



**HAL**  
open science

**Amplification paramétrique en régime femtoseconde.  
Application au développement de sources femtosecondes  
accordables dans le visible et à l'imagerie en milieu  
diffusant.**

Jennifer Watson

► **To cite this version:**

Jennifer Watson. Amplification paramétrique en régime femtoseconde. Application au développement de sources femtosecondes accordables dans le visible et à l'imagerie en milieu diffusant.. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1994. Français. NNT: . pastel-00713782

**HAL Id: pastel-00713782**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00713782>**

Submitted on 2 Jul 2012

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

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

N° d'Ordre :

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD  
CENTRE D'ORSAY

# THÈSE

présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR  
EN SCIENCES PHYSIQUES

PAR

*Jennifer Mary WATSON*

**Amplification paramétrique en régime femtoseconde. Application  
au développement de sources femtosecondes accordables dans  
le visible et à l'imagerie en milieu diffusant.**

**soutenance prévue le 24 Novembre 1994 devant la commission d'examen**

MM.	J.C.	ANDRÉ	
	A.	BRUN	
	C.	FROEHLY	Rapporteur
	M.	PICHÉ	Rapporteur
	F.	SALIN	

## ABSTRACT

This thesis presents an experimental study of parametric amplification in the femtosecond time domain. Two main applications were targeted. The first and foremost was the development of a femtosecond source tunable throughout the visible spectrum. The second was the use of an optical parametric amplifier as an ultrafast amplifying gate to perform imagery in diffuse media.

In order to pursue these studies, we built a titanium-sapphire femtosecond laser chain. The output pulses at 780 nm had a pulse length on the order of 100 fs and energies above 1 mJ at a repetition rate of 20 Hz. The resulting peak powers, on the order of 10 GW, were sufficient to produce strong nonlinear effects.

We first carried out studies on conical emission accompanying continuum generation in solid media. The analysis of our observations using known theories such as Raman generation, four-wave mixing and the Cerenkov effect lead us to conclude that there is currently no known theory that completely describes this phenomenon.

We then constructed an optical parametric amplifier which acted as a coherent femtosecond source tunable throughout the visible spectrum (470 nm - 700 nm) and capable of emitting subpicosecond pulses of energies greater than 4  $\mu\text{J}$ . We compared its performance to that of a parametric amplifier injected by a spectral continuum. This second source produced pulses that were shorter (200 fs) but less energetic (1  $\mu\text{J}$ ) and less stable.

Finally, we used a degenerate parametric amplifier to detect a grid through 20 mean free paths of an aqueous solution of latex microspheres with a resolution on the order of 100  $\mu\text{m}$ . We thereby demonstrated the feasibility of using parametric amplification to perform imagery in diffuse media.



## REMERCIEMENTS

Je remercie Monsieur le Professeur Christian Imbert de m'avoir accueillie à l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée.

Je suis très sensible à l'honneur que me font Messieurs les membres du jury en acceptant de lire et de juger ce mémoire: Monsieur Claude Froehly, Directeur de Recherche à l'Université de Limoges, Monsieur le Professeur Michel Piché, de l'Université Laval (Québec), Monsieur Jean-Claude André, Directeur de Recherche à l'ENSIC-INPL (Nancy), Monsieur le Professeur Alain Brun, Chef du Groupe d'Optique Non Linéaire de l'Institut d'Optique, et Monsieur François Salin, Chargé de Recherche à l'ENSTA- École Polytechnique, qui a été mon directeur de thèse. Messieurs Froehly et Piché ont, en outre, eu la gentillesse d'accepter d'être les rapporteurs de ce mémoire: je les en remercie.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur François Salin pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse. J'ai grandement apprécié sa pédagogie et sa compétence scientifique qui m'ont aidé à mener à bien cette étude. J'ai également apprécié sa grande disponibilité lors de la construction de la chaîne laser et de la rédaction de ce mémoire. Ses suggestions et commentaires ont été d'une grande valeur.

Je tiens aussi à remercier Monsieur le Professeur Alain Brun pour m'avoir accueillie au sein de son groupe de recherche. Ses conseils lors de la rédaction du mémoire et de la préparation de la soutenance ont été fort utiles.

Le travail présenté dans ce mémoire a pu être mené à bien grâce au soutien du Conseil de Recherches en Sciences Naturelles et en Génie du Canada; je l'en remercie.

Merci à tous les membres du Groupe d'Optique Non Linéaire pour leur sympathie.

J'adresse un grand merci à Patrick Georges qui m'a guidée, conseillée et aidée tout au long de ce travail. J'ai beaucoup apprécié son immense disponibilité, sa très grande compétence et ses talents pédagogiques. La réalisation de cette thèse n'aurait pu être possible sans lui.

Merci à Thierry Lépine qui s'est grandement impliqué dans toutes les manipulations d'amplification paramétrique. Ses compétences en informatique m'ont énormément

aidée. Il a également accompli un travail important sur le logiciel d'accord de phases dans des cristaux biaxes.

Merci aussi à David Gay qui a écrit la base du logiciel d'accord de phase. Il a beaucoup aidée à clarifier mes connaissances de l'optique non linéaire.

J'aimerais remercier mon collègue de bureau et de laboratoire, François Balembois, qui était toujours prêt à me donner des conseils et à me faire des petits cours d'optique. Sa gentillesse en tout temps et son calme et son optimisme lors des périodes stressantes ont été d'un grand secours.

Un grand merci à Gérard Roger qui a conçu toute la mécanique de nos systèmes laser. J'ai fortement apprécié sa bonne humeur, sa disponibilité et ses connaissances pratiques.

Merci à notre informaticien Michel Allain qui m'a dépannée à chaque fois que j'ai eu des problèmes d'ordinateur.

Merci aussi à Thierry Avignon et Marie-Thérèse Plantegenest (T.P. SupOptique) qui ont toujours accueilli mes demandes d'emprunts de matériels avec bienveillance.

Merci à Alain Aide qui m'a dépannée lors d'ennuis d'électronique.

Un énorme merci à Nelly Bonavent qui a assuré la mise en page de ce manuscrit et a aidé à produire certaines figures. J'ai beaucoup apprécié sa gentillesse et la qualité de son travail.

Merci enfin à Madame Pellegrino qui s'est chargée de l'impression de ce document.

# Table des Matières

INTRODUCTION.....	1
<b>CHAPITRE I- LA CHAÎNE LASER FEMTOSECONDE.....</b>	<b>5</b>
<b>I.1. Introduction.....</b>	<b>7</b>
<b>I.2. Les impulsions brèves.....</b>	<b>8</b>
I.2.1. L'impulsion femtoseconde.....	8
I.2.2. Le blocage de modes.....	9
I.2.2.1. Le blocage de modes actif.....	13
a) Le blocage de modes par modulateur acousto-optique.....	14
b) Le blocage de modes par modulateur électro-optique.....	15
I.2.2.2. Le blocage de modes passif.....	16
a) Les absorbants saturables lents et rapides.....	17
b) L'absorbant saturable classique et le blocage de modes par impulsions contrepropageantes.....	18
c) Le blocage de modes par addition d'impulsions (APM).....	19
d) Le blocage de modes par la lentille de Kerr (KLM).....	20
I.2.2.3. Dynamique du blocage de modes KLM.....	24
a) Les transitions homogènes et inhomogènes.....	24
b) L'automodulation de phase.....	26
c) Système à dispersion de vitesse de groupe négative.....	27
d) Le démarrage du KLM.....	30
I.2.3. La mesure de la durée d'impulsions brèves.....	31
I.2.3.1. L'autocorrélateur traditionnel.....	32
I.2.3.2. L'autocorrélateur monocoup.....	33
<b>I.3. Présentation du cristal de saphir dopé au titane.....</b>	<b>35</b>
<b>I.4. L'oscillateur à saphir dopé au titane.....</b>	<b>40</b>
I.4.1. La cavité laser de l'oscillateur.....	41
I.4.2. Caractérisation des impulsions.....	46
<b>I.5. L'amplification d'impulsions à dérive de fréquence.....</b>	<b>48</b>
I.5.1. Principe.....	48
I.5.2. Étirement et compression.....	49
I.5.2.1. Les réseaux de diffraction.....	50
I.5.2.2. Le compresseur d'impulsions.....	51
I.5.2.3. L'étireur d'impulsions.....	54
I.5.2.4. L'alignement de l'étireur et du compresseur.....	57
I.5.3. L'amplificateur régénératif.....	58
I.5.3.1. Introduction.....	58
I.5.3.2. Principe.....	59
I.5.3.3. Injection et éjection d'impulsions par jeu de polarisation.....	60
I.5.3.4. Le réglage de la cellule de Pockels.....	64

I.5.3.5.	La cavité déclenchée.....	65
I.5.3.6.	La cavité laser de l'amplificateur régénératif.....	66
I.5.3.7.	L'isolateur optique.....	69
I.5.4.	Caractérisation des impulsions amplifiées.....	73
<b>I.6.</b>	<b>Conclusion.....</b>	<b>75</b>
<b>CHAPITRE II - LA GÉNÉRATION D'UN CONTINUUM DE LUMIÈRE BLANCHE .....</b>		<b>77</b>
<b>II.1.</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>79</b>
<b>II.2.</b>	<b>L'émission conique.....</b>	<b>79</b>
II.2.1.	L'expérience .....	80
II.2.2.	Observations expérimentales.....	81
II.2.3.	Les explications proposées.....	87
II.2.3.1.	Le mélange à quatre ondes.....	88
II.2.3.2.	La génération Raman.....	91
II.2.3.3.	La radiation Cerenkov.....	94
II.2.4.	Discussion.....	103
<b>CHAPITRE III - AMPLIFICATION PARAMÉTRIQUE.....</b>		<b>105</b>
<b>III.1.</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>107</b>
<b>III.2.</b>	<b>Rappels historiques.....</b>	<b>109</b>
<b>III.3.</b>	<b>Théorie du mélange à trois ondes.....</b>	<b>110</b>
III.3.1.	Introduction .....	110
III.3.2.	La polarisation non linéaire.....	111
III.3.3.	Les processus non linéaires du deuxième ordre.....	113
III.3.3.1.	Le mélange à trois ondes.....	113
III.3.3.2.	L'accord de phase .....	116
III.3.3.3.	L'amplification paramétrique.....	118
III.3.4.	La susceptibilité non linéaire du deuxième ordre .....	120
III.3.4.1.	Les milieux non linéaires .....	120
III.3.4.2.	Les symétries de $\chi^{(2)}$ .....	121
III.3.4.2.1.	Le tenseur $\chi_{ijk}^{(2)}$ .....	121
III.3.4.2.2.	La symétrie intrinsèque de permutation.....	123
III.3.4.2.3.	La symétrie de permutation complète .....	123
III.3.4.2.4.	La symétrie de Kleinman.....	124
III.3.4.3.	La notation contractée de $\chi^{(2)}$ .....	124
III.3.4.4.	Les symétries spatiales du milieu .....	126
III.3.4.4.1.	La maille élémentaire cristalline.....	126
III.3.4.4.2.	Les symétries .....	127
III.3.4.4.3.	Les 32 classes cristallines .....	128
III.3.4.4.4.	Les 7 systèmes cristallins .....	129



III.3.4.4.5. Les implications pour la forme de $d_{ik}$ .....	129
III.3.4.5. Conventions cristallographiques.....	129
III.3.4.6. La susceptibilité non linéaire effective $d_{eff}$ .....	132
III.3.5. La propagation d'une onde électromagnétique dans un cristal biaxe ou uniaxe.....	134
III.3.5.1. Les notions d'anisotropie.....	134
III.3.5.2. Les équations de Maxwell.....	136
III.3.5.3. L'équation de Fresnel.....	137
III.3.5.4. L'indicatrice des indices.....	139
III.3.5.5. Les équations de Sellmeier.....	141
III.3.5.6. Cas spécifique d'un cristal uniaxe.....	141
III.3.5.7. Le "walk-off".....	142
III.3.5.8. La dispersion de vitesse de groupe et l'écart des vitesses de groupe.....	144
III.3.6. Résumé des processus non linéaires du deuxième ordre.....	146
<b>III.4. Choix de cristaux.....</b>	<b>147</b>
<b>III.5. Logiciel.....</b>	<b>150</b>
<b>III.6. APO femtoseconde accordable dans le visible.....</b>	<b>155</b>
III.6.1. Les impulsions pompe.....	155
III.6.2. Montage expérimental du générateur paramétrique optique à double passage.....	158
III.6.3. L'amplificateur paramétrique optique le montage du deuxième étage.....	161
III.6.4. Résultats APO à deux étages.....	162
III.6.4.1. L'énergie et la durée des impulsions de sortie.....	163
III.6.4.2. La dispersion de vitesse de groupe.....	165
III.6.4.3. L'accordabilité.....	166
III.6.4.4. Stabilité.....	169
III.6.4.5. Profils spatiaux.....	171
III.6.4.6. L'écart des vitesses de groupe.....	171
<b>III.7. L'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche... 174</b>	
III.7.1. Introduction.....	174
III.7.2. Historique.....	175
III.7.3. Le montage.....	176
III.7.4. Résultats.....	177
<b>III.8. Conclusion.....</b>	<b>183</b>
 <b>CHAPITRE IV - IMAGERIE.....</b>	 <b>185</b>
<b>IV.1. Introduction.....</b>	<b>187</b>
<b>IV.2. Contexte théorique de la transillumination des tissus.....</b>	<b>188</b>
<b>IV.3. La théorie de Mie.....</b>	<b>195</b>
<b>IV.4. Les propriétés optiques des tissus.....</b>	<b>196</b>

<b>IV.5. Contexte scientifique.....</b>	<b>197</b>
IV.5.1. La caméra à balayage de fente.....	198
IV.5.2. La détection hétérodyne.....	201
IV.5.3. L'holographie électronique.....	202
IV.5.4. La porte à effet Kerr.....	203
IV.5.5. L'amplification Raman.....	204
IV.5.6. La corrélation croisée par génération du second harmonique .....	205
<b>IV.6. L'amplificateur paramétrique optique à la dégénérescence .....</b>	<b>206</b>
IV.6.1. Amplification paramétrique pour l'imagerie.....	206
IV.6.2. L'amplificateur paramétrique à la dégénérescence.....	208
IV.6.3. Résultats .....	210
<b>IV.7. Conclusions et perspectives.....</b>	<b>214</b>
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>217</b>
<b>ANNEXE A - L'EFFET KERR OPTIQUE .....</b>	<b>221</b>
<b>ANNEXE B - LA THÉORIE DE MIE .....</b>	<b>225</b>
<b>RÉFÉRENCES.....</b>	<b>229</b>

# **Introduction**



Depuis l'avènement des lasers femtosecondes il y a une dizaine d'années, on a vu une prolifération exceptionnelle de ces sources en même temps qu'un progrès rapide dans le développement de la technologie. Aujourd'hui, on trouve des systèmes fiables capables de délivrer des impulsions de durée inférieure à 100 fs et avec des puissances crêtes de plusieurs dizaines de térawatts. Ils ont même atteint un niveau de fiabilité qui leur permet d'être commercialisés.

Parallèlement à la mise au point des lasers à impulsions ultrabrèves, on étudie actuellement l'application de ces impulsions intenses à un grand nombre de domaines tels la spectroscopie et l'optique non linéaire. Les lasers femtosecondes sont en fait des outils très bien adaptés à l'étude de nombreux phénomènes ultrarapides, mais sont limités par le fait qu'ils ne fonctionnent que dans une bande spectrale limitée. Pour de nombreux utilisateurs, il est indispensable de pouvoir adapter la longueur d'onde de la source à leur application et le laser seul ne leur est que de peu d'usage.

Leur souhait est donc de disposer d'une source cohérente d'impulsions brèves qui soit également largement accordable en longueur d'onde. Pour cela, on peut envisager deux solutions principales: la production d'un continuum spectral et l'utilisation d'effets paramétriques. Même si le continuum spectral est utilisé depuis plus de 20 ans, les mécanismes de sa production ne sont toujours pas bien compris. Il présente également plusieurs inconvénients liés au contrôle du profil spatial et à la filamentation. De nos jours, les recherches sur l'accordabilité sont plutôt axées sur les effets paramétriques qui permettent la production d'impulsions plus propres à des longueurs d'onde données mais accordables.

L'extension des études sur les effets paramétriques au régime femtoseconde engendre de nouveaux problèmes et considérations liés à la faible durée des impulsions et au large spectre qui leur sont associés. En revanche, les puissances crêtes énormes mènent aisément à de fortes non linéarités qui peuvent par exemple être exploitées pour réaliser des amplificateurs optiques avec des gains supérieurs à  $10^4$ . L'amplification paramétrique en régime femtoseconde présente ainsi un intérêt supplémentaire à cause de son comportement en porte ultrarapide amplificatrice. Cette propriété nous a permis d'initier des études sur son application à l'imagerie en milieu diffusant.

Ce mémoire est donc consacré à l'étude de sources cohérentes en régime femtoseconde et vise en particulier l'utilisation de l'amplification paramétrique pour permettre à ces sources d'être largement accordables en longueur d'onde. Il aborde la réalisation d'une source laser femtoseconde, une brève étude de la génération d'un continuum de lumière blanche, le

développement d'un amplificateur paramétrique optique et son application à la réalisation d'une source femtoseconde accordable dans le visible et à l'imagerie en milieu diffusant. Il est organisé de la manière suivante.

Dans le chapitre I, nous présenterons la chaîne laser femtoseconde que nous avons construite afin de nous permettre de poursuivre nos recherches. Cette chaîne, composée d'un oscillateur et d'un amplificateur, utilise comme milieu à gain un cristal de saphir dopé au titane. Nous décrirons les principes fondamentaux du fonctionnement de cette chaîne laser: la production d'impulsions brèves à partir d'effets non linéaires du troisième ordre et leur amplification jusqu'à des puissances crêtes élevées par la technique d'amplification d'impulsions à dérive de fréquence.

Le chapitre II sera ensuite consacré à l'étude de la génération d'un continuum de lumière blanche femtoseconde à partir d'un milieu solide. Nous nous concentrerons plus particulièrement sur un aspect spécifique de ce phénomène: l'émission conique. Nous essaierons d'analyser nos observations expérimentales dans le contexte des théories utilisées de nos jours.

Dans le chapitre III, nous présenterons l'amplification paramétrique en régime femtoseconde. Nous décrirons la construction d'un amplificateur paramétrique optique à deux étages afin de réaliser une source femtoseconde accordable dans le visible. Cette source est basée sur le principe de la génération de fluorescence paramétrique que l'on amplifie par la suite. Nous comparerons alors les performances de cette source à une deuxième basée sur l'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche.

Le chapitre IV est consacré à une application à plus long terme de l'amplification paramétrique en régime femtoseconde qui est l'imagerie en milieu diffusant utilisant ses propriétés de porte ultrarapide amplificatrice. Nous présenterons nos travaux dans le contexte d'autres études qui ont déjà été poursuivies dans ce domaine. Ensuite, nous décrirons le montage de notre amplificateur paramétrique optique et donnerons les premiers résultats qu'il a permis de réaliser. Nous discuterons et analyserons ces résultats afin de cerner dans quelle direction il faudrait poursuivre ces travaux.

# **Chapitre I**

## **La chaîne laser femtoseconde**





## I.1. Introduction

Dans ce chapitre, je présenterai la chaîne laser femtoseconde que nous avons construite dans notre laboratoire [1] et dont nous nous sommes servi afin de réaliser nos expériences sur la génération d'un continuum de lumière blanche, l'amplification paramétrique en régime femtoseconde et l'imagerie en milieu diffusant.

Le but principal de cette chaîne était de produire des impulsions suffisamment intenses pour pouvoir créer par la suite des effets non linéaires importants. La puissance crête d'une impulsion  $P_{crête}$  est donnée par le rapport de son énergie  $E_{imp}$  à sa durée (à mi-hauteur)  $\Delta\tau$ , soit :

$$P_{crête} = C E_{imp} / \Delta\tau, \quad (I.1)$$

où  $C = 1,06$  pour des impulsions gaussiennes et  $C = 1,14$  pour des impulsions en forme de sécante hyperbolique au carré. L'intensité étant la densité spatiale de puissance, on a

$$I_{crête} = \frac{P_{crête}}{A}, \quad (I.2)$$

où  $A$  est la surface éclairée supposée uniforme. On peut accéder à des intensités élevées soit en diminuant la durée de l'impulsion, soit en augmentant l'énergie, soit en focalisant fortement. Il faut donc des *impulsions ultrabrèves amplifiées*.

Dans la suite, je chercherai premièrement la réponse à deux questions: qu'est-ce qu'une impulsion ultrabrève et comment peut-on en produire? Je poursuivrai avec une description du cristal de saphir dopé au titane dont nous nous sommes servi comme milieu à gain. Ensuite, je décrirai l'oscillateur, notre source d'impulsions femtosecondes, et ses performances. Enfin, je présenterai la méthode d'amplification à dérive de fréquence, qui nous a permis d'amplifier nos impulsions ultrabrèves à des énergies de plus de 1 mJ et à des puissances crêtes de plus de 10 GW. On remarque que ces puissances sont de l'ordre de ce qui est produit par de grandes centrales nucléaires, mais elles ne durent qu'une infime partie d'une seconde!

## I.2. Les impulsions brèves

### I.2.1. L'impulsion femtoseconde

De nos jours, lorsqu'on fait référence à *une impulsion ultrabrève*, on parle d'impulsion ayant une durée de moins d'une picoseconde (moins de  $10^{-12}$  s) et, de plus en plus souvent, de moins de 100 fs. On rappelle ici que *la femtoseconde* est une unité de temps égale à  $10^{-15}$  s. Pour mieux comprendre une durée si courte, on remarque que la lumière ne parcourt que 30  $\mu\text{m}$ , la largeur d'un cheveu, en 100 fs, tandis qu'en 1 s elle parcourt une distance de 300 000 km, soit la distance de la terre à la lune.

Une impulsion femtoseconde est donc un paquet de lumière cohérente de durée extrêmement brève. En fait, la femtoseconde est la limite théorique de durée d'impulsion réalisable dans le visible puisqu'un cycle optique à 400 nm dure 1,3 fs. À 780 nm, la longueur d'onde émise par notre chaîne laser, un cycle optique dure 2,6 fs, et la plus courte durée réalisée aujourd'hui à 620 nm est de 6 fs, soit trois cycles optiques [2]. Pour franchir le seuil de la femtoseconde et réaliser des impulsions attosecondes ( $10^{-18}$  s), il faudra utiliser des impulsions à très haute fréquence, en ultraviolet lointain ou en rayons X.

Le spectre d'une impulsion peut être connu en prenant la transformée de Fourier de la fonction qui décrit le champ électrique dans le domaine du temps. Il est important de comprendre qu'une impulsion femtoseconde a nécessairement un spectre large, résultat direct de la relation de la transformée de Fourier. Cette relation impose une limite inférieure au produit de la largeur spectrale et de la durée de l'impulsion selon la forme temporelle de l'impulsion. Ainsi :

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau \geq K, \quad (\text{I.3})$$

où  $\Delta\nu$  est la largeur à mi-hauteur spectrale en hertz,  $\Delta\tau$  est la durée de l'impulsion (largeur à mi-hauteur) en seconde et  $K$  est une constante dont la valeur est donnée pour une variété de formes temporelles dans le tableau I.1 [3]. L'égalité de cette relation correspond au cas où l'impulsion n'a pas de dérive de fréquence, autrement dit il n'y a pas de variation de la fréquence instantanée à travers l'impulsion. La fréquence angulaire instantanée de l'impulsion  $\omega_i$  est définie comme

$$\omega_i = \frac{d\varphi}{dt}, \quad (\text{I.4})$$

où  $\varphi$  est sa phase. Donc, si :

$$\frac{d\omega_i}{dt} = 0$$

tout au long de l'impulsion, l'impulsion n'a pas de dérive de fréquence, sa phase est constante (ses différentes composantes fréquentielles sont en phase), et on dit alors que sa largeur est limitée par transformée de Fourier.

Forme temporelle	$I(t) / I_0$	K
Gaussienne	$\exp\left(\frac{-4 (\ln 2) t^2}{\Delta\tau^2}\right)$	0,441
Sécante hyperbolique carrée	$\operatorname{sech}^2\left(\frac{1,76 t}{\Delta\tau}\right)$	0,315
Exponentielle	$\exp\left(\frac{-2 (\ln 2) t}{\Delta\tau}\right)$	0,142
Lorentzienne	$\frac{1}{1 + \left(\frac{2t}{\Delta\tau}\right)^2}$	0,22
Rectangle	$1$ $(0 \leq t \leq \Delta\tau)$	1

Tableau I.1: Valeurs de K de la relation de la transformée de Fourier,  $\Delta\nu \cdot \Delta\tau \geq K$  (l'équation I.3), pour une variété de formes temporelles d'impulsions lumineuses.

