ6376). In the case of the 5-m amplifier, the main soliton is Raman-shifted out of the gain bandwidth during propagation, causing the non-shifted residual background to be amplified in the remaining section of the amplifier. For the 1.5-m amplifier, although more pump power is needed to obtain a similar output average power, most of the available power is transferred to the soliton as it remains within the erbium gain bandwidth during its propagation through the amplifier. A shorter amplifier length thus allows for a more efficient amplification of the main pulse while also increasing the CW lasing threshold. Figure 3.2 also presents the corresponding autocorrelation traces obtained from a commercial intensity autocorrelator (Femtochrome, FR-103XL). The small sidelobes observed for the 1.5-m amplifier case indicates that the main soliton could not be amplified any further, giving rise to an amplification of the small pedestal accompanying the main pulse [115]. Nevertheless, both amplifier lengths result in the generation of  $\sim 200$ -fs pulses. Assuming that most of the output energy ( $\sim 35$  nJ) is in the main soliton for the 1.5-m amplifier, this corresponds to an

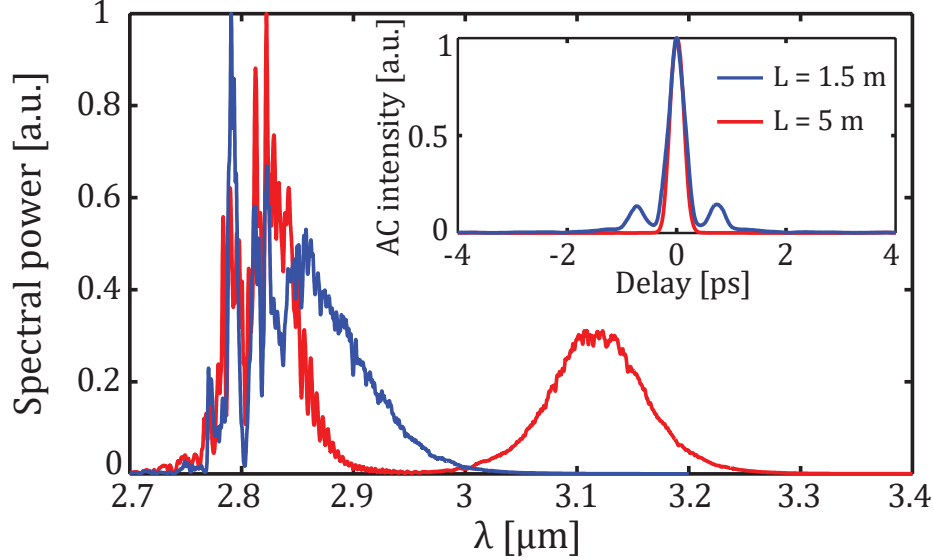


FIGURE 3.2 – Comparison of the measured output spectra and autocorrelation traces for the 1.5-m (blue) and the 5-m (red) amplifiers.

estimated peak power of 150 kW at a central wavelength of 2.85  $\mu\text{m}$ .

In order to efficiently convert most of the energy in the main soliton and maximize its shift toward longer wavelengths, we prepared a long segment of Er-doped fluoride fiber with a pump stripper made of a high-index polymer that surrounds the inner cladding after the first 1.25 m. The first section of the fiber acts as a short amplifier for the soliton pulses while the remaining unpumped segment acts as a passive fiber to shift the amplified soliton further into the MIR. Since the 2.8- $\mu\text{m}$  laser transition of erbium involves the  $^4I_{11/2}$  and  $^4I_{13/2}$  excited states, there is no absorption of the signal by erbium-ions in the absence of a pump. This approach greatly reduces the complexity and the losses of the system as it does not require any splice between the active and the passive single mode fibers. As in the previous case, the fiber is terminated by an  $\text{AlF}_3$  endcap ( $L = 600 \mu\text{m}$ , angle =  $3^\circ$ ).

Figure 3.3 presents the normalized output spectra as a function of the incident pump power in the amplifier. Two fiber lengths were tested ( $L = 8 \text{ m}$  and  $22 \text{ m}$ ), both having an amplifying section of 1.25 m. The spectra were taken using a scanning monochromator (Digikrom DK480) with a 0.4-nm resolution. The monochromator was coupled to a nitrogen-cooled InSb detector with high sensitivity up to 5.5  $\mu\text{m}$ . The spectra were corrected according to the spectral response of the characterization setup calibrated using a black body emitter as a reference source. As the pump power is increased a clean and isolated soliton continuously shifts toward longer wavelengths in the passive fiber, reaching a maximum central wavelength of 3.4  $\mu\text{m}$  in the 8-m fiber and 3.59  $\mu\text{m}$  in the 22-m fiber. For high pump powers ( $> 20 \text{ W}$ ), the main soliton shift begins to slow down and a fraction of the amplifier gain is given to the residual

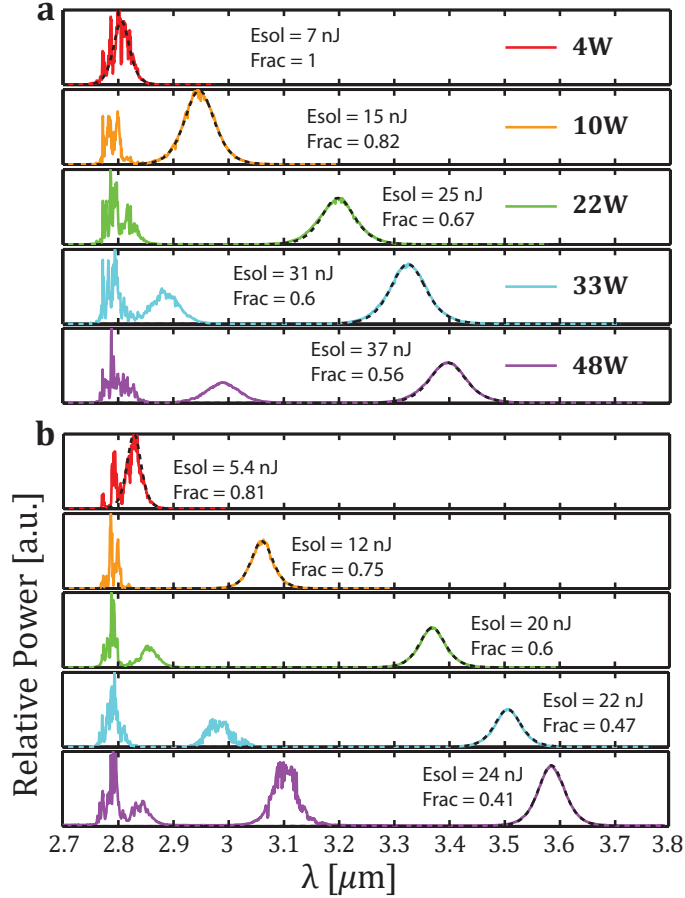


FIGURE 3.3 – Measured output spectra as a function of the incident pump power (colored values) for two different fiber lengths : a)  $L = 8$  m, b)  $L = 22$  m. For both systems, the active (amplifier) length is 1.25 m. The spectra of the main shifted soliton were fitted with the corresponding spectra of an ideal sech-shape pulse (dashed lines). The calculated peak power and energy of the main soliton are indicated for each spectrum.

background, giving rise to a second noisier soliton that is further shifted in the unpumped fiber length.

The autocorrelation (AC) traces of the main shifted soliton corresponding to the first three spectra of Fig. 3.3 for the 22-m system are presented in Fig. 3.4. The AC traces were only measured for low pump powers ( $< 30$  W) as the detector sensitivity rapidly decreases once the main soliton is shifted above  $3.2 \mu\text{m}$ . Moreover, the error on the pulse duration inferred from the AC trace was evaluated to be of the order of  $\pm 20$  fs. On the other hand, the pulse duration of the main soliton for all pump powers can be evaluated with a good accuracy simply from the output spectra. In fact, the corresponding spectra of the isolated solitons at longer wavelengths fit almost perfectly with the transform-limited spectra of ideal sech-shape pulses (see Fig. 3.3). The inset of Fig. 3.4 shows the calculated pulse duration from the spectra for both fiber lengths. The durations obtained from the spectra with the 22-m fiber (red circles)

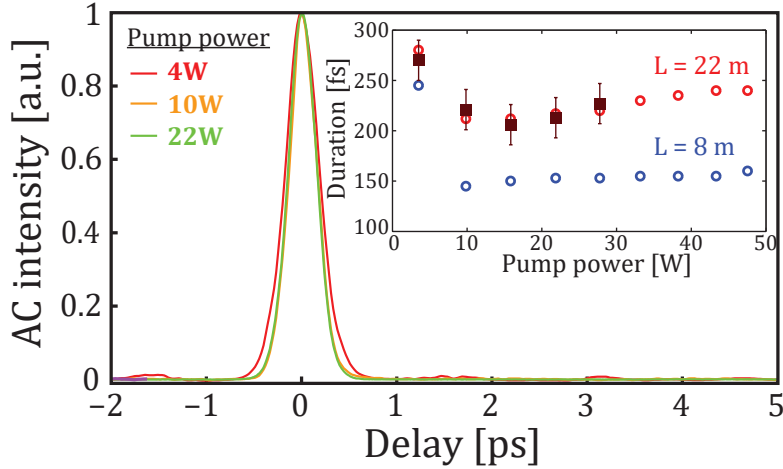


FIGURE 3.4 – Autocorrelation traces of the main output soliton for the first three pump powers obtained with the 22-m fiber. Inset : pulse duration calculated from the spectra obtained with an 8 and a 22 m fiber. A comparison between the pulse durations inferred from the AC traces (squares) and those calculated from the spectra (circle) is also shown for the 22 m fiber.

are also compared on the same graph with those inferred from the AC traces at low pump power (red squares). From Fig. 3.4, we see that the pulse duration of the main soliton slightly increases as it shifts towards longer wavelengths.

The total output power as a function of the incident pump power is shown in Fig. 3.5 for both fiber lengths (black symbols). The average power contained within the main soliton was estimated from the spectra and is also displayed in Fig. 3.5 (colored symbols). For the 22-m fiber, these values were verified with a direct measurement of the average power within the main soliton using a long-pass filter at  $3.2 \mu\text{m}$ . These measurements were only valid in a certain range of pump powers, i.e. when only the main soliton is totally transmitted through the filter. Over the whole tuning range, more than 45 % of the total energy was still contained within the main amplified soliton. In the case of the 8-m fiber, the average power in the  $3.4\text{-}\mu\text{m}$  soliton is 2.1 W, which actually surpasses the highest average power reported so far from a CW fiber laser around  $3.4 \mu\text{m}$  [137]. A clean soliton at  $3.6 \mu\text{m}$  with an average power of 1.7 W is obtained with the 22-m fiber. The lower average output powers obtained with the longer system are probably a consequence of the background losses of the fiber in the  $2.8\text{-}3.6 \mu\text{m}$  spectral range (from  $\sim 0.03$  to  $0.06 \text{ dB/m}$ ) and the additional losses induced from the SSFS process.

The estimated energies and peak powers of the main soliton as a function of the pump power are calculated using both the temporal durations and the average power inferred from the spectra since these measurements were made for the whole range of pump powers. These values are indicated on each spectrum of Fig. 3.3. Soliton pulses with 37 nJ of energy and

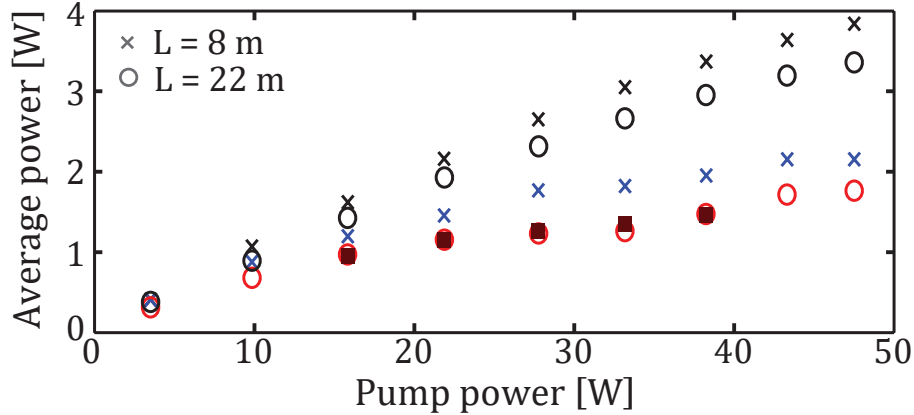


FIGURE 3.5 – Total average power (black) and average power in the main soliton (red and blue) estimated from the spectra as a function of the incident pump power for both fiber lengths. The measured average power in the main soliton using a long-pass filter at  $3.2 \mu\text{m}$  is also presented for the 22-m fiber (squares).

more than 200 kW of peak power are generated at  $3.4 \mu\text{m}$  with the 8-m fiber while a 30-nJ, 109-kW soliton at  $3.59 \mu\text{m}$  is obtained using the 22-m system. Based on the nonlinear parameter and group velocity dispersion of the fiber evaluated from the Sellmeier equations derived for multicomponent fluoride glasses [110], the generated pulses have a soliton number of 1.24 and 1.07 at  $3.4 \mu\text{m}$  and  $3.6 \mu\text{m}$  respectively. Despite the uncertainty on the estimated nonlinear and dispersive properties of the fiber in this wavelength range, these values are relatively close to unity and thus further confirm that high energy fundamental solitons are generated from this system.

Finally, the stability of the 8-m system was also evaluated by measuring the normalized power fluctuations at the central wavelength of the main soliton (i.e. at  $3.4 \mu\text{m}$ ) over one hour (acquisition rate = 4 Hz) using the monochromator with a 0.4-nm spectral resolution. A standard deviation of 0.35% (see inset of Fig.3.6) in the normalized output power demonstrates the good stability of the system. As shown in Fig. 3.6, the spectrum of the output soliton remained essentially unchanged after 1 hour of operation.

As shown in Fig. 3.3, controlling the length of the passive segment allows for optimizing the output performances within a certain wavelength range. For instance, by reducing the passive fiber length, one could target the  $2.94\text{-}\mu\text{m}$  band for medical applications. The SSFS also has a strong dependence on the duration of the generated soliton ( $\Delta f \propto \tau_0^{-4}$ ), which depends on the nonlinear and dispersive properties of the fiber [112]. The geometry and guiding properties of the Er-doped fiber could thus be engineered to allow further shifting into the MIR. Indium fluoride fibers, which have a high transmittance up to  $5 \mu\text{m}$ , could also be used to produce tunable high-power soliton pulses covering the whole  $3\text{-}5 \mu\text{m}$  region. Moreover, with the developments of new laser architectures and fiberized components in the MIR, this

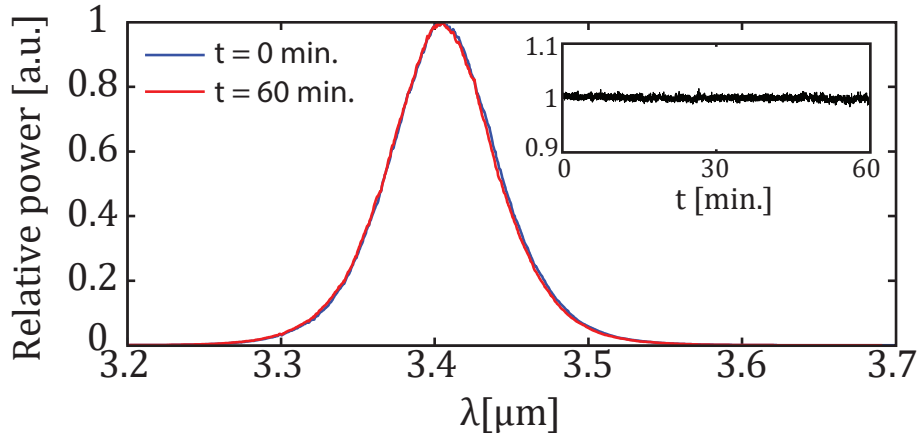


FIGURE 3.6 – Measured spectra of the 3.4- $\mu\text{m}$  soliton before and after one hour of operation. Inset : Normalized power at 3.40  $\mu\text{m}$  during 1 hour.

system could become alignment-free and extremely compact and robust.

### 3.6 Conclusion

In conclusion, we have demonstrated a highly efficient fiber laser system that produces soliton pulses tunable from 2.8 to 3.6  $\mu\text{m}$  by simply varying the amplifier pump power. This simple amplification scheme allows for the generation of stable and isolated transform-limited solitons of sub-200-fs duration with energy up to 37 nJ and estimated peak power in excess of 200 kW. These results are clearly the best performances reported so far in terms of pulse energy, peak power and average power for a femtosecond fiber-based source operating above 3  $\mu\text{m}$ . This watt-level tunable system that covers the fundamental absorption band of liquid water and many polymers (e.g. polyethylene, polystyrene, etc.) could eventually reach an important atmospheric transmission window centered at 3.9  $\mu\text{m}$  for countermeasure and remote sensing applications. Further improvements of such system could propel MIR ultrafast lasers out of research laboratories and into the commercial realm, allowing the development of exciting applications such as breath analyzers [14] and laser scalpels [19].

### Aknowledgments

The authors thank Yğit Ozan Aydın, Frédéric Jobin, Marc D’Auteuil and Souleymane Toubou Bah for technical assistance. We also thank Francis Théberge from DRDC Valcartier for providing key components to perform the experiments.

## Chapitre 4

# Numerical modeling of mid-infrared ultrashort pulse propagation in $\text{Er}^{3+}$ : fluoride fiber amplifiers

**S. Duval**<sup>1</sup>, M. Olivier<sup>1,2</sup>, L.R. Robichaud<sup>1</sup>, V. Fortin<sup>1</sup>, M. Bernier<sup>1</sup>, M. Piché<sup>1</sup>, and R. Vallée<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Centre d'optique, photonique et laser, Université Laval, Québec G1V 0A6, Canada

<sup>2</sup> Département de physique, Cégep Garneau, Québec G1S 4S3, Canada

Published in JOSA B, vol. **35**, p. 1450-1462 (2018).

### 4.1 Résumé

Nous présentons un modèle numérique pour l'étude de l'amplification et de la conversion spectrale d'impulsions ultrabrèves à  $2.8 \mu\text{m}$  dans les fibres de verre fluoré dopées à l' $\text{Er}^{3+}$ . Ce modèle, qui intègre des mesures précises du gain et des propriétés Raman des fibres de fluorozirconate, est en accord avec les résultats expérimentaux. De nouvelles caractéristiques très intéressantes de cet amplificateur à fibre dans l'infrarouge moyen sont déterminées en variant les propriétés du signal d'entrée et les paramètres de la fibre. Parmi ces caractéristiques, on retrouve les propriétés d'attraction de l'amplificateur qui améliorent de façon significative la stabilité à la sortie du système. En ajustant adéquatement les paramètres de la fibre et du signal d'entrée, le modèle prédit la génération d'un supercontinuum dans l'infrarouge moyen avec plus de 4 W de puissance moyenne ou la génération d'impulsions ultrabrèves accordables à des longueurs d'onde supérieures à  $3 \mu\text{m}$  avec des puissances crêtes excédant 400 kW.

## 4.2 Abstract

We present a numerical model to study the amplification and spectral conversion of ultrashort pulses at 2.8  $\mu\text{m}$  in  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fibers. This model includes accurate measurements of the gain and Raman properties of fluorozirconate fibers and agrees well with the experimental results. Interesting new features of such mid-infrared fiber amplifier are discussed for various seeding conditions and fiber parameters. Among these features is the attractor property of the amplifier that significantly increases the output stability of the tunable ultrafast system. When using the appropriate seed and fiber parameters, the model predicts the generation of a mid-infrared supercontinuum output with more than 4 W of average power or the generation of tunable ultrashort pulses above 3  $\mu\text{m}$  with peak powers exceeding 400 kW.

## 4.3 Introduction

Ultrafast fiber lasers in the mid-wave infrared window (MWIR), extending from 3 to 5  $\mu\text{m}$ , show great promise in both fundamental and applied sciences. Well-defined spectral signatures of various molecular species are found in this spectral region [8], which also contains one of the most important atmospheric transmission window [24]. These simple, compact and efficient lasers can thus achieve the key performance parameters, namely high stability, high peak power and broad spectrum, for enabling breakthrough applications in remote spectroscopy [8; 118], laser-matter interaction [19; 142] and countermeasures [24], to name just a few.

Novel laser transitions in fluoride fibers using various rare-earth dopants ( $\text{Er}^{3+}$ ,  $\text{Dy}^{3+}$ ,  $\text{Pr}^{3+}$  and  $\text{Ho}^{3+}$ ) have recently enabled the generation of coherent CW or pulsed light above 2.5  $\mu\text{m}$  directly from a fiber laser [135; 143; 108; 144]. Due to their high gain efficiency around 2.8  $\mu\text{m}$  and their simple pumping scheme,  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fibers are currently the most advanced technologies among all fluoride fiber amplifiers for ultrashort pulse generation, amplification and spectral conversion in the MWIR [104; 105; 145; 146; 147]. Depending on the input pulse properties (e.g. duration, peak power, repetition rate, etc.), the generation of either tunable ultrashort solitons or supercontinuum above 3  $\mu\text{m}$  can be achieved with such fiber amplifiers. This simple in-amplifier spectral conversion scheme at 2.8  $\mu\text{m}$  significantly improves the optical performances in the MWIR as compared to standard fiber-based approaches using near-IR seeds [141; 139; 140; 148].

In order to investigate the potential and limitations of this recent approach, the system parameters and the underlying mechanisms that govern the spectral conversion dynamics in these Er-doped fluoride fibers have to be clearly identified. Ultrashort pulse amplification in near-IR fiber amplifiers has been extensively studied [115; 149], but the development of an accurate model for predicting the behavior of 2.8- $\mu\text{m}$  fluoride glass fiber amplifiers remains challenging. The study of ultrashort pulse propagation dynamics inside fiber amplifiers requires a precise knowledge of the gain, dispersive and nonlinear properties of these fibers. Different



numerical approaches have been proposed for modeling mid-IR soliton propagation [141; 150] and supercontinuum generation [148; 151] in passive fluoride fibers. However, the fiber properties vary from one study to another. Added to these uncertainties is the complexity of modeling the 2.8- $\mu\text{m}$  gain in  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fibers. Some questioning about the gain parameters used for modeling continuous-wave 2.8- $\mu\text{m}$  and 3.5- $\mu\text{m}$  Er-doped fiber lasers still persists [152; 153; 136; 154].

In this paper, we propose a comprehensive and accurate numerical model to investigate the propagation of ultrashort pulses in  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber amplifiers at 2.8  $\mu\text{m}$ . New measurements of the cross sections spectra and the Raman gain of fluorozirconate (FZ) fibers are presented. The model agrees well with the experimental results. We also provide an in-depth analysis of the entire process of soliton cascade in fiber amplifiers and highlight new interesting features under different seeding conditions and fiber parameters. One such feature is that the output properties of the main amplified pulse remain nearly unchanged under small variations of the input pulses. This attractor property of the amplifier ensures a highly stable output. This numerical study could thus lead to the development of compact, reliable and efficient broadband sources covering the whole MWIR region. The generation of  $> 400$  kW peak power soliton pulses around 3.3  $\mu\text{m}$ , watt-level supercontinuum or tunable isolated solitons in the 3 - 4  $\mu\text{m}$  range are predicted using appropriate seed and fiber parameters.

The paper is organized as follows : Section 4.4 presents an overview of the mid-infrared fiber amplifier system that is numerically investigated. Section 4.5 describes the pulse propagation model that includes gain, dispersion, Kerr nonlinearity and higher-order nonlinear effects. Section 4.6 introduces a complete characterization of the erbium-doped FZ fiber used in the simulations. Measurements of the cross-section spectra of the 2.8- $\mu\text{m}$  laser transition and the Raman gain in such fiber are presented. In section 4.7, the results obtained from the numerical model are compared with the experimental data. The pulse evolution dynamics inside the amplifier is described in section 4.8. Finally, in sections 4.9 and 4.10, the impact of the input pulse parameters and the fiber properties on the output signal are discussed, along with some interesting features of the propagation dynamics inside the amplifier.

## 4.4 Fiber amplifier system

A simplified schematic of the fiber amplifier is depicted in Fig. 4.1. In our previous experimental investigations, the seed laser at 2.8  $\mu\text{m}$  was either a mode-locked fiber laser capable of generating pulses as short as 200 fs [104; 147] or an OPG source that produces 400-ps pulses [145; 146]. The present paper will focus on the amplification of ultrashort pulses with durations from 50 fs to  $< 5$  ps to reduce the calculation time while keeping a good temporal resolution. As discussed in the following sections, the underlying mechanisms occurring in the amplifier with longer seed pulses are expected to be similar.