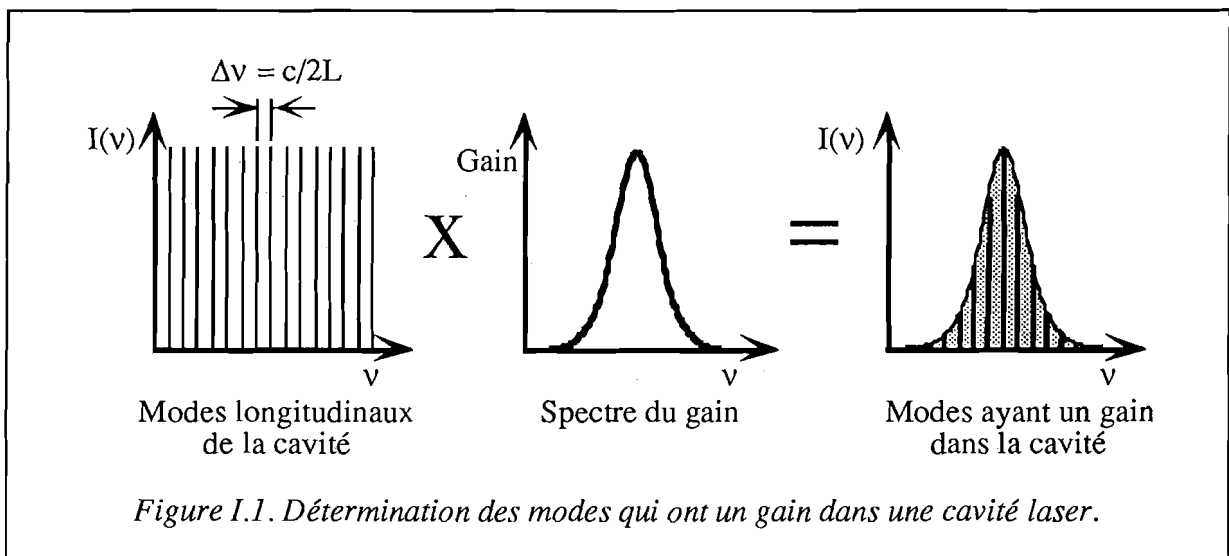
### I.2.2. Le blocage de modes

Nous avons vu dans la section précédente qu'une impulsion ultrabrève est un paquet de lumière composé d'un spectre de fréquences large. Dans cette section, nous verrons que le spectre large n'est pas la seule condition nécessaire pour définir des impulsions brèves. Nous expliquerons également le processus de création d'impulsions, que l'on appelle *le verrouillage en phase des modes du laser* ou, simplement, *le blocage de modes*.

Le spectre large de l'impulsion ultrabrève n'est pas continu parce que seules les fréquences en résonance avec la cavité laser peuvent osciller; autrement dit, le temps mis pour parcourir la distance d'un aller et retour de la cavité laser doit correspondre à un multiple intégral d'une période d'oscillation de l'onde. Donc :

$$\nu_k = k \frac{c}{2L}, \quad (I.5)$$

où  $\nu_k$  est la fréquence du mode  $k$ ,  $k$  est un nombre entier,  $c$  est la vitesse de la lumière, et  $L$  est la longueur de la cavité. Cette relation définit un peigne de fréquences, séparées de  $\Delta\nu = c/2L$ , l'intervalle spectral libre de la cavité laser, qui peuvent être résonantes dans la cavité, mais ne conduisent pas nécessairement à une émission laser. Celles qui pourront y parvenir sont celles pour lesquelles le gain du milieu laser peut compenser les pertes de la cavité. La figure I.1 démontre cette idée schématiquement. On prend par exemple l'oscillateur laser construit dans notre laboratoire. Il produit des impulsions ayant un spectre de 10 nm de large (largeur à mi-hauteur). La longueur  $L$  de la cavité est de 174 cm. Les fréquences résonantes de la cavité sont donc des multiples de 86 MHz (selon l'équation I.5). À une longueur d'onde centrale de 780 nm, un intervalle spectral libre de 86 MHz correspond à un espacement en longueur d'onde de  $1,7 \times 10^{-4}$  nm. Par conséquent, un spectre de 10 nm de large doit être composé d'à peu près 57 000 modes longitudinaux.



Mathématiquement, on peut voir l'effet de verrouiller en phase un nombre important de modes d'un laser en écrivant l'expression du champ électrique de chacun des modes et en faisant la sommation de tous les champs électriques. L'intensité de l'impulsion est alors proportionnelle au carré de la valeur absolue de l'enveloppe complexe du champ électrique [4]. Ainsi :

$$E_k(t) = E_k \exp[-i(2\pi\nu_k t + \varphi_k)], \quad (I.6)$$

où  $E_k(t)$  est l'expression complexe du champ électrique du mode  $k$ ,  $E_k$  est son amplitude,  $\nu_k$  est sa fréquence et  $\varphi_k$  est sa phase. Le champ électrique complexe total est donc

$$E(t) = \sum_{k=-N}^N E_k \exp[-i(2\pi \nu_k t + \varphi_k)], \quad (I.7)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale et il y a  $2N + 1$  modes au total. Les fréquences des modes se calculent en connaissant l'intervalle spectral libre  $\Delta\nu$ :

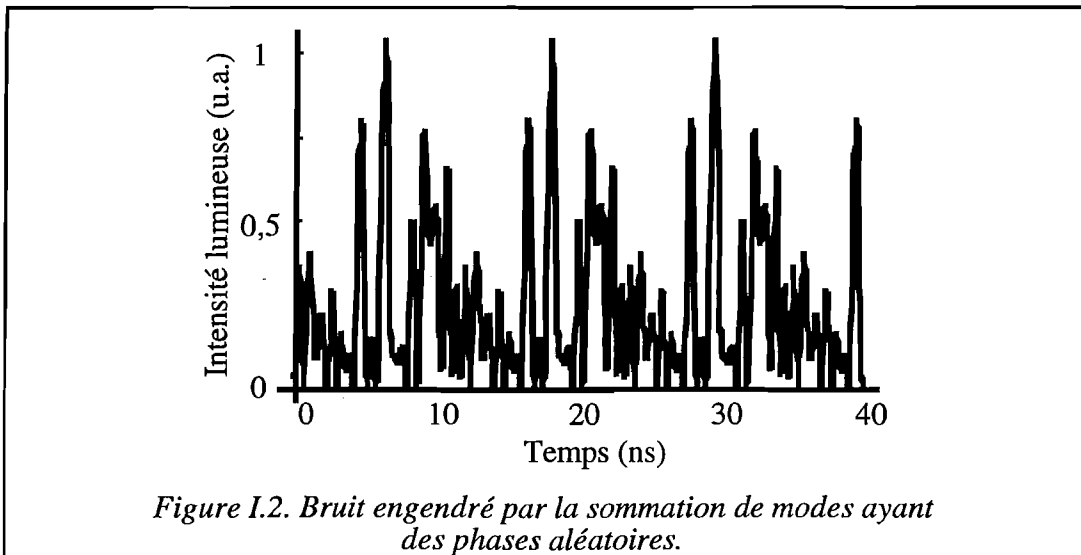
$$\nu_k = \nu_0 + k \Delta\nu. \quad (I.8)$$

Pour simplifier, on suppose que les amplitudes des modes sont identiques et égales à  $E_0$  (en général, le spectre aura une allure plutôt gaussienne). Par conséquent,

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 \sum_{k=-N}^N \exp[-i(2\pi \nu_k t + \varphi_k)] \\ &= E_0 \exp(-2\pi i \nu_0 t) \sum_{k=-N}^N \exp[-i(2\pi k \Delta\nu t + \varphi_k)]. \end{aligned} \quad (I.9)$$

Si les phases  $\varphi_k$  sont aléatoires, l'intensité résultante aura une allure semblable à la figure I.2, autrement dit un bruit périodique qui est loin d'être une impulsion brève. Par contre, si les modes sont verrouillés en phase, on peut poser  $\varphi_k = 0, \forall k$ , et on obtient une impulsion lumineuse dont le champ électrique s'écrit

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 \exp(-2\pi i \nu_0 t) \sum_{k=-N}^N \exp(-2\pi i k \Delta\nu t) \\ &= E_0 \exp(-2\pi i \nu_0 t) \frac{\sin[\pi(2N+1)\Delta\nu t]}{\sin(\pi \Delta\nu t)}. \end{aligned} \quad (I.10)$$



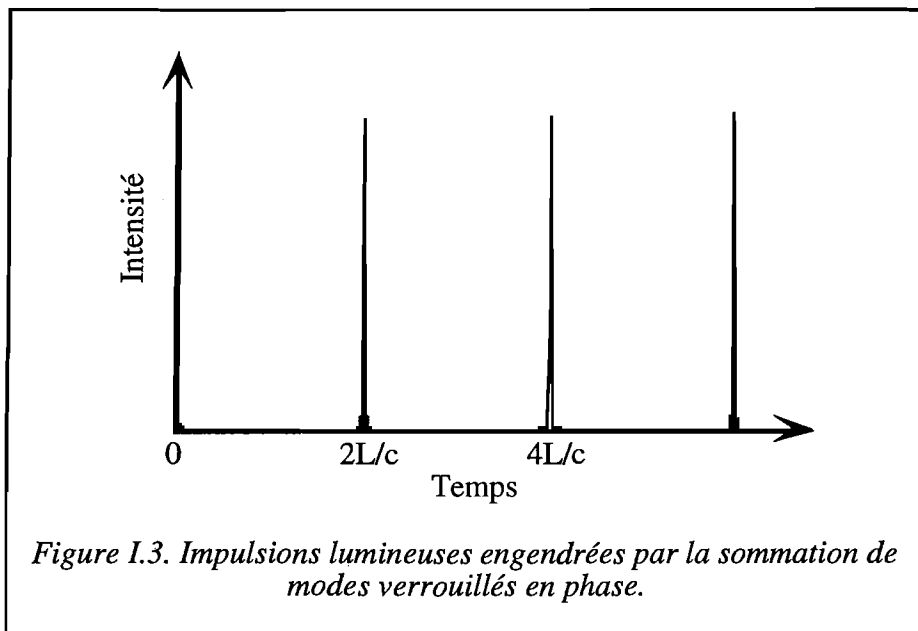
Son intensité est donc donnée par :

$$I(t) = \frac{E_0^2}{\eta_0} \left\{ \frac{\sin[\pi (2N + 1) \Delta v t]}{\sin(\pi \Delta v t)} \right\}^2, \quad (\text{I.11})$$

où  $\eta_0$  est l'impédance de l'espace libre, et l'intensité maximale est égale à

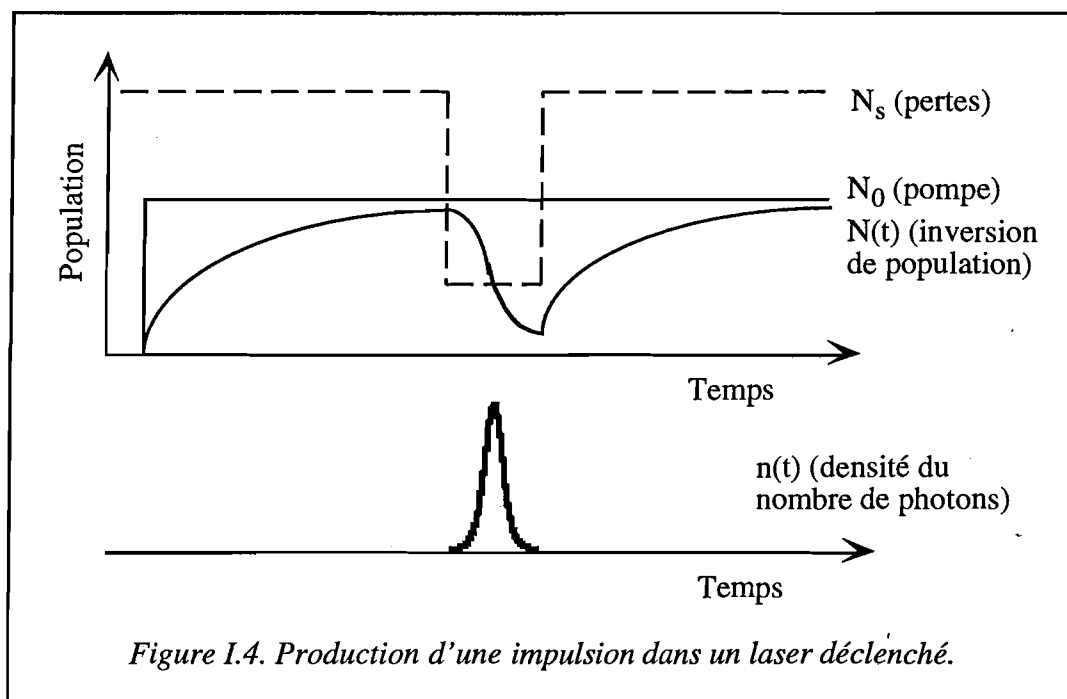
$$I_{\max} = \frac{E_0^2}{\eta_0} (2N + 1)^2. \quad (\text{I.12})$$

Si l'on pose  $2N + 1 = 57\,000$  et  $\Delta v = 86$  MHz, on trouve que l'intensité ressemble à une impulsion qui se répète avec un taux de répétition égal à  $\Delta v = c/2L$ . Le temps entre deux impulsions est donc égal au temps d'un aller et retour dans la cavité  $T = \Delta v^{-1} = 2L/c$  (voir la figure I.3). On remarque également que l'intensité maximale de cette impulsion est  $(2N + 1)^2$  fois l'intensité maximale d'un des modes seul.



Il existe en fait deux manières de produire des impulsions. Un laser verrouillé en phase permet la production d'impulsions plus courtes qu'un laser *déclenché*. Pour la production d'impulsions, le laser déclenché met en jeu un mécanisme de contrôle des pertes de la cavité. Les pertes sont maintenues à un niveau élevé pendant le pompage du milieu à gain et ensuite sont réduites d'un coup à un niveau faible. L'impulsion "géante" produite dure typiquement

entre 1 ns et 1  $\mu$ s, selon le temps de vie de la cavité et le degré d'inversion de population (voir la figure I.4). En revanche, le laser verrouillé en phase produit typiquement des impulsions subnanosecondes, voire femtosecondes.



Dans la suite, on verra comment on arrive à verrouiller en phase tous les modes du laser pour faire une impulsion brève. Il existe en fait deux classes de façons appelées *le blocage de modes actif* et *le blocage de modes passif*. Notre laser femtoseconde appartient à la deuxième classe, étant verrouillé en phase par la méthode passive de la lentille de Kerr. On parle donc *du blocage de modes KLM*, pour *Kerr Lens Mode locking* en anglais. Cette méthode sera abordée plus en détail dans la section I.2.2.2. Par la suite, on verra la dynamique du blocage de modes: le couplage des modes et la création de nouvelles fréquences par automodulation de phase.

### I.2.2.1. Le blocage de modes actif

Le blocage de modes actif dépend de la modulation active des amplitudes ou des phases des modes dans la cavité à une fréquence égale à l'intervalle spectral libre des modes longitudinaux,  $\Delta\nu$ , ou à un multiple entier de cette valeur. Cette modulation couple tous les modes ensemble et les verrouille en phase. Les méthodes les plus répandues pour faire du

blocage de modes actif sont l'utilisation d'un modulateur soit acousto-optique, soit électro-optique. La première est un exemple d'une modulation active des amplitudes des modes tandis que la deuxième donne une modulation des phases.

Un désavantage du blocage de modes actif est qu'il nécessite l'accord de la fréquence de modulation précisément sur l'intervalle spectral libre des modes de la cavité. De plus, cette méthode est en général limitée à la production d'impulsions de plus d'une picoseconde.

#### a) Le blocage de modes par modulateur acousto-optique

Les modulateurs acousto-optiques entraînent une modulation des pertes de la cavité, ce qui impose par la suite une phase à tous les modes oscillant dans la cavité. Ainsi, il y a une synchronisation des phases des modes qui conduit à la production d'une impulsion. Ce mécanisme est illustré sur la figure I.5.

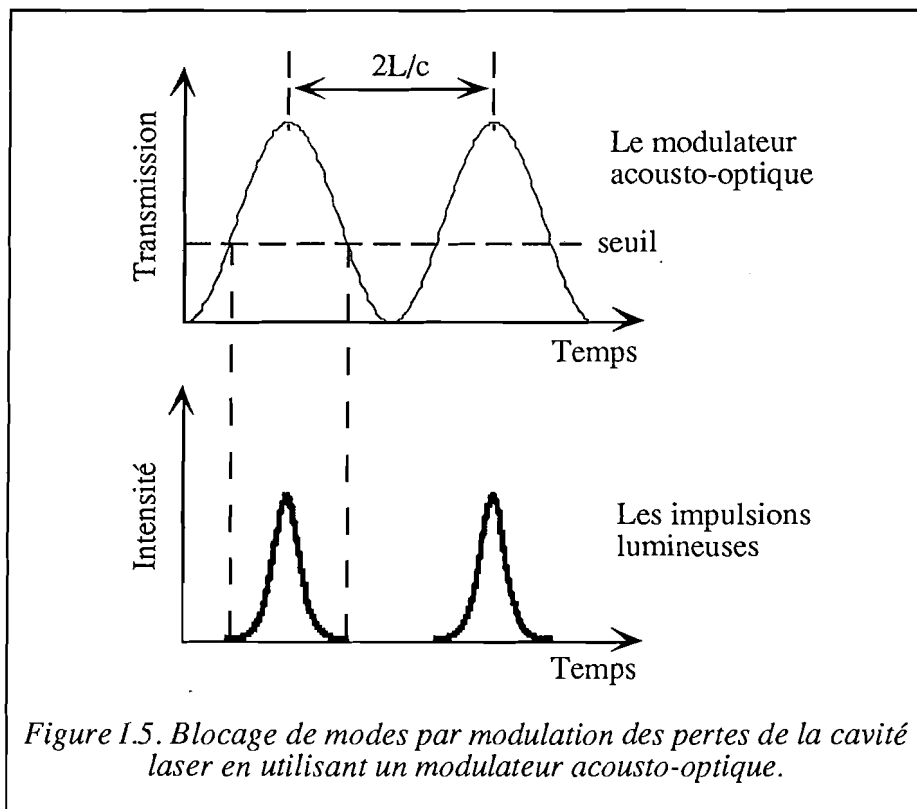


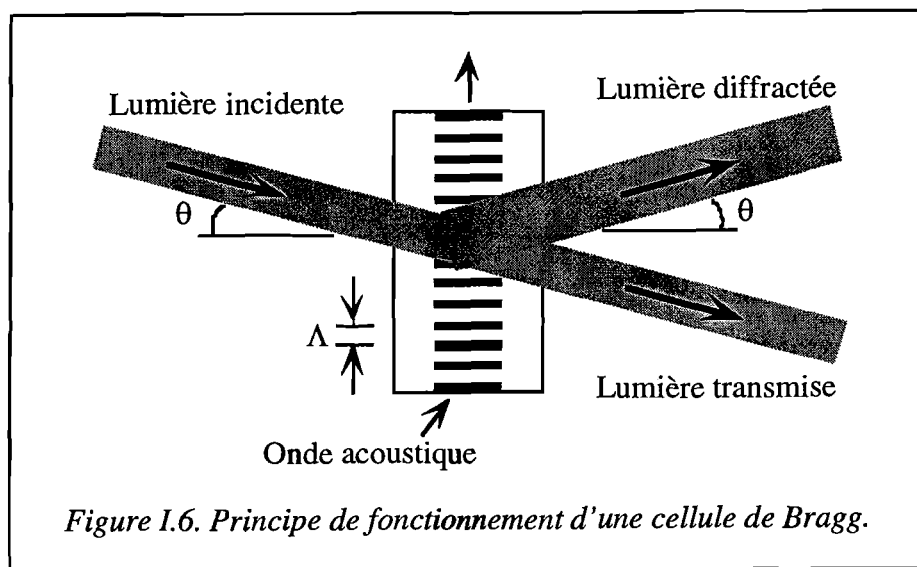
Figure I.5. Blocage de modes par modulation des pertes de la cavité laser en utilisant un modulateur acousto-optique.



Le modulateur acousto-optique utilise le principe de la diffraction de Bragg de la lumière par une onde acoustique. Lorsqu'une telle onde est incidente sur un milieu optique, elle modifie l'indice de réfraction de façon périodique et dépendant du temps. Si la lumière arrive dans le milieu optique sous un angle  $\theta$  qui satisfait à la condition de Bragg,

$$\sin \theta = \frac{\lambda}{2\Lambda}, \quad (\text{I.13})$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière et  $\Lambda$  est la longueur d'onde de l'onde acoustique incidente, elle est diffractée partiellement ou totalement selon l'intensité de l'onde acoustique (voir la figure I.6). Il est donc possible de moduler la transmission de cette *cellule de Bragg* simplement en modulant l'intensité de l'onde acoustique incidente [5].



Un exemple du blocage de modes par modulateur acousto-optique est celui du laser Nd:YAG. Il utilise une cellule de Bragg basée sur un cristal de quartz et produit typiquement des impulsions voisines de 100 ps [6].

#### b) Le blocage de modes par modulateur électro-optique

Les modulateurs électro-optiques entraînent une modulation des phases des modes de la cavité laser par *effet Pockels*. Cet effet est un cas spécial du mélange à trois ondes (voir le chapitre III de ce mémoire), ou plus spécifiquement de la somme de fréquences, où une onde de fréquence  $\omega$  est mélangée avec une onde de fréquence nulle, autrement dit continue, pour

créer une troisième onde à la même fréquence que la première. La polarisation totale  $\tilde{P}(\omega, t)$  de l'onde de fréquence  $\omega$  est donc modifiée par un terme non linéaire, ce qui donne

$$\tilde{P}(\omega, t) = \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)} + 2 \chi^{(2)} E_{DC} \right) \tilde{E}(\omega, t), \quad (\text{I.14})$$

où  $\varepsilon_0$  est la permittivité de l'espace libre,  $\chi^{(1)}$  est la susceptibilité électrique linéaire du milieu (typiquement un cristal biréfringent),  $\chi^{(2)}$  est la susceptibilité électrique non linéaire du deuxième ordre du milieu,  $E_{DC}$  est le champ électrique continu appliqué et  $\tilde{E}(\omega, t)$  est le champ électrique de l'onde incidente de fréquence  $\omega$ . L'effet Pockels se manifeste donc comme un changement de la susceptibilité linéaire et par conséquent de l'indice de réfraction du milieu. Ceci mène par la suite à un déphasage de l'onde selon le champ électrique continu appliqué, ou sa tension continue  $V_{DC}$ :

$$\varphi = \varphi_0 - \pi \frac{V_{DC}}{V_\pi}, \quad (\text{I.15})$$

où  $\varphi$  est la phase de l'onde,  $\varphi_0$  est sa phase sans tension appliquée et  $V_\pi$  est la tension demi-onde de la cellule de Pockels [5]. La tension demi-onde est celle qu'il faut appliquer afin de tourner la polarisation de l'onde incidente de  $90^\circ$  et est souvent de l'ordre du kV. On voit donc qu'une modulation de la tension appliquée entraîne une modulation de la phase de l'onde.

Historiquement, ces modulateurs étaient les premiers à être utilisés pour réaliser le blocage de modes actif [7] mais ils sont remplacés de plus en plus souvent par les modulateurs acousto-optiques qui fonctionnent avec des tensions beaucoup plus faibles.

### 1.2.2.2. Le blocage de modes passif

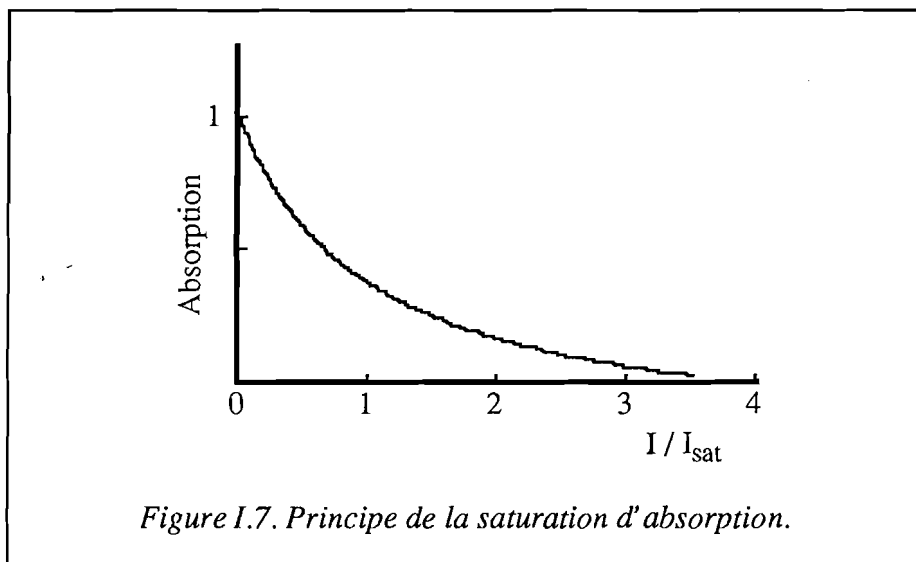
Le blocage de modes passif est basé sur le principe que *tout matériau dont la transmission augmente avec l'intensité introduit un verrouillage des modes en phase dans une cavité laser* [8]. On appelle un tel matériau *absorbant saturable*. Cette méthode est dite passive car le blocage de modes est une conséquence des propriétés du faisceau laser et de l'absorbant saturable et non pas d'une modulation externe. Dans la suite, on verra qualitativement la différence entre un absorbant saturable lent et rapide et comment un absorbant saturable mène au blocage de modes. On pourra comprendre pourquoi les impulsions produites de cette manière peuvent être beaucoup plus courtes que celles produites par le blocage de modes actif. On terminera par une description de trois types différents de blocage de modes passif: l'absorbant saturable classique, le blocage de modes par addition d'impulsions (APM pour Additive Pulse Mode locking en anglais), et le blocage de modes par



la lentille de Kerr (KLM). Cette dernière méthode sera abordée plus en détail parce que c'est sur elle qu'est basé notre oscillateur femtoseconde.

#### a) Les absorbants saturables lents et rapides

Un absorbant saturable est un milieu qui présente une absorption qui est forte à basse intensité mais qui sature pour fortes intensités (voir la figure I.7). Cet absorbant saturable est dit *lent* si le temps de recouvrement d'absorption  $T_1$  est beaucoup plus long que la durée de l'impulsion  $\Delta\tau$ . La saturation se fait alors sur l'énergie, ou la puissance intégrée, de l'impulsion. En revanche, l'absorbant saturable est dit *rapide* si  $T_1$  est beaucoup plus petit que  $\Delta\tau$ . La saturation se fait donc sur la puissance instantanée.



Nous avons vu au début de cette section que l'intensité maximale d'une impulsion est plus grande que l'intensité maximale d'un mode seul par un facteur égal au carré du nombre de modes. Une impulsion sera donc transmise par l'absorbant saturable avec moins de pertes que les modes ayant des phases aléatoires. On peut s'arranger pour que seule une impulsion soit assez intense pour être transmise par l'absorbant saturable avec suffisamment peu de pertes pour franchir le seuil laser. De cette manière, on peut favoriser la production d'impulsions, autrement dit le blocage des modes de la cavité.

Il est important de noter que l'absorbant saturable a deux fonctions dans la production d'impulsions courtes. D'abord, il favorise la production d'impulsions par le blocage des modes de la cavité. Deuxièmement, il agit pour raccourcir les impulsions présentes dans la cavité. Dans le cas de l'absorbant saturable lent, le front montant de l'impulsion est partiellement absorbé à chaque passage dans l'absorbant saturable, donnant lieu à une impulsion plus courte mais asymétrique en temps. En revanche, les fronts montants et descendants des impulsions dans un absorbant saturable rapide sont absorbés et le pic intense est transmis, ce qui mène à une impulsion raccourcie à la fois par l'avant et par l'arrière et donc, en général, plus courte. Ceci dit, un absorbant saturable lent en combinaison avec un milieu à gain saturable peut ressembler à un absorbant saturable rapide dans le sens où l'absorbant saturable rétrécit l'impulsion par l'avant en absorbant le front montant et le milieu à gain rétrécit l'impulsion par l'arrière en n'amplifiant pas le front descendant. En fait, c'est cette dernière combinaison qui permet aux lasers à colorant pompés en continu de produire des impulsions subpicosecondes.

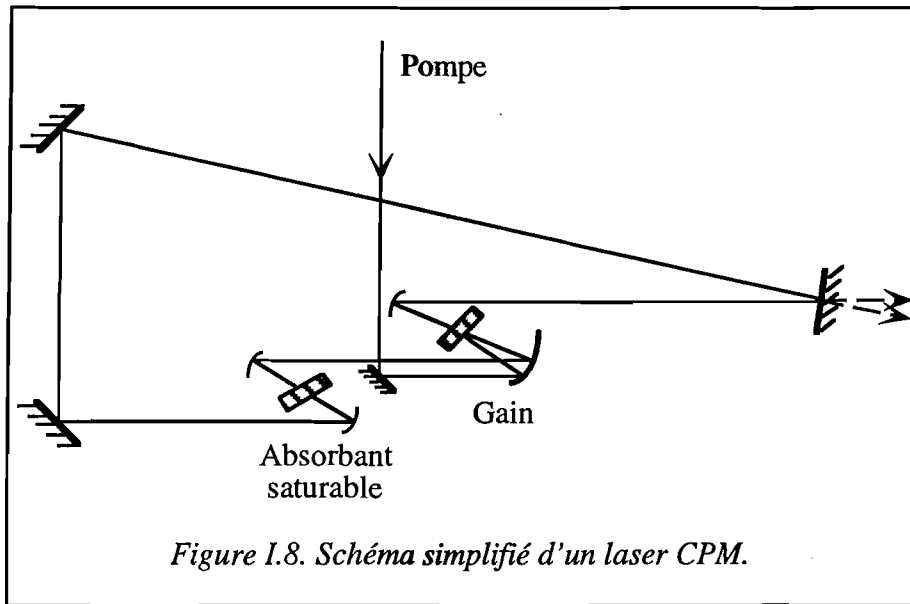
Puisque le verrouillage des modes est régi par les impulsions elles-mêmes, le problème de synchronisation nécessaire pour le blocage de modes actif est éliminé. De plus, l'effet doit "suivre" l'impulsion: il devient plus fort et plus rapide au fur et à mesure que l'impulsion devient courte et intense. C'est pour cette raison que le blocage de modes passif peut permettre la production d'impulsions beaucoup plus courtes que le blocage de modes actif.

#### **b) L'absorbant saturable classique et le blocage de modes par impulsions contrepropageantes**

Les absorbants saturables qui sont utilisés pour réaliser un blocage de modes passif sont, en général, des solutions de colorants organiques tels que le DODCI (3,3'-diéthyl-oxadicyanocyanine iodide) et le DQTCI (1,3'-diéthyl-4,2'-quinolythiacarbo-cyanine iodide) [9]. Ces colorants agissent en tant qu'absorbant saturable par excitation résonante et ont un temps de recouvrement d'absorption qui se trouve compris entre 1 ps et 1 ns [8]. Pour la génération d'impulsions femtosecondes, ils sont donc des absorbants saturables lents.

L'utilisation de ces absorbants saturables classiques pour produire des impulsions de moins de 100 fs est devenue possible avec le développement du laser à blocage de modes par impulsions contrepropageantes par Fork, Greene et Shank en 1981 [10]. On appelle ce laser *un laser CPM* pour *Colliding Pulse Mode locking* en anglais. Le schéma simplifié de ce laser se trouve reporté sur la figure I.8. L'idée est de faire propager deux impulsions en sens opposés dans une cavité laser en anneau pour qu'il y ait une rencontre des deux dans

l'absorbant saturable et qu'elles soient séparées le plus possible pendant le passage de chacune dans le milieu à gain. De cette manière, l'absorbant saturable se sature plus facilement tandis que le gain à chaque passage reste identique.



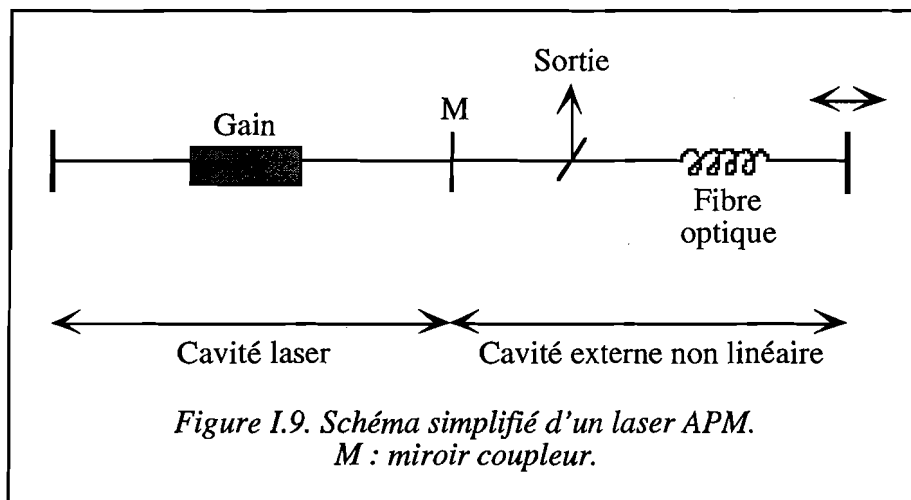
Malheureusement, le blocage de modes par absorbant saturable lent dans un laser à l'état solide se réalise difficilement à cause de la faible section efficace de gain du milieu amplificateur et de son long temps de relaxation (de l'ordre de  $1 \mu\text{s}$ ) [11]. En plus, il n'existe pas d'absorbant saturable basé sur le principe d'excitation résonante qui soit *rapide* par rapport aux impulsions femtosecondes. Il était donc désirable de simuler l'action d'un absorbant saturable rapide afin d'accéder au régime des impulsions ultrabrèves (moins de 100 fs) avec des lasers à l'état solide. *L'effet Kerr*, qui a un temps de réponse de l'ordre de la femtoseconde, a permis la réalisation de l'équivalent d'absorbants saturables rapides pour conduire à deux méthodes distinctes de blocage de modes passif: le blocage de modes par addition d'impulsions (APM) et le blocage de modes par la lentille de Kerr (KLM).

### c) Le blocage de modes par addition d'impulsions (APM)

On appelle l'APM également le blocage de modes par couplage de cavité parce que le principe fondamental consiste à faire interférer l'impulsion avec une autre qui a subi de l'automodulation de phase dans une cavité externe couplée à la cavité principale. L'automodulation de phase est un résultat de la non linéarité de l'indice de réfraction d'un

milieu et mène à un changement de phase, et donc à une variation de la fréquence instantanée, d'une impulsion proportionnellement à son intensité. La non linéarité de l'indice de réfraction provient de l'effet Kerr (voir l'annexe A pour une démonstration). Les détails de l'automodulation de phase seront abordés dans la section I.2.2.3.

La figure I.9 [4] donne un schéma typique d'un laser de type APM. Le miroir M couple les deux cavités ensemble et donne lieu à l'addition interférométrique des deux impulsions. L'automodulation de phase dans la cavité externe provient de la fibre optique. C'est cette automodulation de phase qui est à l'origine du blocage de modes: l'addition de l'impulsion de la cavité principale avec celle qui est automodulée en phase sur le miroir coupleur peut mener, selon l'ajustement de la cavité externe, à l'interférence constructive du pic de l'impulsion et l'interférence destructive des fronts montant et descendant. L'impulsion a donc tendance à se rétrécir, ce qui mène par la suite à une plus forte automodulation de phase dans la cavité externe due aux intensités plus fortes. De cette manière, la production d'impulsions très courtes peut être favorisée. Cette technique a déjà permis la production d'impulsions de 200 fs par un oscillateur saphir dopé au titane [12].



#### d) Le blocage de modes par la lentille de Kerr (KLM)

En 1990, Spence *et coll.* [13] de St. Andrew's University en Écosse ont annoncé la production d'impulsions stables de 90 fs avec un oscillateur saphir dopé au titane fonctionnant par "auto-blocage de modes." Autrement dit, la cavité laser ne comprenait pas de dispositif pour verrouiller les modes de la cavité en phase ni activement ni passivement. Par conséquent, cette technique a été vite baptisée "magic mode locking" (l'anglais pour le blocage de modes *magique*). La seule explication donnée était la possibilité qu'une

interaction non linéaire entre le milieu à gain et la lumière dans la cavité pourrait en être responsable.

En effet, Salin *et coll.* [14-15] et Negus *et coll.* [16] ont démontré que l'autofocalisation dans le barreau de saphir dopé au titane pourrait mener à un blocage stable des modes de la cavité laser. Negus *et coll.* ont rebaptisé cette technique "Kerr Lens Mode locking" (blocage de modes par la lentille de Kerr en anglais), ou *KLM*. En même temps, plusieurs groupes ont confirmé expérimentalement que cette technique permettait la production d'impulsions de moins de 100 fs d'un oscillateur laser saphir dopé au titane [16-18]. Aujourd'hui, ce principe est utilisé couramment dans les laboratoires pour produire des impulsions brèves. Des lasers femtosecondes saphir dopé au titane à blocage de modes KLM sont même commercialisés depuis 1991.

Le blocage de modes en utilisant l'effet Kerr a été démontré pour la première fois par Comly *et coll.* [19,20] en 1968 avec la production d'impulsions d'à peu près 12 ps dans un laser à rubis. L'effet Kerr est un effet non linéaire du troisième ordre qui donne lieu à une modification non linéaire de l'indice de réfraction du milieu, soit :

$$n(I) = n_0 + n_2 I, \quad (\text{I.16})$$

où  $n(I)$  est l'indice de réfraction équivalente du milieu pour une impulsion d'intensité  $I$ ,  $n_0$  est l'indice de réfraction linéaire (faible intensité) et  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire. La démonstration théorique de cet effet se trouve dans l'annexe A.

Ce que l'on cherche à comprendre est comment une variation d'indice de réfraction dans la cavité laser peut induire un verrouillage en phase des modes de la cavité. La réponse est que, pour un faisceau laser ayant un profil transverse gaussien, cette variation d'indice dans le milieu à gain ressemble à celle d'une lentille convergente. La dépendance de l'indice de réfraction du milieu avec l'intensité du laser est équivalente à une dépendance de la longueur focale de la *lentille de Kerr* avec l'intensité. Puisque la focalisation du faisceau provient des propriétés du faisceau lui-même, on appelle ce phénomène *l'autofocalisation*. Les paramètres de stabilité de la cavité laser, et donc la forme spatiale du faisceau laser, dépendent de son mode de fonctionnement puisqu'en mode continu la lentille de Kerr est très faible tandis qu'en mode impulsionnel elle est beaucoup plus forte. La disposition d'une ouverture, telle une fente, dans la cavité laser à un endroit où le faisceau laser est transversalement plus large en continu qu'en régime impulsionnel est donc équivalent à un absorbant saturable rapide: *la transmission de la fente augmente avec l'intensité du laser*. Le temps de réponse de cet "absorbant saturable" est le temps de réponse de l'effet Kerr, de l'ordre de la femtoseconde. La figure I.10 montre schématiquement le principe du KLM.



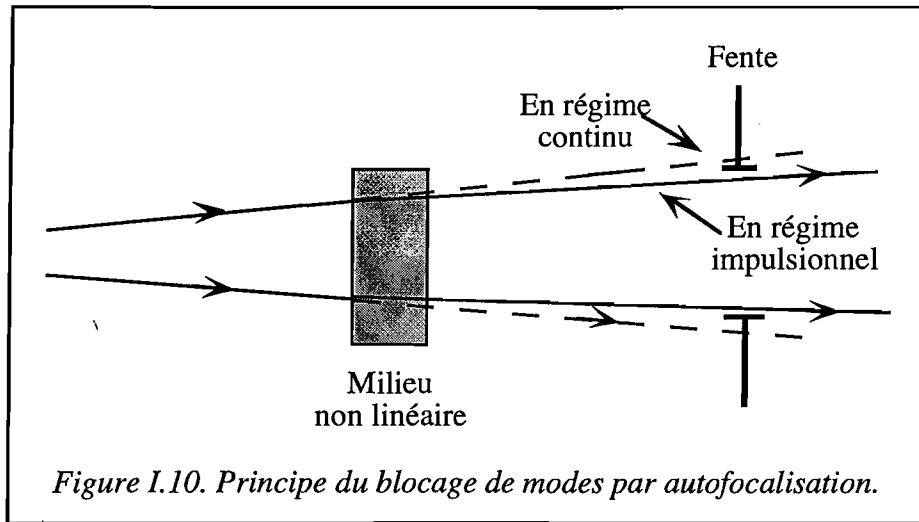


Figure I.10. Principe du blocage de modes par autofocalisation.

L'analyse théorique du KLM peut se faire en considérant les matrices ABCD de la cavité laser et en faisant un calcul numérique pour déterminer la taille du faisceau dans la cavité en fonction de son intensité [14-15,21-22]. En pratique, le milieu Kerr dans la cavité est également le milieu à gain, c'est-à-dire le barreau de saphir dopé au titane dans un laser saphir dopé au titane. Pour déterminer la matrice ABCD de ce milieu Kerr, on suppose que le profil transverse du faisceau laser est gaussien. Donc :

$$I(r,z) = I_0(z) \exp\left(\frac{-2 r^2}{w^2}\right), \quad (\text{I.17})$$

où  $I(r,z)$  est l'intensité crête du laser en fonction des coordonnées transverse  $r$  et axiale  $z$ ,  $I_0(z)$  est l'intensité crête sur l'axe  $r = 0$  et  $w$  est le rayon à  $1/e^2$  en intensité du faisceau. L'expression de l'indice de réfraction s'écrit alors au premier ordre :

$$n = n_0 + n_2 I_0(z) \exp\left(\frac{-2 r^2}{w^2}\right) \quad (\text{I.18})$$

$$n \approx n_0 + n_2 I_0(z) - \frac{2 n_2 I_0(z)}{w^2} r^2 .$$

L'équation I.18 ressemble à l'expression pour l'indice de réfraction d'un guide à gradient d'indice, que l'on appelle souvent un *GRIN* pour *Graded Refractive INdex* en anglais:

$$n^{GRIN} = n_0^{GRIN}(z) - \frac{1}{2} n_2^{GRIN}(z) r^2 . \quad (\text{I.19})$$

On pose donc par analogie avec l'équation I.18:

$$n_0^{GRIN}(z) = n_0 + n_2 I_0(z) \text{ et} \quad (\text{I.20})$$

$$n_2^{GRIN}(z) = \frac{4 I_0(z)}{w^2} n_2 . \quad (I.21)$$

Puisque la matrice ABCD d'un GRIN est connue [23]:

$$\begin{bmatrix} \cos \gamma z & (n_0^{GRIN} \gamma)^{-1} \sin \gamma z \\ - (n_0^{GRIN} \gamma) \sin \gamma z & \cos \gamma z \end{bmatrix}, \quad (I.22)$$

où :

$$\gamma \equiv \sqrt{\frac{n_2^{GRIN}}{n_0^{GRIN}}} \quad (I.23)$$

$$\gamma = \frac{2}{w \sqrt{1 + \frac{n_0}{n_2} I_0(z)}}$$

et que l'on a réalisé l'identification entre les expressions I.19 et I.18, nous disposons alors de la matrice ABCD du milieu Kerr.

Le gradient d'indice introduit une focalisation dans la cavité laser qui donne le nom de *lentille de Kerr* à cet effet. À partir de la matrice ABCD (les équations I.22 et I.23), on peut voir que la focalisation est dépendante de l'intensité crête du faisceau  $I_0(z)$ . On conclut que la focalisation et par conséquent la solution stable d'un faisceau laser oscillant dans une cavité laser comprenant un milieu Kerr dépendent de son intensité crête, et donc de son mode de fonctionnement (impulsionnel ou continu).

Cette technique de blocage de modes est très avantageuse puisqu'elle est passive, n'est pas onéreuse et ne nécessite pas l'insertion d'éléments dans la cavité (à part une fente). Elle présente une bande passante quasi-illimitée puisqu'elle ne repose que sur des matériaux transparents et que l'effet Kerr est instantané. Elle permet la production d'impulsions ultrabrèves de l'ordre de seulement deux ou trois cycles optiques. Son désavantage principal est sa stabilité: une légère perturbation de la cavité peut arrêter le blocage de modes et nécessite le redémarrage du laser en régime impulsionnel.

Nous avons vu dans cette section comment l'effet Kerr peut favoriser le régime impulsionnel d'un laser. Cependant, il reste deux questions importantes auxquelles il faut donner une réponse: comment peut-on démarrer le KLM et d'où vient l'élargissement du spectre qui permet la production d'impulsions ultrabrèves ? On cherchera à répondre à ces questions dans la section I.2.2.3 en considérant la dynamique du blocage des modes.

### 1.2.2.3. Dynamique du blocage de modes KLM

Dans la section précédente, nous avons vu comment on peut jouer sur les paramètres géométriques d'une cavité laser pour favoriser un mode de fonctionnement du laser. On va voir ici comment le laser évolue d'un rayonnement continu à une impulsion femtoseconde.

#### a) Les transitions homogènes et inhomogènes

Une transition laser homogène est caractérisée par une réponse collective des atomes au pompage laser. Le pompage laser agit donc sur l'ensemble des modes longitudinaux. Cette caractéristique mène à une oscillation laser monomodale, le mode préféré étant celui qui atteint le seuil d'oscillation en premier. Pour faire osciller d'autres modes, il serait nécessaire d'augmenter le gain de ces modes pour atteindre le seuil d'oscillation. Cependant, il n'est pas possible d'augmenter le gain d'un mode indépendamment des autres dans un milieu à gain homogène idéal. Une augmentation en gain de l'ensemble des modes devrait permettre à de nouveaux modes de passer le seuil. Cependant, dans un milieu homogène, les niveaux correspondants à ses modes sont dépeuplés par le premier mode qui passe le seuil. Ce mode empêche donc ses voisins de démarrer, conduisant à une émission monomodale. Ceci dit, un laser réel basé sur des transitions homogènes peut parfois osciller en plusieurs modes à la fois à cause d'effets tels le "hole burning" spatial et des inhomogénéités du milieu à gain.

Les cristaux lasers sont d'excellents exemples des milieux à gain homogènes. En revanche, les gaz et les verres sont des milieux à gain inhomogènes. Puisque le pompage laser agit indépendamment sur les modes de la cavité, ces lasers ont tendance à être plus facilement multimodaux.

Une façon très simplifiée de comprendre la différence entre un laser basé principalement sur des transitions homogènes et celui basé sur des transitions inhomogènes est de considérer les schémas sur la figure I.11. En général, pour un laser essentiellement homogène (voir la figure I.11a), tous les niveaux excités susceptibles de conduire à l'émission stimulée (et donc à créer un effet laser) sont en relation entre eux. On peut donc dépeupler l'ensemble de la population en agissant sur une seule fréquence de transition. En revanche, des transitions qui sont inhomogènes entre elles (voir la figure I.11b) doivent être dépeuplées individuellement.

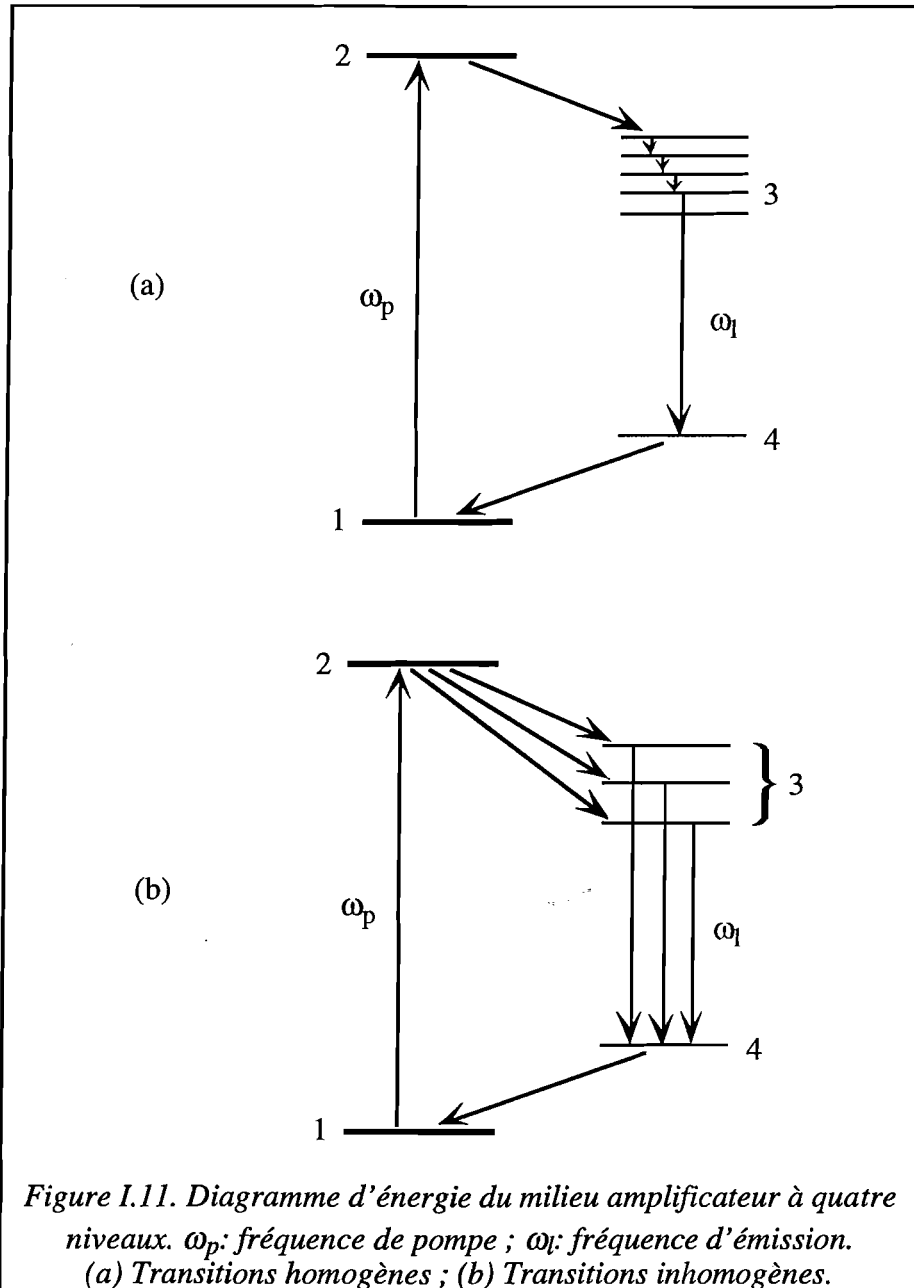


Figure I.11. Diagramme d'énergie du milieu amplificateur à quatre niveaux.  $\omega_p$ : fréquence de pompe ;  $\omega_l$ : fréquence d'émission.  
(a) Transitions homogènes ; (b) Transitions inhomogènes.