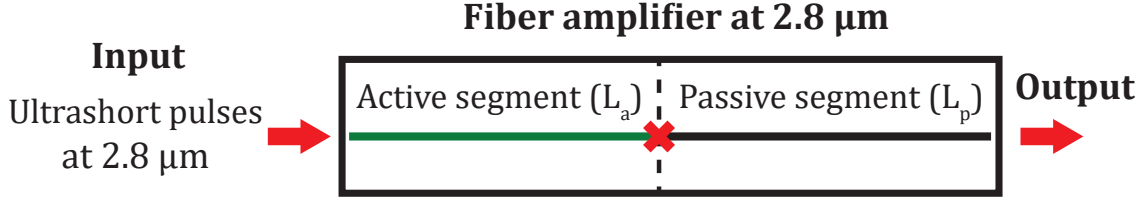


FIGURE 4.1 – Schematic of the fiber amplifier system.  $L_a$  : Length of the active segment ;  $L_p$  : Length of the passive segment

The ultrashort pulses generated from the seed laser at  $2.8 \mu\text{m}$  are sent into the fiber amplifier that is separated in two parts. The amplification of the pulses occurs in the first part, defined as the active segment. The amplified pulses are then shifted toward longer wavelengths in the second part (passive segment). The active segment of length  $L_a$  is pumped through the cladding in a co-directional (forward) scheme. The passive segment of length  $L_p$  can be the same but unpumped fiber [147] or a fiber with a different geometry than the active segment [146]. In the latter case, the splice losses due to the mode mismatch between both fibers must be included in the simulations. Since both ends of the fiber amplifier are either angle-cleaved or spliced to an endcap in the experiments, the signal feedback in the amplifier is neglected in the simulations.

## 4.5 Numerical model

An overview of the mathematical model developed to study the pulse propagation in erbium-doped FZ fibers is presented in this section. The numerical methods used to solve the propagation equation are also briefly discussed.

### 4.5.1 Propagation equation and numerical approach

To model the propagation of ultrashort pulses inside the amplifier, we use the generalized nonlinear Schrödinger equation (GNLSE) [149] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} = & i[\beta(\omega) - \beta(\omega_0) - \beta_1(\omega - \omega_0)] \tilde{A} + \left( \frac{g(z, \omega) - \alpha(\omega)}{2} \right) \tilde{A} \\ & + i\mathcal{F} \left\{ \left( \gamma(\omega_0 + i\gamma_1 \frac{\partial}{\partial T}) \right) \left( A \int_{-\infty}^{\infty} R(T') |A(z, T - T')|^2 dT' \right) \right\}. \end{aligned} \quad (4.1)$$

The GNLSE is solved by a standard split-step Fourier method where the dispersion, gain and loss terms are treated in the frequency domain and the nonlinear term in the time domain

[111].  $\mathcal{F}\{\}$  is the Fourier transform operator and  $\tilde{A} = \tilde{A}(z, \omega)$  denotes the Fourier transform of the field envelope  $A = A(z, t)$ .  $\beta(\omega)$  is the propagation constant of the fundamental mode and  $\beta_1 = \partial\beta/\partial\omega$  is evaluated at the carrier frequency of the input pulse  $\omega_0$ , corresponding to a central wavelength of  $\lambda_0 = 2.8 \mu\text{m}$ .  $g(z, \omega)$  and  $\alpha(\omega)$  are the gain and background loss coefficients, respectively.  $T = t - \beta_1 z$  is a retarded time moving at the group velocity of the input pulse.  $\gamma(\omega_0)$  is the nonlinear parameter of the fiber at the carrier frequency of the input pulse, defined as  $\gamma(\omega_0) = (n_2 \omega_0)/(c A_{\text{eff}}(\omega_0))$ , where  $A_{\text{eff}}(\omega_0)$  is the mode field area,  $c$  is the speed of light in vacuum and  $n_2$  is the nonlinear refractive index of the fiber. We use the generally accepted value of  $n_2 = 2.1 \times 10^{-20} \text{m}^2/\text{W}$  for FZ fibers [148]. The spectral dependence of  $A_{\text{eff}}(\omega)$  is taken into account through  $\gamma_1$ , the first term in the Taylor series expansion of the nonlinear parameter, that is defined as  $\gamma_1 = \partial\gamma/\partial\omega$  at the carrier frequency of the input pulse.  $R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t)$  represents the nonlinear response function of the fiber, including the instantaneous and delayed (Raman) responses. The values of  $f_R$  and  $h_R(t)$  are determined from the measurement of the Raman gain spectrum of the FZ fiber (see Section 4.6). The nonlinear term is treated in the time domain at each propagation step using a fourth-order Runge-Kutta integration scheme.

#### 4.5.2 Modeling of the erbium gain at 2.8 $\mu\text{m}$

Compared to standard laser transitions in the near-infrared (1  $\mu\text{m}$ , 1.5  $\mu\text{m}$  or 2  $\mu\text{m}$ ), the 2.8- $\mu\text{m}$  transition in heavily-erbium-doped fluoride fibers involves population levels with longer lifetimes, a strong pump excited state absorption along with several energy-transfer and cross-relaxation processes between neighboring ions. This complex dynamics leads to a set of seven coupled nonlinear rate equations for the population of the energy levels. A simplified schematic of the energy levels is depicted in Fig. 4.2. The 2.8- $\mu\text{m}$  laser transition occurs between the  $^4I_{11/2}$  and  $^4I_{13/2}$  excited states. Simple analytical relations between the gain parameters and the intensity of both the signal at 2.8  $\mu\text{m}$  and the pump at 980 nm cannot be easily obtained. The situation is even more complex in the context of ultrashort pulses with continuously varying spectra that gradually expand beyond the gain bandwidth along their propagation. We thus present an approach based on the rate equations of the system presented in Fig. 4.2 (see section 4.12 for the complete equations) that includes the spectral dependence of the gain. As will be discussed in section 4.7, we use the weakly interacting (WI) values for the transition rates of the energy-transfer upconversion and cross relaxation processes ( $W_{11}$ ,  $W_{22}$  and  $W_{50}$  in Fig. 4.2) [136]. All the gain parameter values are listed in section 4.12. Since the repetition rate of the ultrafast seed is in the MHz regime, the elapsed time between each pulse ( $\sim \text{ns}$ ) can be assumed to be much shorter than the characteristic lifetimes ( $> \mu\text{s}$ ) of the energy levels involved in the transition. Under these conditions, the rate equations can be solved in the steady-state regime ( $dN_i(z, t)/dt = 0$ ) at each propagation step  $\Delta z$  along the amplifier.

The spectral dependence of the gain is included in the rate equations via the effective laser

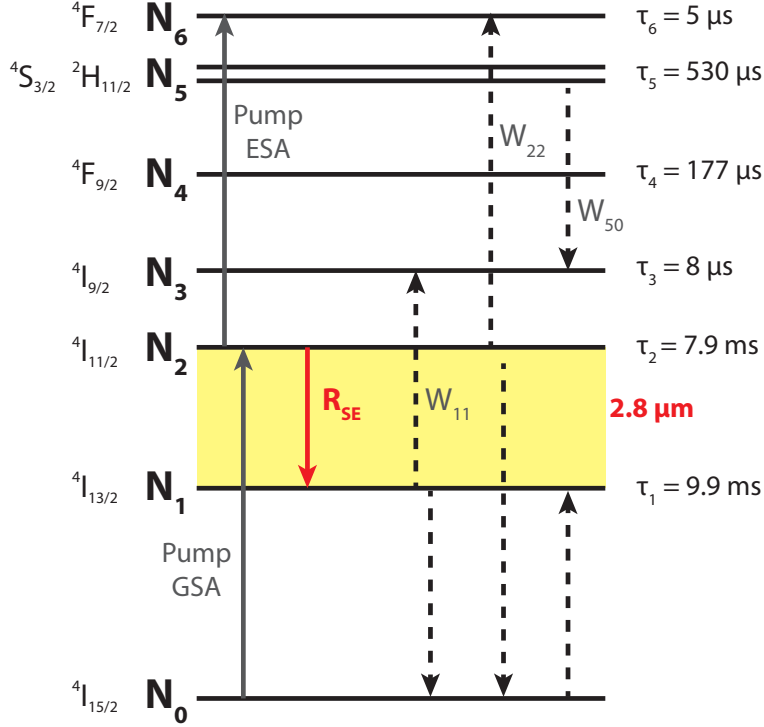


FIGURE 4.2 – Partial energy-level scheme and the relevant energy transfer processes involved in the  $2.8 \mu\text{m}$  laser transition in Er-doped fluoride fibers. Pump GSA and ESA : Ground state and excited state absorption of the 980-nm pump.  $R_{SE}$  :  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  laser transition rate.  $W_{11}$ ,  $W_{22}$  and  $W_{50}$  : Coefficients for the energy-transfer upconversion and cross relaxation processes.

transition rate  $R_{SE}(z)$ , defined as :

$$R_{SE}(z) = \frac{\Gamma_s f_{rep}}{\hbar A_c} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{|\tilde{A}(z, \omega)|^2}{\omega} (\sigma_{21}(\omega) N_2 - \sigma_{12}(\omega) N_1) d\omega, \quad (4.2)$$

where  $\Gamma_s$  denotes the power filling factor of the signal mode in the fiber core area  $A_c$ ,  $f_{rep}$  is the repetition rate of the seed and  $\hbar$  is the reduced Planck constant.  $\sigma_{21}(\omega)$  and  $\sigma_{12}(\omega)$  are the emission and absorption cross sections, respectively. The measurements of  $\sigma_{21}(\omega)$  and  $\sigma_{12}(\omega)$  are presented in section 4.6.

Once the rate equations are solved, the saturated gain coefficient  $g(z, \omega)$  is calculated as follows :

$$g(z, \omega) = \Gamma_s (\sigma_{21}(\omega) N_2(z) - \sigma_{12}(\omega) N_1(z)) + i\Gamma_s (\sigma'_{21}(\omega) N_2(z) - \sigma'_{12}(\omega) N_1(z)). \quad (4.3)$$

We included the imaginary part of the gain coefficient to consider the variation of the refractive index due to the gain spectral profile [155].  $\sigma'_{21}(\omega)$  and  $\sigma'_{12}(\omega)$  are related to  $\sigma_{21}(\omega)$  and  $\sigma_{12}(\omega)$

respectively by the Kramers-Kronig relations. However, this part seems to have no significant effect on the pulse propagation dynamics for the conditions examined in this paper and could have been neglected.

The power evolution of the pump along the amplifier is given by :

$$\frac{dP_p(z)}{dz} = -\Gamma_p (\sigma_{\text{GSA}}N_0(z) + \sigma_{\text{ESA}}N_2(z)), \quad (4.4)$$

where  $\Gamma_p = 0.33\%$  is the power filling factor of the pump beam inside the cladding and  $\sigma_{\text{GSA}}$  and  $\sigma_{\text{ESA}}$  are the ground state and excited state absorption cross sections of the pump, respectively. The background losses of the pump are neglected since the active fiber length  $L_a$  is usually just a few meters.

### 4.5.3 Numerical parameters

The numerical parameters are kept constant in the simulations, except when explicitly stated otherwise. We use a 400-ps wide temporal window to ensure a good spectral resolution (spectral sampling  $\Delta\omega = 15.7 \times 10^9$  rad/s) and prevent the delayed pulse to move out of the window during the simulation. The number of points in the window is fixed at  $2^{16}$ , corresponding to a temporal resolution of 6 fs. A higher temporal (or spectral) resolution did not lead to significant changes in the pulse propagation dynamics. The propagation step for the split-step algorithm is fixed at  $\Delta z = 1$  mm for both active and passive fibers.

The input pulse temporal profile, unless otherwise stated explicitly, is defined as :

$$A(0, T) = \sqrt{P_0} \text{sech}^2 \left( 1.763 \frac{T}{T_{\text{FWHM}}} \right), \quad (4.5)$$

where  $P_0$  is the peak power and  $T_{\text{FWHM}}$  is the full width at half maximum of the pulse intensity. The impact of these parameters on the amplifier output is discussed in section 4.9.

## 4.6 Fiber parameters

The experimental fiber amplifier that will be characterized and numerically investigated consists of an Er-doped FZ fiber (*Le Verre Fluoré*). This double-clad fiber has a 7 mol. % Er-doped core (NA = 0.125,  $\phi_{\text{core}} = 15.5 \mu\text{m}$ ), which enables single mode operation above  $2.5 \mu\text{m}$ . The core is surrounded by a 260- $\mu\text{m}$  inner cladding to guide the pump beam. The circular geometry of the cladding is broken by two parallel flats separated by 240  $\mu\text{m}$  to ensure a good overlap of the pump beam with the fiber core. In the simulations, we assume that this overlap corresponds to the ratio between the core and cladding areas, that is  $\Gamma_p = 0.33\%$ .

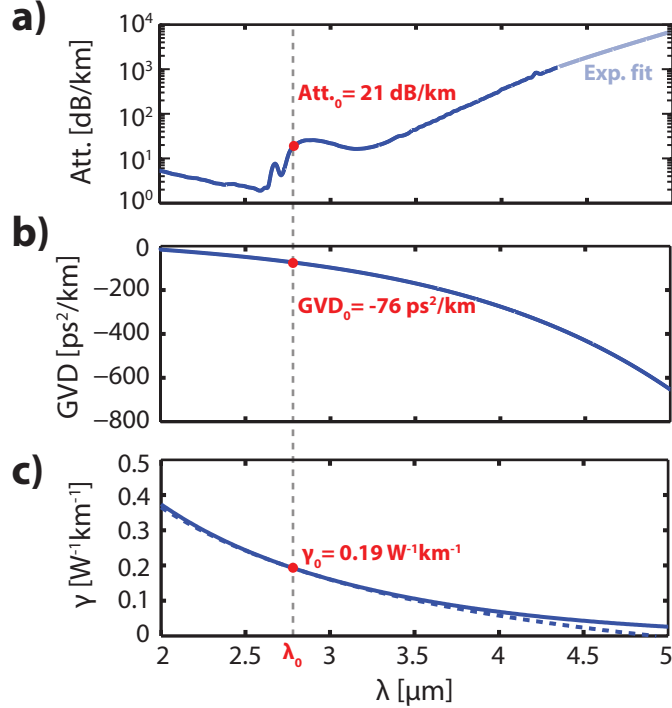


FIGURE 4.3 – Properties of the FZ fiber with  $\phi_{\text{core}} = 15.5 \mu\text{m}$ . a) Attenuation, b) group velocity dispersion and c) nonlinear parameter of the fiber as a function of the wavelength. The dash line in c) represents the estimated  $\gamma(\omega)$  used in the simulations. The fiber properties at the seed central wavelength  $\lambda_0 = 2.8 \mu\text{m}$  are also indicated in red.

#### 4.6.1 Fiber losses, dispersion and nonlinearity

The background losses of the fiber are presented in Fig. 4.3 a). The attenuation curve from 2 to  $4.3 \mu\text{m}$  was provided by *Le Verre Fluoré* and extended to the long wavelength side in the numerical model using an exponential fit.

The dispersion and nonlinear properties of the fiber were estimated from a Sellmeier fit for fluoride glasses in the wavelength range of interest [110]. The spectral dependence of the group velocity dispersion (GVD) and the nonlinear parameter of the fiber are presented in Fig. 4.3 b) and c), respectively. The dashed line in Fig. 4.3 c) shows the spectral dependence of the approximated nonlinear parameter included in the simulations based on the zeroth and first order terms of the Taylor series expansion of  $\gamma(\omega)$ . This approximation is very close to  $\gamma(\omega)$  within the spectral range of interest for the present simulations, that is between 2.5 to  $\sim 4.2 \mu\text{m}$ .

#### 4.6.2 Erbium emission and absorption cross sections around $2.8 \mu\text{m}$

The emission cross section  $\sigma_{21}(\omega)$  of our experimental fiber was determined from the fluorescence spectrum generated by a very short segment (3 cm) pumped in the cladding at low

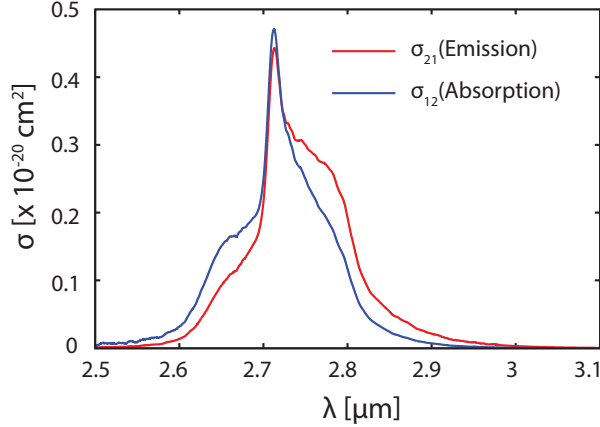


FIGURE 4.4 – Emission and absorption cross sections of the 2.8  $\mu\text{m}$  laser transition in heavily-erbium-doped FZ fibers

power ( $< 5$  W). The fluorescence spectrum was identical to those obtained with shorter fiber segments ( $< 2$  cm), showing no sign of amplified spontaneous emission. A mid-IR optical spectrum analyzer (OSA) purged in a nitrogen environment (Yokogawa, AQ6376) was used for the fluorescence measurements at a resolution of 0.4 nm. Since the fiber was directly connected to the OSA, the narrow water vapor absorption peaks that are typically observed around 2.8  $\mu\text{m}$  were significantly reduced. We used the Füchtbauer-Ladenburg relation [156] to calculate the emission cross section  $\sigma_{21}(\omega)$  from the fluorescence spectrum. The absorption cross section  $\sigma_{12}(\omega)$  was then derived from  $\sigma_{21}(\omega)$  using McCumber theory [157] with a calculated excitation energy  $\epsilon = 7.3 \times 10^{-20}$  J [158]. Both  $\sigma_{12}(\omega)$  and  $\sigma_{21}(\omega)$  are presented in Fig. 4.4. The cross-section profiles differ slightly from those measured by Wang et al. [159], especially on the long-wavelength side. This difference may be attributed to a variation in the fluoride glass composition [160].

### 4.6.3 Raman contribution

The nonlinear response function in the time domain, including the instantaneous and Raman contributions, is given by :

$$R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t), \quad (4.6)$$

where  $\delta(t)$  is the Dirac delta function. The fractional Raman contribution  $f_R$  and the Raman time response  $h_R(t)$  are determined from the experimental Raman gain  $g_R(\omega)$  using the relation [151] :

$$h_R(t) = \frac{c\Theta(t)}{\pi n_2 \omega_0 f_R} \int_0^\infty g_R(\Omega) \sin(\Omega t) d\Omega, \quad (4.7)$$

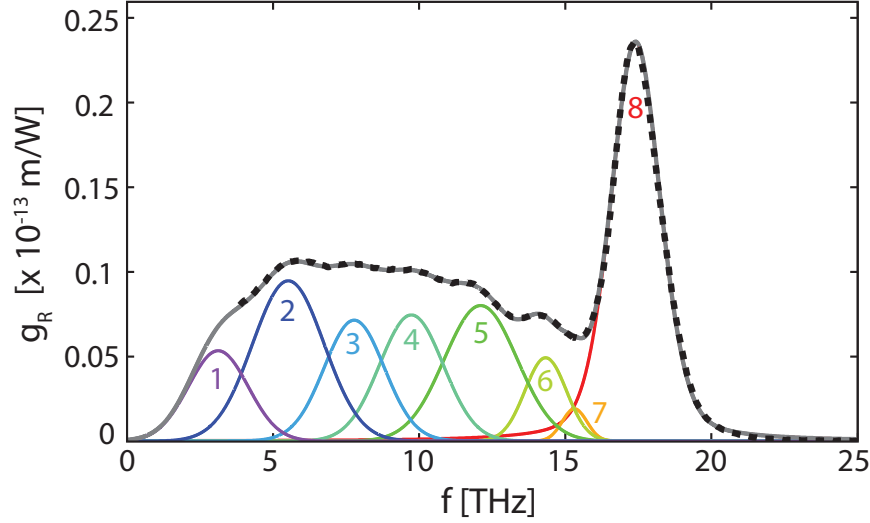


FIGURE 4.5 – Raman gain spectrum of the FZ fiber amplifier at  $2.8 \mu\text{m}$ . The dotted black curve represents the experimental measurement that begins at a relative frequency of 4 THz. The gray line is the analytical fit using 8 pseudo-Voigt profiles, also shown below the curves (see section 4.13 for the parameters of the fit).

where  $c$  is the speed of light in vacuum,  $\Theta(t)$  is the Heaviside step function to respect the causality principle and  $\omega_0$  is the carrier frequency, corresponding to  $\lambda_0 = 2.8 \mu\text{m}$ .  $f_R$  is found from the normalization rule for the Raman time response :  $\int_0^\infty h_R(t)dt = 1$ . Although several works have presented measurements and approximations for the Raman gain spectrum, different values of  $g_R(\Omega)$  and  $f_R$  have been obtained [151]. These values are likely to depend on the composition of the fluoride fibers. Since the exact form of  $g_R(\Omega)$  directly impacts the propagation dynamics of the ultrashort pulses inside our fiber amplifier, we measured the relative Raman gain. The measurement was made on an undoped FZ fiber using a MicroRaman spectroscopy system (Renishaw inVia) at 785 nm. The Raman gain profile of the Er-doped FZ fiber could not be obtained since the low-power backscattered Raman signal was lost in the generated fluorescence signal of Erbium near 800 nm. Nonetheless, since the composition of the undoped fiber is very similar to that of the fiber amplifier, the variations in the Raman gain between both fibers are expected to be negligible.  $g_R(\Omega)$  was then normalized to a maximum value of  $g_{\text{max}} = 0.236 \times 10^{-13} \text{ m/W}$  at a relative frequency of 17.4 THz based on our previous measurements in CW fiber lasers and assuming that  $g_{\text{max}} \propto \lambda^{-1}$  [119]. This normalization value leads to  $f_R = 0.15$ , which falls within the range of values found in the literature, extending from 0.06 to 0.3 [151; 161]. As a simpler alternative to the intermediate-broadening model [162], the Raman gain is fitted with pseudo-Voigt (PV) profiles to extrapolate  $g_R(\Omega)$  at small relative frequency shifts ( $< 4 \text{ THz}$ ). We considered 8 PV profiles to minimize the difference with the experimental curve. The details of this fit are given in 4.13. The comparison between the PV fit and the measured spectrum is presented in Fig. 4.5. Although  $g_R(\Omega)$  is



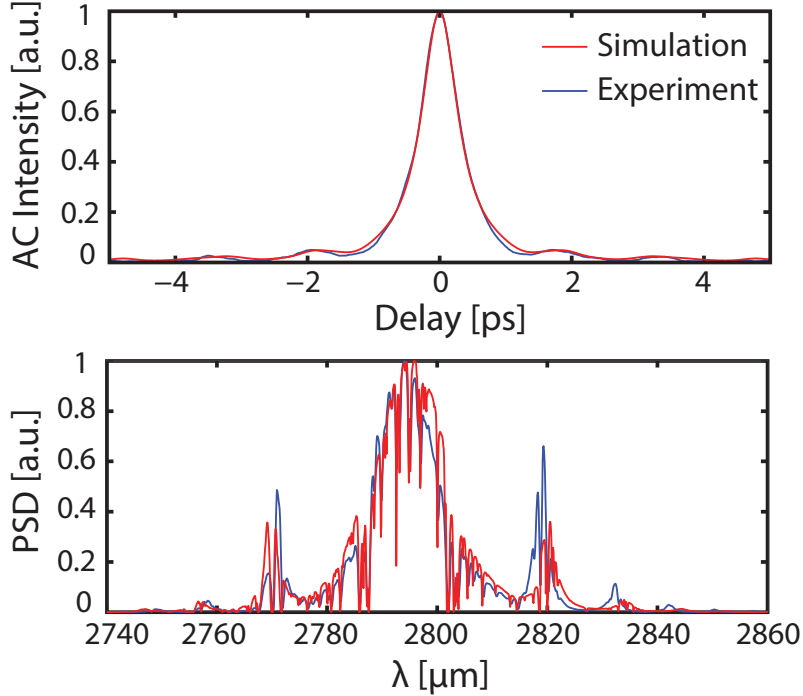


FIGURE 4.6 – Autocorrelation traces (top) and output spectra (bottom) of the experimental (blue) and simulated (red) mode-locked seed. PSD : Power spectral density.

implemented in the simulations, we present  $g_R(f)$ , where  $f = \Omega/2\pi$ , for a better comparison with previous Raman gain profiles described in the literature.

## 4.7 Comparison with experimental results

In order to validate this numerical model, we compare our numerical results with the experimental results obtained in ref. [147].

### 4.7.1 Simulation of the experimental seed

Instead of using an ideal  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile, we included a simulated input profile that mimics the properties of our experimental ultrafast seed for a better comparison with the experimental laser system. We used a previously developed model for simulating the output properties of fiber ring oscillators at  $2.8 \mu\text{m}$  mode-locked by nonlinear polarization evolution [107]. The model also includes the effects related to the atmospheric propagation of the ultra-short pulses between the oscillator and the amplifier (propagation length of 1m) [131]. Figure 4.6 presents the spectra and the autocorrelation traces of the experimental and simulated seeds, which are in very good agreement. The estimated pulse duration from the simulations is 350 fs. The injected seed power in the amplifier is  $\sim 60 \text{ mW}$ , corresponding to an injected pulse energy of  $\sim 1 \text{ nJ}$  and peak power of  $\sim 2.25 \text{ kW}$  at a repetition rate of 58 MHz. In Fig.

4.6, we clearly see the presence of dispersive waves generated by the oscillator. These spectral peaks are known as Kelly sidebands and are typical signatures of soliton fiber lasers [63]. Satellites pulses generated from the atmospheric propagation are also present. These components propagating along with the main pulse play an important role in the amplification dynamics and have to be considered in the model for an accurate comparison with the experimental results, as will be described later.

### 4.7.2 Comparison for different pump powers

The experimental amplifier system consists of the Er-doped FZ fiber previously described with  $L_a = 1.25$  m and  $L_p = 6.2$  m [147]. The output spectra of the system are compared under different pumping conditions in Fig. 4.7. The simulated output spectra are smoothed with a moving average method to adjust the resolution to that of the measured spectra (0.8 nm). In addition, the spectra are normalized to the peak value of the most shifted pulse spectra to facilitate the comparison.