Le cristal de saphir dopé au titane que l'on utilise comme milieu à gain de notre chaîne laser appartient à la classe des milieux à gain homogènes. On s'attendrait donc à ce qu'un laser basé sur ce cristal laser ait tendance à être plutôt monomodal. Ceci dit, le spectre de notre oscillateur laser en mode continu avait une largeur typique d'environ 1 nm centrée à 780 nm. Cette largeur correspondait à environ 5700 modes longitudinaux oscillant simultanément. Cette différence s'explique par le large spectre d'émission du cristal de titane saphir qui est de l'ordre de 160 nm. Le spectre de gain peut donc comprendre près d'un million de modes! Sur une gamme d'un nanomètre, le spectre de gain a donc l'air plat. La

différence de gain entre deux modes voisins est tellement faible que n'importe quel effet secondaire peut pousser le plus faible au seuil d'émission laser. En particulier, le "hole burning" spectral et l'émission spontanée contribuent à l'élargissement du spectre. Donc, un relativement grand nombre de modes peut atteindre le seuil laser en même temps.

En blocage de modes KLM, ce même laser a 57 000 modes, avec un spectre 10 fois plus large. L'origine de ces nouvelles fréquences est due à l'automodulation de phase. Nous allons décrire ce phénomène.

### b) L'automodulation de phase

L'automodulation de phase provient de la non linéarité de l'indice de réfraction d'un milieu qui se traduit par une modulation de la phase d'une impulsion et par conséquent par un élargissement de son spectre. Pour le démontrer, on peut développer le champ électrique complexe d'une impulsion optique par une onde monofréquence de fréquence  $\omega_0$ :

$$\begin{aligned} E(z,t) &= E_0 \exp[-i(\omega_0 t - k z)] \\ &= E_0 \exp\left[-i\left(\omega_0 t - \frac{n \omega_0}{c_0} z\right)\right], \end{aligned} \quad (\text{I.24})$$

où  $k$  est son vecteur d'onde,  $n$  est l'indice de réfraction du milieu et  $c_0$  est la vitesse de la lumière en espace libre. Il est démontré dans l'annexe A que l'indice de réfraction d'un milieu Kerr est donné par l'expression

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t), \quad (\text{I.16})$$

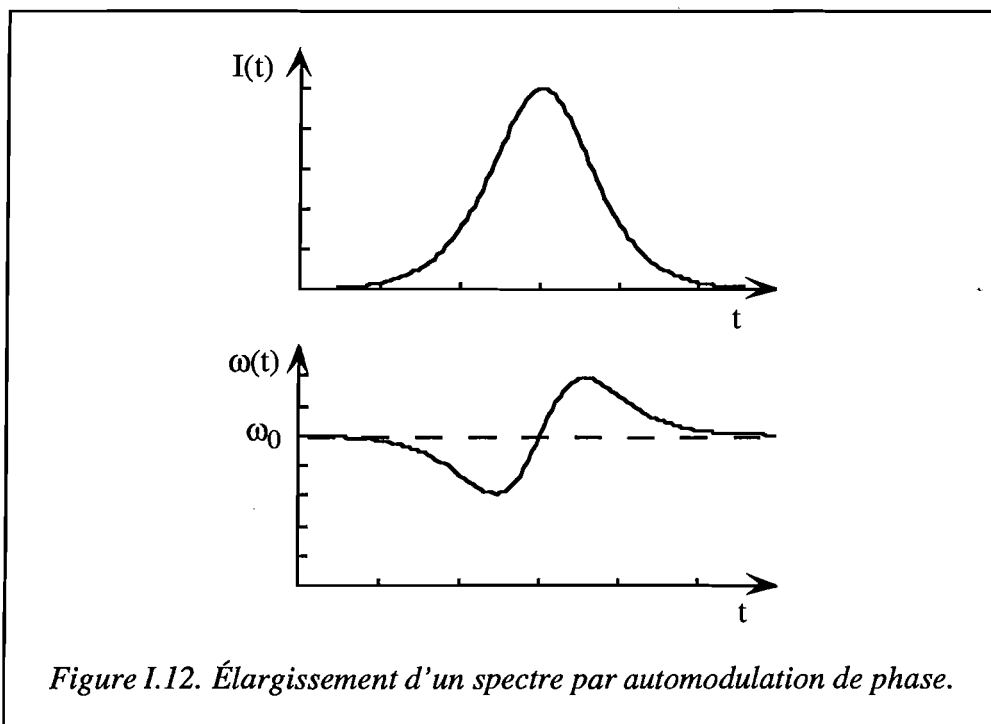
où  $n_0$  est l'indice de réfraction linéaire,  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire et  $I(t)$  est l'intensité de l'impulsion. La phase de l'onde  $\varphi(t)$  s'écrit donc

$$\begin{aligned} \varphi(t) &= \omega_0 t - \frac{n \omega_0}{c_0} z \\ &= \omega_0 t - \frac{n_0 \omega_0}{c_0} z - \frac{n_2 I(t) \omega_0}{c_0} z. \end{aligned} \quad (\text{I.25})$$

La fréquence instantanée de l'impulsion  $\omega(t)$  est donc :

$$\begin{aligned} \omega(t) &= \frac{d \varphi(t)}{dt} \\ &= \omega_0 - \frac{n_2 \omega_0 z}{c_0} \frac{d I(t)}{dt}. \end{aligned} \quad (\text{I.26})$$

Il en découle qu'une impulsion qui a traversé un milieu non linéaire de longueur  $z$  verra un élargissement de son spectre qui (au signe près) suit la dérivée en temps de son intensité (voir la figure I.12). Le spectre sera donc décalé en fréquence vers le rouge sur le front montant de l'impulsion et vers le bleu sur le front descendant de l'impulsion. Le spectre de l'impulsion est ainsi élargi sans changer son profil temporel. L'impulsion présente une dérive de fréquence positive dans sa partie centrale ( $d^2I/dt^2 > 0$  pour  $t \sim 0$ ). Si l'on disposait d'un système à dérive de fréquence négative, on pourrait remettre toutes les fréquences en phase, donc comprimer l'impulsion.



### c) Système à dispersion de vitesse de groupe négative

Malheureusement, les impulsions femtosecondes ne sont que peu souvent limitées par transformée de Fourier à cause de l'importante *dispersion de vitesse de groupe* qu'elles subissent en traversant des matériaux tels les composants optiques et même l'air. Autrement dit, la vitesse à laquelle voyage la lumière dépend de sa longueur d'onde sauf si elle est dans le vide. Puisqu'une impulsion courte a un spectre étendu, les différentes fréquences de l'impulsion n'ont pas la même vitesse et se séparent temporellement au fur et à mesure qu'elles traversent un milieu dispersif. Ceci conduit à un allongement temporel de l'impulsion.

Afin de calculer cette dispersion de vitesse de groupe, on fait un développement limité de Taylor du vecteur d'onde  $k$  autour de la fréquence centrale de l'impulsion  $\omega_0$ :

$$k(\omega) \approx k(\omega_0) + \left( \frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\omega_0} \delta\omega + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_0} \delta\omega^2 + \dots, \quad (\text{I.27})$$

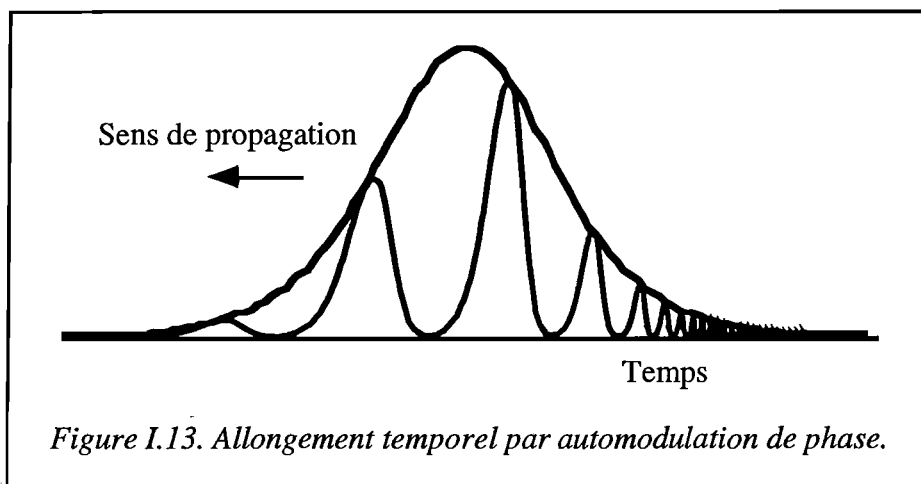
où  $k = 2\pi/\lambda = \omega/c$ ,  $\lambda$  est la longueur d'onde et  $c$  est la vitesse de la lumière. Le premier terme de ce développement donne la propagation de la fréquence centrale de l'impulsion et le deuxième sa vitesse de groupe  $v_g$ , où :

$$v_g = \frac{1}{\partial k / \partial \omega} = \frac{\partial \omega}{\partial k}. \quad (\text{I.28})$$

Le troisième terme donne alors ce que l'on appelle la dispersion de vitesse de groupe, ou la *DVG*. Donc :

$$DVG = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2}, \quad (\text{I.29})$$

où  $n$  est l'indice de réfraction du milieu [9]. Une impulsion qui se propage dans un milieu à dispersion positive (avec  $d^2n/d\lambda^2 < 0$ ) est allongée par le fait que les basses fréquences voyagent plus vite que les hautes fréquences (voir la figure I.13). Cet effet de *DVG* est beaucoup plus significatif pour les impulsions femtosecondes que pour les impulsions picosecondes pour deux raisons: leurs durées sont plus courtes (leur allongement sera donc proportionnellement plus grand) et leurs spectres sont plus larges.



La dispersion de vitesse de groupe est en général positive pour un laser à état solide avec des composants optiques traditionnels (miroirs, lentilles). Afin d'obtenir les impulsions les plus courtes à la sortie de la cavité laser, il faut donc compenser cette dispersion positive avec un système à dispersion négative. En même temps, il faut compenser l'effet de dérive de fréquence positive introduit par l'automodulation de phase.

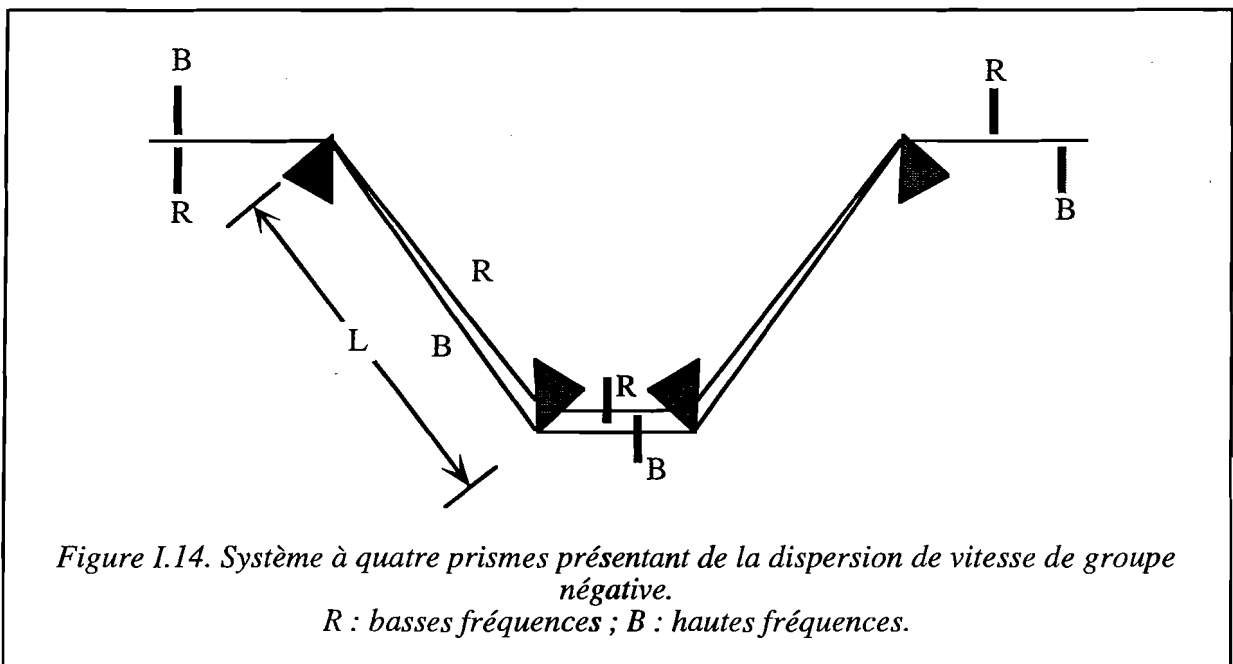
La solution traditionnellement employée pour compenser cet excès de dispersion positive est un système de quatre prismes ou de deux prismes à double passage (voir la figure I.14). Ce système introduit une dispersion négative [4,8] donnée par

$$\begin{aligned}
 DVG &= \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \\
 &= \frac{4\lambda_0^3}{\pi c^2} \left\{ -L(n')^2 + e \left[ \frac{n}{1+n^2} n' + (n')^2 \left( 1 - \frac{1}{n^2(1+n^2)} \right) \right] \right\}, \quad (I.30)
 \end{aligned}$$

où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale de l'impulsion,  $L$  est la distance entre les deux premiers prismes,  $e$  est l'épaisseur de verre traversée dans les deux premiers prismes et  $n$  est l'indice de réfraction des prismes. Les termes  $n'$  et  $n''$  sont les dérivées de l'indice de réfraction données par

$$n' = \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \quad \text{et} \quad (I.31)$$

$$n'' = \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_{\lambda_0}. \quad (I.32)$$





En fait, l'équation I.30 comprend deux termes: la dispersion négative due aux trajectoires des différentes fréquences de l'impulsion (proportionnelle à  $L$ , la distance entre les prismes) et la dispersion positive due au passage de l'impulsion dans les prismes (proportionnelle à  $e$ , l'épaisseur de verre traversée par le faisceau). Il est donc possible d'ajuster finement la dispersion négative de ce système en translatant un prisme transversalement au faisceau laser puisque son effet est de faire traverser le faisceau dans une épaisseur plus ou moins grande de verre.

#### **d) Le démarrage du KLM**

Un oscillateur saphir dopé au titane pompé en continu sans blocage de modes actif est stable en mode continu, les non linéarités du cristal n'étant pas suffisantes pour démarrer le blocage de modes KLM. Cependant, on a vu qu'environ 5700 modes longitudinaux vont osciller dans la cavité en continu. Même la coïncidence aléatoire de tous ces modes pour créer un pic de bruit ne semble pas être suffisante pour induire le verrouillage en phase.

Il est donc nécessaire de démarrer le blocage de modes KLM à l'aide d'une action externe. Historiquement, ce démarrage se faisait en créant un choc sur la table optique sur laquelle se trouvait le laser. Les vibrations issues d'un tel choc peuvent être suffisantes pour faire osciller momentanément un grand nombre de modes dans la cavité et y créer un pic de bruit suffisamment important pour déclencher le KLM. Grâce à l'automodulation de phase, l'impulsion créée peut ensuite s'élargir en spectre. Elle est alors comprimée temporellement par le système de prismes pour produire une impulsion plus courte et plus intense. L'effet Kerr dans le cristal devient alors plus important, ce qui mène à un blocage de modes plus stable et à une automodulation de phase, et donc un élargissement de spectre, plus importante. L'élargissement du spectre et le raccourcissement de l'impulsion continuent jusqu'à ce qu'il y ait un équilibre entre la saturation du gain, la dispersion de vitesse de groupe et l'automodulation de phase. Pour notre laser, le spectre final a typiquement une largeur de l'ordre de 10 nm.

Afin de rendre ce démarrage plus fiable, nous avons monté un des miroirs de la cavité sur un pot vibrant pour le faire vibrer très légèrement (environ 15  $\mu\text{m}$  à 30 Hz). Cette méthode est semblable à celle proposée par Liu *et coll.* [24] La vibration induit le démarrage du KLM mais ne sert pas à créer le blocage des modes; elle peut donc être supprimée pendant le fonctionnement du laser. Ceci dit, nous avons tout de même décidé de laisser le pot vibrant en fonctionnement puisqu'il ne gêne pas celui du laser et qu'il le remet en marche dès que le KLM s'arrête. Les arrêts subits du KLM sont généralement dus à des perturbations de la cavité, telles une vibration quelconque ou de la poussière qui tombe dans le faisceau.

Nous venons de voir comment engendrer des impulsions ultrabrèves; aussi nous allons maintenant analyser les moyens à mettre en oeuvre pour mesurer leur durée.

### I.2.3. La mesure de la durée d'impulsions brèves

Dans ce mémoire, je parle des impulsions ultrabrèves, autrement dit des impulsions optiques de moins d'une picoseconde. La mesure de la durée de telles impulsions est problématique. Il est possible de mesurer la durée des impulsions nanosecondes (ou plus longues) avec un oscilloscope gigahertz mais l'électronique n'est pas assez rapide pour accéder au régime picoseconde. Cependant, la caméra à balayage de fente donne une mesure directe de la durée d'impulsion de plus de 1 ps. Les impulsions plus courtes que la picoseconde doivent être mesurées par des moyens indirects. La méthode la plus répandue pour faire cette mesure indirecte est l'autocorrélation par génération du second harmonique non colinéaire [25].

On peut écrire, pour un délai variable  $\tau$  entre deux ondes d'intensité  $I(\omega, t)$ ,

$$I(2\omega, t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega, t) I(\omega, t + \tau) dt, \quad (\text{I.13})$$

où  $I(2\omega, t)$  est l'intensité du signal du second harmonique non colinéaire. La largeur à mi-hauteur temporelle de la fonction d'autocorrélation  $\Delta\tau_{ac}$  est liée à la largeur à mi-hauteur temporelle de l'impulsion  $\Delta\tau$  selon sa forme temporelle. Donc, pour une impulsion en forme de sécante hyperbolique au carré ( $\text{sech}^2$ ), les largeurs à mi-hauteur sont liées par l'expression :

$$\Delta\tau_{ac} = 1,55 \Delta\tau \quad (\text{I.34})$$

et, pour une impulsion en forme de gaussienne :

$$\Delta\tau_{ac} = 1,414 \Delta\tau. \quad (\text{I.35})$$

Il s'avère que, dans la littérature, on cite très souvent la largeur à mi-hauteur temporelle de l'impulsion en supposant une forme temporelle en  $\text{sech}^2$ . Par conséquent, dans ce mémoire, toutes les durées des impulsions seront calculées en supposant cette forme.

Dans nos expériences, nous nous sommes servi de deux types d'autocorrélateurs pour mesurer les durées des impulsions. L'autocorrélateur traditionnel établit la moyenne d'un grand nombre d'impulsions et donc nécessite des impulsions à haute cadence pour la visualisation des autocorrélations en temps réel. En revanche, l'autocorrélateur monocoup peut s'employer à très basse cadence. L'autocorrélateur traditionnel peut également s'employer à basse cadence mais la visualisation de l'autocorrélation ne se fait plus en temps réel.

### *1.2.3.1. L'autocorrélateur traditionnel*

Le schéma de l'autocorrélateur traditionnel [26] se trouve sur la figure I.15. Il ressemble à un interféromètre de Michelson où l'on a remplacé le miroir d'un des bras par un coin de cube monté sur un pot vibrant. Le coin de cube sert à rendre les deux faisceaux à la sortie de l'interféromètre parallèles mais non superposés. La lentille L focalise les deux faisceaux dans le cristal doubleur CD pour la génération du second harmonique. Le second harmonique est engendré sur la bissectrice de l'angle entre les trajectoires des deux impulsions quand les impulsions sont superposées à la fois temporellement et spatialement dans le cristal doubleur. Une photodiode sert à mesurer le signal doublé en fréquence. Le coin de cube est déplacé lentement pour faire varier le délai entre les deux impulsions. Le signal issu d'un capteur de position situé sur le pot vibrant sert à déclencher l'oscilloscope.

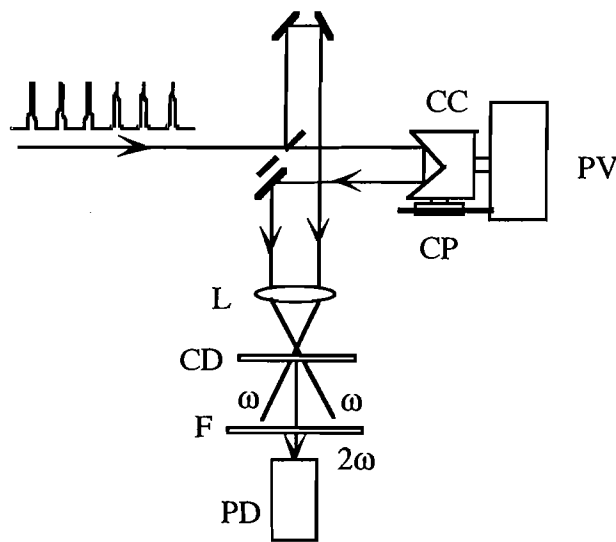


Figure I.15. Schéma de l'autocorrélateur traditionnel. CC : coin de cube ;  
 CP : capteur de position ; PV : pot vibrant ; L : lentille convergente ;  
 CD : cristal doubleur ; F : filtre ; PD : photodiode ;  
 $\omega$  : fréquence de la pompe ;  $2\omega$  : fréquence du second harmonique.

La calibration de l'autocorrélateur se fait en tradant manuellement le coin de cube et en notant le décalage temporel du signal sur l'oscilloscope. Ce décalage temporel est égal à deux fois le déplacement du coin de cube divisé par la vitesse de la lumière. On peut donc mesurer directement sur l'oscilloscope la largeur à mi-hauteur de la fonction d'autocorrélation. Pour les impulsions en  $\text{sech}^2$ , la largeur à mi-hauteur est donc égale à cette valeur divisée par 1,55.

### I.2.3.2. L'autocorrélateur monocoup

Le principe de l'autocorrélateur monocoup avec doublage de fréquences [27] est similaire à celui de l'autocorrélateur traditionnel. La différence entre les deux est que l'autocorrélateur monocoup utilise la forme spatiale du signal du second harmonique pour extraire la largeur temporelle de l'impulsion. Il est alors possible de déterminer la largeur à mi-hauteur sans établir la moyenne d'une grande quantité d'impulsions. Cette méthode d'autocorrélation est donc idéale pour faire des mesures d'impulsions à basse cadence.

Le schéma de l'autocorrélateur monocoup [28] se trouve sur la figure I.16. Il s'avère que la forme spatiale  $S(x)$  du second harmonique produit sur la bissectrice de l'angle  $\phi$  entre

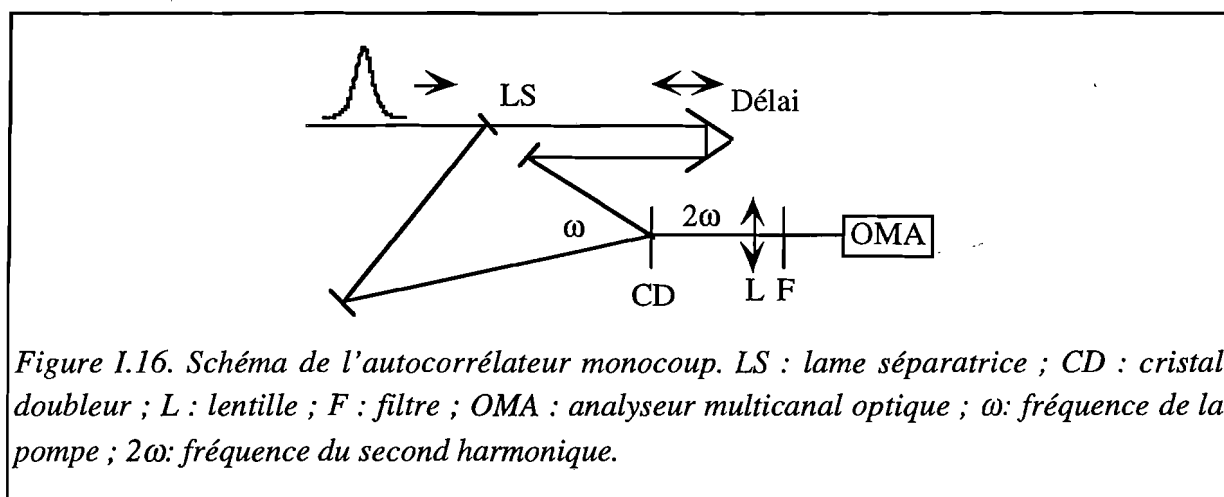
les trajectoires des deux impulsions (figure I.17) est proportionnelle à la fonction d'autocorrélation,

$$S(x) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(t + \tau) I(t - \tau) dt, \quad (\text{I.36})$$

où  $I$  est l'intensité instantanée de l'impulsion. Le calcul de la position  $x_0$  sur le détecteur en fonction du délai  $\tau$  par rapport à la partie de l'impulsion qui tombe directement sur l'axe de la bissectrice se fait géométriquement. Le délai  $\tau$  est donc donné par

$$\tau = \frac{n x_0 \sin \phi/2}{c}, \quad (\text{I.37})$$

où  $n$  est l'indice de réfraction du cristal et  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide.



En réalité, il n'est jamais nécessaire de déterminer les valeurs de  $\phi$ ,  $x_0$  et  $\tau$  pour calculer la durée temporelle de l'impulsion puisqu'il est possible de faire une calibration simple indépendamment de ces valeurs. Pour ce faire, on fait varier manuellement le délai d'un des deux bras de l'autocorrélateur (voir la figure I.17) et l'on mesure le déplacement de la forme d'autocorrélation sur l'oscilloscope. Si  $\delta_0$  est la largeur à mi-hauteur de la forme spatiale,  $\Delta t_0$  est le retard introduit dans un des bras et  $\Delta x_0$  est le déplacement correspondant de la forme spatiale, alors la durée de l'impulsion se calcule selon

$$\Delta \tau = \frac{1}{K} \delta_0 \frac{\Delta t_0}{\Delta x_0} \quad (\text{I.38})$$

où  $K = 1,55$  pour des impulsions en forme temporelle de  $\text{sech}^2$ .

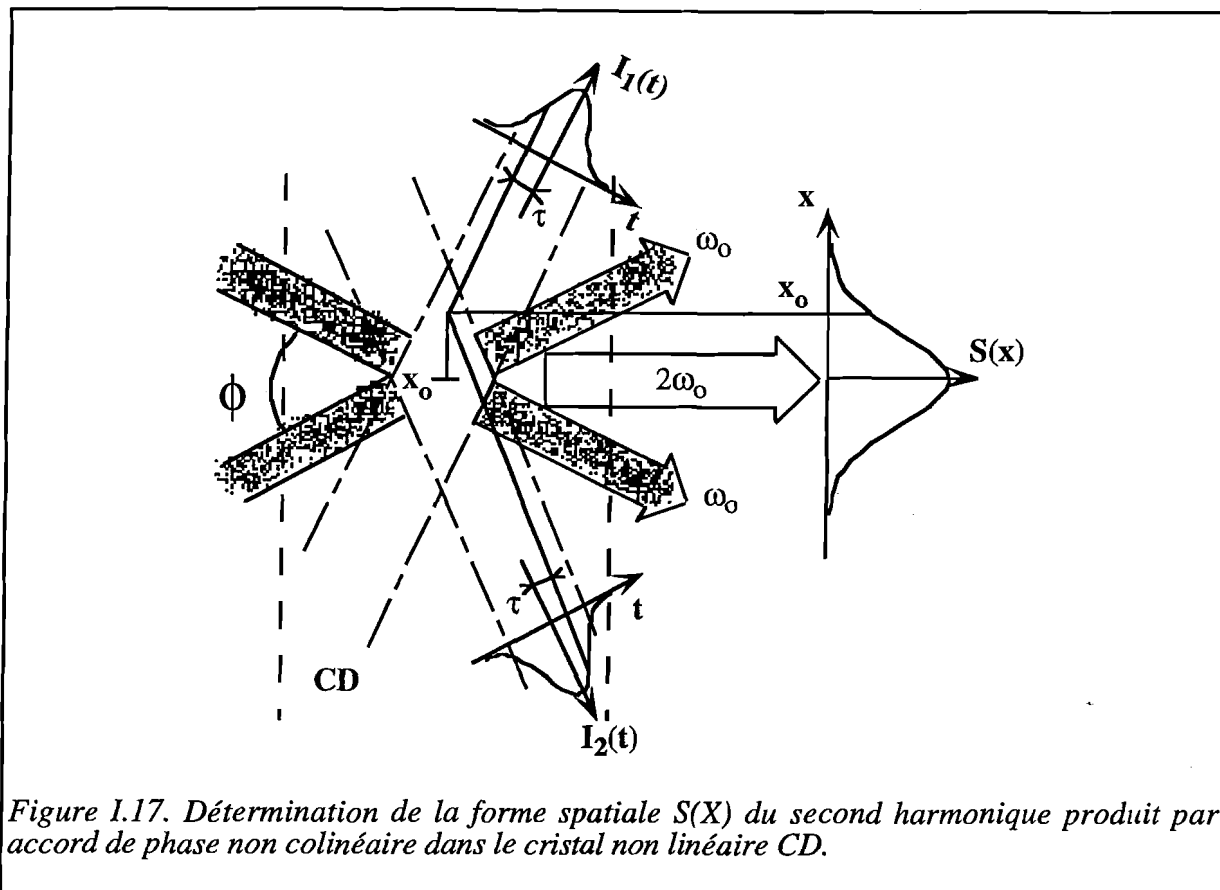


Figure I.17. Détermination de la forme spatiale  $S(X)$  du second harmonique produit par accord de phase non colinéaire dans le cristal non linéaire CD.

Nous avons donc vu dans les sections précédentes comment produire et contrôler les impulsions brèves. Maintenant, nous allons présenter la réalisation concrète du laser en commençant par la présentation du milieu amplificateur utilisé: le cristal de saphir dopé au titane.

### I.3. Présentation du cristal de saphir dopé au titane

L'utilisation du cristal de saphir dopé au titane ( $Ti^{3+}:Al_2O_3$ ) comme milieu laser a été démontrée pour la première fois en 1982 par Moulton [29]. Aujourd'hui, ce cristal laser se trouve utilisé dans de nombreux systèmes laser de laboratoires et commerciaux à cause de ses caractéristiques intéressantes. Surtout, son application au développement de lasers impulsions femtosecondes basés sur le blocage de modes par la lentille de Kerr (voir la section I.2.2.2) a accentué l'importance de ce nouveau cristal laser.

Un résumé de ses caractéristiques principales se trouve dans le tableau I.2. C'est un cristal très stable des points de vue mécanique et chimique avec un seuil de dommage élevé. Il est possible de faire croître des cristaux de grande taille et de bonne qualité et dont la maintenance est négligeable. Sa bonne conductibilité thermique (presque trois fois celle du Nd:YAG) indique que le refroidissement de ce cristal ne présente pas de difficulté.

La caractéristique qui fait de ce cristal un milieu à gain extrêmement intéressant pour les lasers hautement accordables et pour les lasers à impulsions brèves est sa très large bande d'émission dans le proche infrarouge (autour de 750 nm). En fait, cette largeur de bande permet d'envisager la production d'impulsions limitées par transformée de Fourier aussi brèves que 4 fs (voir la section I.2.1).

Formule chimique	Ti <sup>3+</sup> :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
Densité	3,99 g/cm <sup>3</sup>
Indice de réfraction	~1,76
Indice de réfraction non linéaire	3,2 x 10 <sup>-16</sup> cm <sup>2</sup> /W
Point de fusion	2045°C
Conductibilité thermique	33 - 35 W/m·K
Coefficient d'expansion thermique	5 x 10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup>
Pic d'absorption	~490 nm
Longueurs d'onde d'émission	~650 - 1100 nm
Pic de fluorescence	~750 nm
Section efficace d'émission stimulée	4,1 x 10 <sup>-19</sup> cm <sup>2</sup> ( $\pi$ ) 2,1 x 10 <sup>-19</sup> cm <sup>2</sup> ( $\sigma$ )
Durée de fluorescence	3,15 ± 0,05 $\mu$ s
Énergie de saturation	1,2 ± 0.2 J/cm <sup>2</sup>
Seuil de dommages	10 J/cm <sup>2</sup> (~10 ns)

Tableau I.2: Résumé des caractéristiques principales du cristal de saphir dopé au titane.

Le saphir, que l'on appelle également l'alumine dans sa forme polycristalline, est un cristal de type hexagonal rhomboédrique et de formule chimique Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. La fabrication du cristal de saphir dopé au titane consiste alors à remplacer un certain nombre d'ions d'aluminium dans des sites à symétrie trigonale par des ions de titane (voir la figure I.18). Sa structure cristallographique est donc semblable à celle du rubis, à ceci près que les ions de titane remplacent ceux de chrome. Le dopage typique en ions titane dans le saphir est de l'ordre de 0,03% en poids.

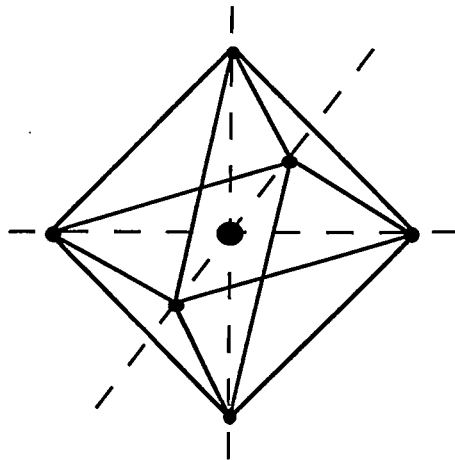
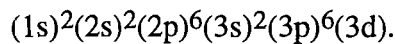


Figure I.18. Structure cristallographique du cristal de saphir dopé au titane. L'ion de titane est entouré par des atomes d'oxygène.

L'ion  $Ti^{3+}$  possède 19 électrons répartis en 7 couches, dont 6 sont complètes et dont la dernière (3d) n'a qu'un seul électron :



L'interaction de l'ion de titane avec le champ cristallin du saphir lève la dégénérescence des niveaux d'énergie de cette dernière couche [29]. La composante cubique du champ cristallin domine pour créer deux niveaux d'énergie: l'état fondamental  ${}^2T_{2g}$  et l'état excité  ${}^2E_g$ . La composante trigonale du champ cristallin décompose l'état fondamental en deux niveaux, dont le plus bas est encore divisé par l'interaction spin-orbite. Enfin l'effet Jahn-Teller est responsable de la levée de la dégénérescence du niveau excité  ${}^2E_g$  pour créer deux niveaux,  $E_{1/2}$  et  $E_{3/2}$ . La figure I.19 donne ces niveaux d'énergie [30].

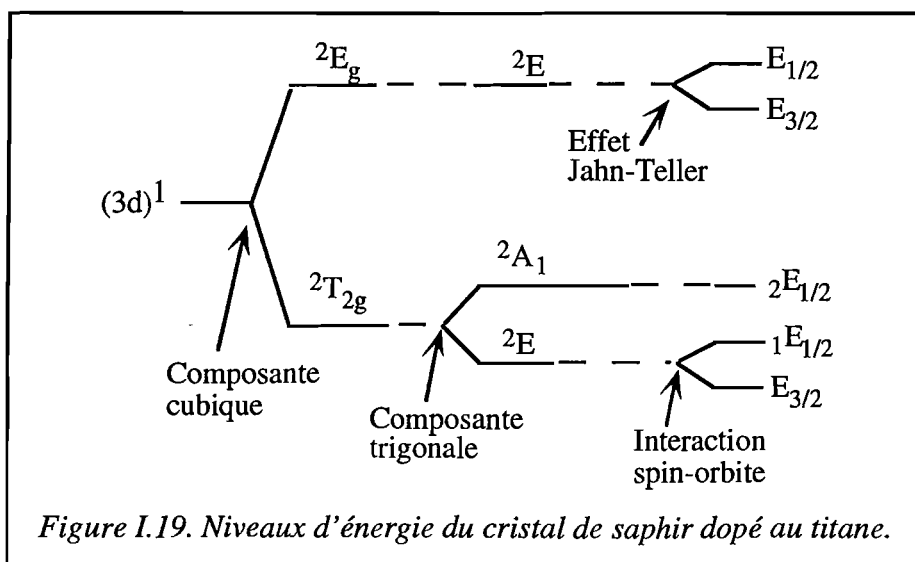
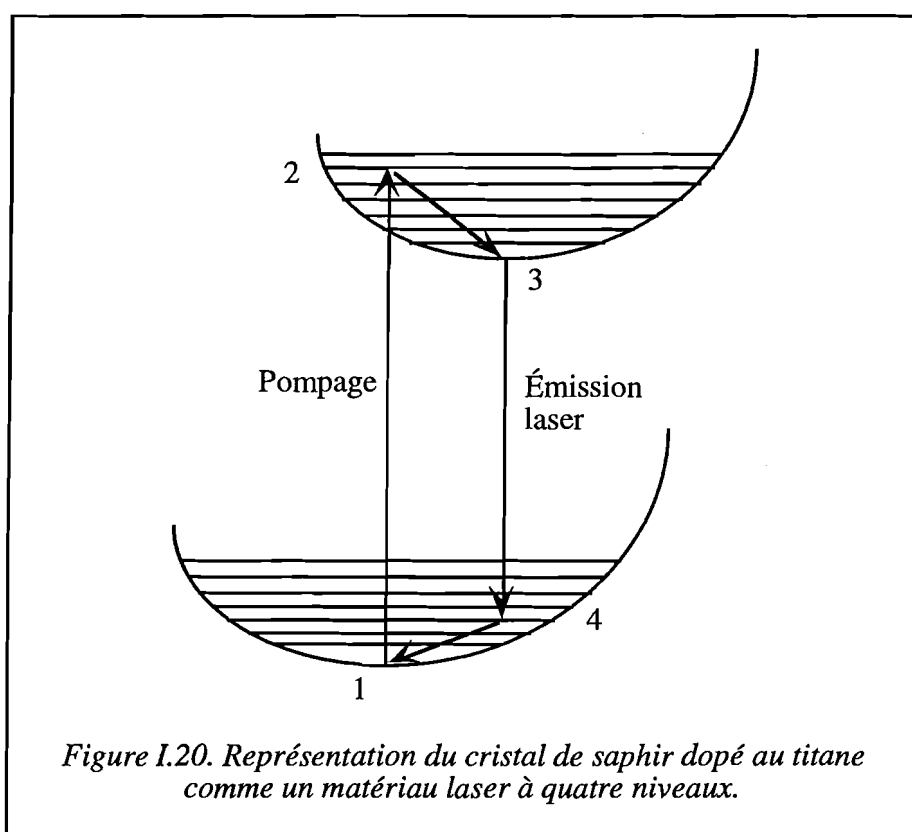


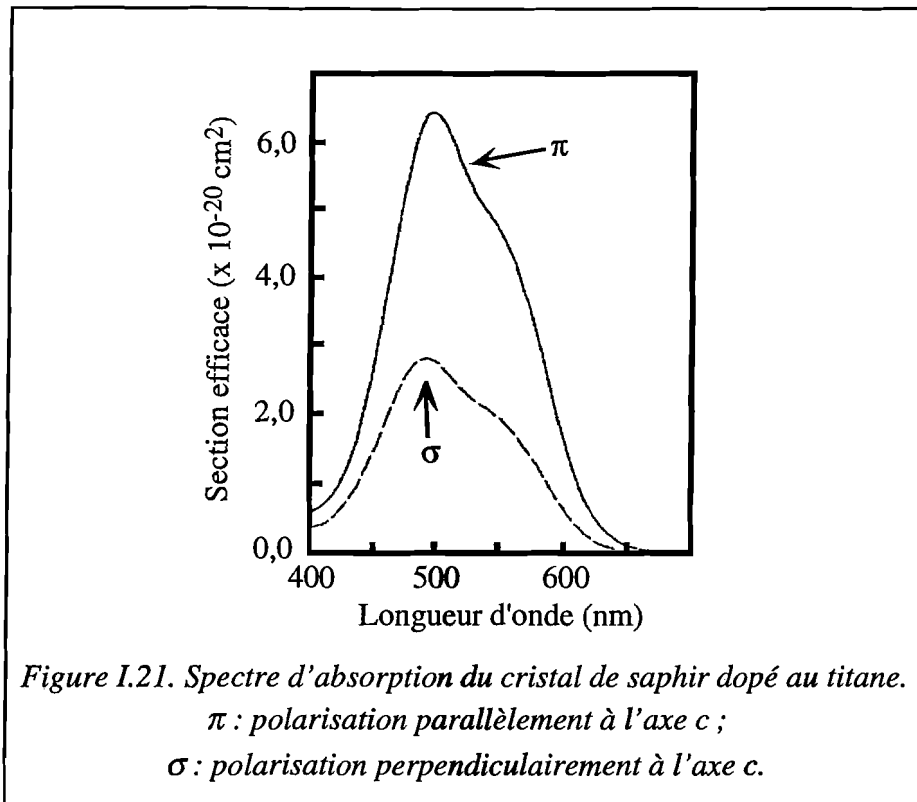
Figure I.19. Niveaux d'énergie du cristal de saphir dopé au titane.



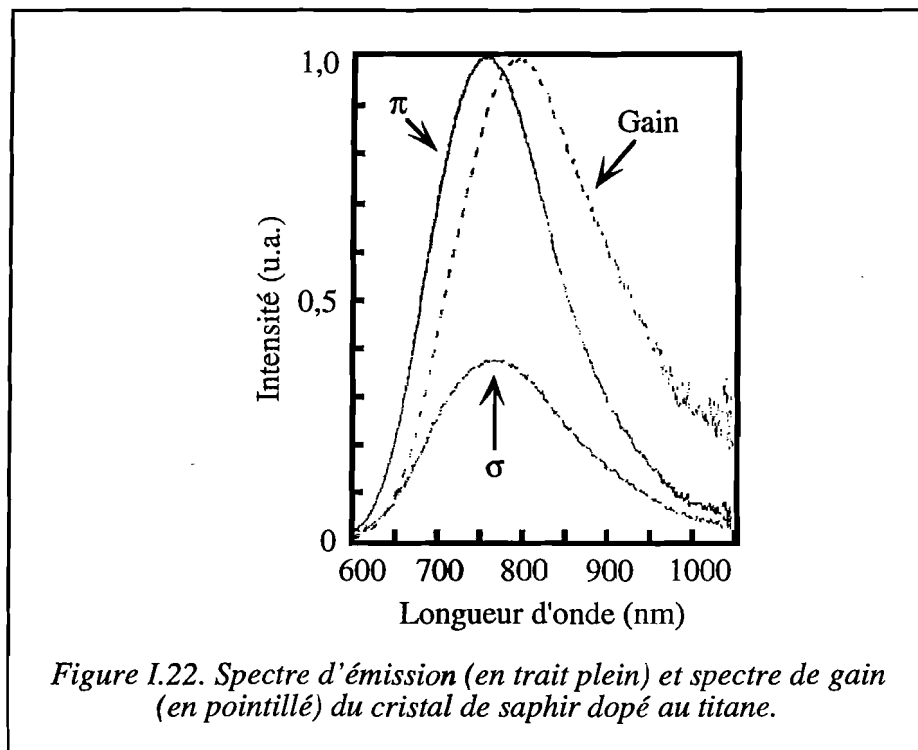
Les deux niveaux excités d'une part et les trois niveaux fondamentaux d'autre part sont très fortement couplés par des transitions vibroniques, autrement dit des transitions dues aux vibrations de la matrice cristalline. On peut alors les regrouper entre eux selon un schéma plus simplifié (figure I.20). Le saphir dopé au titane peut donc être considéré comme un matériau laser à quatre niveaux dont deux (le deuxième et le quatrième) ne sont pas fixes à cause du grand nombre de niveaux vibroniques présents. Ainsi, on voit que la nature vibronique des transitions est responsable de la large bande d'absorption (le deuxième niveau n'est pas fixe) et de la large bande d'émission (le quatrième niveau n'est pas fixe), donc de l'accordabilité des lasers saphir dopé au titane [30]. On rappelle que le pompage laser se fait entre les niveaux 1 et 2 (voir la figure I.20) et l'émission laser entre les niveaux 3 et 4. Une relaxation vibronique mène les électrons du niveau 2 au niveau 3 et du niveau 4 au niveau 1.



Les spectres d'absorption et d'émission du cristal de  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$  se trouvent sur les figures I.21 et I.22 respectivement [29]. Puisque ce cristal est biréfringent uniaxe, les spectres dépendent de la polarisation de la lumière incidente. La polarisation  $\sigma$  fait référence au rayon ordinaire (polarisé perpendiculairement à l'axe de symétrie  $c$  d'ordre 3) tandis que la polarisation  $\pi$  fait référence au rayon extraordinaire (polarisé parallèlement à l'axe  $c$ ). Les spectres indiquent clairement que la polarisation  $\pi$  est préférable puisqu'elle mène à une meilleure absorption et à une émission plus efficace.



Le spectre d'émission ou de fluorescence (figure I.22) est très large et se situe dans le proche infrarouge. Sur la même figure, nous avons dessiné le spectre de gain théorique du saphir dopé au titane, qui est proportionnel à  $\lambda^4 \times E(\lambda)$ , où  $E(\lambda)$  est le spectre d'émission [31].



Le large spectre d'absorption centré dans le vert permet un pompage laser en régime impulsif par un laser Nd:YAG doublé (532 nm) ou en continu par un laser argon (514,5 nm et 488,0 nm). On remarque que le pompage par flash du saphir dopé au titane n'est pas idéal à cause de sa durée de vie relativement courte par rapport à d'autres matériaux laser à l'état solide (la durée de vie du Nd:YAG est de l'ordre de 230  $\mu$ s tandis que celle du saphir dopé au titane est seulement de 3  $\mu$ s). Pour un pompage efficace, l'émission des flashes doit être comparable à la durée de vie de la transition laser; or les flashes à émission courte vieillissent très vite et ont par surcroît une émission mal adaptée au spectre d'absorption du saphir dopé au titane.

Le saphir dopé au titane est donc un cristal laser très prometteur pour la génération et l'amplification d'impulsions ultrabrèves. Je décrirai dans la suite de ce chapitre notre chaîne laser femtoseconde qui est entièrement basée sur ce milieu à gain: elle consiste en un oscillateur saphir dopé au titane pompé en continu par un laser argon et un amplificateur régénératif saphir dopé au titane pompé par le second harmonique d'un laser Nd:YAG déclenché.

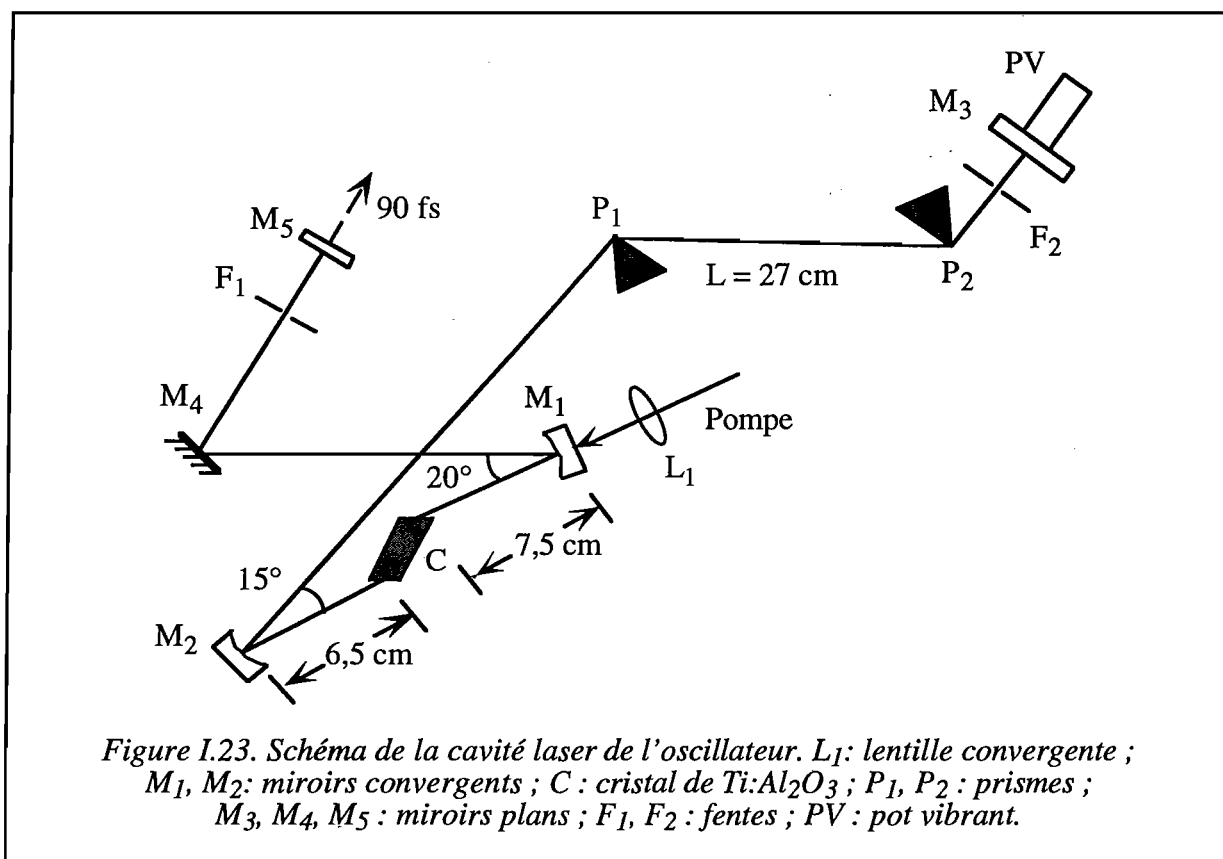
#### **I.4. L'oscillateur à saphir dopé au titane**

Le but étant de produire des impulsions ultrabrèves, je décrirai dans cette section *l'oscillateur laser* que nous avons construit ainsi que ses performances. On rappelle qu'un oscillateur consiste en un milieu à gain placé entre deux miroirs en forme de résonateur. Le pompage s'effectue à une longueur d'onde qui est plus basse que celle d'émission de l'oscillateur et qui se trouve dans la bande d'absorption du milieu à gain.