Although the numerical model depends on the estimation of various fiber parameters, the numerically simulated spectra are in very good agreement with the experimental spectra. The simulated and experimental output average powers also correspond well for small input pump powers. When increasing the pump power above 30 W, the average powers obtained in the simulation gets slightly lower than the experimental values with an error that still remains small ( $< 15$  %). This indicates that the chosen gain parameters used for the 2.8- $\mu$ m laser transition in the simulations are accurate in the range of the pump powers considered. The most notable difference resides in the average and peak powers of the most shifted pulses at high pump powers. The simulated shifted pulse also experiences a larger spectral shift at lower pump powers, but the variations in its shift are less pronounced at higher pump powers as compared with the experiment. These small discrepancies could originate from the evaluation of the fiber dispersive properties using the Sellmeier fit presented in [110]. An uncertainty in the evaluation of the effective refractive index could lead to small changes in the spectral dependence of the fiber GVD, which affects the shifted pulse properties. There is also an uncertainty in the measured average powers of the most shifted pulse. In fact, these values were estimated from the experimental spectra and were then used to calculate the associated peak powers (see ref. [147] for more details).

There is an ongoing debate in the literature regarding the use of either the weakly interacting (WI) or the strongly interacting (SI) energy transfer coefficients in the modeling of  $\text{Er}^{3+}$  : fluoride fiber amplifiers and lasers [152; 163]. Our one-pass amplifier is an interesting bench test for investigating both combinations of the parameters  $W_{11}$ ,  $W_{22}$  and  $W_{50}$ , especially since the 2.8- $\mu$ m laser cross sections of the fiber were accurately measured. When the SI parameters are introduced in our simulations ( $W_{11} = 3.6 \times 10^{-23} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ ,  $W_{22} = 1.2 \times 10^{-23} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$  and  $W_{50} = 2.7 \times 10^{-23} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ ) [152], the output powers of the system exceed the experimental

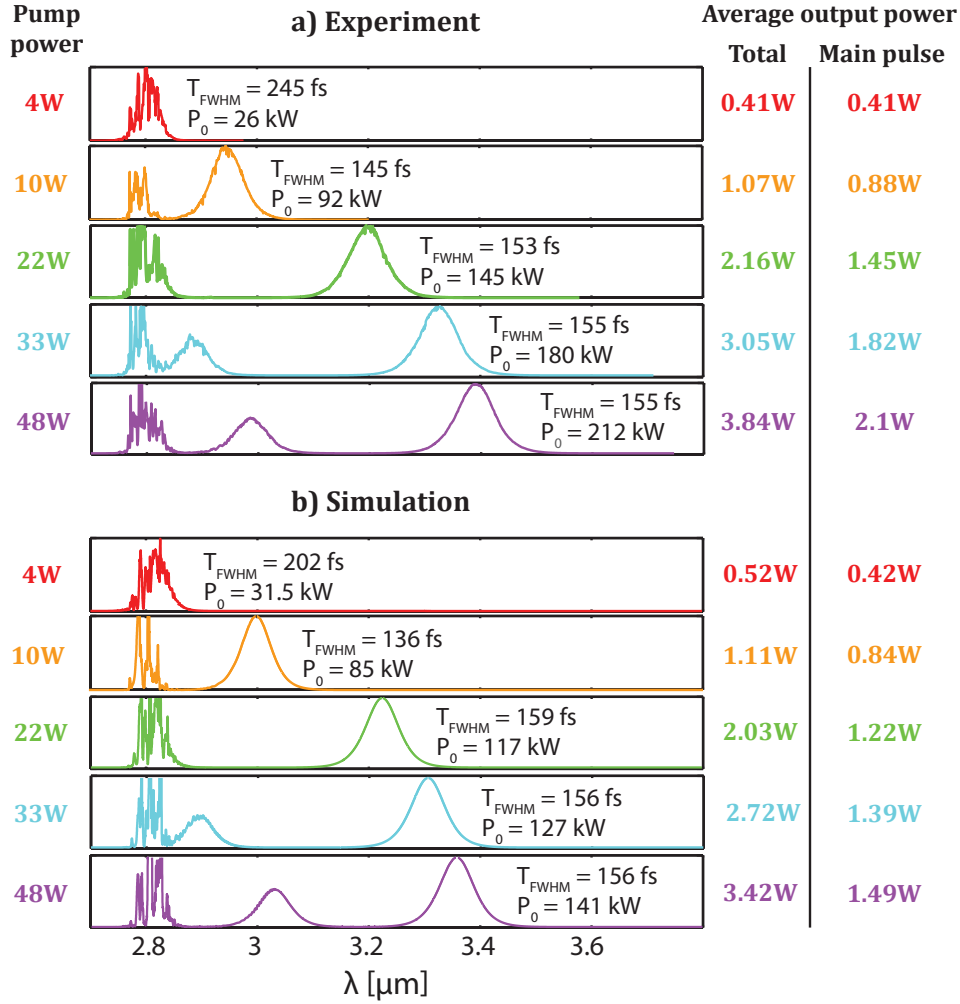


FIGURE 4.7 – Comparison between (a) the experimental results and (b) the numerical model ( $L_a = 1.25$  m,  $L_p = 6.2$  m). The normalized output spectra are presented for five input pump powers, indicated on the left side. The total average powers and the average powers contained within the most shifted pulses are also listed on the right side. The durations and peak powers of the most shifted pulse are indicated on the spectra.

values by a factor of  $\sim 2$ , leading to a completely different spectral and temporal dynamics for each pump powers. Since the pump power launched into the FZ fiber was accurately evaluated, we conclude that the WI parameters [153; 136] are more adapted for pulse amplification at 2.8  $\mu\text{m}$  in heavily-erbium-doped FZ fibers in the range of pump powers considered in this study.

The simulation tool developed here thus well reproduces the behavior of this FZ amplifier and becomes a reliable tool for predicting the output properties of this system when varying the seeding conditions or the fiber parameters, as will be shown in the next sections.

## 4.8 In-amplifier pulse propagation dynamics

We now study the pulse propagation dynamics for a fiber amplifier with similar parameters than in the previous section ( $L_a = 1.25$  m and  $L_p = 6$  m). For this purpose, we consider a 50 W input pump and an ideal  $\text{sech}^2(t)$  seed pulse with  $P_0 = 2$  kW,  $T_{\text{FWHM}} = 500$  fs and  $f_{\text{rep}} = 58$  MHz. Figure 4.8 a) presents the temporal and spectral evolution of the signal along the amplifier. The temporal and spectral profiles are also shown at different key locations (Fig. 4.8 b). In the first amplifier section, the pulse undergoes a strong amplification in the anomalous dispersion fiber, leading to a temporal compression and a symmetrical spectral broadening, a process known as adiabatic soliton compression (see Fig. 4.8 a) [116]. The amplified pulse will then reach its maximum compression point (MCP) at  $z_2 \sim 0.8$  m. The duration and peak power of the compressed pulse ( $\sim 50$  fs and  $\sim 400$  kW in this case) depend mainly on the fiber dispersive and nonlinear properties as well as the gain properties (bandwidth and pumping rate) of the amplifier. The gain bandwidth is nearly constant along the amplifier, with a typical value around 90 nm according to the simulations. Due to its very short duration and high peak power, the compressed pulse is subjected to a fast Raman spectral shift toward longer wavelengths, an effect referred to as soliton self-frequency shift (SSFS) [114; 138]. This spectral shift forces the amplified pulse to be spectrally and temporally isolated from the remaining background at  $2.8 \mu\text{m}$ , which we define as the pulse remnant. Near the end of the amplifier ( $z_3 = 1.2$  m), the main amplified pulse is shifted out of the

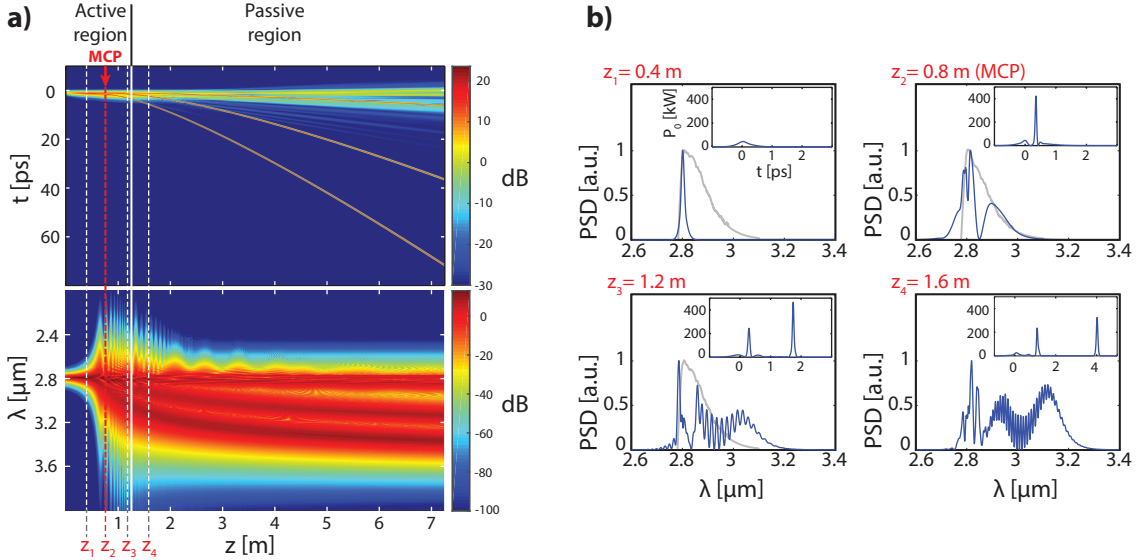


FIGURE 4.8 – In-amplifier pulse propagation dynamics. a) Temporal and spectral evolution along the amplifier ( $L_a = 1.25$  m,  $L_p = 6$  m). b) Signal spectra and the corresponding temporal profiles (insets) at four different locations inside the amplifier ( $z = 0.4$  m,  $0.8$  m,  $1.2$  m and  $1.6$  m). The gray lines in the first three spectra represent the normalized gain profile, i.e.  $g(\lambda)$  where  $g(\lambda) > 0$ . MCP = Maximum compression point.

gain bandwidth (gray line) and becomes a fundamental soliton. The pulse remnant then gets reshaped due to nonlinearity and dispersion to ultimately form a second fundamental soliton. This secondary soliton becomes short enough to start experiencing SSFS. The modulations in the spectrum arise from the interference between the two generated solitons. Such soliton cascade process was theoretically studied by Arteaga-Sierra et al. at  $1.55 \mu\text{m}$  [149]. Once the signal reaches the end of the active section, both the main and secondary solitons shift ( $z_4 = 1.6 \text{ m}$ ) at a slower rate as they propagate in the passive section. This slowdown in the soliton spectral shifts is mainly due to the rapid increase of both the fiber dispersion and effective mode area as the central wavelength of the soliton increases. The increasing background losses of the fiber at longer wavelengths (see Fig. 4.3a) also limits further shifting. Of course, this cascaded dynamics may vary significantly depending on the parameters of the seed pulses and the fiber amplifier properties. We investigate the impact of these parameters in the following sections.

## 4.9 Influence of the input signal parameters

In this section, we study the influence of the input signal properties on the system output characteristics. The simulations are performed over amplifier lengths of  $L_a = 1.25 \text{ m}$  and  $L_b = 6 \text{ m}$  with a fixed pump power of  $50 \text{ W}$ .

### 4.9.1 Input pulse duration and peak power

We first vary the input pulse temporal properties ( $P_0$  and  $T_{\text{FWHM}}$  in Eq. (4.5)) while fixing the repetition rate to  $58 \text{ MHz}$ . Fig. 4.9 shows the simulated output spectra and the characteristics of the most shifted soliton for various input parameters listed on the left. To understand this behavior, it is important to note that the output properties of the generated solitons are mainly governed by the position of the maximum compression point (MCP) of the main pulse inside the amplifier. As mentioned previously, the temporal properties of the compressed pulse depend on the fiber nonlinear, dispersive and gain properties. Consequently, for an amplifier where the material and geometrical properties are fixed and the pumping conditions are similar along the amplifier, variations in the input pulse temporal properties only slightly affect the compressed pulse properties, but they modify the position of the MCP. This position is critical on the amplifier dynamics since the SSFS of the main pulse and the amplification of the pulse remnant mostly occur after this point.

To illustrate this idea, the durations of the main pulse along the active segment of the amplifier are shown in Fig. 4.10 for different input pulse peak powers. As the peak power of the input pulse increases, the compressed pulse duration stays nearly constant but the MCP occurs earlier in the amplifier. The main amplified pulse thus starts experiencing SSFS earlier in the amplifier, leading to a slight increase of its spectral shift at longer wavelengths. As the pulse

energy at its MCP is nearly constant, the higher the input peak power (or energy), the higher the remaining energy in the pulse remnant after the MCP. The high-energy pulse remnant thus gets amplified and compressed faster for higher input peak powers, resulting in an increased number of secondary solitons that are spectrally shifted along with the main pulse, as seen in Fig. 4.9. When the input peak power is fixed and only the pulse duration is varied, the dynamics can also be explained in a similar fashion. When increasing the pulse duration, the pulse compression is slower at the beginning, leading to a retarded MCP and ultimately a reduced spectral shift. For a constant peak power, a longer pulse possesses a higher energy and can accumulate more energy before its MCP. The energy of the pulse remnant thus becomes more important, resulting in an increased number of secondary solitons. If the input pulse

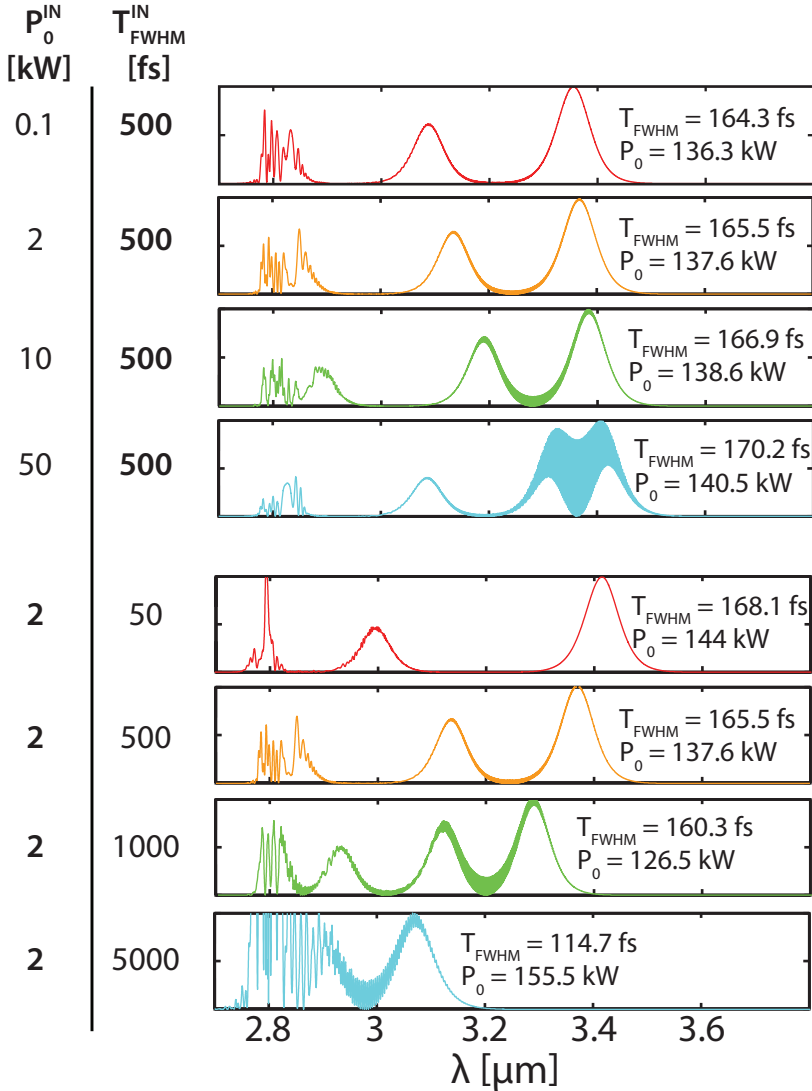


FIGURE 4.9 – Output spectra under different input pulse peak powers and durations ( $L_a = 1.25$  m,  $L_p = 6$  m,  $f_{\text{rep}} = 58$  MHz).

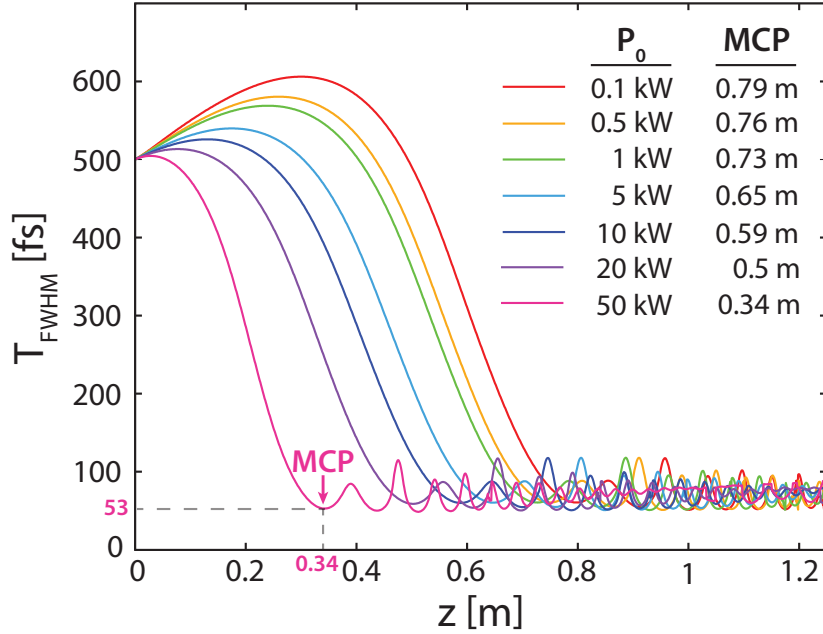


FIGURE 4.10 – Soliton compression inside the active segment of the fiber amplifier for different input pulse peak powers  $P_0$ .

duration is too long ( $> 2$  ps in this case) so that the MCP occurs in the passive segment, its spectral shift is significantly reduced.

#### 4.9.2 Attractor properties of the amplifier

From the previous section, we see that the effect on the output properties of the most shifted soliton remains remarkably small even when varying the input pulse properties, and especially the input peak power, by orders of magnitude (see Fig. 4.9). This interesting attractor behavior originates from the evolution of the amplified pulse toward the same compressed temporal state at a nearly identical position in the amplifier. The adiabatic compression of the soliton ceases once its spectral width becomes comparable to the gain bandwidth of the amplifier, thus fixing its duration and peak power. At this moment, due to its high peak power and short duration, the soliton rapidly shifts outside the gain bandwidth and the remaining propagation dynamics becomes only dependent on the fiber’s passive properties. The properties of the most shifted pulse thus strictly depend on the compressed pulse properties and the position of the MCP, which are nearly identical for small variations at the input. For instance, as shown in Fig. 4.11, the position of the MCP is retarded by 3 cm and the compressed pulse duration varies from 60.36 fs to 60.40 fs when the input peak power is reduced by half, from 1.0 kW to 0.5 kW (green and yellow curves).

To quantify this behavior, we studied the properties of the most shifted soliton under small

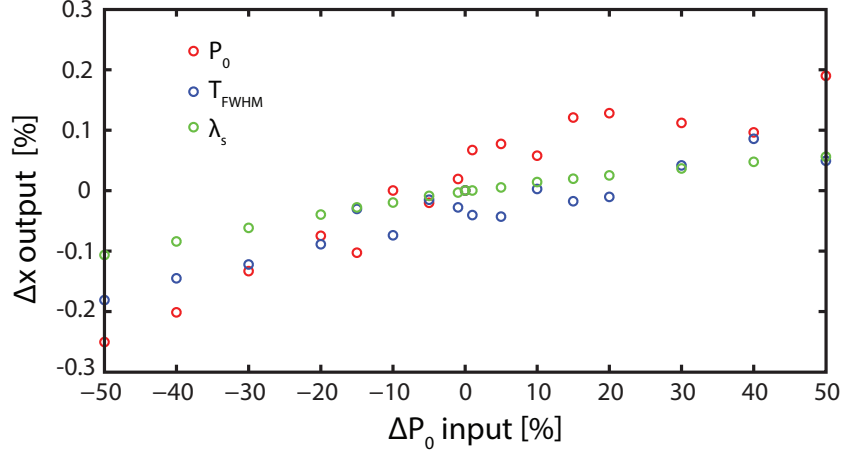


FIGURE 4.11 – Relative variation of the peak power (red), the duration (blue) and the central wavelength (green) of the most shifted soliton as a function of the relative variation in the input pulse peak power.  $\Delta x = (x_i - x_{ref})/x_{ref} \cdot 100$ , where  $x$  is the parameter ( $P_0$ ,  $T_{FWHM}$  or  $\lambda_s$ ) and  $x_{ref}$  is the parameter value at the reference input power  $P_{0\ ref} = 2$  kW).

variations of the input pulse peak power around a reference value of  $P_{0\ ref} = 2$  kW. The results are shown in Fig. 4.11. Relative variations of less than  $\pm 0.3$  % are observed in the temporal as well as spectral properties of the most shifted soliton, even when varying the input pulse peak power by up to  $\pm 50$  %. The relative variations of the calculated output peak power and duration of the most shifted pulse are so small that the precision of the results presented in Fig. 4.11 is affected by the temporal resolution in the simulations (6 fs). For instance, a relative temporal variation of 0.1 % in the output pulse duration corresponds to a variation of only  $\sim 0.16$  fs, which is much lower than the resolution used in the simulations. This explains the irregularities in the red and blue curves of Fig. 4.11.

This observation implies that fluctuations in the input pulse properties or small variations in the launch efficiency do not affect the output properties of the amplifier. As a result, this nonlinear conversion system is more robust against perturbations compared to the standard approaches based on nonlinear conversion in a passive fiber [141]. This attractor behavior explains the excellent long-term output stability of the most shifted solitons in our experimental results [147].

### 4.9.3 Satellite pulses at the input

As mentioned in section 4.6, mode-locked soliton lasers generate a number of satellite pulses along with the main pulse. Here, we show that these components have an important impact on the amplification of the pulse remnant inside the amplifier. To illustrate their impact, we compared the spectral and temporal profiles of the output signal when using an ideal soliton pulse and the simulated mode-locked seed presented in section 4.6 after 1 m and 5 m of



atmospheric propagation. The three signals have the same input duration and peak power ( $T_{\text{FWHM}} = 350$  fs,  $P_0 = 2$  kW) and the amplifier properties are the same as in the previous sections. The results are shown in Fig. 4.12. While the presence of satellite pulses only slightly affects the output properties of the most shifted pulse, it strongly affects the formation and the spectral shift of the secondary soliton. From the insets of Fig. 4.12 which present the temporal profile of the remaining amplified background at the end of the amplifier, we see that the satellite pulses are amplified along with the main pulse, thus stealing the gain and delaying the amplification of the pulse remnant after the MCP of the main pulse. The presence of an initial background propagating with the main pulse is therefore an interesting way to spectrally isolate the most shifted soliton from the remaining signal at shorter wavelengths without compromising significantly its output properties. In Fig. 4.6, we see in the experimental spectra that the most shifted solitons are slightly more isolated spectrally than in the simulations. This difference could be explained by the fact that we underestimate the presence of satellite pulses accompanying the main pulse in the simulations. We also neglected the role of amplified spontaneous emission inside the amplifier that can slow down the formation of the secondary soliton.

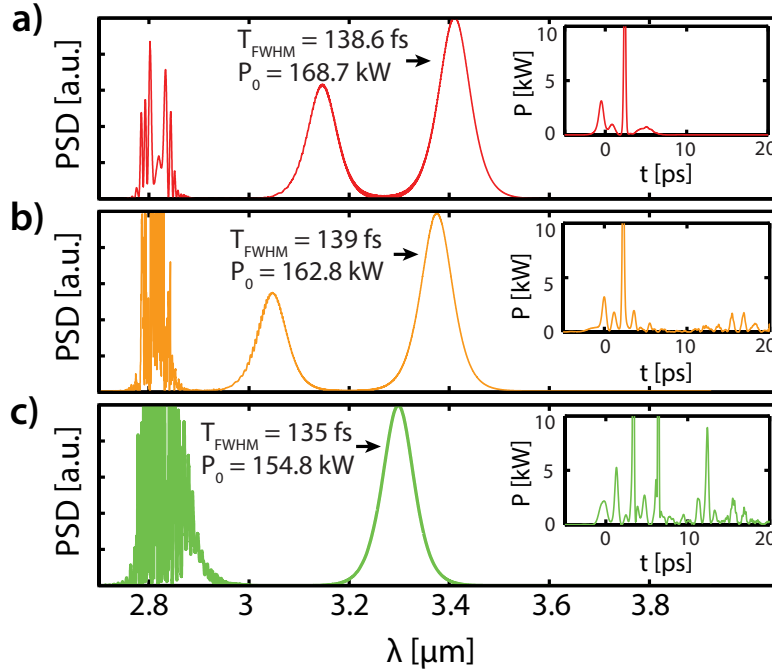


FIGURE 4.12 – Effect of the presence of satellite pulses along with the main input pulse. Simulated spectra for different input temporal profiles : a)  $\text{sech}^2(t)$  pulse and simulated mode-locked pulses after b) 1 m and c) 5 m of propagation in the atmosphere. Insets : zoom on the output temporal profile of the remaining background at the end of amplifier ( $L_a = 1.25$  m,  $L_p = 6$  m,  $f_{\text{rep}} = 50$  MHz).