Notre oscillateur laser utilise comme milieu à gain un cristal de saphir dopé au titane tel que décrit dans la section I.3. Le pompage se fait en continu par un laser argon et le blocage de modes est du type KLM, *le blocage de modes par la lentille de Kerr* (voir la section I.2.2.2). Notre but était la production d'impulsions voisines d'une centaine de femtosecondes. Leur énergie n'était pas critique puisque nous allons utiliser ensuite un étage d'amplification.

### I.4.1. La cavité laser de l'oscillateur

La figure I.23 donne le schéma de la cavité laser. C'est un oscillateur en forme de X pompé à travers le miroir  $M_1$  par un laser argon. Ce laser est un laser *Spectra-Physics BeamLok 2060* toutes raies émettant environ 6 W de vert (514,5 nm et 488,0 nm) en continu. Le faisceau est polarisé verticalement à la sortie du laser mais sa polarisation est tournée de  $90^\circ$  grâce à un périscope. Il est focalisé sur le cristal de saphir dopé au titane par la lentille  $L_1$  de longueur focale 120 mm. Les miroirs de la sous-cavité  $M_1$  et  $M_2$  sont dichroïques, hautement réfléchissants entre 720 nm et 820 nm et transparents autour de 500 nm. Environ 90% du faisceau laser est absorbé par le cristal laser, le restant sort de la cavité par le miroir  $M_2$  et est piégé.



Le cristal a été fourni par la compagnie américaine *Crystal Systems*. Il fait 20 mm de longueur, 5 mm de largeur et 5 mm de hauteur avec les faces coupées à l'angle de Brewster pour minimiser les réflexions sur les surfaces d'un faisceau polarisé horizontalement (voir la

figure I.23). L'angle de Brewster étant donné par l'arctangente de l'indice de réfraction du matériau,  $\theta_B = \text{tg}^{-1}n$ , le cristal est taillé à  $60,4^\circ$ . Cette coupe favorise donc la production d'impulsions polarisées horizontalement. La monture du cristal est refroidie à l'eau stabilisée en température.

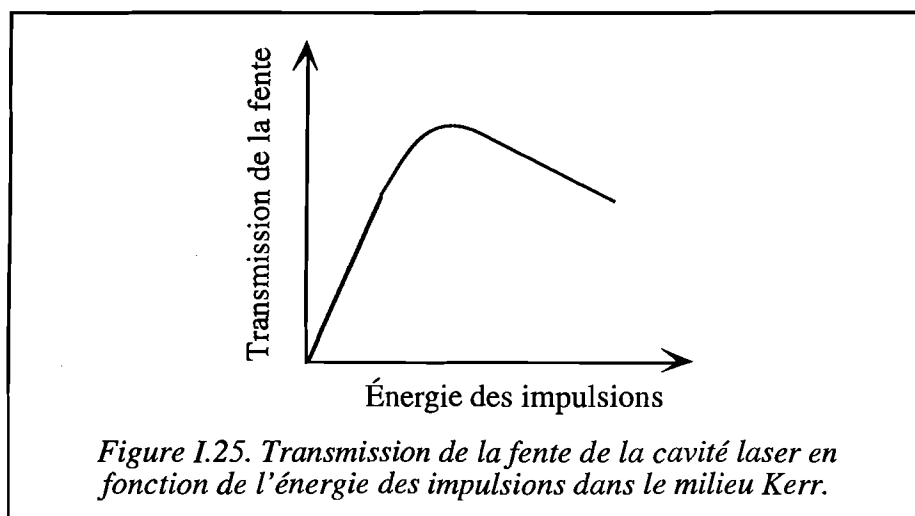
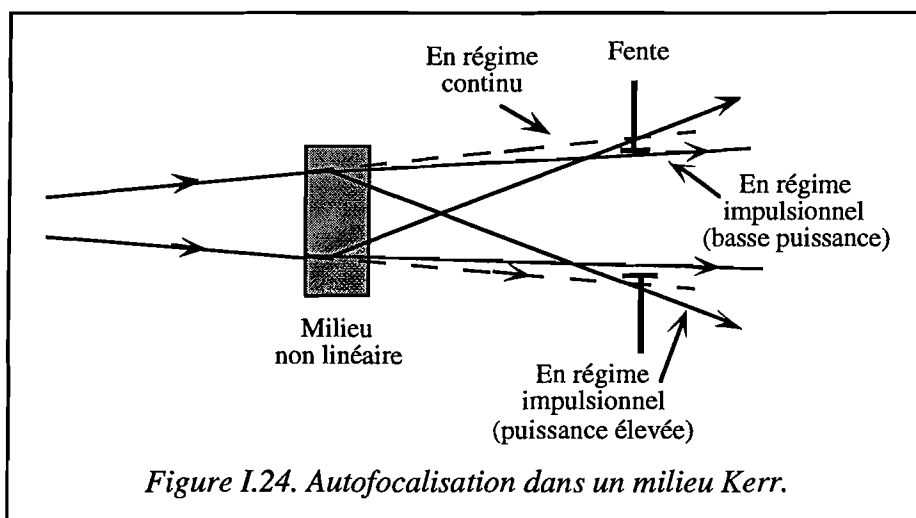
La sous-cavité de l'oscillateur comprend les miroirs  $M_1$  et  $M_2$  ainsi que le cristal  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ . Les miroirs  $M_1$  et  $M_2$  sont convergents de rayon de courbure de 150 mm afin de focaliser le faisceau produit sur le cristal laser. Cette focalisation permet une meilleure extraction du gain du cristal et rend les effets non linéaires du cristal plus importants pour favoriser le blocage de modes KLM. Ceci dit, ces mêmes miroirs agissent comme des lentilles divergentes pour le faisceau de pompe. La lentille convergente  $L_1$  d'une longueur focale de 120 mm sert donc à compenser cette divergence.

La production d'impulsions dans la cavité laser pompée en continu se fait par le blocage de modes KLM. Deux modifications de la cavité favorisent et stabilisent le régime impulsionnel: l'introduction d'une fente  $F_1$  dans la cavité et le montage du miroir de fond de cavité  $M_3$  sur un pot vibrant. Nous avons vu dans la section I.2.2.2 que la fente favorise la production d'impulsions tandis que le pot vibrant engendre une vibration susceptible de démarrer le blocage de modes KLM.

La dispersion de vitesse de groupe positive produite sur les impulsions par le cristal laser et par l'automodulation de phase est compensée par un système à dispersion négative: les deux prismes,  $P_1$  et  $P_2$ , montés en double passage (voir la discussion sur la dispersion de vitesse de groupe dans la section I.2.2.3). Ces prismes sont faits de verre haut indice (SF10,  $n \approx 1,76$ ) afin de réduire l'écart nécessaire entre les deux prismes, qui est de 27 cm. Ils ont 20 mm de hauteur et sont en forme de triangle équilatéral, la longueur d'un côté étant de 15 mm. La fente  $F_2$  permet une sélection spectrale et, bien qu'elle ne soit pas prévue à cet effet, une stabilisation additionnelle du blocage de modes.

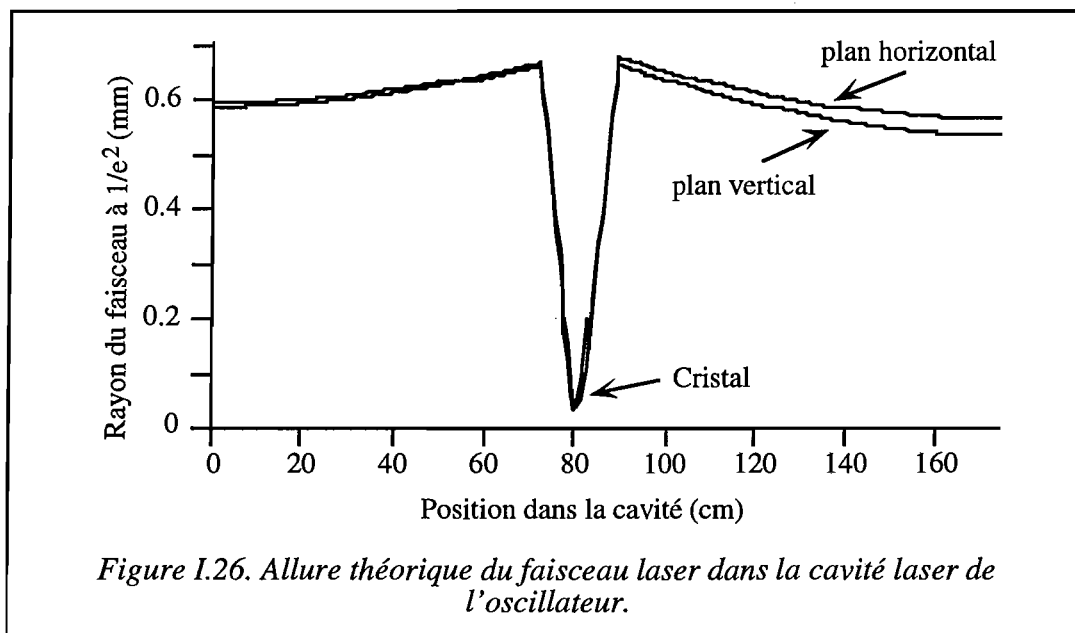
Le miroir  $M_4$  replie la cavité pour la rendre plus compacte. Les miroirs  $M_3$  et  $M_4$  sont tous les deux des miroirs plans à haute réflectivité en incidence normale entre 750 nm et 900 nm. Le miroir de sortie  $M_5$  est plan avec une réflectivité de 95% en incidence normale autour de 800 nm. À l'origine, nous avons utilisé un miroir de sortie de 3% de transmission qui amenait souvent à la production de deux impulsions par tour de cavité. On rappelle que la transmission de la fente  $F_1$  dépend de la focalisation du faisceau par la lentille de Kerr: en régime continu, la focalisation est faible et donc la transmission est également faible, tandis qu'en régime impulsionnel la focalisation est plus forte et il y a une meilleure transmission. La transmission de la fente dépend donc de l'énergie des impulsions dans la cavité. Elle augmente au fur et à mesure que l'énergie par impulsion augmente et que la focalisation

devient plus forte. Si on considère la figure I.24, on peut voir qu'à un moment donné la focalisation peut devenir tellement importante que le "waist" du faisceau se trouve devant la fente et le faisceau devient divergent au niveau de la fente. Dans ce cas, la transmission de la fente diminue au fur et à mesure que l'énergie des impulsions augmente. La transmission de la fente en fonction de l'énergie des impulsions a donc l'allure de la figure I.25. Le blocage de modes le plus stable a lieu quand la transmission de la fente est maximale. Considérons l'exemple de notre oscillateur qui délivre des impulsions d'environ 1 nJ et supposons que la transmission maximale de la fente a lieu pour des impulsions d'environ 20 nJ. Avec un miroir de sortie de transmission de 3%, l'énergie des impulsions dans la cavité doit être de l'ordre de 30 nJ. Puisque cette énergie est trop forte pour avoir une transmission maximale, l'oscillateur préfère créer deux impulsions d'à peu près 15 nJ chacune. Il y a donc une meilleure transmission des impulsions par la fente et un blocage de modes plus stable. Par contre, avec un miroir de sortie de transmission de 5%, l'énergie des impulsions dans la cavité est de l'ordre de 20 nJ. La transmission de la fente est donc optimale et le blocage de modes avec une seule impulsion par tour de cavité est stable.



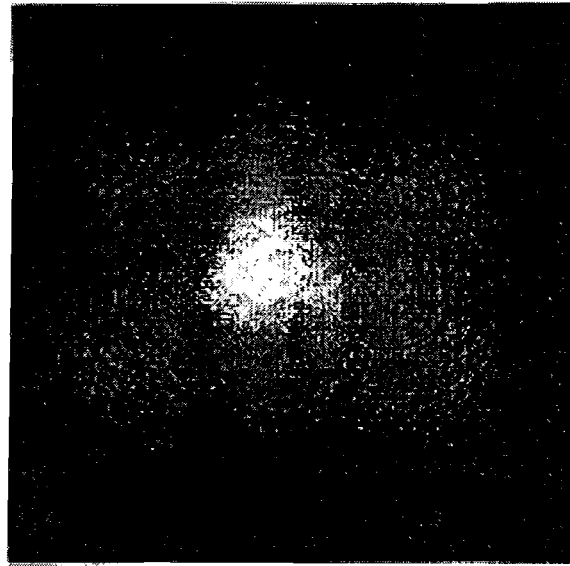
L'analyse que nous venons de faire est très simplifiée. Une étude plus approfondie du phénomène d'émission en multiples impulsions par tour de cavité a été effectuée par Piché *et coll.* [32] et par Cormier *et coll.* [33]. Ils démontrent que, pour un pompage du milieu à gain important, le gain non linéaire est plus grand pour l'émission en deux impulsions par tour de cavité que pour l'émission en une seule impulsion. Ils démontrent également qu'une lentille de Kerr trop forte peut donner lieu à une configuration géométriquement instable de l'oscillateur et donc à des pertes importantes de la puissance des impulsions par tour de cavité. Par conséquent, la lentille de Kerr induite dans le milieu à gain doit être assez forte pour favoriser le blocage de modes. Cependant, si elle est trop forte, elle provoque une émission en multiples impulsions par tour de cavité. On remarque qu'il est impératif de supprimer un fonctionnement en doubles impulsions car cette situation nuit à la synchronisation de l'oscillateur avec l'amplificateur et mène à une sortie instable en énergie. Nous avons donc choisi de conserver le miroir de sortie de transmission de 5%.

L'analyse théorique de la cavité laser a été effectuée avec le logiciel informatique PARAXIA. Ce logiciel permet de calculer la taille du faisceau laser à chaque endroit dans la cavité et ainsi de déterminer par exemple l'astigmatisme du faisceau à la sortie. On peut voir sur la figure I.26 l'allure théorique du faisceau dans la cavité laser.



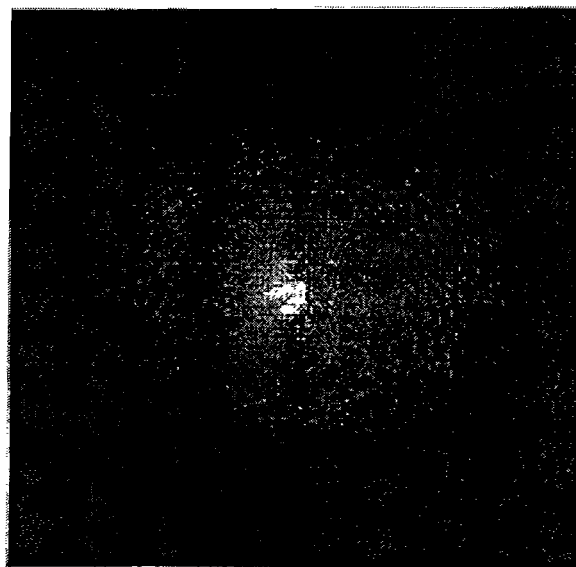
L'alignement de la cavité laser pour un fonctionnement impulsionnel stable demandait une approche plus ou moins empirique. Nous avons trouvé que la meilleure façon était d'optimiser d'abord la cavité pour fonctionner en continu. On cherchait à obtenir au moins 500 mW d'infrarouge pour à peu près 5 W de puissance de pompe. Il était de plus nécessaire que la cavité ne soit pas parfaitement symétrique afin d'augmenter au maximum la différence

(a)



4,6 mm

(b)



4,6 mm

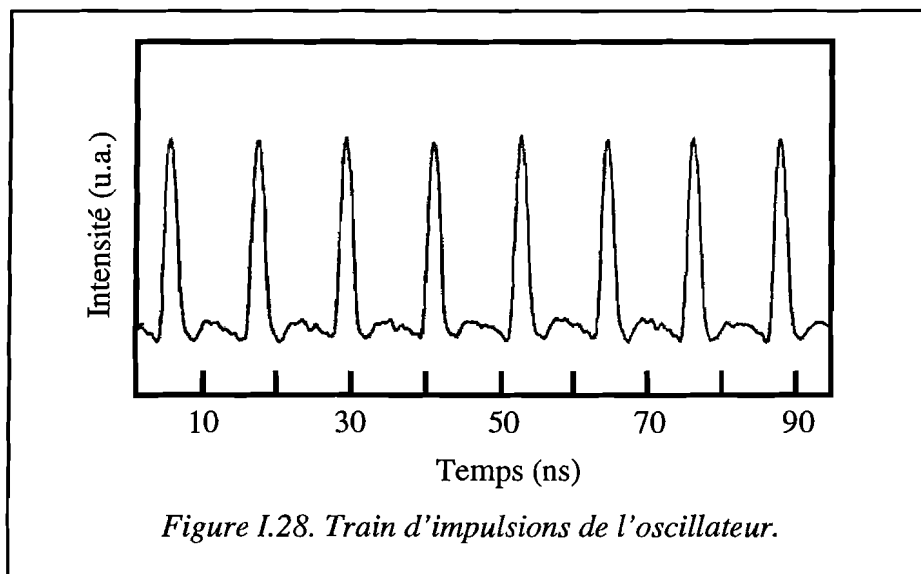
*Figure I.27. Profil spatial du faisceau de sortie de l'oscillateur.  
(a) en régime continu - (b) en régime impulsionnel.*



entre les tailles des faisceaux en régimes continu et impulsionnel. En effet, la distance entre le cristal et le miroir de fond  $M_3$  est à peu près 92 cm tandis que la distance entre le cristal et le miroir de sortie  $M_5$  est voisine de 80 cm. La sous-cavité est également légèrement asymétrique: la distance entre le cristal et le miroir  $M_1$  est 7,5 cm et la distance entre le cristal et le miroir  $M_2$  est de 6,5 cm.

Lorsque la cavité est bien optimisée en continu, il suffit de la désaligner légèrement avec le miroir de sortie ou le miroir de sous-cavité  $M_2$ , le pot vibrant assurant le démarrage du blocage de modes. Nous avons trouvé qu'un désalignement tel que le mode de sortie en régime continu ressemble à la figure I.27 (a) [34-35] (une tache centrale avec des satellites) mène à un blocage de modes stable. Il a été démontré [34-35] que l'aberration thermique sur les bords du faisceau est responsable de l'existence des satellites sur le profil spatial en régime continu. Le fonctionnement du laser en blocage de modes KLM donne lieu à un faisceau plus petit dans le milieu à gain. Ce faisceau est par conséquent moins sensible à des aberrations thermiques sur ses bords et son profil spatial n'a donc pas de satellites (voir la figure I.27 (b)).

La longueur physique totale de la cavité est proche de 174 cm. Le taux de répétition des impulsions de sortie doit donc être de l'ordre de 86 MHz. Nous avons vérifié ce taux de répétition avec une photodiode et un oscilloscope, ce qui nous a donné une valeur de 85,6 MHz. Le train d'impulsions se trouve représenté sur la figure I.28.



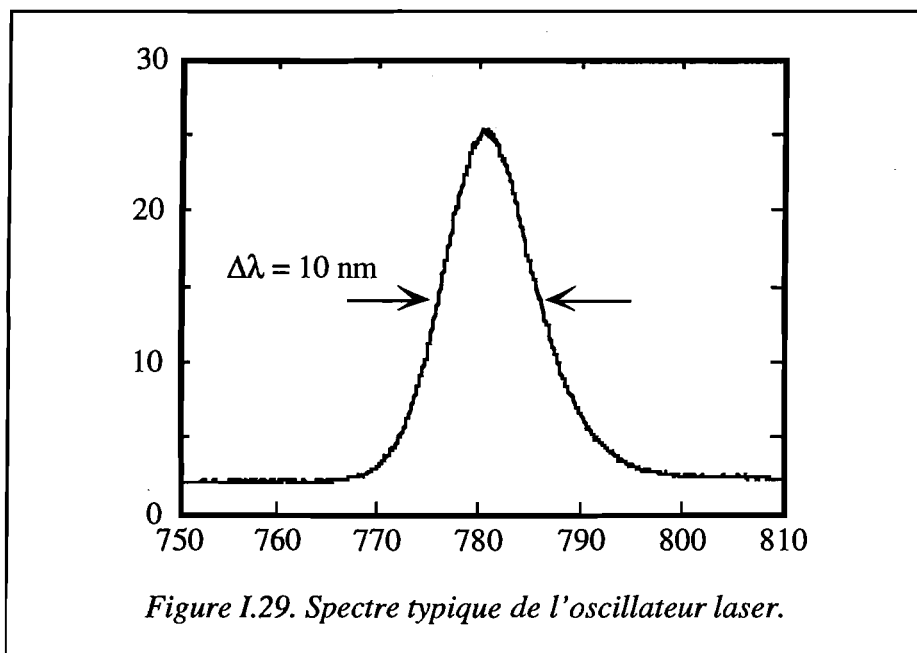
#### I.4.2. Caractérisation des impulsions

Le fonctionnement stable de jour en jour de l'oscillateur laser dépendait fortement de la propreté des composants optiques. Il était donc nécessaire de nettoyer souvent ces

composants, surtout les miroirs de la sous-cavité et le cristal de  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ , pour maintenir les bonnes performances du laser. La puissance optimale du laser de pompe pour un blocage de modes stable variait de 4 W à 6 W selon la propreté de la cavité laser, la dégradation des surfaces optiques et l'alignement de la cavité. On remarque que de petits ajustements de l'alignement de la cavité laser étaient nécessaires plusieurs fois par semaine pour assurer un blocage de modes stable.

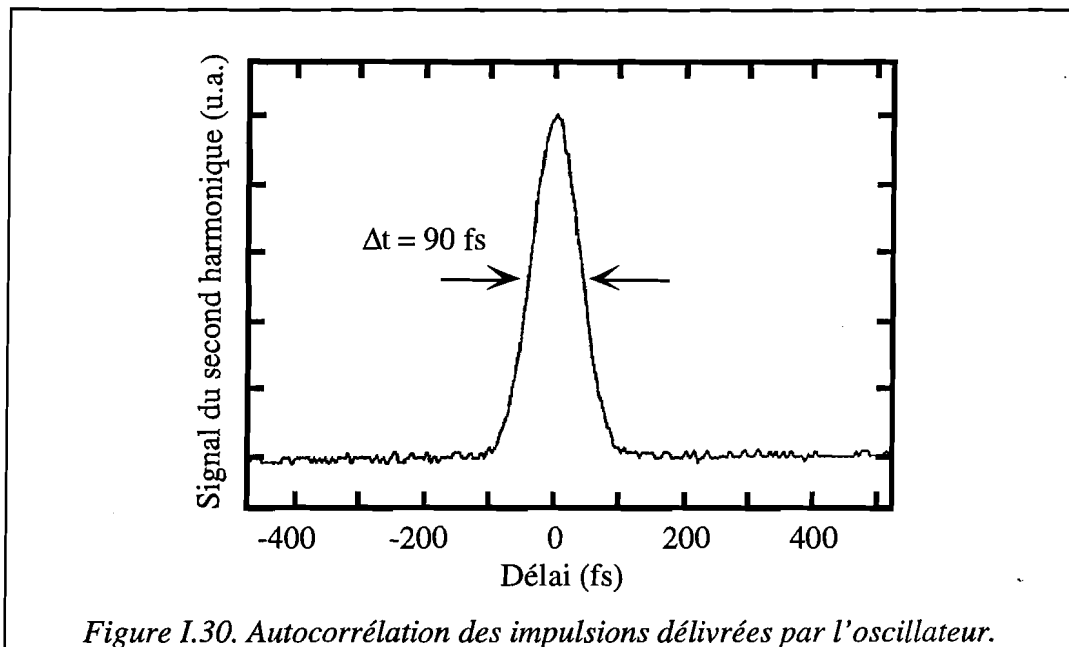
La puissance moyenne des impulsions de sortie est de l'ordre de 100 mW. L'énergie de chaque impulsion est donc d'à peu près 1 nJ. La valeur exacte de cette énergie n'est pas critique. Il est seulement nécessaire qu'il y ait suffisamment d'énergie pour traverser l'étireur et injecter l'amplificateur (voir la section I.5).

Le spectre du laser est centré à 780 nm et a typiquement une largeur à mi-hauteur de 10 nm. Un spectre typique de l'oscillateur laser se trouve sur la figure I.29. Ce spectre est largement déterminé par les composants optiques de la cavité ainsi que par la fente de sélection spectrale ( $F_2$  sur la figure I.23). On remarque que de telles impulsions limitées par transformée de Fourier devraient avoir une durée de 65 fs si elles avaient une distribution temporelle en intensité en forme de sécante hyperbolique au carré.



La durée typique de ces impulsions est voisine de 90 fs. L'autocorrélation correspondante faite avec un autocorrélateur traditionnel (voir la section 1.2.3.1) se trouve reportée sur la figure I.30. Le produit  $\Delta\nu \cdot \Delta t$  était donc 0,43, c'est-à-dire 1,4 fois limitée par transformée de Fourier. Ceci dit, la compression optimale de ces impulsions avait peu

d'intérêt puisqu'il était par la suite nécessaire de les étirer temporellement afin de les amplifier, comme nous allons le voir en étudiant l'amplification.



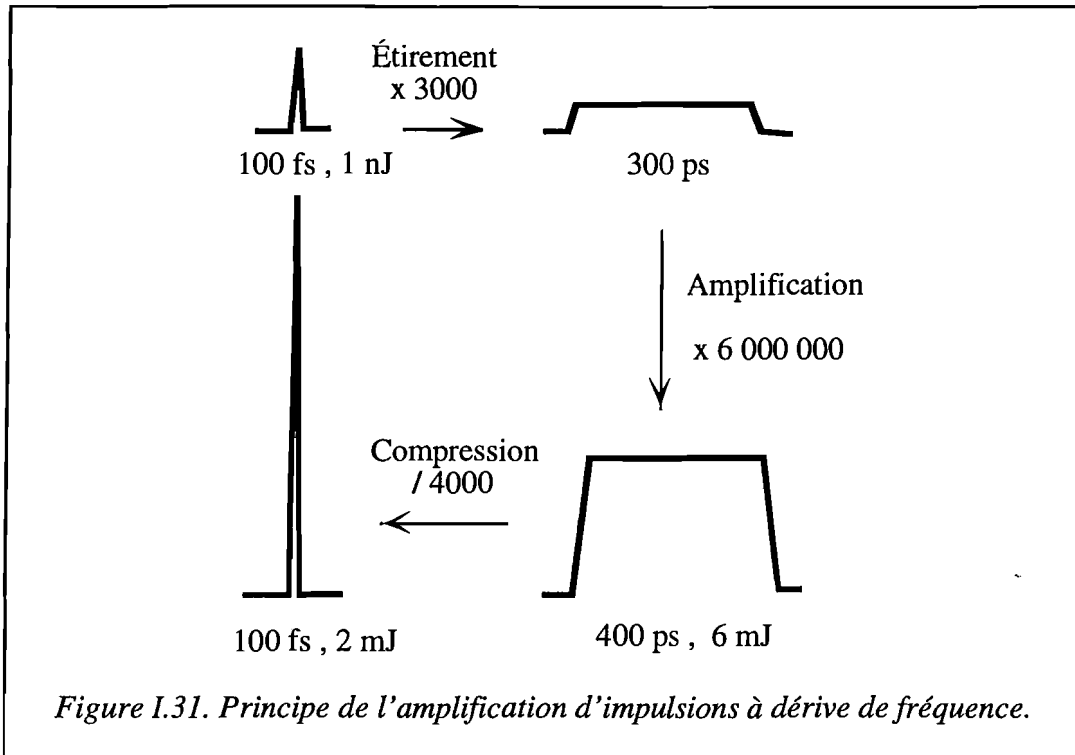
## I.5. L'amplification d'impulsions à dérive de fréquence

### I.5.1. Principe

L'amplification d'impulsions à dérive de fréquence est une technique puissante d'amplification d'impulsions femtosecondes. En fait, aujourd'hui elle permet la production d'impulsions femtosecondes de plus de 2 W de puissance moyenne [36] et de 50 TW de puissance crête alors que l'amplification d'impulsions sans cette technique est limitée à 10 mW de puissance moyenne [37]. L'explication de cette différence réside dans le fait que l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence évite les énormes puissances crêtes (10 GW pour une impulsion de 100 fs et de 1 mJ) dans les étages d'amplification. De telles puissances crêtes se traduisent par une intensité élevée dans l'amplificateur, ce qui peut facilement entraîner des dommages catastrophiques des composants optiques [38].

On appelle couramment l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence *la CPA* pour *Chirped Pulse Amplification* en anglais. Elle a été d'abord développée pour des applications dans le domaine du radar [39] et a été adaptée au domaine des impulsions optiques ultrabrèves [40-41]. Le principe de la CPA consiste à étirer temporellement les impulsions avant de les amplifier et ainsi à réduire par un facteur de l'ordre de 3000 les puissances crêtes

dans l'amplificateur. On retrouve les durées femtosecondes après amplification par compression (voir la figure I.31).



Aujourd'hui, la CPA est employée de façon régulière pour amplifier des impulsions ultrabrèves [36,42-45]. Notre chaîne laser est en fait basée sur une chaîne laser construite à l'University of Michigan [46]. Dans un premier temps, nous avons étiré temporellement les impulsions d'un facteur 3000 environ (ce qui diminue d'autant la puissance crête) dans un étireur basé sur un réseau en configuration Littrow double-passage. Nous les avons ensuite amplifiées à une cadence de 20 Hz dans un amplificateur régénératif basé sur le cristal Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et, enfin, nous les avons recomprimées à environ 100 fs. L'énergie par impulsion était alors voisine de 2 mJ. Je décrirai en détail cette chaîne d'amplification dans la section qui suit.

### I.5.2. Étirement et compression

L'étirement temporel d'une impulsion peut s'effectuer de plusieurs façons: en la faisant passer dans un matériau dispersif ou dans un interféromètre Gires-Tournois ou à travers des

systemes de prismes ou de reseaux de diffraction. Ceci dit, il s'avere que seuls des reseaux de diffraction peuvent etirer les impulsions par des facteurs importants et d'une maniere reversible [47].

Je decrirai dans cette section l'etireur et le compresseur que nous avons utilises. Ils sont tous les deux bases sur des reseaux de diffraction; le reseau de l'etireur est utilise dans une configuration prevue pour ajouter une dispersion positive aux impulsions tandis que ceux du compresseur sont destines a assurer une dispersion negative.

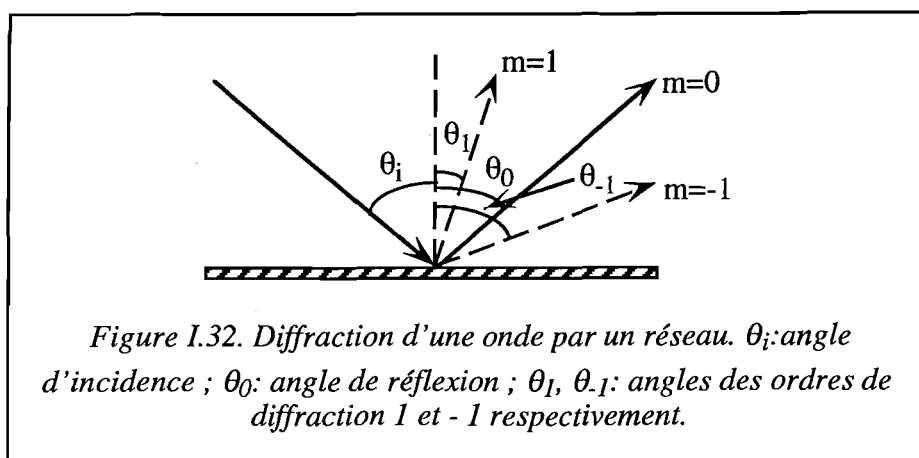
### 1.5.2.1. Les reseaux de diffraction

Les reseaux de diffraction que nous avons utilises pour l'etirement et la compression des impulsions de notre chaine laser sont des reseaux holographiques en reflexion. Ils possedent un traitement en or et sont fabriques par Jobin-Yvon S.A. Le pas des reseaux est de 0,5 μm, ce qui donne un nombre de traits par millimetre de 2000, et l'efficacite maximale de diffraction est prevue pour des longueurs d'onde comprises entre 750 nm et 825 nm. Ils ont 110 mm de largeur et 80 mm de hauteur.

On considere la diffraction d'une onde sur un reseau selon la figure I.32. L'equation du reseau est bien connue:

$$\sin \theta_i + \sin \theta_m = \frac{m \lambda}{a}, \quad (I.39)$$

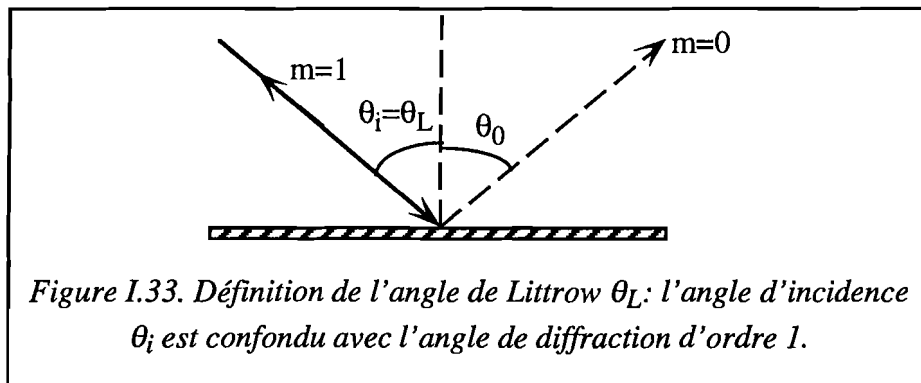
ou  $\theta_i$  est l'angle entre la normale au reseau et le vecteur de propagation de l'onde incidente,  $\theta_m$  est l'angle de diffraction (par rapport a la normale) d'ordre  $m$  de l'onde,  $\lambda$  est sa longueur d'onde et  $a$  est le pas du reseau. On remarque que l'ordre 0 du reseau correspond a une simple reflexion ( $\theta_0 = -\theta_i$ ). On definit aussi qu'une onde est diffractee sous un angle positif si elle se trouve du meme cote de la normale que l'onde incidente.



On définit ensuite *l'angle de Littrow*  $\theta_L$  celui sous lequel l'angle d'incidence est confondu avec l'angle de diffraction d'ordre 1 (voir la figure I.33). Il s'avère que l'efficacité de diffraction est maximale [4] et l'astigmatisme du faisceau est minimal [47] sous cet angle; nous avons donc décidé de travailler sous incidence de Littrow. Pour cet angle, l'équation du réseau devient:

$$\sin \theta_L = \frac{\lambda}{2a}. \quad (\text{I.40})$$

Il est évident que, pour une configuration Littrow,  $\lambda/2a < 1$ . La longueur d'onde centrale des impulsions émises par l'oscillateur étant 780 nm, les réseaux utilisés dans l'étireur et le compresseur de notre chaîne laser doivent avoir moins de 2560 traits/mm. En revanche, l'efficacité de diffraction croît avec  $\lambda/a$ : on cherche donc à choisir des réseaux de diffraction ayant un grand nombre de traits par millimètre sans que le spectre étalé de l'onde diffractée soit physiquement coupé par le réseau. Nos réseaux de 2000 traits/mm répondent à ces conditions. L'angle de Littrow correspondant est de 51,3°.



Dans la suite, je décrirai en premier le compresseur d'impulsions puisqu'il est plus simple à étudier que l'étireur. La description de l'étireur suivra.

#### I.5.2.2. Le compresseur d'impulsions

Pour des impulsions ayant une dispersion positive, un compresseur doit être un système à dispersion négative; autrement dit, les hautes fréquences doivent y voyager plus vite que les basses fréquences. Un compresseur à réseaux dépend de sa géométrie pour assurer que le parcours total d'une onde de fréquence  $\omega$  augmente au fur et à mesure que  $\omega$  diminue.

Le compresseur est composé de deux réseaux parallèles ayant un pas identique (voir la figure I.34). Le réseau  $R_1$  étale les fréquences du spectre de l'impulsion tandis que le réseau  $R_2$  les recollimate. Le miroir  $M_1$  sert à injecter les impulsions incidentes dans le compresseur

à l'angle de Littrow et le miroir  $M_2$  renvoie les impulsions dans le compresseur pour un deuxième passage. Ce deuxième passage a deux buts: il double la quantité de dispersion négative subie par les impulsions et il remet spatialement ensemble toutes les fréquences. On remarque qu'après le premier passage les fréquences sont parallèles mais étalées transversalement (voir la figure I.34).

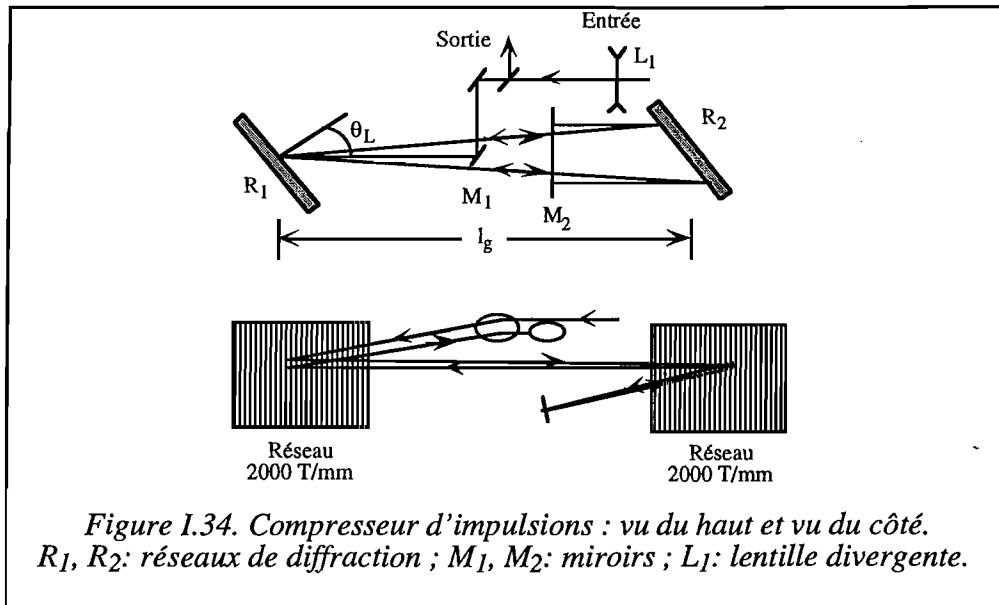


Figure I.34. Compresseur d'impulsions : vu du haut et vu du côté.  $R_1, R_2$ : réseaux de diffraction ;  $M_1, M_2$ : miroirs ;  $L_1$ : lentille divergente.

Nous avons vu dans la section I.2.2.3c (équation I.29) que la dispersion de vitesse de groupe par unité de longueur de milieu dispersif traversée est donnée par

$$DVG = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}. \quad (I.29)$$

La dispersion totale d'un système dispersif peut alors être exprimée

$$DVG_t = \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2}, \quad (I.41)$$

où  $\varphi$  est la phase de l'onde. On appelle également cette quantité *la distorsion de phase quadratique*. Il existe en même temps des termes de distorsion de phase d'ordres supérieurs, telle que la distorsion de phase cubique. Il faut tenir compte de ces ordres supérieurs afin de réaliser des impulsions parfaitement limitées par transformée de Fourier et pour chercher à produire des impulsions de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes. Pour notre application, nous allons donc considérer seulement le terme quadratique.

Pour un système dispersif quelconque, on peut démontrer que la distorsion de phase quadratique peut être exprimée comme :

$$\frac{d^2\varphi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2P}{d\omega^2}, \quad (\text{I.42})$$

où  $P$  est le chemin optique de l'onde de longueur d'onde  $\lambda$ . Pour un système de deux réseaux à double passage tel celui qui se trouve sur la figure I.34, le chemin optique est donné par :

$$P = 2 l_g \cos \theta, \quad (\text{I.43})$$

où  $l_g$  est la distance entre les deux réseaux le long de la propagation de l'onde centrale et  $\theta$  est l'angle entre la normale aux réseaux et la trajectoire de l'onde centrale. La distorsion de phase quadratique est donc [2]:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\varphi}{d\omega^2} &= - \frac{l_g \lambda^3}{\pi c^2 a^2 \cos^3 \theta} \\ &= - \frac{\lambda^3 l_g}{\pi c^2 a^2} \left[ 1 - \left( \frac{\lambda}{a} - \sin \theta_i \right)^2 \right]^{-3/2}, \end{aligned} \quad (\text{I.44})$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde centrale de l'impulsion. A l'incidence de Littrow, l'équation I.44 devient

$$\frac{d^2\varphi}{d\omega^2} = - \frac{\lambda^3 l_g}{\pi c^2 a^2} \left[ 1 - \left( \frac{\lambda}{2a} \right)^2 \right]^{-3/2}. \quad (\text{I.45})$$

Pour notre compresseur, la distorsion de phase quadratique est donc égale à  $- 2,74 \times 10^7 \text{ (fs}^2 \text{ m}^{-1}) l_g$ , ce qui correspond à  $- 1,4 \times 10^7 \text{ fs}^2$  pour une distance  $l_g$  de 51 cm.

On remarque que la taille physique du réseau  $R_2$  est très importante puisque le spectre y est étalé et qu'il faut éviter de le couper sur les bords. On considère une impulsion ayant un profil spectral gaussien:

$$I(\omega) = I_0 \exp \left[ - 4 \ln 2 \left( \frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega} \right)^2 \right], \quad (\text{I.46})$$

où  $I(\omega)$  est l'intensité de l'impulsion en fonction de la fréquence  $\omega$ ,  $\omega_0$  est sa fréquence centrale et  $\Delta\omega$  est sa largeur à mi-hauteur spectrale, et on cherche la taille physique de  $R_2$  nécessaire pour que 99% de l'intensité de l'impulsion tombe dessus. Prenant une impulsion centrée sur 780 nm et ayant une largeur spectrale de 10 nm, on trouve que 99% de l'intensité se trouve entre 767,3 nm et 796,1 nm. Alors, la distance  $D$  couverte par un spectre qui se trouve entre ces deux longueurs d'onde (voir la figure I.34) est égale à



$$D = l_g (\tan \theta_{796.1} - \tan \theta_{767.3}), \quad (\text{I.47})$$

où

$$\sin \theta_\lambda = \frac{\lambda}{2a}. \quad (\text{I.40})$$

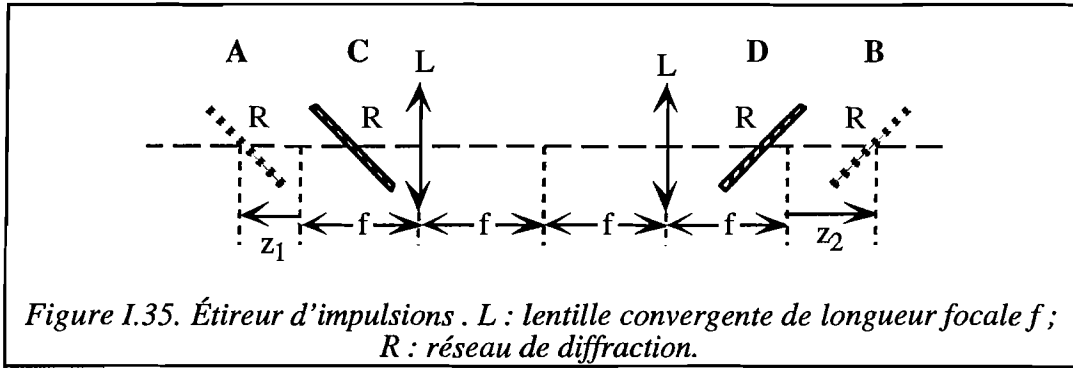
Par conséquent, le deuxième réseau de notre compresseur doit avoir au moins 63 mm de large pour répondre à ces conditions. Il a en fait 110 mm de large. On rappelle que la taille physique du premier réseau n'est pas critique puisque le spectre de l'impulsion n'y est pas étalé.

Le fait que le spectre de l'impulsion ne soit pas étalé sur le premier réseau a l'avantage de permettre l'utilisation d'un réseau de petite taille, les réseaux de diffraction étant très coûteux. Cependant, cette même propriété est un désavantage quant à l'endommagement du réseau: l'intensité du faisceau est tellement importante qu'un vieillissement rapide est subi par le réseau. Nous avons donc placé une lentille divergente  $L_1$  d'une longueur focale de 130 cm devant le compresseur afin d'agrandir la taille du faisceau sur le premier réseau.

### I.5.2.3. L'étireur d'impulsions

Si le compresseur est un système à dispersion négative, l'étireur d'impulsions doit être un système à dispersion positive; autrement dit, les basses fréquences y voyagent plus vite que les hautes fréquences. Il ressemble à un compresseur d'impulsions dans lequel on a ajouté un télescope (voir la figure I.35). L'ajout d'un télescope de grandissement égal à -1 dans un système optique ne modifie pas sa dispersion. Il réalise seulement une inversion de l'onde, ce qui explique la nécessité de renverser le deuxième réseau. Le système de la figure I.35 avec les réseaux placés aux points A et B est donc rigoureusement identique au compresseur de la figure I.34. Il correspond donc à un compresseur à dispersion négative avec  $l_g = z_1 + z_2$ , où  $z_1$  et  $z_2$  sont les distances algébriques entre les réseaux et les points focaux des lentilles (voir la figure I.35). L'expression de la distorsion de phase quadratique pour ce système est alors [48]

$$\frac{d^2 \varphi}{d\omega^2} = - \frac{\lambda^3 (z_1 + z_2)}{\pi c^2 a^2} \left[ 1 - \left( \frac{\lambda}{a} - \sin \theta_i \right)^2 \right]^{-3/2}. \quad (\text{I.48})$$



L'intérêt du télescope est qu'il permet à  $z_1$  et  $z_2$  d'être négatives: ceci se fait en plaçant les réseaux entre les lentilles et leurs points focaux (points C et D de la figure I.35). Si l'on pose  $z = -z_1 = -z_2$ , l'équation I.48 devient

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{2\lambda^3 z}{\pi c^2 a^2} \left[ 1 - \left( \frac{\lambda}{a} - \sin\theta_i \right)^2 \right]^{-3/2}. \quad (\text{I.49})$$

Ce système est donc un étireur à dispersion positive. Sous incidence de Littrow, l'équation I.49 devient :

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{2\lambda^3 z}{\pi c^2 a^2} \left[ 1 - \left( \frac{\lambda}{2a} \right)^2 \right]^{-3/2}. \quad (\text{I.50})$$

Pour notre système, cette valeur est égale à  $5,5 \times 10^7 \text{ (fs}^2 \text{ m}^{-1}) z \approx 1,4 \times 10^7 \text{ fs}^2$ .

Nous avons simplifié ce système et économisé un réseau en repliant l'ensemble selon la figure I.36. Le miroir  $M_1$  sert à injecter les impulsions dans l'étireur. Les impulsions sont diffractées par le réseau, passent par la lentille L de longueur focale de 50 cm et sont réfléchies sur le miroir  $M_3$ . Elles repassent par la lentille et retombent sur le réseau légèrement décalées vers le bas par rapport à leur première incidence. Les impulsions tombent donc sur le miroir  $M_2$  et sont réfléchies pour faire un deuxième passage dans l'étireur. Elles suivent exactement le même chemin au retour qu'à l'aller. Un isolateur optique (voir la section I.5.3.7) sert par la suite à envoyer les impulsions dans l'amplificateur. On remarque que chaque impulsion fait quatre passages sur le réseau, deux à l'aller et deux au retour.