#### 4.9.4 Seed repetition rate

We now study the effect of the seed repetition rate while remaining in the MHz regime to satisfy the steady-state (continuous wave) assumption for the gain. The repetition rate directly affects the signal average power along the amplifier and thus leads to strong variations in the saturated gain. This can lead to a totally different behavior than the one presented in previous sections. For low repetition rates ( $< 10$  MHz), the amplification of the main pulse is much greater at the beginning of the amplifier. This fast amplification results in the formation of successive gigantic pulses with megawatts of peak power and duration below 30 fs that shift quasi-instantaneously outside the gain bandwidth to the benefit of the pulse remnant that generates several other cascaded solitons. These cascaded solitons are continuously shifted toward longer wavelengths, similarly to what was observed by Arteaga-Sierra et al. [149]. Several interesting nonlinear interactions such as the Newton's cradle dynamics [164] and the formation of optical rogue waves [165] can be observed under certain conditions, but their study is out of the scope of this paper. Due to the very large gain inside the amplifier, cascaded solitons are also formed from the satellite pulses accompanying the main pulse. This rich dynamics ultimately leads to the formation of a large number of femtosecond solitons whose spectra are evenly distributed to form a flat output spectrum that extends up to the transmission limit of the FZ fiber.

Fig. 4.13 presents the output spectra of a fiber amplifier with  $L_a = 2$  m and  $L_p = 0$  m (no passive fiber) that is seeded by a  $\text{sech}^2(t)$  pulse with  $T_{\text{FWHM}} = 500$  fs,  $P_0 = 2$  kW at a repetition rate of 1 MHz. The input pump power is 50 W. One hundred simulations including an input shot noise of one photon per mode with random phases within the gain bandwidth of the amplifier were performed to study the coherence properties of this supercontinuum-like output. Both the output spectrum of one simulation and the average output spectrum over one hundred simulations are compared in Fig. 4.13. An incoherent output spectrum is expected for low repetition rates since the large number of solitons generated from the main pulse and its remnant and their mutual interactions inside the amplifier critically depend on small variations in the input signal. Interestingly, the shape of the averaged spectrum is very similar to the spectra obtained from an in-amplifier supercontinuum experiment using a  $2.8 \mu\text{m}$  OPG seed that generated 400 ps pulses at a repetition rate of 2 kHz injected in an identical fiber [145]. Although the seeding and pumping conditions are significantly different than in this simulation, similar nonlinear processes occur in the amplifier. A longer seeding pulse at a lower repetition rate will generate multiple cascaded solitons with similar properties that will be shifted at longer wavelengths. The spectral broadening in the amplifier is clearly limited by the important background losses of FZ fibers above  $4.2 \mu\text{m}$ . Compared to the results in [145], the output average power of this amplifier reaches  $\sim 4$  W since the repetition rate of the source is much higher. These results emphasize the potential of using this system for the generation of high average power supercontinuum in the mid-IR. The spectral bandwidth of such a source could be further extended above  $5 \mu\text{m}$  using fluoroindate [146] or chalcogenide fibers [166].

## 4.10 Impact of the fiber parameters

We now keep the characteristics of the input pulse constant ( $T_{\text{FWHM}} = 500$  fs,  $P_0 = 2$  kW,  $f_{\text{rep}} = 58$  MHz) and study the impact of the fiber amplifier properties.

### 4.10.1 Active and passive fiber length ( $L_a$ and $L_p$ )

The impact of varying the lengths of the active and passive segments can be understood from the pulse evolution dynamics inside the amplifier (see Fig. 4.8). When the length of the active segment ( $L_a$ ) is smaller than the compression distance of the main pulse, only one soliton forms and its energy and spectral shift are reduced. When  $L_a$  is much longer than the compression distance, several cascaded solitons are formed and spectrally shifted near the most shifted soliton. The optimal active fiber length that maximizes the shift of the main soliton while limiting the formation and spectral shift of other secondary solitons is slightly longer than the compression distance of the main pulse ( $L_{a \text{ opt}} \sim 1$  m in the case presented in Fig. 4.8). The small length of active fiber after the MCP of the main pulse enables further amplification of the pulse before it completely shifts out of the gain bandwidth while limiting the amplification of the pulse remnant. The role of the passive fiber segment ( $L_p$ ) is simply to shift the generated solitons at longer wavelengths. As described earlier, the soliton hits a wall of increased dispersion and decreased nonlinearity around  $3.5 \mu\text{m}$  that drastically slows its spectral shift. As shown in a previous experiment [147], increasing  $L_p$  from 8 m to 21 m

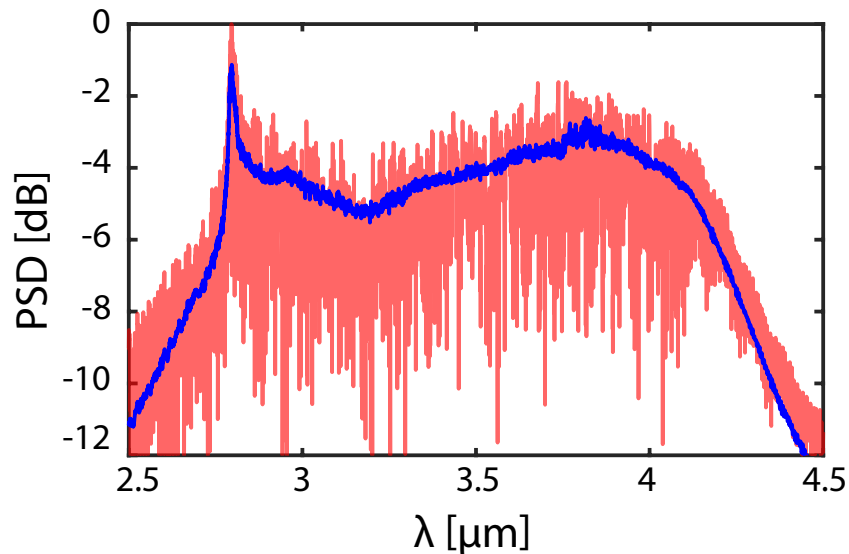


FIGURE 4.13 – In-amplifier supercontinuum generation in a 2-m  $\text{Er}^{3+}$  : FZ fiber. The output spectrum from a single simulation (light red) and the average spectrum over one hundred simulations (blue) are compared ( $L_a = 2$  m,  $L_p = 0$  m,  $f_{\text{rep}} = 1$  MHz). The spectra are presented in log scale.

will increase the spectral shift by only 200 nm. When  $L_p$  is increased above 25 m, the most shifted soliton gradually loses its energy without any further significant shift due to higher background losses of the fiber above  $3.7 \mu\text{m}$  ( $> 100 \text{ dB/km}$ ).

#### 4.10.2 Effect of the core size

The fiber core diameter has a strong impact on the output properties of the amplifier since both the dispersive and nonlinear properties of the fiber depend on this parameter. Fig. 4.14 a) shows the output spectra obtained for three different core diameters (6, 12 and  $26 \mu\text{m}$ ) along with the characteristics of the most shifted soliton for  $L_a = 1.25 \text{ m}$  and  $L_p = 6 \text{ m}$ . In these simulations, the NA of the fiber was changed relative to the core diameter to keep the single mode cutoff at  $2.5 \mu\text{m}$  and to ensure similar guiding properties at  $2.8 \mu\text{m}$ . We also preserved the core to clad area ratio so that the absorption of the pump along the amplifier is the same. These fiber parameters were restricted to realistic values that can be achieved in commercial FZ fibers. When increasing the core size, the fiber dispersion is only slightly affected, but its nonlinear parameter is reduced significantly due to an increasing mode effective area. A lower  $\gamma$  leads to a longer compression distance and a compressed pulse with higher energy but slightly longer duration (60-70 fs). The spectral shift of the main soliton is thus reduced. However, it takes much more distance for the pulse remnant to be amplified and compressed

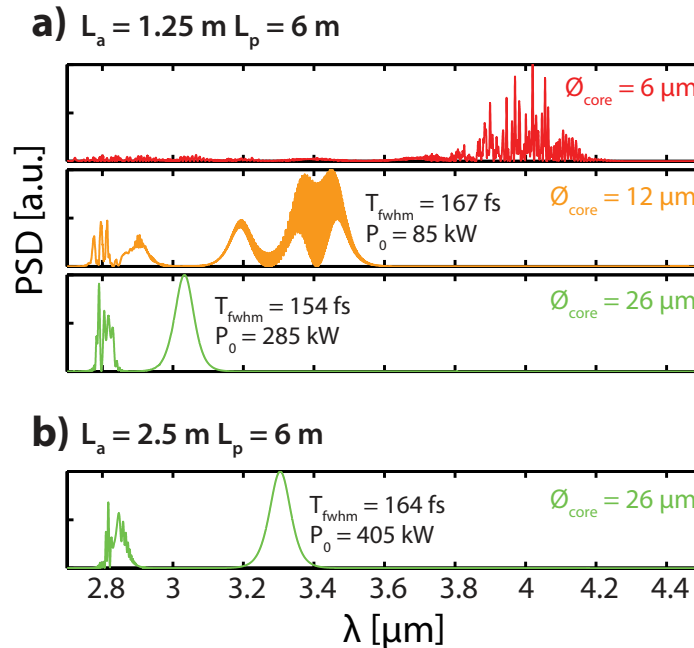


FIGURE 4.14 – a) Output spectra for a fiber amplifier with core diameters of  $6 \mu\text{m}$  (red),  $12 \mu\text{m}$  (orange) and  $26 \mu\text{m}$  (green) for  $L_a = 1.25 \text{ m}$ ,  $L_p = 6 \text{ m}$ . The output properties of the most shifted soliton are also indicated. b) Output spectrum in the case of a  $26\text{-}\mu\text{m}$  core diameter fiber with a longer active segment ( $L_a = 2.5 \text{ m}$ ,  $L_p = 6 \text{ m}$ ,  $f_{\text{rep}} = 58 \text{ MHz}$ ).

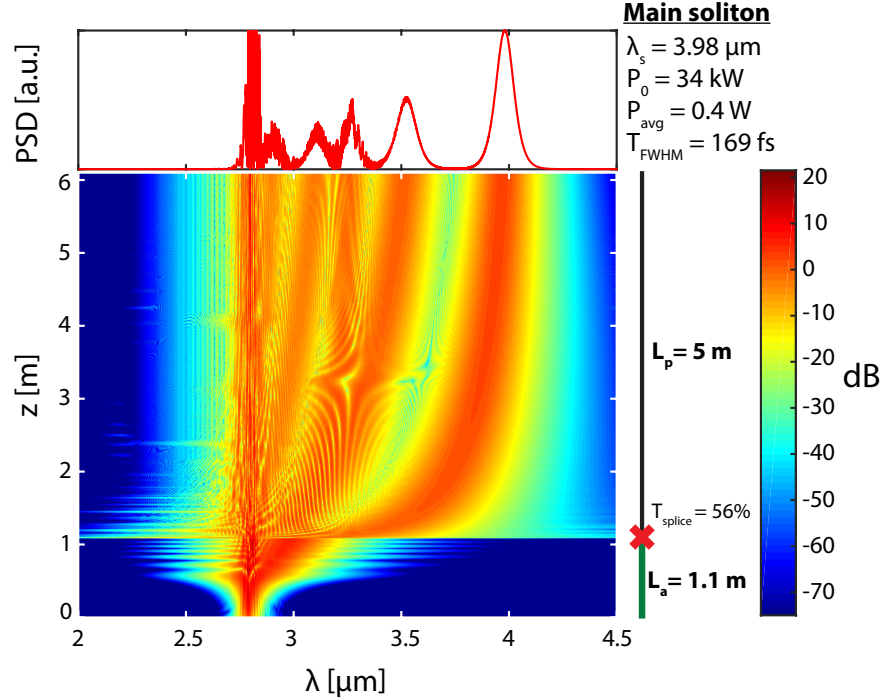


FIGURE 4.15 – Pulse evolution and output signal properties of a fiber amplifier with two different fiber sections. Active segment :  $\phi_{core} = 15.5 \mu\text{m}$ ; passive segment :  $\phi_{core} = 7 \mu\text{m}$ . A transmission of 56 % is estimated at the splice due to the mode mismatch between the dissimilar fibers.

to form another soliton. A larger core thus leads to a shifted soliton that is more spectrally isolated from the remaining background. For instance, when using a  $26 \mu\text{m}$  diameter core fiber with  $L_a = 2.5 \text{ m}$  and  $L_p = 6 \text{ m}$  (Fig. 4.14 b), an isolated output soliton with a central wavelength at  $3.3 \mu\text{m}$ , a peak power of 405 kW and energy of 75 nJ is obtained without any sign of secondary shifted solitons. This corresponds to an average power of  $\sim 4.4 \text{ W}$  around  $3.3 \mu\text{m}$ , which is near the best average powers obtained in CW fiber lasers emitting in this region [167]. When the core diameter is reduced below  $9 \mu\text{m}$ , the GVD flattens significantly in the  $3\text{-}4 \mu\text{m}$  region and the nonlinear parameter increases rapidly, leading to the formation of several solitons that are mostly shifted around  $4 \mu\text{m}$ . The corresponding spectrum (red curve of Fig. 4.14 a) is thus highly modulated.

In the simulations of Fig. 4.14, we see that reducing the core size leads to an improved spectral shift, but it goes at the expense of isolating the most shifted soliton from the other generated solitons. To overcome this limitation and maximize the shift of only one isolated soliton, one has to use a combination of an active segment with a large core diameter spliced to a passive segment with a small core. The large core fiber amplifier produces a high energy pulse that enters the passive fiber. The pulse then undergoes a strong shift toward longer wavelengths in the small core fiber due to its larger nonlinearity and lower dispersion. However, the increased

spectral shift goes at the expense of the pulse energy since  $E \propto \gamma^{-1}$  according to the soliton area theorem. The splice between dissimilar fibers also causes important losses that limit the pulse energy coupled into the passive fiber. Nonetheless, spectral shifts above  $4 \mu\text{m}$  are expected when using the right combination of parameters for the active and passive segments. Fig. 4.15 shows the spectral evolution and the output spectra of a fiber amplifier that combines our experimental FZ fiber amplifier ( $\phi_{core} = 15.5 \mu\text{m}$ ) with  $L_a = 1.3 \text{ m}$  spliced to a  $7\text{-}\mu\text{m}$  core passive FZ fiber having  $L_p = 5 \text{ m}$ . The most shifted soliton central wavelength ( $3.98 \mu\text{m}$ ) is near the transmission limit of the FZ fiber, thus limiting its energy and peak power to  $6.7 \text{ nJ}$  and  $34 \text{ kW}$ , respectively.

## 4.11 Conclusion

We have introduced a numerical model to investigate ultrashort pulse propagation in  $\text{Er}^{3+}$  : FZ fiber amplifiers at  $2.8 \mu\text{m}$ . A new and useful set of data for the simulation of the  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  laser transition and the Raman effect in such fibers was presented. The numerical model accurately predicts the behavior of the experimental system under different pumping conditions. This model enables us to identify an attractor behavior of the amplifier that can ultimately lead to a tunable ultrafast source with improved stability against small perturbations of the seed. This promising feature can be a major added value for applications in spectroscopy. By choosing the appropriate set of fiber parameters and input pulse properties, this fiber amplifier system is expected to generate a high power tunable ultrafast soliton or a high average power supercontinuum output that covers the  $2.8 - 4.2 \mu\text{m}$  spectral region, only limited by the transparency limit of FZ fibers.

By determining the properties of fluorindate fibers that possess an extended transmission window up to  $5.5 \mu\text{m}$ , numerical simulations could be performed using the same model to investigate the use of such fibers for extending the spectral coverage further into the mid-infrared. The concepts presented in this paper can also be applied to other promising laser transitions in the mid-infrared ( $\text{Ho}^{3+}$  around  $2.85 \mu\text{m}$ ,  $\text{Dy}^{3+}$  around  $3 \mu\text{m}$ , etc.). Cascaded schemes with different active fibers exploiting soliton amplification could also increase the performance of these sources. This simulator is thus a valuable tool for the design and optimization of compact, robust and reliable broadband fiber laser systems operating in the MWIR with unprecedented optical performances.

## Aknowledgments

The authors thank Sandra-Helena Messaddeq and Younès Messaddeq for the measurement of the Raman gain spectrum of the fluorozirconate fiber. We also thank *Le Verre Fluoré* for providing the attenuation curve of the fiber and Jean-Christophe Gauthier and Frédéric Maes for helpful discussions.

## 4.12 Rate equations and gain parameters of Er<sup>3+</sup> : FZ fibers

The rate equations for the energy levels population densities  $N_i(z, t)$  involved in the 2.8  $\mu\text{m}$  laser transition (see Fig. 4.2) are given by :

$$\frac{dN_1}{dt} = \sum_{i=2}^5 [\beta_{i1}\tau_i^{-1}N_i] - \tau_1^{-1}N_1 + W_{50}N_5N_0 - 2W_{11}N_1^2 + R_{SE}, \quad (4.8)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \sum_{i=3}^5 [\beta_{i2}\tau_i^{-1}N_i] - \tau_2^{-1}N_2 - 2W_{22}N_2^2 + R_{GSA} - R_{ESA}, \quad (4.9)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \sum_{i=4}^5 [\beta_{i3}\tau_i^{-1}N_i] - \tau_3^{-1}N_3 + W_{50}N_5N_0 + W_{11}N_1^2, \quad (4.10)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = \beta_{54}\tau_5^{-1}N_5 - \tau_4^{-1}N_4, \quad (4.11)$$

$$\frac{dN_5}{dt} = \beta_{65}\tau_6^{-1}N_6 - \tau_5^{-1}N_5 - W_{50}N_5N_0, \quad (4.12)$$

$$\frac{dN_6}{dt} = W_{22}N_2^2 - \tau_6^{-1}N_6 + R_{ESA}, \quad (4.13)$$

$$N_{Er} = \sum_{i=0}^6 N_i, \quad (4.14)$$

where  $\tau_i$  are the intrinsic lifetimes of the energy levels, including the radiative and multiphonon relaxation.  $\beta_{ij}$  are the branching ratios that take into account both the radiative and multiphonon decay from level  $i$  to a lower level  $j$ .  $\tau_i$  and  $\beta_{ij}$  were taken from refs. [168] and [169].  $W_{11}, W_{22}$  and  $W_{50}$  are the parameters for the weakly interacting interionic processes that were interpolated from the values presented in ref [136] for various erbium concentrations.  $N_{Er}$  is the density of the erbium ions in the doped core.  $R_{SE}$  is the effective laser transition rate defined in Eq. (4.2). The ground and excited state absorption rates for the pump  $R_{GSA}$  and  $R_{ESA}$  are given by :

$$R_{GSA} = \frac{\Gamma_p \lambda_p \sigma_{GSA} N_0}{hcA_c} P_p, \quad (4.15)$$

$$R_{ESA} = \frac{\Gamma_p \lambda_p \sigma_{ESA} N_2}{hcA_c} P_p, \quad (4.16)$$

where  $\sigma_{GSA}$  and  $\sigma_{ESA}$  are the effective values calculated from the overlap between the cross section profiles [170] and the spectrum of the pump when operated at 48 W of average power. The values of all these spectroscopic parameters are listed in table 4.1 along with the geometric parameters of the experimental fiber.

Parameters	Values	Refs
$\tau_1$	9.9 ms	[168]
$\tau_2$	7.9 ms	[168]
$\tau_3$	8 $\mu$ s	[168]
$\tau_4$	177 $\mu$ s	[168]
$\tau_5$	530 $\mu$ s	[168]
$\tau_6$	5 $\mu$ s	[169]
$\beta_{10}$	1	[168]
$\beta_{21}, \beta_{20}$	0.182, 0.818	[168]
$\beta_{32}, \beta_{31}, \beta_{30}$	0.999, 0, 0.001	[168]
$\beta_{43}, \beta_{42}, \beta_{41}, \beta_{40}$	0.808, 0.008, 0.009, 0.175	[168]
$\beta_{54}, \beta_{53}, \beta_{52}, \beta_{51}, \beta_{50}$	0.285, 0.029, 0.014, 0.193, 0.479	[168]
$\beta_{65}, \beta_{60}$	0.99, 0.01	[169]
[Er <sup>3+</sup> ]	7 mol. %	
$N_{Er}$	$1.12 \times 10^{27}$ ions/m <sup>3</sup>	
$W_{11}$	$1.25 \times 10^{-24}$ m <sup>3</sup> /s	[136]
$W_{22}$	$0.35 \times 10^{-24}$ m <sup>3</sup> /s	[136]
$W_{50}$	$0.56 \times 10^{-24}$ m <sup>3</sup> /s	[136]
$\sigma_{GSA}$	$2 \times 10^{-25}$ m <sup>2</sup>	[170]
$\sigma_{ESA}$	$1.1 \times 10^{-25}$ m <sup>2</sup>	[170]
$\phi_{core}$	15.5 $\mu$ m	
NA	0.125	
$\Gamma_s$	0.75	
$\Gamma_p$	0.0033	

TABLE 4.1 – Spectroscopic and geometric parameters used in the simulations of the erbium-doped fiber amplifier

### 4.13 Pseudo-Voigt fit for the Raman gain in fluorozirconate fibers

As a simpler alternative to the intermediate-broadening model [162], the measured Raman gain profile was fitted with a combination of eight pseudo-Voigt profiles. A PV profile corresponds to a weighted summation of a gaussian profile  $G_i(f)$  and a Lorentzian profile  $L_i(f)$  that can be expressed in terms of a relative frequency  $f$  as :

$$g_R(f) = \sum_{i=1}^8 A_i [\eta_i G_i(f) + (1 - \eta_i) L_i(f)], \quad (4.17)$$



<b>PV</b> number	<b>A</b> [ $\times 10^{-13}$ m/W]	$\eta$	<b>f<sub>0</sub></b> [THz]	<b><math>\Delta f</math></b> [THz]
1	0.053	1	3.12	2.4
2	0.095	1	5.52	2.89
3	0.071	0.974	7.77	2.43
4	0.075	1	9.74	2.56
5	0.08	1	12.11	2.94
6	0.049	1	14.33	1.67
7	0.019	1	15.32	9.93
8	0.236	0.716	17.41	2.01

TABLE 4.2 – Fitting parameters for the pseudo-Voigt profiles

where :

$$G_i(f) = \exp\left(-4 \ln(2) \left(\frac{f - f_{0i}}{\Delta f_i}\right)^2\right), \quad (4.18)$$

$$L_i(f) = \frac{1}{1 + 4 \left(\frac{f - f_{0i}}{\Delta f_i}\right)^2}. \quad (4.19)$$

In these equations,  $A_i$  is the amplitude,  $\eta_i$  is the weight factor,  $f_{0i}$  is the central frequency and  $\Delta f_i$  is the full width at half maximum of the  $i$ th PV profile. The fitting parameters were determined using the software Wire 4.1 (Renishaw) and are presented in Table 4.2. The nature of most of the PV profiles is in fact purely gaussian, except for the most important Raman peak at 17.4 THz that has a long Lorentzian-like trailing edge.

# Conclusion

Au début de cette thèse, l'exploitation de la transition laser à  $2.8 \mu\text{m}$  dans les fibres de verre fluoré dopées à l'erbium était en pleine croissance avec la conception de lasers continus de grandes puissances [127]. Cependant, aucun laser à fibre femtoseconde émettant au-delà de  $2.1 \mu\text{m}$  n'avait encore été démontré [171]. À ce moment, quelques groupes de recherche avaient présenté des cavités linéaires et circulaires émettant à  $2.8 \mu\text{m}$  qui utilisaient des absorbants saturables réels. Or, le temps de réponse relativement long ( $> 10 \text{ ps}$ ) et possiblement la dispersion induite par ce type d'élément limitaient les impulsions générées à des durées supérieures à la picoseconde et des puissances crêtes inférieures au kilowatt.

Un autre type d'absorbant saturable devait alors être utilisé pour atteindre le régime femtoseconde. En utilisant l'un des principes de synchronisation modale les plus simples et les plus répandus dans les lasers à fibre dans le proche infrarouge, celui de la rotation non linéaire de la polarisation, il a été possible de démontrer le premier laser à fibre femtoseconde dans l'infrarouge moyen dans le cadre de cette thèse. L'objectif principal du projet de doctorat a donc été atteint dès la première publication (voir chapitre 1). L'optimisation de ce laser a ensuite été effectuée et les résultats sont présentés au chapitre 2 et à l'annexe B. Par la suite, un amplificateur externe permettant d'accorder les impulsions générées de  $2.8$  à  $3.6 \mu\text{m}$  a également été conçu. Ces travaux ont mené aux publications présentées aux chapitres 3 et 4. Cette technique d'amplification fait également l'objet d'un brevet accepté aux États-Unis en juin 2018 [172].

## 5.1 Résumé

De façon plus détaillée, le chapitre d'introduction présente les techniques de synchronisation modale les plus utilisées ainsi que l'art antérieur des lasers ultrarapides dans l'infrarouge moyen. La technique de synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation, qui n'implique que l'utilisation d'un polariseur et deux lames d'ondes dans la cavité à fibre, y est décrite en détail. Dans l'art antérieur, on remarque également que la génération directe d'impulsions femtoseconde au-delà de  $2.4 \mu\text{m}$  (gain des cristaux de  $\text{Cr}^{3+} : \text{ZnSe}$ ) n'avait encore jamais été démontrée, tout type de laser confondu. Pour ce qui est des lasers à fibre optique de verre fluoré, les plus courtes impulsions générées à  $2.8 \mu\text{m}$  possédaient une durée

de 6 ps et provenaient d'une cavité en anneau basée sur l'utilisation d'un semiconducteur en transmission comme absorbant saturable [101].

Le chapitre 1 présente la cavité en anneau émettant à  $2.8 \mu\text{m}$  qui a permis la génération d'impulsions dont la durée avoisine les 200 fs, soit 30 fois plus courte que ce qui avait été démontré. Comme la fibre utilisée possède une dispersion anormale, ce laser opère en régime solitonique et l'on observe la présence de bandes latérales de Kelly de part et d'autre du spectre. Il a été possible d'estimer la dispersion de la fibre à  $2.8 \mu\text{m}$  ( $\beta_2 \approx -90 \text{ ps}^2 \text{ km}$ ) grâce à la position spectrale de ces bandes latérales.

L'optimisation de ce laser est détaillée au chapitre 2 et à l'annexe A. Dans ces contributions, on explique les modifications apportées à l'oscillateur (inversion du sens de propagation, modification du couplage de sortie et de la longueur de fibre) qui ont mené à l'obtention d'impulsions de 23 kW de puissance crête, soit une augmentation de presque un ordre de grandeur par rapport à la première démonstration. Un programme de simulation modélisant la dynamique de propagation des impulsions dans la cavité y est également présenté. Les simulations démontrent que la propagation atmosphérique dans la cavité peut jouer un rôle néfaste sur le démarrage du laser en régime femtoseconde.

Finalement, les chapitres 3 et 4 présentent un amplificateur à fibre qu'on place à la sortie de l'oscillateur femtoseconde pour améliorer les performances du système laser. Cette fibre amplificatrice, qui est identique à celle utilisée dans l'oscillateur, assure non seulement une amplification des impulsions, mais également un décalage spectral de celles-ci à de plus grandes longueurs d'onde. En fonction de la puissance de pompe injectée dans l'amplificateur, la longueur d'onde centrale des impulsions peut ainsi être accordée de  $2.8$  jusqu'à  $3.6 \mu\text{m}$ . L'étude numérique détaillée au chapitre 4 apporte une compréhension plus approfondie de la dynamique d'amplification des impulsions. D'autres aspects très prometteurs, comme la propriété d'attraction de l'amplificateur à une puissance de pompe élevée et la possibilité de générer une impulsion décalée jusqu'à  $4 \mu\text{m}$ , sont également mis de l'avant.

## 5.2 Perspectives

Heureusement, l'aventure femtoseconde des lasers à fibre dans l'infrarouge moyen ne fait que débiter. Ce projet ouvre la voie à de nombreuses perspectives de simplification, d'amélioration et d'application de ces sources laser uniques. Quelques-unes des avenues intéressantes et idées qui doivent être explorées sont détaillées ci-dessous :

### 5.2.1 Simplification

L'un des plus grands défis de simplification demeure : développer une source entièrement à base de fibre optique, sans aucune propagation en espace libre, qui est robuste et auto démarrante.

Voici quelques suggestions pour y arriver :

- L'utilisation d'un combinateur de pompe pour l'oscillateur et l'amplificateur est un facteur primordial à la simplification de l'alignement. L'injection de la pompe et du signal sur un même bout de fibre amène son lot de problèmes. Le faisceau de la pompe tend à chauffer le bout de fibre, ce qui cause un désalignement du signal à  $2.8 \mu\text{m}$  et un risque d'endommager la fibre optique à haute puissance. Au cours de la dernière année, des travaux sur le développement de ce type de composant ont été réalisés dans notre groupe de recherche, mais plusieurs améliorations demeurent afin d'augmenter la stabilité et la tenue en puissance du composant.
- Le développement de connecteurs et de collimateurs robustes compatibles avec les fibres de verre fluoré est également essentiel. Ces éléments simplifieront énormément l'injection et la collimation du signal dans la fibre, car la position de la fibre par rapport à la lentille est fixe dans un collimateur. Une fois le collimateur fixé, seule son inclinaison doit être ajustée pour l'alignement. Encore une fois, quelques essais préliminaires démontrent la possibilité de fixer simplement un bout de fibre en verre fluoré avec embout dans un connecteur et de le polir par la suite. La possibilité éventuelle de placer deux collimateurs face à face dans un boîtier fixe permettra d'ajouter des composants optiques en espace libre difficiles à implémenter dans une fibre optique (polariseur, isolateur, etc.). Ces composants ont le potentiel d'être miniaturisés et d'ainsi devenir très robustes, comme ceux utilisés dans les lasers à fibre émettant dans le proche infrarouge.
- L'utilisation de lames d'onde en fibre optique basée sur la courbure ou le pincement de la fibre n'est pas souhaitable pour des fibres à base de verre fluoré. D'abord, il est très difficile d'induire une biréfringence précise et contrôlable dans la fibre grâce à ces techniques, ce qui peut nuire au démarrage du laser. Ensuite, les fibres optiques en verre fluoré sont beaucoup plus molles que celles à base de silice. L'utilisation de telles techniques pourrait créer des déformations plastiques permanentes dans la fibre et ainsi nuire au bon fonctionnement du laser à long terme. Il demeure préférable d'utiliser des lames d'onde en espace libre qui peuvent être intégrées dans le même composant que l'isolateur ou le polariseur.
- Le développement d'un coupleur à fibre "coeur à coeur" (*tap* en anglais) est un enjeu majeur pour la conception de cavités en anneau entièrement en fibre optique. Ce composant est nécessaire au couplage du signal à l'extérieur de la cavité laser. Une méthode permettant de polir les gaines de deux fibres préalablement courbées afin de rapprocher leurs coeurs sur une distance contrôlée est potentiellement viable, mais énormément de travaux dans cette direction devront être réalisés avant d'obtenir un composant reproductible. La possibilité d'utiliser de courtes longueurs de fibre mécaniquement plus robustes et plus faciles à travailler, comme les fibres à base de germanium (ou germanate), pour le composant est aussi à envisager. Les pertes dans ce type de fibre peuvent

possiblement être tolérées si le composant est assez court.

- La cavité linéaire constitue certainement la voie la plus rapide vers la conception de lasers femtoseconde tout-fibre. À une extrémité, on inscrit dans la fibre un réseau de Bragg qui agit à la fois de réflecteur et de coupleur de sortie. Celui-ci peut également induire un filtrage spectral et une dispersion contrôlée afin d'augmenter les performances du laser, comme il sera décrit ci-dessous. À l'autre extrémité de la cavité, on place un absorbant saturable en réflexion qui possède un temps de réponse suffisamment court pour générer des impulsions femtoseconde. Ce composant doit également être collé à la fibre pour éviter tout désalignement. En général, l'utilisation de fibre à maintien de polarisation serait à privilégier dans la cavité pour éviter un quelconque effet de sélection en polarisation et de rotation non linéaire incontrôlable qui pourra nuire au démarrage du laser. La conception de fibre optique à double-gaine et à maintien de polarisation en verre fluoré est cependant un défi majeur qui relève du fabricant.
- L'utilisation de nouveaux types d'absorbant saturable dans une cavité linéaire est également à considérer. L'utilisation de nanomatériaux comme absorbant saturable mènera certainement à la génération d'impulsions ultrabrèves comme démontré dans le proche infrarouge, mais la tenue en puissance de ces composants est très limitée pour le moment. Une avenue intéressante à considérer est l'utilisation des fortes résonances de plusieurs molécules dans l'infrarouge moyen. L'une des transitions intéressantes à considérer est celle de l'OH aux environs de  $3 \mu\text{m}$ . La dynamique de relaxation de cette transition vibrationnelle reste encore à étudier, mais quelques groupes ont déjà démontré des évidences de saturation de cette transition avec un temps de réponse de quelques picosecondes au maximum [173; 174; 175]. Vodopyanov et al. ont obtenu des intensités de saturation de l'ordre de 20 à 250  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , ce qui est considérablement plus élevé que les absorbants saturables présentés au chapitre d'introduction. Une grande intensité de saturation peut compliquer le démarrage du laser en régime femtoseconde, mais une étude approfondie doit être réalisée pour déterminer le meilleur moyen d'augmenter la section efficace de ce type d'absorbant "moléculaire".

### 5.2.2 Amélioration

Outre les simplifications suggérées ci-dessus, les performances de sortie de l'oscillateur peuvent être grandement améliorées :

- L'aspect auto démarrant de ce type de laser doit être amélioré. Les lasers démontrés dans cette thèse n'étaient pas purement auto démarrants en régime de synchronisation modale à une impulsion. Le gain à  $2.8 \mu\text{m}$  dans les fibres optiques de verre fluoré dopées à l'erbium est très important, ce qui implique qu'il faut limiter au maximum les réflexions parasites vers la fibre amplificatrice pour assurer l'auto démarrage du laser. On doit alors s'assurer que les bouts de fibre soient clivés à angle et que les boutures utilisées

ne causent aucune réflexion. Il faut également réduire les pertes par aller-retour afin de réduire au maximum le seuil de synchronisation modale. Avec l'emploi d'une fibre de plus de 5 m dont les bouts ont été clivés à fort angle ( $> 6$  degrés), il a été possible de rendre le laser présenté dans cette thèse auto démarrant. Le caractère auto démarrant reste néanmoins à être validé pour des lasers utilisant des fibres plus courtes avec embouts aux extrémités.

- Tout en gardant son caractère monomode, la géométrie de la fibre en verre fluoré peut être optimisée de façon à limiter les effets non linéaires. En supposant que le fabricant puisse produire une fibre avec une ouverture numérique de  $\sim 0.08$ , le diamètre du coeur pourrait être augmenté jusqu'à  $\sim 26 \mu\text{m}$ . Comme décrit au chapitre d'introduction, l'énergie des impulsions générées dépend directement de la non-linéarité dans la fibre. Comme le paramètre non linéaire d'une fibre est inversement proportionnel à l'aire du mode dans la fibre et donc au carré de son rayon, on peut s'attendre à une augmentation en énergie de près d'un facteur 3 ( $\sim 26^2/15^2$ ). La possibilité d'utiliser des fibres microstructurées pour augmenter l'aire du mode tout en gardant le caractère monomode de la fibre est à considérer, mais peut s'avérer très complexe à réaliser.
- Une autre avenue très prometteuse est le développement de lasers en régime de dispersion compensée ou normale. Évidemment, ceci nécessite l'emploi d'une fibre ou d'un élément dans la cavité qui induit une dispersion normale assez grande pour compenser ou même dépasser celle de la fibre de verre fluoré. Un réseau de Bragg à pas variable (*chirpé*) pourrait être utilisé, mais son emploi est préférable dans une cavité linéaire puisque c'est un élément réfléchissant. Ce type de réseau de Bragg peut créer une dispersion similaire ou même beaucoup plus importante que celle de la fibre, en plus d'agir comme filtre spectral au besoin. Un laser à solitons dissipatifs en régime de dispersion normale pourrait alors être envisagé avec ce composant [69]. Toutefois, il est généralement nécessaire d'exploiter la propagation dans des fibres à dispersion normale afin de maximiser les performances du laser [176]. Ces schémas de cavité laser peuvent générer des énergies de deux ordres de grandeurs supérieures à celles obtenues à partir de lasers à solitons. Grâce à la diminution rapide des effets non linéaires à grande longueur d'onde, on pourrait alors penser à la génération d'impulsions d'énergie supérieure au microjoule directement de l'oscillateur, ce qui n'a jamais été fait dans le proche infrarouge. Toutefois, il faut faire face à un très grand défi pour réaliser cet objectif : trouver une fibre optique monomode de grande qualité qui possède une dispersion normale et une faible non linéarité. Actuellement, les fibres à dispersion normale sont généralement à base de verres de chalcogénure et possèdent une non linéarité extrêmement élevée ( $> 1000$  fois plus importante que les fibres de verres fluorés) [177]. Cette caractéristique limitera considérablement l'atteinte de haute énergie. En plus d'être peu tolérantes aux grandes puissances et difficiles à purifier afin de réduire l'absorption OH, ce type de fibre possède un indice de réfraction très élevé ( $n > 2$ ), ce qui peut causer d'importantes réflexions parasites dans la cavité

et ainsi nuire au démarrage du laser en régime femtoseconde [52].

- Comme la rotation non linéaire de la polarisation est un principe de synchronisation modale très polyvalent, celle-ci pourra être utilisée pour développer des lasers femtoseconde à de plus grandes longueurs d'onde et qui exploitent de nouvelles transitions laser dans les fibres de verre fluoré. On parle entre autres de la transition laser des fibres à base de dysprosium (de  $2.8 \mu\text{m}$  à  $3.4 \mu\text{m}$ ) [144] et celle dans les fibres de fluorindate à base d'holmium ( $\sim 3.9 \mu\text{m}$ ) [98]. De plus, le paramètre non linéaire d'une fibre optique  $\gamma$  est proportionnelle à  $\lambda^{-3}$ . Comme l'énergie des impulsions générées est inversement proportionnelle à ce paramètre, il est attendu qu'un laser opérant à de plus grandes longueur d'onde produise des impulsions de plus grande énergie.
- Plusieurs autres techniques d'amplification externe beaucoup plus sophistiquées pourront être développées pour l'atteinte d'énergies supérieures au microjoule. On parle, entre autres, d'amplification d'impulsions étirées (CPA) [32], d'amplification à plusieurs passes (*Regenerative amplification*) [30] ou d'amplification *Innoslab* [31]. Toutefois, ces approches sont généralement réalisées en propagation libre et nécessitent l'utilisation de cristaux transparents et efficaces dans l'infrarouge moyen. Les cristaux de YAG (Yttrium Aluminium Garnet) fortement dopés à l'erbium pourraient être utilisés.
- La technique unique d'amplification et de décalage de soliton développée dans cette thèse mérite d'être approfondie sur plusieurs aspects. Comme la position spectrale du soliton est gérée par la puissance de pompe, il est possible d'exploiter l'amplificateur en pompage pulsé pour réaliser plusieurs modes d'opération très intéressants. D'abord, en modulant rapidement la pompe, il sera possible de créer un "burst" contrôlé d'impulsions femtoseconde ayant chacune des longueurs d'onde centrales différentes dont l'étalement spectral et la cadence pourront être contrôlés. En plaçant un filtre à la suite de l'amplificateur et en contrôlant la puissance de pompe dans l'amplificateur, il serait possible de contrôler la cadence du laser en ne transmettant que les impulsions les plus décalées à des moments précis. Le potentiel de stabilisation des impulsions grâce à l'effet attracteur de l'amplificateur, qui a été démontré numériquement au chapitre 4, est un autre aspect très prometteur de l'amplificateur. Cet effet doit être vérifié au laboratoire.

### 5.2.3 Application

Pour conclure, il est nécessaire que l'avancement des lasers ultrarapides à fibre optique dans l'infrarouge moyen soit motivé par le développement d'applications concrètes et à fort potentiel scientifique et commercial. Des lasers très simples et robustes pourront être utilisés pour la spectroscopie alors que des systèmes plus complexes pourront être développés pour des applications en santé, en industrie et en recherche fondamentale. Avec le démarrage de notre entreprise Femtum, qui vise à commercialiser ces sources laser, je me fais un devoir de répondre à cet enjeu afin de propulser davantage la recherche et le développement de ces technologies laser incroyables à très fort potentiel.

# Bibliographie

- [1] A. L. SCHAWLOW et C. H. TOWNES : Infrared and optical masers. *Phys. Rev.*, 112: 1940–1949, 1958.
- [2] T.H. MAIMAN : Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736): 493, 1960.
- [3] ISO 20473 : 2007, Optics and photonics - Spectral bands  
<https://www.iso.org/standard/39482.html>.
- [4] J. KIM et Y. SONG : Ultralow-noise mode-locked fiber lasers and frequency combs : principles, status, and applications. *Adv. Opt. Photon.*, 8(3): 465–540, 2016.
- [5] N. R. NEWBURY et W. C. SWANN : Low-noise fiber-laser frequency combs (Invited). *J. Opt. Soc. Am. B*, 24(8): 1756–1770, 2007.
- [6] D. J. JONES, S. A. DIDDAMS, J. K. RANKA, A. STENTZ, R. S. WINDELER, J. L. HALL et S. T. CUNDIFF : Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science*, 288(5466): 635–639, 2000.
- [7] H.R. TELLE, G. STEINMEYER, A.E. DUNLOP, J. STENGER, D.H. SUTTER et U. KELLER : Carrier-envelope offset phase control : A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. *Appl. Phys. B*, 69(4): 327–332, 1999.
- [8] A. SCHLIESSER, N. PICQUE et T. W. HANSCH : Mid-infrared frequency combs. *Nat. Photonics*, 6(7): 440–449, 2012.
- [9] J. M. HOLLAS : *Modern Spectroscopy*. John Wiley & Sons, 2004.
- [10] P. R. GRIFFITHS et J. A. DE HASETH : *Fourier Transform Infrared Spectrometry*, volume 171. John Wiley & Sons, 2007.
- [11] P. WERLE, R. MÜCKE et F. SLEMR : The limits of signal averaging in atmospheric trace-gas monitoring by tunable diode-laser absorption spectroscopy (TDLAS). *Appl. Phys. B*, 57(2): 131–139, 1993.



- [12] M. LACKNER : Tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) in the process industries – a review. *Rev. Chem. Eng.*, 23(2): 65–147, 2007.
- [13] E. BAUMANN, F. R. GIORGETTA, W. C. SWANN, A. M. ZOLOT, I. CODDINGTON et N. R. NEWBURY : Spectroscopy of the methane  $\nu_3$  band with an accurate mid-infrared coherent dual-comb spectrometer. *Phys. Rev. A*, 84: 062513, 2011.
- [14] C. WANG et P. SAHAY : Breath analysis using laser spectroscopic techniques : Breath biomarkers, spectral fingerprints, and detection limits. *Sensors*, 9(10): 8230–8262, 2009.
- [15] B. HENDERSON, A. KHODABAKHSH, M. METSÄLÄ, I. VENTRILLARD, F. M. SCHMIDT, D. ROMANINI, G. A. D. RITCHIE, S. te LINTEL HEKKERT, R. BRIOT, T. RISBY, N. MARCZIN, F. J. M. HARREN et S. M. CRISTESCU : Laser spectroscopy for breath analysis : Towards clinical implementation. *Appl. Phys. B*, 124(8): 161–, Jul 2018.
- [16] C. AGGER, R. PETERSEN, N. PRTLJAGA, M. FARRIES, J. WARD, B. NAPIER, G. Rhys LLOYD, J. NALLALA, N. STONE et O. BANG : Mid-infrared multispectral tissue imaging using a chalcogenide fiber supercontinuum source. *Opt. Lett.*, 43(5): 999–1002, Mar 2018.
- [17] M. H. NIEMZ : *Laser-Tissue Interactions : Fundamentals and Applications*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [18] K. FRANJIC, M. L. COWAN, D. KRAEMER et R. J. D. MILLER : Laser selective cutting of biological tissues by impulsive heat deposition through ultrafast vibrational excitations. *Opt. Express*, 17(25): 22937–22959, 2009.
- [19] S. AMINI-NIK, D. KRAEMER, M. L. COWAN, K. GUNARATNE, P. NADESAN, B. A. ALMAN et R. J. D. MILLER : Ultrafast mid-IR laser scalpel : Protein signals of the fundamental limits to minimally invasive surgery. *PLoS One*, 5(9): e13053, 2010.
- [20] Sanjeev NAITHANI, Arnaud GRISARD, David SCHAUBROECK, Eric LALLIER et Geert VAN STEENBERGE : Mid-infrared resonant ablation of PMMA. *J. Laser Micro Nanoen.*, 9(2): 147–152, 2014.
- [21] T. PFLUG, M. OLBRICH, R. ROESCH, U.S. SCHUBERT, H. HOPPE et A. HORN : Investigations on the modification of PMMA by ultrafast laser radiation from the UV to the mid-IR spectral range. *Opt. Lasers Eng.*, 111: 130 – 134, 2018.
- [22] R. EASON : *Pulsed Laser Deposition of Thin Films : Applications-led Growth of Functional Materials*. John Wiley & Sons, 2007.
- [23] S. P. MAHULIKAR, H. R. SONAWANE et G. A. RAO : Infrared signature studies of aerospace vehicles. *Prog. Aerosp. Sci.*, 43(7): 218–245, 2007.

- [24] H. H. P. T. BEKMAN, J. C. van den HEUVEL, F. J. M. van PUTTEN et R. SCHLEIJPEN : Development of a mid-infrared laser for study of infrared countermeasures techniques. *Proc. SPIE*, 5615: 27–38, 2004.
- [25] P. LOUBERE : The global climate system. *Nature Education Knowledge*, 3(10): 24, 2012.
- [26] M. SEIDEL, X. XIAO, S. A. HUSSAIN, G. ARISHOLM, A. HARTUNG, K. T. ZAWILSKI, P. G. SCHUNEMANN, F. HABEL, M. TRUBETSKOV, V. PERVAK, O. PRONIN et F. KRAUSZ : Multi-watt, multi-octave, mid-infrared femtosecond source. *Sci. Adv.*, 4(4): eaaq1526, 2018.
- [27] C. R. PETERSEN, U. MÄLLER, I. KUBAT, B. ZHOU, S. DUPONT, J. RAMSAY, T. BENSON, S. SUJECKI, N. ABDEL-MONEIM, Z. TANG, D. FURNISS, A. SEDDON et O. BANG : Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3  $\mu\text{m}$  molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre. *Nat. Photonics*, 8(11): 830–834, 2014.
- [28] T. POPMINTCHEV, M. C. CHEN, D. POPMINTCHEV, P. ARPIN, S. BROWN, S. ALIŠAUSKAS, G. ANDRIUKAITIS, T. BALČIUNAS, O. D. MÜCKE, A. PUGZLYS, A. BALTUŠKA, B. SHIM, S. E. SCHRAUTH, A. GAETA, C. HERNÁNDEZ-GARCÍA, L. PLAJA, A. BECKER, A. JARON-BECKER, M. M. MURNANE et H. C. KAPTEYN : Bright coherent ultra-high harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science*, 336(6086): 1287–1291, 2012.
- [29] M. CLERICI, M. PECCIANI, B. E. SCHMIDT, L. CASPANI, M. SHALABY, M. GIGUÈRE, A. LOTTI, A. COUAIRON, F. LÉGARÉ, T. OZAKI, D. FACCIO et R. MORANDOTTI : Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 110: 253901, 2013.
- [30] W. H. LOWDERMILK et J. E. MURRAY : The multipass amplifier : Theory and numerical analysis. *J. Appl. Phys.*, 51(5): 2436–2444, 1980.
- [31] P. RUSSBUELDT, T. MANS, G. ROTARIUS, J. WEITENBERG, H.D. HOFFMANN et R. POPRAWE : 400 W Yb :YAG Innoslab fs-amplifier. *Opt. Express*, 17(15): 12230–12245, 2009.
- [32] D. STRICKLAND et G. MOUROU : Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Commun.*, 55(6): 447 – 449, 1985.
- [33] C. HERNÁNDEZ-GARCÍA, J. A. PÉREZ-HERNÁNDEZ, T. POPMINTCHEV, M. M. MURNANE, H. C. KAPTEYN, A. JARON-BECKER, A. BECKER et L. PLAJA : Zeptosecond high harmonic keV x-ray waveforms driven by midinfrared laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 111: 033002, 2013.
- [34] T. STENSITZKI, Y. YANG, V. KOZICH, A. A. AHMED, F. KÖSSL, O. KÜHN et K. HEYNE : Acceleration of a ground-state reaction by selective femtosecond-infrared-laser-pulse excitation. *Nat. Chem.*, 10: 126–131, 2018.

- [35] H. A. HAUS : Mode-locking of lasers. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 6(6): 1173–1185, 2000.
- [36] U. KELLER, K.J. WEINGARTEN, F.X. KARTNER, D. KOPF, B. BRAUN, ID. JUNG, R. FLUCK, C. HONNINGER, N. MATUSCHEK et J. Aus der AU : Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM's) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 2(3): 435–453, 1996.
- [37] F.X. KÄRTNER, J.A der AU et U. KELLER : Mode-locking with slow and fast saturable absorbers - what's the difference? *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 4(2): 159–168, 1998.
- [38] R. I. WOODWARD et E. J. R. KELLEHER : 2D saturable absorbers for fibre lasers. *Appl. Sci.*, 5(4): 1440–1456, 2015.
- [39] M. I. DZHIBLADZE, Z. G. ÉSIASHVILI, É. S. TEPLITSKIĬ, S. K. ISAEV et V. R. SAGARADZE : Mode locking in a fiber laser. *Sov. J. Quantum Electron.*, 13(2): 245, 1983.
- [40] J. N. TIWARI, R. N. TIWARI et K. S. KIM : Zero-dimensional, one-dimensional, two-dimensional and three-dimensional nanostructured materials for advanced electrochemical energy devices. *Prog. Mater. Sci.*, 57(4): 724 – 803, 2012.
- [41] R. HERDA, O. G. OKHOTNIKOV, E. U. RAFAILOV, W. SIBBETT, P. CRITTENDEN et A. STARODUMOV : Semiconductor quantum-dot saturable absorber mode-locked fiber laser. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 18(1): 157–159, 2006.
- [42] A. MARTINEZ et Z. SUN : Nanotube and graphene saturable absorbers for fibre lasers. *Nat. Photonics*, 7: 842–845, 2013.
- [43] R. R. NAIR, P. BLAKE, A. N. GRIGORENKO, K. S. NOVOSELOV, T. J. BOOTH, T. STAUBER, N. M. R. PERES et A. K. GEIM : Fine structure constant defines visual transparency of graphene. *Science*, 320(5881): 1308–1308, 2008.
- [44] S. BUTSCHER, F. MILDE, M. HIRTSCHULZ, E. MALIC et A. KNORR : Hot electron relaxation and phonon dynamics in graphene. *Appl. Phys. Lett.*, 91(20): 203103, 2007.
- [45] Y. CHEN, G. JIANG, S. CHEN, Z. GUO, X. YU, C. ZHAO, H. ZHANG, Q. BAO, S. WEN, D. TANG et D. FAN : Mechanically exfoliated black phosphorus as a new saturable absorber for both Q-switching and mode-locking laser operation. *Opt. Express*, 23(10): 12823–12833, 2015.
- [46] Q. H. WANG, K. KALANTAR-ZADEH, A. KIS, J. N. COLEMAN et M. S. STRANO : Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides. *Nat. Nanotechnol.*, 7: 699–, 2012.
- [47] Chujun ZHAO, Han ZHANG, Xiang QI, Yu CHEN, Zhiteng WANG, Shuangchun WEN et Dingyuan TANG : Ultra-short pulse generation by a topological insulator based saturable absorber. *Appl. Phys. Lett.*, 101(21): 211106, 2012.

- [48] R. W. BOYD : *Nonlinear Optics*. Academic press, 2003.
- [49] D. E. SPENCE, P. N. KEAN et W. SIBBETT : 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti : sapphire laser. *Opt. Lett.*, 16(1): 42–44, 1991.
- [50] R. ELL, U. MORGNER, F. X. KÄRTNER, J. G. FUJIMOTO, E. P. IPPEN, V. SCHEUER, G. ANGELOW, T. TSCHUDI, M. J. LEDERER, A. BOIKO et B. LUTHER-DAVIES : Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti :sapphire laser. *Opt. Lett.*, 26(6): 373–375, 2001.
- [51] L. WANG, A. CHONG et J. W. HAUS : Numerical modeling of mode-locked fiber lasers with a fiber-based saturable-absorber. *Opt. Commun.*, 383: 386 – 390, 2017.
- [52] H. A. HAUS et E. P. IPPEN : Self-starting of passively mode-locked lasers. *Opt. Lett.*, 16(17): 1331–1333, 1991.
- [53] M. E. FERMAN, F. HABERL, M. HOFER et H. HOCHREITER : Nonlinear amplifying loop mirror. *Opt. Lett.*, 15(13): 752–754, 1990.
- [54] I. N. DULING : All-fiber ring soliton laser mode locked with a nonlinear mirror. *Opt. Lett.*, 16(8): 539–541, 1991.
- [55] C. AGUERGARAY, R. HAWKER, A. F. J. RUNGE, M. ERKINTALO et N. G. R. BRODERICK : 120 fs, 4.2 nJ pulses from an all-normal-dispersion, polarization-maintaining, fiber laser. *Appl. Phys. Lett.*, 103(12): 121111, 2013.
- [56] L. DAHLSTRÖM : A new passive non-linear output coupler for mode-locked high power lasers. *Opt. Commun.*, 4(3): 214–219, 1971.
- [57] P. D. MAKER, R. W. TERHUNE et C. M. SAVAGE : Intensity-dependent changes in the refractive index of liquids. *Phys. Rev. Lett.*, 12: 507–509, 1964.
- [58] K. R. TAMURA : *Additive Pulse Mode-Locked Erbium-Doped Fiber Lasers*. Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, 1994.
- [59] L. F. MOLLENAUER et R. H. STOLEN : The soliton laser. *Opt. Lett.*, 9(1): 13–15, 1984.
- [60] J S. RUSSELL : Report on waves. 311(390): 1844, 1844.
- [61] A. HASEGAWA et F. TAPPERT : Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. I. Anomalous dispersion. *Appl. Phys. Lett.*, 23(3): 142–144, 1973.
- [62] L.E. NELSON, D.J. JONES, K. TAMURA, H.A. HAUS et E.P. IPPEN : Ultrashort-pulse fiber ring lasers. *Appl. Phys. B*, 65(2): 277–294, 1997.

- [63] S.M.J. KELLY : Characteristic sideband instability of periodically amplified average soliton. *Electron. Lett.*, 28: 806–8071, 1992.
- [64] D. Y. TANG, L. M. ZHAO, B. ZHAO et A. Q. LIU : Mechanism of multisoliton formation and soliton energy quantization in passively mode-locked fiber lasers. *Phys. Rev. A*, 72: 043816, 2005.
- [65] K. TAMURA, E.P. IPPEN et H.A. HAUS : Optimization of filtering in soliton fiber lasers. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 6(12): 1433–1435, 1994.
- [66] R. GRANGE, M. HAIML, R. PASCHOTTA, G.J. SPÜHLER, L. KRAINER, M. GOLLING, O. OSTINELLI et U. KELLER : New regime of inverse saturable absorption for self-stabilizing passively mode-locked lasers. *Appl. Phys. B*, 80(2): 151–158, 2005.
- [67] K. TAMURA, E. P. IPPEN, H. A. HAUS et L. E. NELSON : 77-fs pulse generation from a stretched-pulse mode-locked all-fiber ring laser. *Opt. Lett.*, 18(13): 1080–1082, 1993.
- [68] F. Ö. ILDAY, J. R. BUCKLEY, W. G. CLARK et F. W. WISE : Self-similar evolution of parabolic pulses in a laser. *Phys. Rev. Lett.*, 92: 213902, 2004.
- [69] A. CHONG, J. BUCKLEY, W. RENNINGER et F. W. WISE : All-normal-dispersion femtosecond fiber laser. *Opt. Express*, 14(21): 10095–10100, 2006.
- [70] B. OKTEM, C. ÜLGÜDÜR et F. Ö. ILDAY : Soliton-similariton fibre laser. *Nat. Photonics*, 4: 307–311, 2010.
- [71] Z. LIU, Z. M. ZIEGLER, L. G. WRIGHT et F. W. WISE : Megawatt peak power from a Mamyshev oscillator. *Optica*, 4(6): 649–654, 2017.
- [72] K. TAMURA, J. JACOBSON, E. P. IPPEN, H. A. HAUS et J. G. FUJIMOTO : Unidirectional ring resonators for self-starting passively mode-locked lasers. *Opt. Lett.*, 18(3): 220–222, 1993.
- [73] I.T. SOROKINA et E. SOROKIN : Femtosecond Cr<sup>2+</sup>-based lasers. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 21(1): 1–19, 2015.
- [74] Y. NAMIKAWA : ZnSe single crystals grown by vapor growth methods and their applications. *Sci Tech. Rev.*, (72): 25, 2011.
- [75] A. BURGER, K. CHATTOPADHYAY, J.-O. NDAP, X. MA, S.H. MORGAN, C.I. RABLAU, C.-H. SU, S. FETH, Ré H. PAGE, K. I. SCHAFFERS et S. A. PAYNE : Preparation conditions of chromium doped znse and their infrared luminescence properties. *J. Cryst. Growth*, 225(2): 249–256, 2001. Proceedings of the 12<sup>th</sup> American Conference on Crystal Growth and Epitaxy.

- [76] E. SOROKIN, I. T. SOROKINA, M. S. MIROV, V. V. FEDOROV, I. S. MOSKALEV et S. B. MIROV : Ultrabroad continuous-wave tuning of ceramic Cr : ZnSe and Cr : ZnS lasers. *Lasers, Sources and Related Photonic Devices*, page AMC2, 2010.
- [77] I. SOROKINA, E. SOROKIN, A. Di LIETO, M. TONELLI, R. H. PAGE et K. I. SCHAFF : Active and passive mode-locking of Cr<sup>2+</sup> : ZnSe laser. *Advanced Solid-State Lasers*, page MC2, 2001.
- [78] I. T. SOROKINA, E. SOROKIN, T. J. CARRIG et K. I. SCHAFFERS : A SESAM passively mode-locked Cr : ZnS laser. *Advanced Solid-State Photonics*, page TuA4, 2006.
- [79] N. TOLSTIK, E. A. SOROKIN et I. T. SOROKINA : Graphene mode-locked Cr : ZnS laser with 41 fs pulse duration. *Opt. Express*, 22(5): 5564–5571, 2014.
- [80] Y. DENG, F. LU et W. H. KNOX : Fiber-laser-based difference frequency generation scheme for carrier-envelope-offset phase stabilization applications. *Opt. Express*, 13(12): 4589–4593, 2005.
- [81] T. W. NEELY, T. A. JOHNSON et S. A. DIDDAMS : High-power broadband laser source tunable from 3.0  $\mu\text{m}$  to 4.4  $\mu\text{m}$  based on a femtosecond Yb : fiber oscillator. *Opt. Lett.*, 36(20): 4020–4022, 2011.
- [82] C. ERNY, K. MOUTZOURIS, J. BIEGERT, D. KÜHLKE, F. ADLER, A. LEITENSTORFER et U. KELLER : Mid-infrared difference-frequency generation of ultrashort pulses tunable between 3.2 and 4.8  $\mu\text{m}$  from a compact fiber source. *Opt. Lett.*, 32(9): 1138–1140, 2007.
- [83] D. BRIDA, C. MANZONI, G. CIRMI, M. MARANGONI, S. De SILVESTRI et G. CERULLO : Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier. *Opt. Express*, 15(23): 15035–15040, 2007.
- [84] N. LEINDECKER, A. MARANDI, R. L. BYER, K. L. VODOPYANOV, J. JIANG, I. HARTL, M. FERMANN et P. G. SCHUNEMANN : Octave-spanning ultrafast OPO with 2.6-6.1  $\mu\text{m}$  instantaneous bandwidth pumped by femtosecond Tm-fiber laser. *Opt. Express*, 20(7): 7046–7053, 2012.
- [85] G. ANDRIUKAITIS, T. BALČIŪNAS, S. ALIŠAUSKAS, A. PUGŽLYS, A. BALTUŠKA, T. POPMINTCHEV, M. C. CHEN, M. M. MURNANE et H. C. KAPTEYN : 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier. *Opt. Lett.*, 36(15): 2755–2757, 2011.
- [86] J. FAIST, F. CAPASSO, D. L. SIVCO, C. SIRTORI, A. L. HUTCHINSON et A. Y. CHO : Quantum cascade laser. *Science*, 264(5158): 553–556, 1994.

- [87] M. RAZEGHI, N. BANDYOPADHYAY, Y. BAI, Q. LU et S. SLIVKEN : Recent advances in mid infrared (3-5  $\mu\text{m}$ ) quantum cascade lasers. *Opt. Mater. Express*, 3(11): 1872–1884, 2013.
- [88] B. S. WILLIAMS : Terahertz quantum-cascade lasers. *Nat. Photonics*, 1: 517–525, 2007.
- [89] W. W. BEWLEY, C. L. CANEDY, C. S. KIM, M. KIM, C. D. MERRITT, J. ABELL, I. VURGAFTMAN et J. R. MEYER : Continuous-wave interband cascade lasers operating above room temperature at  $\lambda = 4.7 - 5.6 \mu\text{m}$ . *Opt. Express*, 20(3): 3235–3240, 2012.
- [90] C. Y. WANG, L. KUZNETSOVA, V. M. GKORTSAS, L. DIEHL, F. X. KÄRTNER, M. A. BELKIN, A. BELYANIN, X. LI, D. HAM, H SCHNEIDER, P. GRANT, C. Y. SONG, S. HAFFOUZ, Z. R. WASILEWSKI, H. C. LIU et F. CAPASSO : Mode-locked pulses from mid-infrared quantum cascade lasers. *Opt. Express*, 17(15): 12929–12943, 2009.
- [91] F. WANG, K. MAUSSANG, S. MOUMDJI, R. COLOMBELLI, J. R. FREEMAN, I. KUNDU, L. LI, E. H. LINFIELD, A. G. DAVIES, J. MANGENEY, J. TIGNON et S. S. DHILLON : Generating ultrafast pulses of light from quantum cascade lasers. *Optica*, 2(11): 944–949, 2015.
- [92] M. BAGHERI, C. FREZ, L. A. STERCZEWSKI, I. GRUIDIN, M. FRADET, I. VURGAFTMAN, C. L. CANEDY, W. W. BEWLEY, C. D. MERRITT, C. Soo KIM, M. KIM et J. R. MEYER : Passively mode-locked interband cascade optical frequency combs. *Sci. Rep.*, 8(1): 3322, 2018.
- [93] Z. TANG, D. FURNISS, M. FAY, H. SAKR, L. SÓJKA, N. NEATE, N. WESTON, S. SUJECKI, T. M. BENSON et A. B. SEDDON : Mid-infrared photoluminescence in small-core fiber of praseodymium-ion doped selenide-based chalcogenide glass. *Opt. Mater. Express*, 5(4): 870–886, 2015.
- [94] L. SOJKA, Z. TANG, D. FURNISS, H. SAKR, Y. FANG, E. BERES-PAWLIK, T. M. BENSON, A. B. SEDDON et S. SUJECKI : Mid-infrared emission in  $\text{Tb}^{3+}$ -doped selenide glass fiber. *J. Opt. Soc. Am. B*, 34(3): A70–A79, 2017.
- [95] A. MORI, Y. OHISHI et S. SUDO : Erbium-doped tellurite glass fibre laser and amplifier. *Electron. Lett.*, 33(10): 863–864, 1997.
- [96] S. D. JACKSON : Towards high-power mid-infrared emission from a fibre laser. *Nat. Photonics*, 6(7): 423–431, 2012.
- [97] Y. O. AYDIN, V. FORTIN, R. VALLÉE et M. BERNIER : Towards power scaling of 2.8  $\mu\text{m}$  fiber lasers. *Opt. Lett.*, 43(18): 4542–4545, Sep 2018.
- [98] F. MAES, V. FORTIN, S. POULAIN, M. POULAIN, J. Y. CARRÉE, M. BERNIER et R. VALLÉE : Room-temperature fiber laser at 3.92  $\mu\text{m}$ . *Optica*, 5(7): 761–764, Jul 2018.

- [99] M. R. MAJEWSKI, R. I. WOODWARD, J. Y. CARREÉ, S. POULAIN, M. POULAIN et S. D. JACKSON : Emission beyond 4  $\mu\text{m}$  and mid-infrared lasing in a dysprosium-doped indium fluoride (InF<sub>3</sub>) fiber. *Opt. Lett.*, 43(8): 1926–1929, Apr 2018.
- [100] A. HABOUCHA, V. FORTIN, M. BERNIER, J. GENEST, Y. MESSADDEQ et R. VALLÉE : Fiber Bragg grating stabilization of a passively mode-locked 2.8  $\mu\text{m}$  Er<sup>3+</sup> : fluoride glass fiber laser. *Opt. Lett.*, 39(11): 3294–3297, 2014.
- [101] T. HU, D. D. HUDSON et S. D. JACKSON : Stable, self-starting, passively mode-locked fiber ring laser of the 3  $\mu\text{m}$  class. *Opt. Lett.*, 39(7): 2133–2136, 2014.
- [102] Z. QIN, G. XIE, C. ZHAO, S. WEN, P. YUAN et L. QIAN : Mid-infrared mode-locked pulse generation with multilayer black phosphorus as saturable absorber. *Opt. Lett.*, 41(1): 56–59, 2016.
- [103] P. TANG, Z. QIN, J. LIU, C. ZHAO, G. XIE, S. WEN et L. QIAN : Watt-level passively mode-locked Er<sup>3+</sup>-doped ZBLAN fiber laser at 2.8  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 40(21): 4855–4858, 2015.
- [104] S. DUVAL, M. BERNIER, V. FORTIN, J. GENEST, M. PICHÉ et R. VALLÉE : Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared. *Optica*, 2(7): 623–626, 2015.
- [105] T. HU, S. D. JACKSON et D. D. HUDSON : Ultrafast pulses from a mid-infrared fiber laser. *Opt. Lett.*, 40(18): 4226–4228, 2015.
- [106] G. ZHU, X. ZHU, F. WANG, S. XU, Y. LI, X. GUO, K. BALAKRISHNAN, R. A. NORWOOD et N. PEYGHAMBARIAN : Graphene mode-locked fiber laser at 2.8  $\mu\text{m}$ . *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 28(1): 7–10, 2016.
- [107] S. DUVAL, M. OLIVIER, V. FORTIN, M. BERNIER, M. PICHÉ et R. VALLÉE : 23-kW peak power femtosecond pulses from a mode-locked fiber ring laser at 2.8  $\mu\text{m}$ . *Proc.SPIE*, 9728: 9728, 2016.
- [108] S. ANTIPOV, D. D. HUDSON, A. FUERBACH et S. D. JACKSON : High-power mid-infrared femtosecond fiber laser in the water vapor transmission window. *Optica*, 3(12): 1373–1376, 2016.
- [109] C. HÖNNINGER, R. PASCHOTTA, F. MORIER-GENOUD, M. MOSER et U. KELLER : Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(1): 46–56, 1999.
- [110] L. ZHANG, F. GAN et P. WANG : Evaluation of refractive-index and material dispersion in fluoride glasses. *Appl. Opt.*, 33(1): 50–56, 1994.



- [111] J. M. DUDLEY, G. GENTY et S. COEN : Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. *Rev. Mod. Phys.*, 78: 1135–1184, 2006.
- [112] G. P. AGRAWAL : *Nonlinear Fiber Optics*. Springer, 2000.
- [113] C. V. RAMAN et K. S. KRISHNAN : A new type of secondary radiation. *Nature*, 121: 501, 1928.
- [114] J. P. GORDON : Theory of the soliton self-frequency shift. *Opt. Lett.*, 11(10): 662–664, 1986.
- [115] G. P. AGRAWAL : Optical pulse propagation in doped fiber amplifiers. *Phys. Rev. A*, 44: 7493–7501, 1991.
- [116] M. NAKAZAWA, K. KUROKAWA, H. KUBOTA, K. SUZUKI et Y. KIMURA : Femtosecond erbium-doped optical fiber amplifier. *Appl. Phys. Lett.*, 57(7): 653–655, 1990.
- [117] M. E. FERMAN et I. HARTL : Ultrafast fibre lasers. *Nat. Photonics*, 7(11): 868–874, 2013.
- [118] F. K. TITTEL, D. RICHTER et A. FRIED : *Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy*, volume 89 de *Topics in Applied Physics*. Springer Berlin Heidelberg, 2003.
- [119] V. FORTIN, M. BERNIER, N. CARON, D. FAUCHER, M. EL AMRAOUI, Y. MESSADDEQ et R. VALLÉE : Towards the development of fiber lasers for the 2 to 4  $\mu\text{m}$  spectral region. *Opt. Eng.*, 52(5): 054202, 2013.
- [120] T. HU, D. D. HUDSON et S. D. JACKSON : Actively Q-switched 2.9  $\mu\text{m}$   $\text{Ho}^{3+}$   $\text{Pr}^{3+}$ -doped fluoride fiber laser. *Opt. Lett.*, 37(11): 2145–2147, 2012.
- [121] S. TOKITA, M. MURAKAMI, S. SHIMIZU, M. HASHIDA et S. SAKABE : 12W Q-switched Er : ZBLAN fiber laser at 2.8  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 36(15): 2812–2814, 2011.
- [122] C. WEI, X. ZHU, R. A. NORWOOD et N. PEYGHAMBARIAN : Passively continuous-wave mode-locked  $\text{Er}^{3+}$ -doped ZBLAN fiber laser at 2.8  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 37(18): 3849–3851, 2012.
- [123] J. LI, D. D. HUDSON, Y. LIU et S. D. JACKSON : Efficient 2.87  $\mu\text{m}$  fiber laser passively switched using a semiconductor saturable absorber mirror. *Opt. Lett.*, 37(18): 3747–3749, 2012.
- [124] N. CARON, M. BERNIER, D. FAUCHER et R. VALLÉE : Understanding the fiber tip thermal runaway present in 3  $\mu\text{m}$  fluoride glass fiber lasers. *Opt. Express*, 20(20): 22188–22194, 2012.

- [125] M. HOFER, M.E. FERMAN, F. HABERL, M.H. OBER et A. J. SCHMIDT : Mode locking with cross-phase and self-phase modulation. *Opt. Lett.*, 16(7): 502–504, 1991.
- [126] A. MARANDI, C. W. RUDY, V. G. PLOTNICHENKO, E. M. DIANOV, K. L. VODOPYANOV et R. L. BYER : Mid-infrared supercontinuum generation in tapered chalcogenide fiber for producing octave-spanning frequency comb around 3  $\mu\text{m}$ . *Opt. Express*, 20(22): 24218–24225, 2012.
- [127] M. BERNIER, V. MICHAUD-BELLEAU, S. LEVASSEUR, V. FORTIN, J. GENEST et R. VALLÉE : All-fiber DFB laser operating at 2.8  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 40(1): 81–84, 2015.
- [128] I. CODDINGTON, W. C. SWANN et N. R. NEWBURY : Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs. *Phys. Rev. Lett.*, 100: 013902, 2008.
- [129] I. T. SOROKINA et K. L. VODOPYANOV : *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, volume 89. Springer Science & Business Media, 2003.
- [130] K. TAMURA, L. E. NELSON, H. A HAUS et E. P. IPPEN : Soliton versus nonsoliton operation of fiber ring lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 64(2): 149–151, 1994.
- [131] M. GEBHARDT, C. GAIDA, F. STUTZKI, S. HÄDRICH, C. JAUREGUI, J. LIMPERS et A. TÜNNERMANN : Impact of atmospheric molecular absorption on the temporal and spatial evolution of ultra-short optical pulses. *Opt. Express*, 23(11): 13776–13787, 2015.
- [132] *HITRAN database, 2016*, <https://hitran.org/>.
- [133] K. OHTA et H. ISHIDA : Comparison among several numerical integration methods for Kramers-Kronig transformation. *Appl. Spectrosc.*, 42(6): 952–957, 1988.
- [134] A. MIOTELLO et P. M. OSSI : *Laser-Surface Interactions for New Materials Production*. Springer, 2010.
- [135] V. FORTIN, M. BERNIER, S. T. BAH et R. VALLÉE : 30 W fluoride glass all-fiber laser at 2.94  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 40(12): 2882–2885, 2015.
- [136] O. HENDERSON-SAPIR, J. MUNCH et D. J. OTTAWAY : New energy-transfer upconversion process in  $\text{Er}^{3+}$  : ZBLAN mid-infrared fiber lasers. *Opt. Express*, 24(7): 6869–6883, 2016.
- [137] V. FORTIN, F. MAES, M. BERNIER, S. Toubou BAH, M. D’AUTEUIL et R. VALLÉE : Watt-level erbium-doped all-fiber laser at 3.44  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 41(3): 559–562, 2016.
- [138] F. M. MITSCHKE et L. F. MOLLENAUER : Discovery of the soliton self-frequency shift. *Opt. Lett.*, 11(10): 659–661, 1986.

- [139] T. CHENG, Y. KANOU, K. ASANO, D. DENG, M. LIAO, M. MATSUMOTO, T. MISUMI, T. SUZUKI et Y. OHISHI : Soliton self-frequency shift and dispersive wave in a hybrid four-hole AsSe<sub>2</sub>-As<sub>2</sub>S<sub>5</sub> microstructured optical fiber. *Appl. Phys. Lett.*, 104(12): 121911, 2014.
- [140] M. Yu. KOPTEV, E. A. ANASHKINA, A. V. ANDRIANOV, V. V. DOROFEEV, A. F. KOSOLAPOV, S. V. MURAVYEV et A. V. KIM : Widely tunable mid-infrared fiber laser source based on soliton self-frequency shift in microstructured tellurite fiber. *Opt. Lett.*, 40(17): 4094–4097, 2015.
- [141] Y. TANG, L. G. WRIGHT, K. CHARAN, T. WANG, C. XU et F. W. WISE : Generation of intense 100 fs solitons tunable from 2 to 4.3  $\mu\text{m}$  in fluoride fiber. *Optica*, 3(9): 948–951, 2016.
- [142] M. DUERING, R. HAGLUND et B. LUTHER-DAVIES : Resonant infrared ablation of polystyrene with single picosecond pulses generated by an optical parametric amplifier. *Appl. Phys. A*, 114(1): 151–159, 2014.
- [143] O. HENDERSON-SAPIR, J. MUNCH et D. J. OTTAWAY : Mid-infrared fiber lasers at and beyond 3.5  $\mu\text{m}$  using dual-wavelength pumping. *Opt. Lett.*, 39(3): 493–496, 2014.
- [144] M. R. MAJEWSKI, R. I. WOODWARD et S. D. JACKSON : Dysprosium-doped ZBLAN fiber laser tunable from 2.8  $\mu\text{m}$  to 3.4  $\mu\text{m}$ , pumped at 1.7  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 43(5): 971–974, Mar 2018.
- [145] J. C. GAUTHIER, V. FORTIN, S. DUVAL, R. VALLÉE et M. BERNIER : In-amplifier mid-infrared supercontinuum generation. *Opt. Lett.*, 40(22): 5247–5250, 2015.
- [146] J. C. GAUTHIER, V. FORTIN, J. Y. CARRÉE, S. POULAIN, M. POULAIN, R. VALLÉE et M. BERNIER : Mid-IR supercontinuum from 2.4 to 5.4  $\mu\text{m}$  in a low-loss fluorindate fiber. *Opt. Lett.*, 41(8): 1756–1759, 2016.
- [147] S. DUVAL, J. C. GAUTHIER, L. R. ROBICHAUD, P. PARADIS, M. OLIVIER, V. FORTIN, M. BERNIER, M. PICHÉ et R. VALLÉE : Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 41(22): 5294–5297, 2016.
- [148] R. SALEM, Z. JIANG, D. LIU, R. PAFCHEK, P. FOY, M. SAAD, D. JENKINS, A. CABLE et P. FENDEL : Mid-infrared supercontinuum generation up to 4.6  $\mu\text{m}$  using step-index indium fluoride fiber pumped by a femtosecond fiber laser near 2  $\mu\text{m}$ . *Proc. SPIE*, 9728: 97280L–97280L–7, 2016.
- [149] F. R. ARTEAGA-SIERRA, A. ANTIKAINEN et G. P. AGRAWAL : Dynamics of soliton cascades in fiber amplifiers. *Opt. Lett.*, 41(22): 5198–5201, 2016.

- [150] N. TOLSTIK, E. SOROKIN, V. KALASHNIKOV et I. T. SOROKINA : Soliton delivery of mid-IR femtosecond pulses with ZBLAN fiber. *Opt. Mater. Express*, 2(11): 1580–1587, 2012.
- [151] C. AGGER, C. PETERSEN, S. DUPONT, H. STEFFENSEN, J. K. LYNGSØ, C. L. THOMSEN, J. THØGERSEN, S. R. KEIDING et O. BANG : Supercontinuum generation in ZBLAN fibers : Detailed comparison between measurement and simulation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 29(4): 635–645, 2012.
- [152] J. LI et S.D. JACKSON : Numerical modeling and optimization of diode pumped heavily-erbium-doped fluoride fiber lasers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 48(4): 454–464, 2012.
- [153] M. GORJAN, M. MARINCEK et M. COPIC : Role of interionic processes in the efficiency and operation of erbium-doped fluoride fiber lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 47(2): 262–273, 2011.
- [154] F. MAES, V. FORTIN, M. BERNIER et R. VALLÉE : Quenching of 3.4  $\mu\text{m}$  dual-wavelength pumped erbium doped fiber lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 53(2): 1–8, 2017.
- [155] M. B. HOFFMAN et J. A. BUCK : Erbium resonance-based dispersion effects on subpicosecond pulse propagation in fiber amplifiers : Analytical studies. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(9): 2012–2016, 1996.
- [156] T. SCHWEIZER, B.N SAMSON, J.R HECTOR, W.S BROCKLESBY, D.W HEWAK et D.N PAYNE : Infrared emission from holmium doped gallium lanthanum sulphide glass. *Infrared Phys. Technol.*, 40(4): 329 – 335, 1999.
- [157] W. J. MINISCALCO et R. S. QUIMBY : General procedure for the analysis of  $\text{Er}^{3+}$  cross sections. *Opt. Lett.*, 16(4): 258–260, 1991.
- [158] Y.D. HUANG, M. MORTIER et F. AUZEL : Stark level analysis for  $\text{Er}^{3+}$ -doped ZBLAN glass. *Optical Materials*, 17(4): 501 – 511, 2001.
- [159] B. WANG, L. CHENG, H. ZHONG, J. SUN, Y.TIAN, X. ZHANG et B. CHEN : Excited state absorption cross sections of  $I_{13/2}^4$  of  $\text{Er}^{3+}$  in ZBLAN. *Opt. Mater.*, 31(11): 1658 – 1662, 2009.
- [160] W. J. MINISCALCO : Erbium-doped glasses for fiber amplifiers at 1500 nm. *J. Lightwave Technol.*, 9(2): 234–250, 1991.
- [161] X. YAN, C. KITO, S. MIYOSHI, M. LIAO, T. SUZUKI et Y. OHISHI : Raman transient response and enhanced soliton self-frequency shift in ZBLAN fiber. *J. Opt. Soc. Am. B*, 29(2): 238–243, 2012.

- [162] D. HOLLENBECK et C. D. CANTRELL : Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19(12): 2886–2892, 2002.
- [163] A. MALOUF, O. HENDERSON-SAPIR, M. GORJAN et D. J. OTTAWAY : Numerical modeling of 3.5  $\mu\text{m}$  dual-wavelength pumped erbium-doped mid-infrared fiber lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 52(11): 1–12, 2016.
- [164] R. DRIBEN, B. A. MALOMED, A. V. YULIN et D. V. SKRYABIN : Newton’s cradles in optics : From  $n$ -soliton fission to soliton chains. *Phys. Rev. A*, 87: 063808, 2013.
- [165] D. R. SOLLI, C. ROPERS, P. KOONATH et B. JALALI : Optical rogue waves. *Nature*, 450(7172): 1054–1057, 2007.
- [166] L. R. ROBICHAUD, V. FORTIN, J. C. GAUTHIER, S. CHÂTIGNY, J. F. COUILLARD, J. L. DELAROSBIL, R. VALLÉE et M. BERNIER : Compact 3–8  $\mu\text{m}$  supercontinuum generation in a low-loss As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> step-index fiber. *Opt. Lett.*, 41(20): 4605–4608, 2016.
- [167] F. MAES, V. FORTIN, M. BERNIER et R. VALLÉE : 5.6-W monolithic fiber laser at 3.55  $\mu\text{m}$ . *Opt. Lett.*, 42(11): 2054–2057, 2017.
- [168] V. K. BOGDANOV, D. J. BOOTH, W. E. K. GIBBS, J. S. JAVORNICZKY, P. J. NEWMAN et D. R. MACFARLANE : Population dynamics in Er<sup>3+</sup>-doped fluoride glasses. *Phys. Rev. B*, 63: 205107, 2001.
- [169] M. POLLNAU et S. D. JACKSON : Energy recycling versus lifetime quenching in erbium-doped 3- $\mu\text{m}$  fiber lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 38(2): 162–169, 2002.
- [170] R. S. QUIMBY, W. J. MINISALCO et B. THOMPSON : Excited state absorption at 980 nm in erbium-doped silica glass. *Optical Amplifiers and Their Applications*, page WE3, 1992.
- [171] D. D. HUDSON : Invited paper : Short pulse generation in mid-IR fiber lasers. *Opt. Fiber Technol.*, 20(6): 631 – 641, 2014.
- [172] M. BERNIER, R. VALLÉE, V. FORTIN, J. C. GAUTHIER et S. DUVAL : Mid-infrared laser system, mid-infrared optical amplifier, and method of operating a mid-infrared laser system, Apr 19 2018. US Patent App. 15/783,152.
- [173] S. WOUTERSEN, U. EMMERICHS et H. J. BAKKER : Femtosecond mid-IR pump-probe spectroscopy of liquid water : Evidence for a two-component structure. *Science*, 278(5338): 658–660, 1997.
- [174] K. L. VODOPYANOV : Saturation studies of H<sub>2</sub>O and HDO near 3400 cm<sup>-1</sup> using intense picosecond laser pulses. *J. Chem. Phys.*, 94(8): 5389–5393, 1991.

- [175] J. C. DEAK, S. T. RHEA, L. K. IWAKI, et D. D. DLOTT : Vibrational energy relaxation and spectral diffusion in water and deuterated water. *J. Phys. Chem. A*, 104(21): 4866–4875, 2000.
- [176] W. H. RENNINGER, A. CHONG et F. W. WISE : Pulse shaping and evolution in normal-dispersion mode-locked fiber lasers. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 18(1): 389–398, 2012.
- [177] Y. YU, B. ZHANG, X. GAI, C. ZHAI, S. QI, W. GUO, Z. YANG, R. WANG, D. Y. CHOI, S. MADDEN et B. LUTHER-DAVIES : 1.8-10  $\mu\text{m}$  mid-infrared supercontinuum generated in a step-index chalcogenide fiber using low peak pump power. *Opt. Lett.*, 40(6): 1081–1084, 2015.
- [178] F.W. WISE, A. CHONG et W.H. RENNINGER : High-energy femtosecond fiber lasers based on pulse propagation at normal dispersion. *Laser & Photon. Rev.*, 2(1-2): 58–73, 2008.
- [179] J. M. PARKER : Fluoride glasses. *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 19(1): 21–41, 1989.
- [180] M. OLIVIER et M. PICHÉ : Origin of the bound states of pulses in the stretched-pulse fiber laser. *Opt. Express*, 17(2): 405–418, 2009.
- [181] V. KALASHNIKOV et E. SOROKIN : Soliton absorption spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 81: 033840, 2010.

## Annexe A

# Origine de la synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation

Cette annexe a pour objectif de décrire mathématiquement l'origine de l'absorption saturable dans une cavité laser fonctionnant sur le principe de synchronisation modale passive par rotation non linéaire de la polarisation.

Le schéma le plus simple permettant de créer l'effet de modulation non linéaire désiré dans une cavité laser à fibre optique est présenté à la figure A.1. L'amplitude du champ électrique longitudinal de l'onde se propageant dans la cavité  $\mathbf{A}(\vec{r}, t)$  est représentée par ses deux composantes de polarisation transverses  $\tilde{A}_x(z, t)$  et  $\tilde{A}_y(z, t)$  selon :

$$\tilde{\mathbf{A}}(\vec{r}, t) = \hat{\mathbf{x}}\tilde{A}_x(z, t) + \hat{\mathbf{y}}\tilde{A}_y(z, t). \quad (\text{A.1})$$

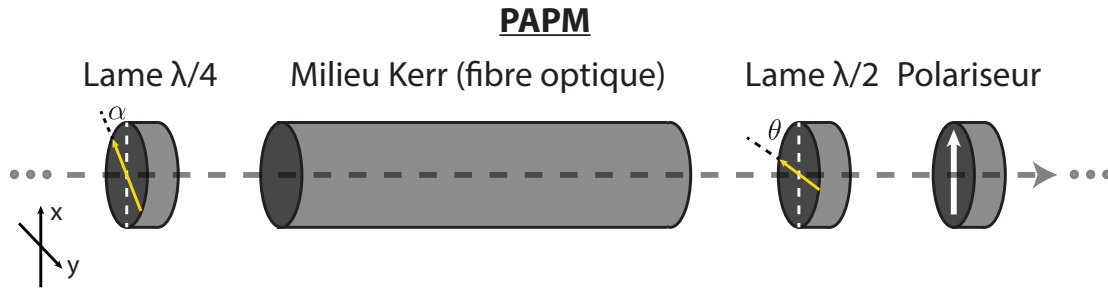


FIGURE A.1 – Configuration simplifiée pour l'intégration d'un modulateur non linéaire basé sur le principe de rotation non linéaire de la polarisation.

On associe chaque élément de la cavité qui modifie l'amplitude et la phase de ces composantes de polarisation à une matrice de Jones. Les matrices de Jones associées aux lames d'onde et au polariseur sont données par :

$$L\lambda/2 = \begin{bmatrix} \cos(2\theta) & \sin(2\theta) \\ \sin(2\theta) & -\cos(2\theta) \end{bmatrix}, \quad (\text{A.2})$$

$$L\lambda/4 = \frac{1-j}{2} \begin{bmatrix} j + \cos(2\alpha) & \sin(2\alpha) \\ \sin(2\alpha) & j - \cos(2\alpha) \end{bmatrix}, \quad (\text{A.3})$$

$$POL = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}. \quad (\text{A.4})$$

$\alpha$  et  $\theta$  sont respectivement les angles entre les axes de biréfringence des lames quart d'onde ( $L\lambda/4$ ) et demi-onde ( $L\lambda/2$ ) par rapport à l'axe du polariseur ( $POL$ ), qui est orienté sur l'axe des  $x$  par simplicité.

## A.1 Rotation non linéaire de la polarisation dans les fibres optiques

Cette section présente l'effet de la propagation du signal dans un milieu Kerr (une fibre optique) et son interprétation sous forme de matrice de Jones. À noter que l'analyse ci-dessous néglige la biréfringence résiduelle présente dans le milieu, qui peut être due à une contrainte de torsion, de pression ou de courbure dans la fibre optique. Cette biréfringence résiduelle est toutefois linéaire et peut être facilement compensée en pratique par l'ajout ou la réorientation d'une lame d'onde.

Débutons l'analyse avec l'équation d'onde qui régit la propagation du signal dans un tel milieu :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}, \quad (\text{A.5})$$

où

$$c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}}.$$

Lorsque  $\mathbf{E}$  est intense, le terme de polarisation électrique  $\mathbf{P}$  peut être exprimé comme une série de puissances du champ électrique :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{E}) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{E}^2) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{E}^3) + \dots \quad (\text{A.6})$$



On ne garde que les trois premiers termes non linéaires dans les fibres optiques puisque les autres termes sont négligeables. Comme les fibres sont constituées de verre, qui sont des milieux centrosymétriques, la réponse non linéaire proportionnelle au carré du champ électrique (Pockel) est nulle :

$$\mathbf{P}^{(2)} = 0. \quad (\text{A.7})$$

On suppose un champ électrique de la forme :

$$\mathbf{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{x}}E_x(\vec{r}, t) + \hat{\mathbf{y}}E_y(\vec{r}, t)) e^{i\omega_0 t} + c.c., \quad (\text{A.8})$$

où  $\omega_0$  est la fréquence porteuse et *c.c.* est le complexe conjugué. Dans les fibres optiques à faible biréfringence comme celles généralement utilisées dans les lasers fonctionnant sous ce principe, la réponse linéaire du milieu est la même dans toutes les directions et donc le terme linéaire de la polarisation  $\mathbf{P}^{(1)}$  est donné par :

$$\mathbf{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}, \quad (\text{A.9})$$

où  $\chi^{(1)}$  est la susceptibilité linéaire du milieu qu'on relie simplement à la permittivité relative  $\epsilon_L = 1 + \chi^{(1)}$ . Dans le cas général d'un milieu Kerr, la polarisation non linéaire est définie comme [112] :

$$\mathbf{P}_{\text{NL}} = \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{E}^3) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}(\vec{r}, t) \mathbf{E}(\vec{r}, t) \mathbf{E}(\vec{r}, t). \quad (\text{A.10})$$

Ici, la réponse vibrationnelle (Raman) du milieu est négligée et l'on suppose encore une fois un milieu parfaitement isotrope. L'opérateur  $\mathbf{:}$  indique une multiplication tensorielle d'ordre 3. En remplaçant l'équation (A.8) dans cette dernière équation, on obtient les composantes de la polarisation non linéaire :

$$\mathbf{P}_{NL}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{x}}P_x^{(3)} + \hat{\mathbf{y}}P_y^{(3)}) e^{i\omega_0 t} + c.c., \quad (\text{A.11})$$

où :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\epsilon_0}{4} \chi_{xxxx}^{(3)} \left[ \left( |E_x|^2 + \frac{2}{3} |E_y|^2 \right) E_x + \frac{1}{3} (E_x^* E_y) E_y \right]. \quad (\text{A.12})$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\epsilon_0}{4} \chi_{xxxx}^{(3)} \left[ \left( |E_y|^2 + \frac{2}{3} |E_x|^2 \right) E_y + \frac{1}{3} (E_y^* E_x) E_x \right]. \quad (\text{A.13})$$

Dans ces deux relations, le dernier terme est un terme de cohérence, car il dépend de la phase du champ électrique de l'onde. Ce terme de phase est généralement négligé dans les très longues fibres ou dans les fibres à haute biréfringence, car la différence de phase entre les deux composantes du champ électrique le long de la fibre est tellement importante que l'effet cumulé associé à ce terme tend à s'annuler. Or, dans un oscillateur laser dans lequel on utilise des fibres à faible biréfringence qui sont relativement courtes ( $L < 10$  m), ce terme est significatif et ne peut être négligé. Afin d'éviter d'utiliser de termes complexes dans la polarisation non linéaire et ainsi simplifier l'analyse, on étudie généralement l'effet de rotation non linéaire de la polarisation en utilisant la base de polarisation circulaire. Dans cette base, le champ électrique de l'onde  $\mathbf{E}(\vec{r}, t)$  est exprimé en termes de ces composantes de polarisation circulaire droite ( $E_+$ ) et gauche ( $E_-$ ). La polarisation non linéaire du milieu est alors représentée par :

$$\mathbf{P}_{NL}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \left( \hat{\sigma}_+ P_+^{(3)} + \hat{\sigma}_- P_-^{(3)} \right) e^{i\omega_0 t} + c.c., \quad (\text{A.14})$$

Les relations associées au changement d'une base à l'autre sont données par :

$$\begin{bmatrix} E_+ \\ E_- \end{bmatrix} = LC \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & j \\ j & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix}, \quad (\text{A.15})$$

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = CL \begin{bmatrix} E_+ \\ E_- \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & -j \\ -j & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_+ \\ E_- \end{bmatrix}. \quad (\text{A.16})$$

En utilisant ces relations dans les équations (A.12) et (A.13), on trouve les expressions pour  $P_+^{(3)}$  et  $P_-^{(3)}$  :

$$P_+^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)} (|E_+|^2 + 2|E_-|^2) E_+, \quad (\text{A.17})$$

$$P_-^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)} (|E_-|^2 + 2|E_+|^2) E_-. \quad (\text{A.18})$$

L'équation (A.5) peut alors être séparée en deux équations pour chaque composante de polarisation et résolue en supposant une solution de la forme :

$$E_{\pm}(\vec{r}, t) = F(x, y) A_{\pm}(z, t) e^{i(\beta_0 z + \omega_0 t)}, \quad (\text{A.19})$$

où  $F(x, y)$  est le profil transverse normalisé du mode se propageant dans la fibre optique et  $\beta_0$  est la constante de propagation du mode dans la fibre à la fréquence porteuse  $\omega_0$ .  $A_{\pm}(z, t)$  est définie comme l'enveloppe lente du champ électrique pour les deux composantes de polarisation. Pour chacune des polarisations  $E_+$  et  $E_-$ , l'équation peut alors être scindée en deux équations indépendantes par la méthode de séparation de variables. On trouve alors

que le profil transverse du mode pour les deux composantes de polarisation  $F(x, y) = F(r)$  voyageant dans un milieu cylindrique est donné :

$$F(r) = \begin{cases} \frac{J_0(ur/a)}{J_0(u)} & \rightarrow \text{coeur} \\ \frac{K_0(wr/a)}{K_0(w)} & \rightarrow \text{gaine} \end{cases} \quad (\text{A.20})$$

Dans l'équation précédente,  $J_0$  et  $K_0$  représentent les fonctions de Bessel  $J$  et  $K$  d'ordre 0.  $u$  est le paramètre d'oscillation du mode dans le coeur de rayon  $a$  alors que  $w$  est le paramètre de décroissance du mode dans la gaine.

En ne considérant que l'effet Kerr, les équations différentielles pour l'enveloppe lente sont données par :

$$\frac{dA_+}{dz} = \frac{2i\gamma}{3} (|A_+|^2 + 2|A_-|^2) A_+, \quad (\text{A.21})$$

$$\frac{dA_-}{dz} = \frac{2i\gamma}{3} (|A_-|^2 + 2|A_+|^2) A_-, \quad (\text{A.22})$$

où  $\gamma$  est défini comme le paramètre non linéaire de la fibre optique :

$$\gamma = \frac{\omega_0 n_2}{c A_{eff}}, \quad (\text{A.23})$$

où l'aire effective du mode peut être calculée à partir du profil transverse  $F(r)$  :

$$A_{eff} = \frac{\langle F^2 \rangle^2}{\langle F^4 \rangle}, \quad (\text{A.24})$$

$$\langle F^2 \rangle = \int \int |F|^2 dr d\phi. \quad (\text{A.25})$$

Les équations (A.21) et (A.22) possèdent une solution simple de la forme :

$$A_{\pm}(L, t) = A_{\pm}(0, t) \exp(i\phi_{\pm}^{NL}(L, t)), \quad (\text{A.26})$$

où :

$$\phi_{\pm}^{NL}(L, t) = \frac{2\gamma L}{3} (|A_{\pm}|^2 + 2|A_{\mp}|^2), \quad (\text{A.27})$$

Définissons maintenant un déphase non linéaire moyen  $\Phi$  et un déphase non linéaire différentiel  $\Delta\Phi$  de façon à ce que  $\phi_+^{NL} = \Phi + \Delta\Phi$  et  $\phi_-^{NL} = \Phi - \Delta\Phi$  :

$$\Phi = \frac{\phi_+ + \phi_-}{2} = \gamma L (|A_+|^2 + |A_-|^2), \quad (\text{A.28})$$

$$\Delta\Phi = \frac{\phi_+ - \phi_-}{2} = \frac{\gamma L}{3} (|A_-|^2 - |A_+|^2). \quad (\text{A.29})$$

Basée sur l'équation (A.26), on peut représenter la propagation d'un signal de composante  $A_+$  et  $A_-$  dans un milieu Kerr de longueur  $L$  comme :

$$KERR_{\pm} = e^{i\Phi} \begin{bmatrix} e^{i\Delta\Phi} & 0 \\ 0 & e^{-i\Delta\Phi} \end{bmatrix}. \quad (\text{A.30})$$

En présence d'un état de polarisation linéaire à l'entrée du milieu Kerr, on a que  $|A_+|^2 = |A_-|^2$  et donc que  $\Delta\Phi = 0$ . Il n'y a donc aucune rotation non linéaire de la polarisation en présence d'un champ initialement polarisé linéairement, d'où l'importance de placer une lame quart d'onde avant ce milieu afin d'obtenir une polarisation incidente elliptique.

En utilisant les relations d'une base de coordonnées à l'autre présentées en (A.15) et (A.16), la matrice représentant le milieu Kerr en base linéaire devient :

$$KERR = CL \cdot KERR_{\pm} \cdot LC = e^{j\Phi} \begin{bmatrix} \cos(\Delta\Phi) & -\sin(\Delta\Phi) \\ \sin(\Delta\Phi) & \cos(\Delta\Phi) \end{bmatrix}. \quad (\text{A.31})$$

On note que cette matrice possède des termes similaires à ceux de la matrice représentant la lame demi-onde (éq. (A.2)), qui créer une rotation de l'état de polarisation. Le milieu induit donc bel et bien une rotation non linéaire, car  $\Delta\Phi$  dépend de l'intensité du signal.

## A.2 Détermination de la transmission non linéaire

Maintenant que tous les éléments de la cavité schématisée à la figure A.1 sont représentés par une matrice de Jones, on peut calculer l'amplitude du champ transmis à chaque tour de cavité. On suppose une amplitude initiale de polarisation linéaire en  $x$  avec  $A_x = A_0$  et  $A_y = 0$  (le point de départ se situe juste après le polariseur au tour d'avant, dont l'axe de biréfringence est orienté selon l'axe des  $x$ ). On calcule l'amplitude du champ après le polariseur en utilisant les matrices de Jones :

$$\begin{bmatrix} A_x \\ A_y \end{bmatrix} = POL \cdot L\lambda/2 \cdot KERR \cdot L\lambda/4 \cdot \begin{bmatrix} A_0 \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (\text{A.32})$$

On obtient alors que :

$$A_x = \frac{A_0 e^{i\Phi}}{2} \left[ (\cos \alpha - \sin \alpha) e^{i(\alpha - 2\theta + \Delta\Phi)} + (\cos \alpha + \sin \alpha) e^{-i(\alpha - 2\theta + \Delta\Phi)} \right]. \quad (\text{A.33})$$

La composante d'amplitude en y est nulle puisque le polariseur est placé à la fin du système étudié. La transmission en puissance du système est donc donnée par :

$$T = \frac{|A_x|^2}{A_0^2} = \frac{1}{2} [1 + \cos(2(\alpha - 2\theta + \Delta\Phi)) \cos(2\alpha)]. \quad (\text{A.34})$$

$\alpha$  et  $\theta$  sont respectivement les angles des axes de biréfringence des lames quart d'onde et demi-onde par rapport à l'axe du polariseur, ici l'axe des x.

Afin de relier simplement  $\Delta\phi$  à la puissance totale du signal, qu'on définit comme  $P = |A_x|^2 + |A_y|^2 = A_0^2$ , on trouve la norme des composantes de l'amplitude du champ à l'entrée du milieu Kerr en base de polarisation circulaire, après le passage dans la lame quart d'onde :

$$|A_+|^2 = \frac{A_0^2}{2} (1 - \sin(2\alpha)), \quad (\text{A.35})$$

$$|A_-|^2 = \frac{A_0^2}{2} (1 + \sin(2\alpha)). \quad (\text{A.36})$$

Ces relations nous permettent de déterminer le déphasage non linéaire différentiel, qu'on relie directement à la puissance :

$$\Delta\Phi = -\frac{\gamma L}{3} P \sin(2\alpha). \quad (\text{A.37})$$

Les équations (A.34) et (A.37) sont utilisées pour obtenir la courbe de transmission non linéaire du système en fonction de la puissance incidente et de l'orientation des lames d'onde, qui est présentée à la figure I.10.

## Annexe B

# 2.8- $\mu\text{m}$ femtosecond soliton fiber laser with peak power exceeding 20 kW

**S. Duval**<sup>1</sup>, M. Olivier<sup>1,2</sup>, V. Fortin<sup>1</sup>, M. Bernier<sup>1</sup>, M. Piché<sup>1</sup>, and R. Vallée<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Centre d'optique, photonique et laser, Université Laval, Québec G1V 0A6, Canada

<sup>2</sup>Département de physique, Cégep Garneau, Québec G1S 4S3, Canada

Submitted to Optics Letters (2016)

### B.1 Résumé

Les lasers à fibre femtoseconde ont récemment fait leur apparition dans la région spectrale de l'infrarouge moyen. Dans cette publication, nous présentons un laser à solitons générant des impulsions de 270-fs de durée et 7 nJ d'énergie à 2.8  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à une puissance crête estimée de 23 kW. Les simulations décrites, qui permettent de modéliser l'évolution des impulsions en tenant compte de l'absorption atmosphérique dans la cavité, correspondent bien avec les résultats expérimentaux. Ce modèle offre également un aperçu intéressant sur la dynamique du laser en régime permanent et l'impact de l'absorption atmosphérique intracavité lorsque la longueur de fibre et le couplage de sortie sont variés. Cette nouvelle source laser mènera au développement d'outils spectroscopiques simples et compacts dans l'infrarouge moyen.

### B.2 Abstract

Femtosecond fiber lasers have recently made their way into the mid-infrared. In this paper, we present a soliton fiber laser that generates 270-fs, 7-nJ pulses at 2.8  $\mu\text{m}$  with an estimated peak power of 23 kW. Numerical simulations of the laser pulse evolution that include the

effect of the atmospheric absorption inside the cavity agree well with the experimental results. They also offer interesting insight about the laser dynamics and the impact of the intracavity atmospheric absorption when optimizing the fiber length and the laser output coupling. This novel laser source will lead to the development of simple and compact spectroscopic tools in the mid-infrared.

### B.3 Introduction

Many important applications are driven by laser technologies that enable the generation of femtosecond pulses in the mid-infrared (mid-IR) spectral range (2 to 20  $\mu\text{m}$ ). The interaction of ultrafast mid-IR laser pulses with the fundamental ro-vibrational resonances of a large number of molecules will certainly lead to novel applications in spectroscopy and remote sensing. The comb structure of mode-locked pulse spectra is in fact a powerful tool for non-intrusive detection of extremely small traces of molecules in composite systems [8]. Moreover, the external spectral broadening of such coherent pulses in the mid-IR through supercontinuum generation [27] allows accessing other molecular absorption bands further into the mid-IR. These sources may also find applications in medicine such as laser cutting of biological tissues [129].

The development of most of these applications depends strongly on the availability of efficient mid-IR laser sources capable of producing femtosecond pulses with the highest possible peak powers. Unlike the solid-state femtosecond systems presently available in the mid-IR [129], ultrafast fiber lasers have the potential to meet these requirements while remaining simple, compact and easy to use [178]. This motivation has recently led to several demonstrations of mode-locked fiber lasers around 2.8  $\mu\text{m}$ , which are mostly based on the use of  $\text{Er}^{3+}$  or  $\text{Ho}^{3+}$ -doped fluoride glass fibers as the gain medium. Many schemes have been proposed using various types of saturable absorbers such as semiconductors [101], black phosphorus [102] or graphene [106]. However, to date, the best performances (pulse duration and peak power) were obtained from soliton ring lasers that rely on the nonlinear polarization evolution (NPE) mode-locking technique [125]. With this technique, Duval et al. have achieved 2.8- $\mu\text{m}$  pulses as short as 207 fs, but with a peak power limited to 3.5 kW [104]. In parallel, Hu et al. demonstrated the generation of 497-fs pulses with a peak power of 6 kW from a similar cavity design [105]. Although these are the highest peak powers ever achieved from a mid-IR fiber laser above 2  $\mu\text{m}$ , additional performance improvements are expected from these sources. Mid-IR soliton fiber lasers similar to those presented in [104] and [105] are expected to outperform soliton fiber lasers in the near-IR for the simple reason that fiber nonlinearities decrease significantly at longer wavelengths. In fact, the fiber nonlinear parameter  $\gamma = \frac{2\pi n_2}{\lambda c A_{eff}}$  scales with  $\sim \lambda^{-3}$  since the effective mode area  $A_{eff}$  is proportional to  $\lambda^2$  for a single mode fiber [96]. Since the nonlinear index of refraction ( $n_2$ ) of fluoride fibers is comparable to that of silica fibers [179], 3- $\mu\text{m}$  class soliton fiber lasers are expected to produce femtosecond pulses with peak powers

that are almost an order of magnitude higher than those obtained from 1.5- $\mu\text{m}$  soliton fiber lasers.

In this Letter, we experimentally and numerically investigated the peak-power scalability of mid-IR soliton fiber lasers. By optimizing the fiber length and the output coupling of a laser cavity similar to the one introduced in [104], we demonstrated the generation of stable 270-fs pulses at a repetition rate of 96.6 MHz with peak powers exceeding 20 kW. The experimental results showed good agreement with numerical simulations of the laser that include the intracavity linear atmospheric absorption mostly due to the presence of water vapour. Simulations indicated that the atmospheric absorption in the free-space part of the cavity is likely to affect the self-starting ability of the laser, which could become a limiting factor for further performance improvements.

## B.4 Experiment

A schematic of the experimental laser is presented in Fig. B.1. In this cavity, the gain is provided by a double-clad fluoride fiber that consists of a 7 mol.% Er-doped core ( $\phi = 15 \mu\text{m}$ ,  $\text{NA} = 0.12$ ) surrounded by a truncated 260- $\mu\text{m}$  diameter inner cladding ( $\text{NA} > 0.46$ ) that guides the pump beam. The fiber is pumped via a CW multimode laser diode providing up to 25 W of power at 980 nm. Both ends of the fiber were capped with 400- $\mu\text{m}$ -long segments of  $\text{AlF}_3$  multimode fiber to ensure long-term operation of the laser [104; 124]. Aspheric ZnSe

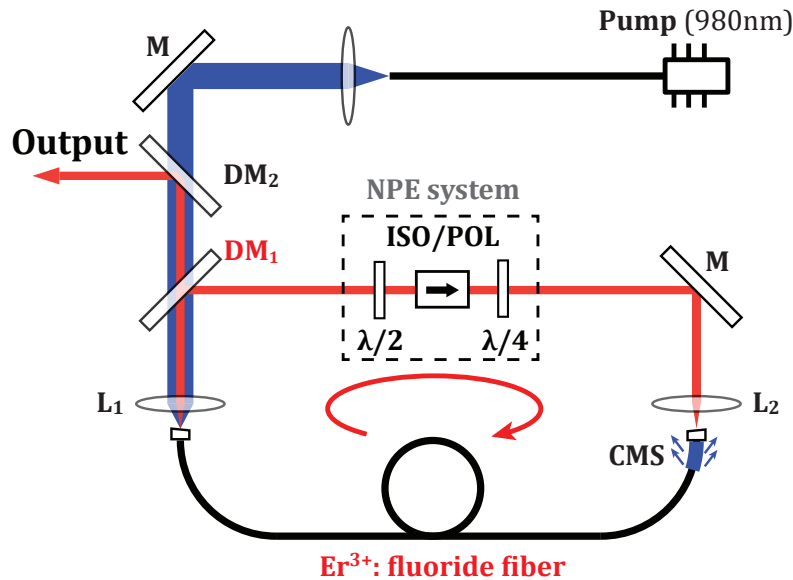


FIGURE B.1 – Schematic of the laser cavity. M : gold mirrors ;  $L_1$  and  $L_2$  : aspheric ZnSe lenses ( $f = 12.5 \text{ mm}$ ) ; CMS : cladding mode stripper ;  $\text{DM}_1$  and  $\text{DM}_2$  : dichroic mirrors ;  $\lambda/2$  : half waveplate ;  $\lambda/4$  : quarter waveplate ; ISO/POL : isolator/polarizer. Text in red : the elements that were modified to optimize the laser output performance.



lenses were used to launch both pump and laser beams in the fiber. The NPE system comprises a quarter waveplate, a half waveplate and an isolator that also acts as the polarizer. The first dichroic mirror ( $DM_1$ ) couples the pump beam inside the cavity and acts as the output coupler for the 2.8- $\mu\text{m}$  laser signal. The output signal is then separated from the pump beam by a second dichroic mirror ( $DM_2$ ). This laser is similar to that presented in [104] except that the direction of propagation of the signal in the cavity is reversed. In the present configuration, a higher fraction of the pulse energy is coupled out of the cavity since most linear and nonlinear losses occur after the output coupling.

## B.5 Results and discussion

The performance of the laser was studied under different cavity parameters. Three fiber lengths (3.1 m, 1.6 m and 1 m) and three dichroic mirrors  $DM_1$  with different output coupling ratios (37%, 65%, 84%) were experimentally tested to optimize the peak power of the generated pulses. No mode-locked operation was found with a 1-m fiber length. The best performances were obtained using a fiber length of 1.6 m and a 65% output coupling ratio, which corresponds to the combination of the shortest fiber and the highest output coupling ratio for which mode locking was achieved. In this configuration, mode locking either in the multi-pulse regime or in the single-pulse regime accompanied by a strong CW signal could be obtained at high pump powers ( $> 17.5$  W) by carefully adjusting the orientation of the waveplates. The pump power was then reduced to  $\sim 12$  W to find the single-pulse regime. This behavior is common in soliton fiber lasers, especially when the intracavity losses are high [64]. In the single-pulse regime, the laser produces a stable pulse train at a repetition rate of 96.6 MHz. The operation in this regime is robust and can be maintained over several hours.

The output spectrum of the signal represented by the red curve of Fig. B.2 was measured using a Yokogawa AQ6375L optical spectrum analyzer (OSA) with a 0.5 nm resolution. The corresponding FWHM of the measured spectrum is 19 nm. To confirm single-pulse operation and to estimate the pulse duration, an autocorrelation (AC) of the output signal was performed using a commercial autocorrelator (Femtochrome FR-103XL/IR/1700) and is represented by the red curve of Fig. B.3. The FWHM of the measured AC trace is 418 fs, which corresponds to a pulse duration of 270 fs, assuming a  $\text{sech}^2(t)$  temporal profile. The laser delivers an average output power of 677 mW, which corresponds to a pulse energy of 7 nJ and an estimated peak power of 23 kW.

In order to clearly understand the intracavity dynamics of the laser under different cavity parameters and identify the factors that limit further improvements in peak power, numerical simulations of the laser were performed. In the simulations, each element of the cavity is represented by a transfer matrix acting on the field components  $A_x(t)$  and  $A_y(t)$ . The numerical model is schematically shown in Fig. B.4. Starting from white noise, the signal was propagated

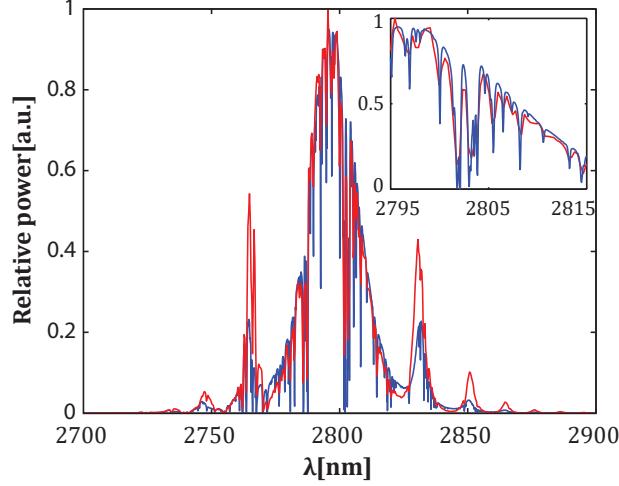


FIGURE B.2 – Measured (red) and simulated (blue) output spectra. Inset : Zoom of the left part of the spectra.

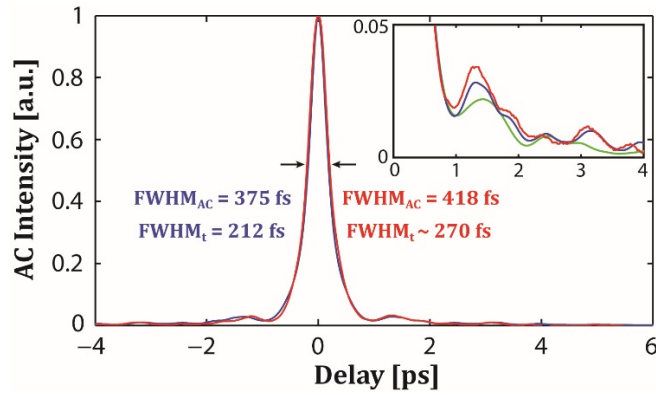


FIGURE B.3 – Measured (red) and simulated (blue) autocorrelation of the output signal. The pulse duration estimated from the experimental AC trace is 270 fs, assuming a  $\text{sech}^2(t)$  profile. The AC trace obtained from simulations corresponds to a pulse duration of 212 fs. Inset : Zoom on the right part of the AC trace. Green curve : the AC of the output signal when atmospheric absorption is not included in the simulations.

through each element of the cavity until it converged to a steady-state pulse.

Propagation in the gain fiber is modeled by solving the vector nonlinear Schrödinger equation using the split-step Fourier algorithm, as described in [180]. The group velocity parameter of the fiber ( $\beta_2 = -86 \text{ ps}^2/\text{km}$ ) is estimated from its material and guidance properties [110]. Based on an estimated  $n_2$  value of  $2.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  for ZBLAN fibers [150], the nonlinear parameter of the fiber is  $\gamma \sim 0.23 \text{ W}^{-1}\text{m}^{-1}$ . Despite the fact that the  $2.8\text{-}\mu\text{m}$  laser transition in heavily-doped  $\text{Er}^{3+}$  :fluoride fibers involves many linear and nonlinear conversion processes [152], we found that the gain dynamics can still be reasonably well represented in the frequency domain by the simple gain saturation relation  $g(\omega, z) = g_0(\omega)/(1 + E_p/(E_{sat}(z)))$ , where  $g_0(\omega)$

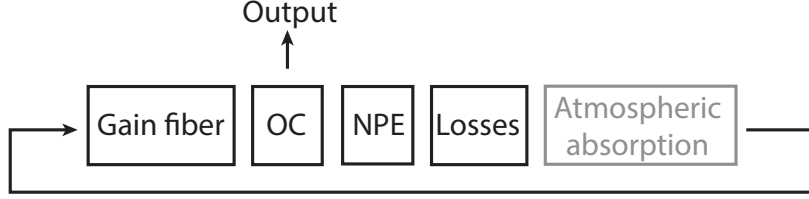


FIGURE B.4 – Flowchart of the numerical model. OC : output coupler.

has a Lorentzian profile with a 3.8-THz full width at half maximum and  $E_p$  is the pulse energy, defined as  $E_p = \int |A_x(t)|^2 + |A_y(t)|^2 dt$ . In the pump power range of interest (i.e. from 0 to 15 W), extensive simulations were made under different input signal powers to compare this model with an accurate model based on the energy level populations that is well-described in [152] and to find a relation between the small-signal gain  $g_0(\omega)$ , the saturation energy  $E_{sat}(z)$  and the incident pump power. A good agreement between the two models was found when the peak value of the small-signal gain  $g_0(\omega)$  is held constant at  $8 \text{ m}^{-1}$  and the saturation energy  $E_{sat}(z)$  is varied proportionally with the pump power along  $z$ . Since the pump power decreases exponentially along the fiber with an absorption coefficient of  $\alpha_p = 0.693 \text{ m}^{-1}$ , we included this dependence through the relation  $E_{sat}(z) = E_{sat0} \exp(\alpha_p z)$ , where  $E_{sat0}$  is proportional to the incident pump power. The NPE system is represented by a Jones matrix that includes the effect of a polarizer, a quarter waveplate and a half waveplate with different angles  $\theta_Q$  and  $\theta_H$  with respect to the polarizer axis. In the simulations presented here,  $\theta_Q = \pi/8$  and  $\theta_H = -\pi/16$ . The linear losses of the free-space elements and the injection losses were estimated experimentally to be 65% and are included in the simulations as a lump element after the NPE system.

Unlike mode-locked lasers in the near infrared, intracavity atmospheric absorption is likely to play a role in the laser dynamics since water vapour possesses strong absorption lines in the vicinity of  $2.8 \mu\text{m}$ . In Cr : ZnSe lasers, it has been demonstrated that the temporal and spectral properties of the generated femtosecond pulses can be affected by such an effect [181]. For this reason, in a similar manner than Gebhardt et al. [131], the linear atmospheric absorption is included in the spectral domain through the use of a simple propagation equation for each of the field components ( $k = x, y$ ) :

$$A_{k,out} = A_{k,in}(\omega) \exp \left( - \left( \frac{i\omega}{c} n(\omega) + \frac{\alpha}{2} \right) L_{abs} \right), \quad (\text{B.1})$$

where  $\omega$  is the angular frequency,  $c$  is the speed of light in vacuum and  $L_{abs} \sim 64 \text{ cm}$  is the free-space length in the experimental cavity. The absorption coefficient  $\alpha(\omega)$  is determined from a simple modeling tool of the HITRAN database [132]. The parameters used in the model are a temperature of  $22 \text{ }^\circ\text{C}$ , a pressure of 1 atm. and a Voigt profile for the absorption lines with a resolution of  $5 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . The intensity and spectral position of the high-resolution data

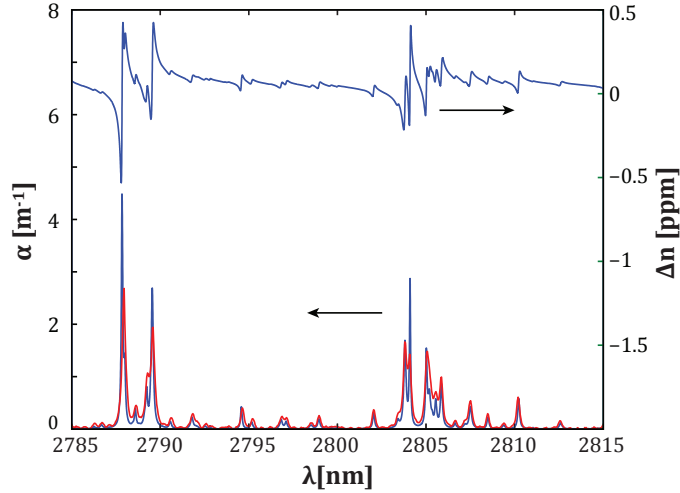


FIGURE B.5 – Comparison between the corrected absorption coefficient from the HITRAN database (blue) and the absorption coefficient retrieved experimentally (red). The corresponding calculated refractive index variation from the HITRAN database is also shown.

were then adjusted with an experimental absorption spectrum retrieved from the propagation of a supercontinuum (SC) source in the same environmental conditions than the laser. Both absorption coefficients are shown in Fig. B.5. Differences in line strength between the curves are related to the limited resolution of the OSA (0.2 nm) compared to the width of the water vapor absorption lines ( $< 0.1$  nm). The variation of the refractive index  $\Delta n(\omega)$  associated with the absorption  $\alpha(\omega)$  can be numerically evaluated through the use of the Kramers-Kronig relations and the Maclaurin's formula [133]. The corresponding  $\Delta n(\omega)$  calculated from the high-resolution data (HITRAN) is also shown in Fig. B.5.

The results obtained from simulations were first compared with the corresponding experimental results in Figs. B.2 and B.3. In the simulations, the best fit was obtained when  $E_{sat0} = 0.85$  nJ. The external atmospheric propagation of the output beam to the OSA ( $L_{abs} \sim 3$  m) and the autocorrelator ( $L_{abs} \sim 1.5$  m) was also simulated. In Fig. B.2, both simulated and measured spectra agree well except that the spectral dips are more pronounced in the simulated spectrum. This is partly due to the limited resolution of the OSA and to the small discrepancy between the HITRAN absorption spectrum and the measured one (see Fig. B.5). Although the duration of both AC traces in Fig. B.3 agrees within 12%, the simulated pulse duration is 212 fs, which is slightly lower than the duration estimated from the experimental data (270 fs). The assumed temporal shape that was used to experimentally estimate the pulse duration could partly explain this difference. In the inset of Fig. B.3, we see that there is a better correspondence between the measured and simulated traces when the atmospheric absorption is considered in the simulations. This means that the temporal modulations visible on either side of the AC peak are not only related to the presence of Kelly sidebands but also

to the formation of parasitic pulses caused by the atmospheric propagation, as discussed in [131]. The simulations lead to a pulse peak power of 23 kW and an energy of 6.9 nJ, which again agree very well with the experimental results.

In order to clearly understand the impact of cavity parameters on the laser output performance, the fiber length and the output coupling were varied independently in the simulations while keeping all other parameters constant. Fig. B.6 a) presents the output temporal characteristics of the highest-energy pulse that can be achieved in the single-pulse regime as a function of the fiber length. The output coupling was fixed at 65 % for a better comparison with the best performances achieved experimentally. We see that pulses with higher peak powers and shorter durations are generated when reducing the length of the gain fiber. This behavior can be explained by considering the underlying mechanisms that ultimately limit the pulse peak power in soliton fiber lasers, namely saturation of the NPE mechanism and cavity dispersion [64]. Reducing the fiber length enables a single pulse to circulate with a higher peak power before the saturation of the NPE mechanism since the nonlinear phase shift accumulated over a cavity roundtrip is smaller. According to the soliton area theorem, this effect along with the reduction of the cavity dispersion allows for the generation of soliton pulses with shorter durations and higher peak powers when a shorter fiber length is used. Another interesting result is that the same output performance (pulse duration and peak power) was obtained with or without considering the intracavity atmospheric absorption in the simulations. These perturbations are thus likely to be compensated in the steady-state regime by the soliton pulse shaping in the fiber. However, the convergence into a stable mode-locked regime in the presence of intracavity atmospheric absorption is clearly affected by the fiber length. Extensive simulations under different initial input noises show that the number of roundtrips required for convergence to a steady-state pulse is strongly increased by the presence of atmospheric absorption when using short fiber lengths. For a 3-m fiber, this effect does not impact significantly the convergence. However, in the case of a 1-m fiber, the average number of roundtrips increases from 300 to more than 2000 when considering the atmospheric absorption. One hypothesis for this behavior is that the spectral filtering effects and the local phase distortion caused by the strong absorption lines (see Fig. B.5) may impede spectral broadening and pulse compression during the initial pulse formation. This behavior along with the high mode-locking threshold could explain the increasing difficulty to obtain a mode-locked regime in the experimental laser when using shorter fiber lengths. A clear understating of this effect is presently under investigation.

In a second step, we studied the impact of the output coupling in the cavity while keeping the fiber length to 1.6 m. As presented in Fig. B.6 b), the highest achievable pulse peak power in the single-pulse regime scales almost proportionally with the output coupling ratio while its duration stays nearly constant. Since a variation in the output coupling ratio affects only the losses inside the cavity, which are already very high ( $> 65\%$ ), this effect can be compensated

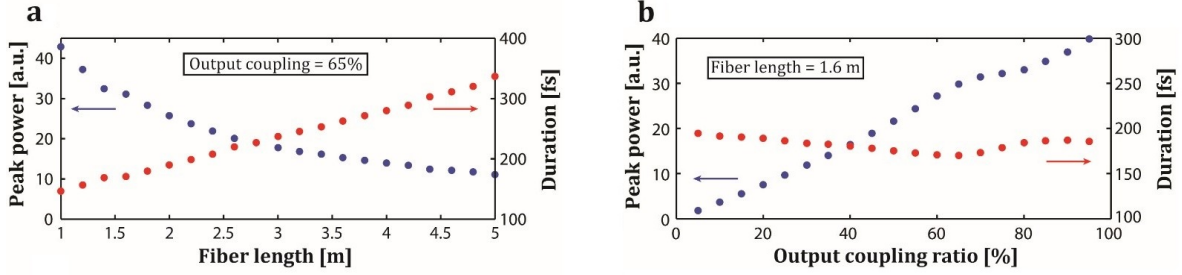


FIGURE B.6 – Impact of the fiber length a) and output coupling b) on the peak power and duration of the highest-energy pulses that can be obtained in the simulations.

by increasing the gain in the cavity. The duration of the highest-energy pulses is thus only slightly affected by this parameter in the simulations. On the other hand, higher intracavity losses increase the mode-locking threshold, which can prevent the experimental laser to mode-lock.

Simulation and experimental results both suggest that the highest peak powers are obtained when using a short fiber length and a high output coupling ratio. Although 42-kW, 147-fs pulses could be obtained in the simulations (fiber length = 1m, output coupling = 65%), the increase of the mode-locking threshold and the intracavity atmospheric absorption in the experimental laser seem to affect its self-starting ability and thus impose a limit on its performances. By reducing the free-space-propagation length or by controlling the environmental conditions, it may be possible to obtain higher peak power regimes with other waveplates orientations [64]. Of course, a promising strategy for significant performance improvements will be the addition of normal dispersion elements in the cavity to compensate for the strong anomalous dispersion of the gain fiber.

## B.6 Conclusion

In conclusion, we demonstrated the peak power scalability of mid-IR femtosecond fiber lasers by producing 270-fs pulses at 2.8  $\mu\text{m}$  with an energy of 7 nJ and an estimated peak power of 23 kW. The energy and peak powers obtained from this laser are surpassing by almost an order of magnitude those obtained from standard soliton lasers at 1.55  $\mu\text{m}$  using step-index silica fibers, showing the great potential of developing such laser in the mid-IR. This simple and efficient femtosecond source can be readily adapted for supercontinuum generation as well as optical frequency combs in the mid-IR.

## Acknowledgments

The authors thank Marc D’Auteuil and Souleymane Toubou Bah for the fabrication of the dichroic mirrors.