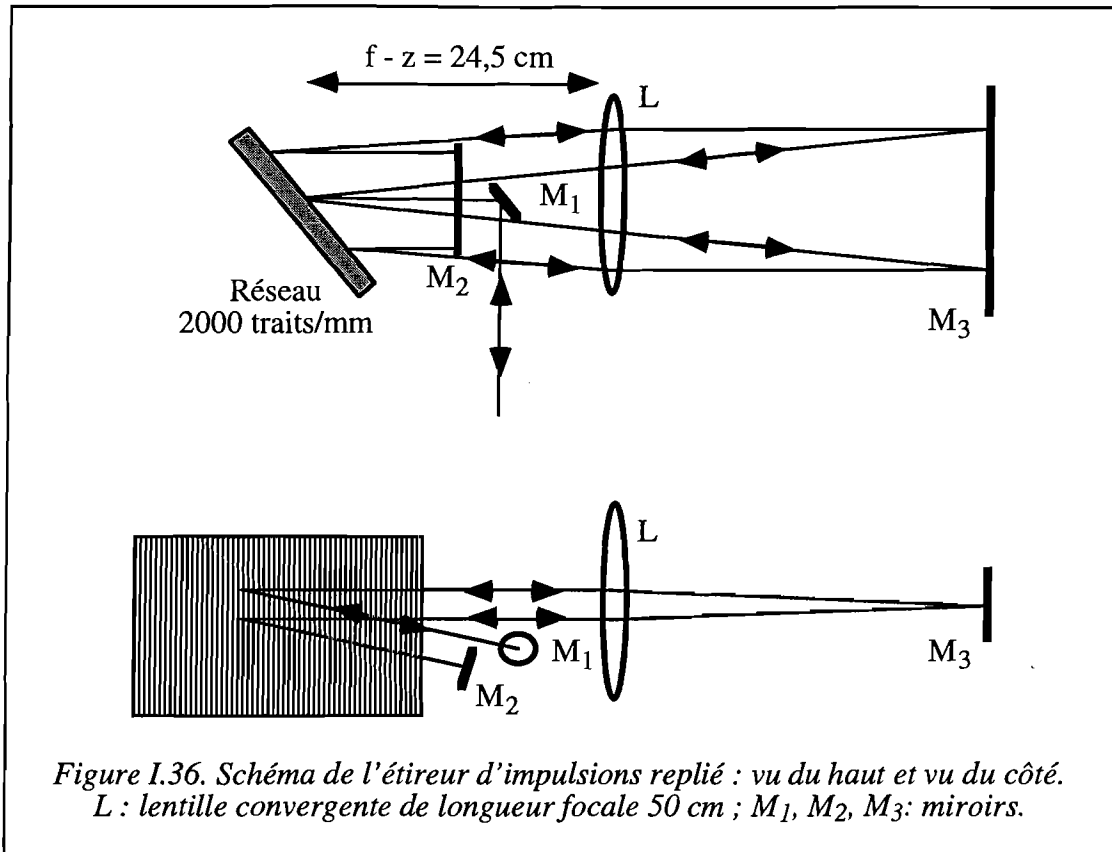


Figure I.36. Schéma de l'étireur d'impulsions replié : vu du haut et vu du côté.  
 L : lentille convergente de longueur focale 50 cm ; M<sub>1</sub>, M<sub>2</sub>, M<sub>3</sub> : miroirs.

L'important est que la distorsion de phase quadratique ajoutée par l'étireur soit compensée par le compresseur. On pose donc que :

$$\left[ \frac{d^2 \varphi}{d\omega^2} \right]_{\epsilon} + \left[ \frac{d^2 \varphi}{d\omega^2} \right]_c = 0, \quad (\text{I.51})$$

où les indices  $\epsilon$  et  $c$  correspondent respectivement à l'étireur et au compresseur, ce qui donne, en se servant des équations I.45 et I.50 :

$$l_g = 2z. \quad (\text{I.52})$$

L'équation I.52 signifie que pour une compression qui compense parfaitement l'étirement de l'étireur, la distance entre les deux réseaux du compresseur doit être égale à deux fois la différence entre la longueur focale de la lentille de l'étireur et la distance entre le réseau et la lentille. Cette équation ne tient pas compte de la dispersion positive introduite par

l'oscillateur et l'amplificateur. La distance entre les réseaux du compresseur va donc être légèrement plus grande que  $2z$  pour une compression optimale.

Le facteur d'étirement peut être approximé par [4]:

$$G = \frac{\Delta\tau_e}{\Delta\tau_c} \approx \frac{4 \ln 2}{\Delta\tau_c^2} \frac{d^2\phi}{d\omega^2}, \quad (\text{I.53})$$

où  $\Delta\tau_e$  est la largeur temporelle de l'impulsion étirée et  $\Delta\tau_c$  est la largeur temporelle de l'impulsion comprimée. Pour une impulsion comprimée de l'ordre de 110 fs, le facteur d'étirement de ce système est alors de l'ordre de 3000.

On remarque qu'on aurait pu inverser l'étireur et le compresseur; autrement dit, étirer les impulsions en y ajoutant une dispersion négative et les comprimer en y ajoutant une dispersion positive. Le désavantage principal de ceci est que l'étireur agit alors contre la dispersion introduite par les éléments optiques, qui est pour notre système toujours positive, et réduit d'autant la durée des impulsions dans l'amplificateur. De plus, le système à dispersion positive étant plus compliqué, il est souhaitable que les impulsions y passent à basse puissance, donc avant amplification.

#### *1.5.2.4. L'alignement de l'étireur et du compresseur*

Afin de satisfaire à l'égalité de l'équation I.52, nous avons posé l'égalité des pas  $a$  des réseaux de l'étireur et du compresseur. Pour bien comprimer l'impulsion après amplification, il est clair que tous les réseaux doivent être identiques. De même, les équations I.44 et I.49 impliquent que l'angle d'incidence doit être le même pour l'étireur et pour le compresseur. Il est donc important que les deux réseaux du compresseur soient parallèles et au même angle que celui de l'étireur, autrement dit à l'angle de Littrow.

L'alignement de l'étireur est très critique pour assurer un bon étirement des impulsions. La distance entre la lentille et le miroir  $M_3$  de la figure I.36 doit être rigoureusement égale à la longueur focale de la lentille. Une variation légère de cette longueur peut mener à une dérive de fréquence spatiale importante de l'impulsion. Pour une distance non optimale, on analyse le spectre en trois endroits différents d'une coupe transversale du faisceau de sortie (voir la figure I.37). Si le spectre change de forme lorsque l'on passe du point A au point C, on conclut à un mauvais étirement qui s'est fait spatialement plutôt que temporellement. Un tel étirement peut donc mener à des dommages catastrophiques de l'amplificateur.

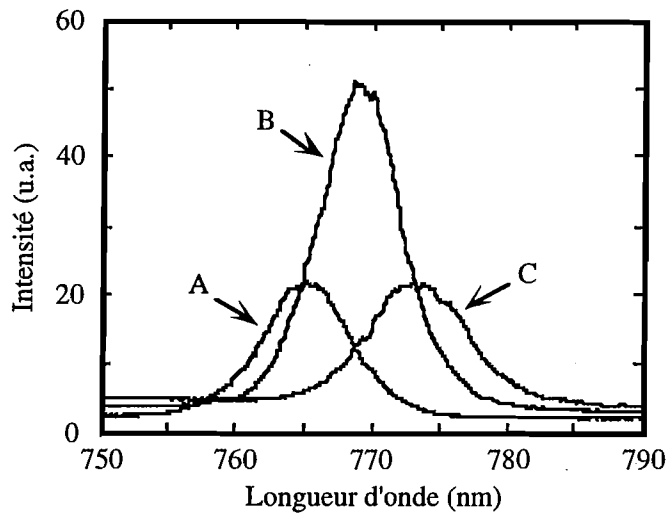


Figure I.37. Analyse spectrale d'une coupe transversale de l'impulsion étirée en trois endroits différents (A, B et C) démontrant un mauvais étirement de l'impulsion.

### I.5.3. L'amplificateur régénératif

#### I.5.3.1. Introduction

L'amplification des impulsions étirées dans un deuxième cristal de  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  est en principe très simple: il suffit de pomper ce cristal afin de stocker une population importante dans le niveau excité et ensuite d'y injecter l'impulsion pour dépeupler ce niveau. Cependant, il s'avère qu'une impulsion ne peut pas en général extraire toute l'énergie du milieu avec un simple passage dans le cristal à cause du faible gain par passage. On sait que le coefficient de gain à faible signal incident d'un milieu amplificateur dépend de la densité d'énergie (appelée fluence) de pompe stockée dans le milieu,  $J_{sto}$ , et de la fluence de saturation du milieu,  $J_{sat}$  [49]:

$$g_0 = \frac{J_{sto}}{J_{sat}}, \quad (\text{I.54})$$

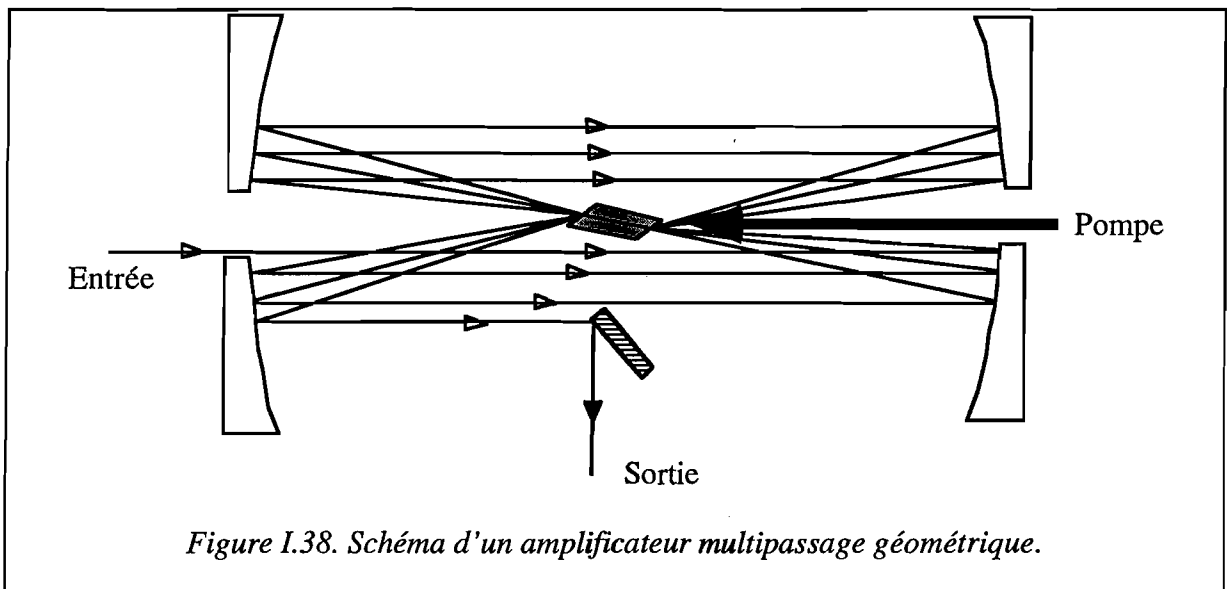
La fluence de saturation est un paramètre intrinsèque du milieu tandis que la fluence de pompe stockée est une donnée expérimentale:

$$J_{sto} = \frac{E_p \alpha}{S} \frac{\lambda_p}{\lambda_L}, \quad (\text{I.55})$$

où  $E_p$  est l'énergie de pompe incidente sur le milieu amplificateur,  $\alpha$  est l'absorption totale du milieu,  $S$  est la section pompée et  $\lambda_p$  et  $\lambda_L$  sont les longueurs d'onde de la pompe et de

l'impulsion à amplifier respectivement. On remarque que la fluence de saturation de  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  est  $1 \text{ J/cm}^2$ , de l'ordre de 1000 fois la fluence de saturation des colorants organiques. Les étages d'amplification classiques pour les chaînes laser à colorants ne sont donc pas suffisants pour le  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ .

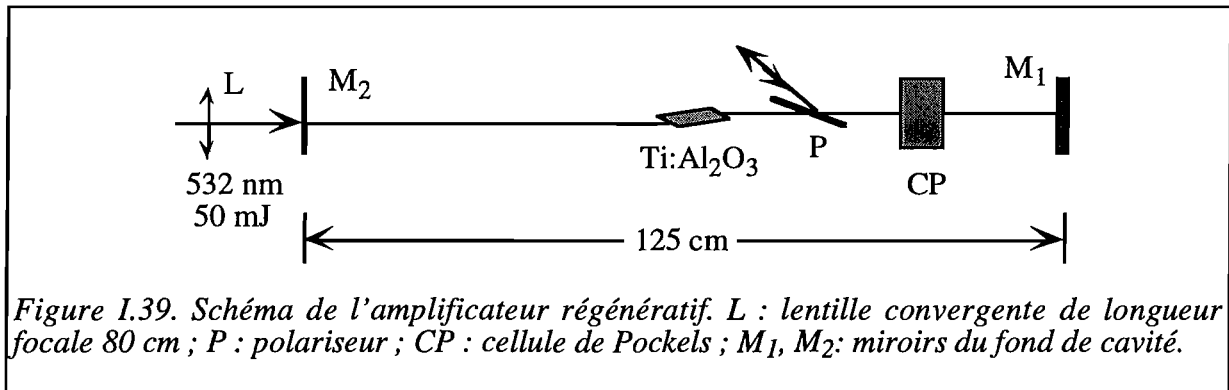
On est alors obligé de faire passer l'impulsion plusieurs fois dans le cristal pour extraire toute l'énergie stockée; il faut un *amplificateur multipassage*. Il existe deux types d'amplificateurs multipassage: *l'amplificateur multipassage géométrique* (voir la figure I.38) et *l'amplificateur régénératif*. Le premier consiste à renvoyer l'impulsion dans le milieu à gain plusieurs fois par des moyens géométriques tandis que le deuxième est une cavité laser dans laquelle on envoie l'impulsion par un jeu de polarisation. On note que l'amplificateur multipassage géométrique permet d'atteindre des intensités plus importantes que l'amplificateur régénératif puisque ce dernier dépend de l'utilisation de composants optiques fragiles telle qu'une cellule de Pockels. Tout de même, l'amplificateur régénératif a les avantages importants d'être plus facile à régler et de donner plus de moyens de contrôle du mode spatial de l'impulsion de sortie. Puisque nos demandes en énergie de sortie n'étaient pas excessives, nous avons choisi de monter un amplificateur régénératif.



### I.5.3.2. Principe

L'amplificateur régénératif est un laser en lui-même. La figure I.39 donne un schéma de ce type d'amplificateur. Il comprend un milieu à gain, le cristal de  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  dans notre cas, placé entre deux miroirs pour faire un résonateur. Il est composé également d'une cellule

de Pockels et d'un polariseur pour permettre l'injection et l'éjection de l'impulsion. Il est pompé par un laser Nd:YAG impulsif et doublé en fréquence (532 nm).



Le principe de l'amplificateur régénératif est le suivant. On pompe le milieu à gain et puis on injecte une impulsion étirée dans le résonateur. On y piège l'impulsion jusqu'à ce qu'elle ait extrait le maximum d'énergie du milieu. À ce moment, on l'éjecte et on la recomprime dans le compresseur.

### I.5.3.3. Injection et éjection d'impulsions par jeu de polarisation

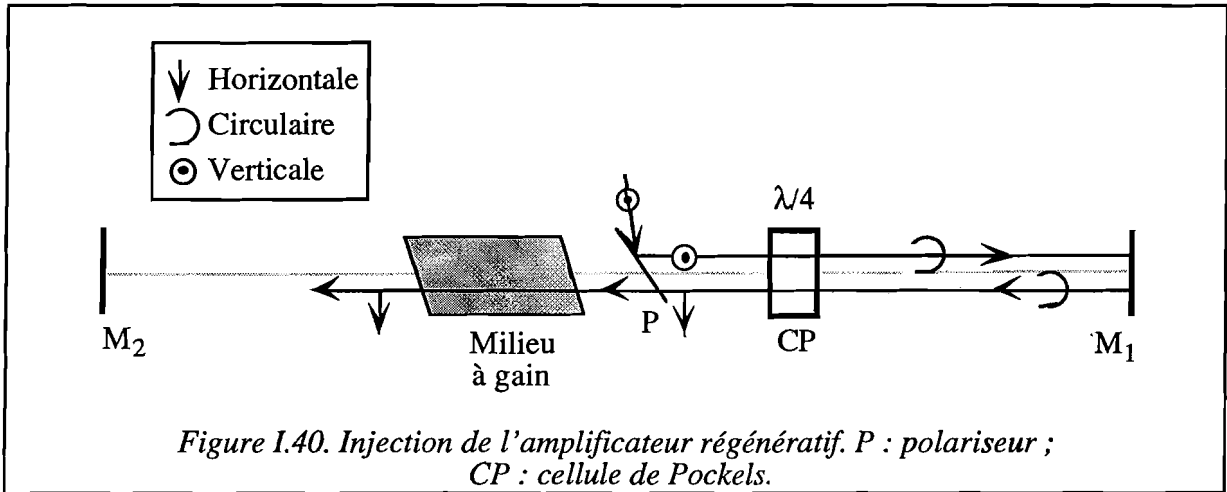
Nous avons vu dans la section I.2.2.1 (équation I.15) qu'une tension appliquée sur une cellule de Pockels mène à un déphasage de l'onde qui la traverse. Ce principe peut être utilisé pour modifier le déphasage  $\Delta\varphi$  entre les deux composantes orthogonales de l'onde qui traversent la cellule. De cette manière, la biréfringence du cristal non linéaire dans la cellule peut varier selon la tension appliquée; la cellule de Pockels est donc un retardeur d'onde commandé par une tension externe:

$$\Delta\varphi = \pi \frac{V_{DC}}{V_{\pi}}, \quad (I.56)$$

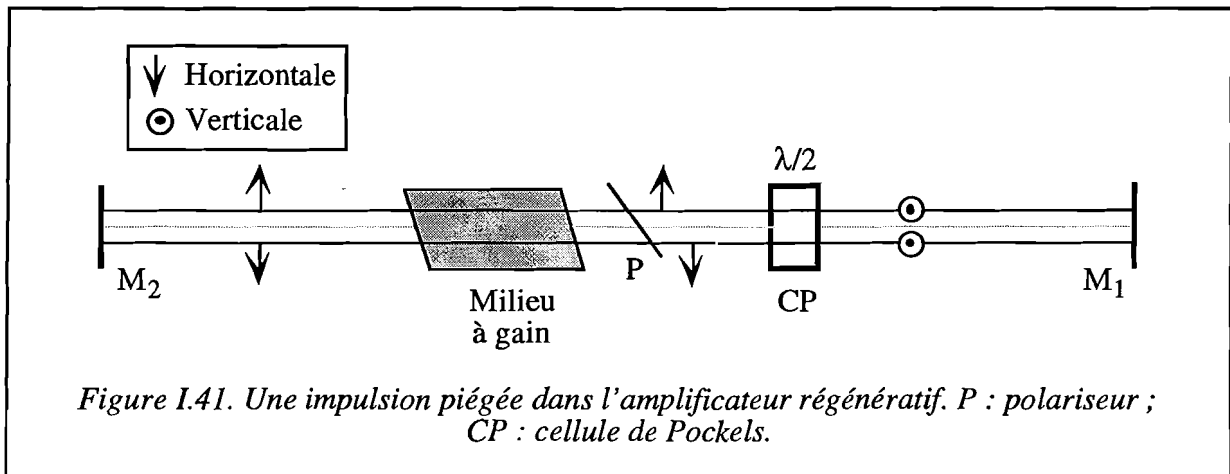
où  $V_{DC}$  la tension appliquée aux bornes de la cellule de Pockels et  $V_{\pi}$  est la tension demi-onde. La cellule de Pockels peut donc agir en lame quart d'onde ou demi-onde selon la tension appliquée. C'est cette propriété qui va permettre l'injection et l'éjection de l'amplificateur régénératif.

L'injection de l'amplificateur régénératif est alors décrite par la figure I.40. La cellule de Pockels est alignée pour agir en lame quart d'onde sans tension appliquée. Une impulsion de polarisation verticale est incidente sur le polariseur P. Ce polariseur est prévu pour avoir une haute réflectivité pour la lumière polarisée verticalement et une haute transmission pour

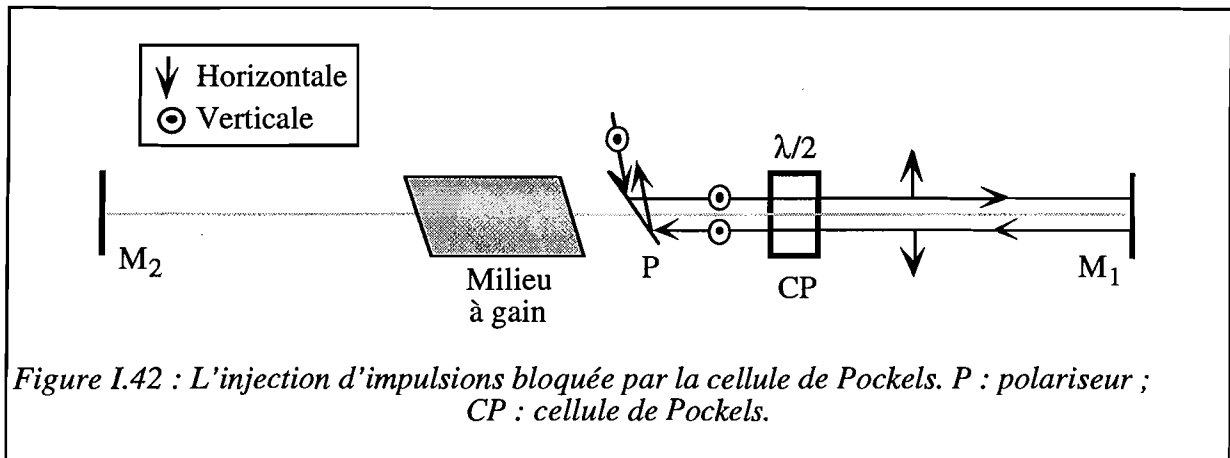
la lumière polarisée horizontalement. L'impulsion est alors réfléchiée et entre dans la cavité. Elle traverse la cellule de Pockels, sur laquelle on n'applique aucune tension, et sa polarisation devient circulaire. Après réflexion sur le miroir de fond de cavité  $M_1$ , elle retransverse la cellule de Pockels qui transforme sa polarisation de circulaire en linéaire horizontale. Elle est transmise par le polariseur et traverse le milieu à gain. Si l'on n'appliquait jamais une tension sur la cellule de Pockels, l'impulsion serait éjectée de la cavité après deux passages supplémentaires dans la cellule.



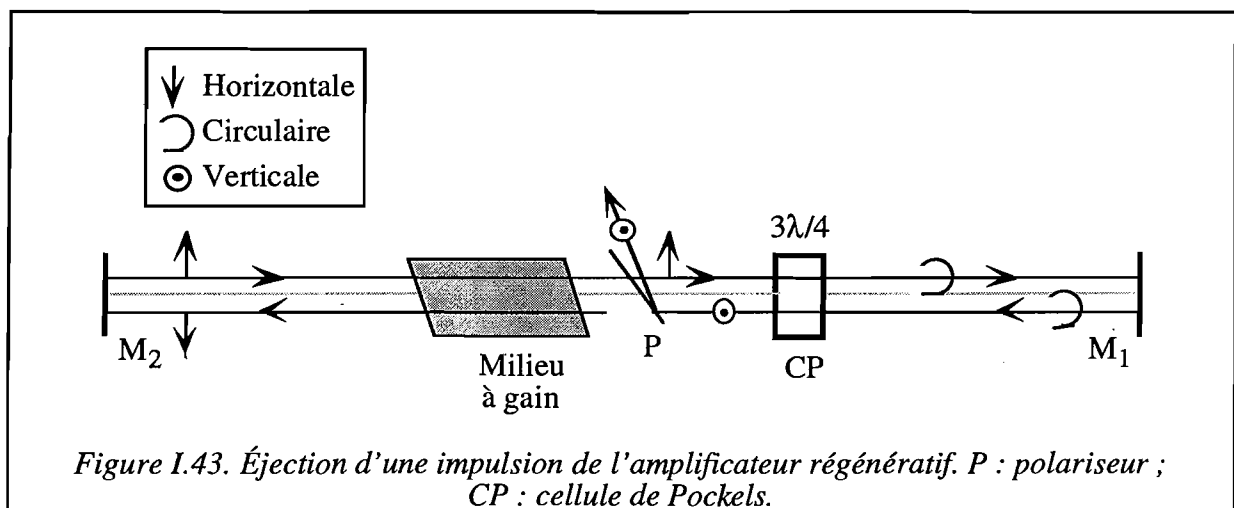
On applique donc une tension sur la cellule de Pockels pour la faire fonctionner comme une lame demi-onde (voir la figure I.41). L'impulsion retransverse le milieu à gain et le polariseur. Elle traverse ensuite la cellule de Pockels où sa polarisation devient verticale. Au retour, la cellule de Pockels ramène sa polarisation à l'horizontale et elle retransverse le polariseur. Elle est donc piégée dans la cavité. De plus, la cellule de Pockels bloque l'injection d'autres impulsions (voir la figure I.42). Elles arrivent polarisées verticalement et sont donc toujours polarisées verticalement après deux passages dans la cellule de Pockels. Elles sont donc immédiatement éjectées de la cavité sans avoir traversé le milieu à gain.



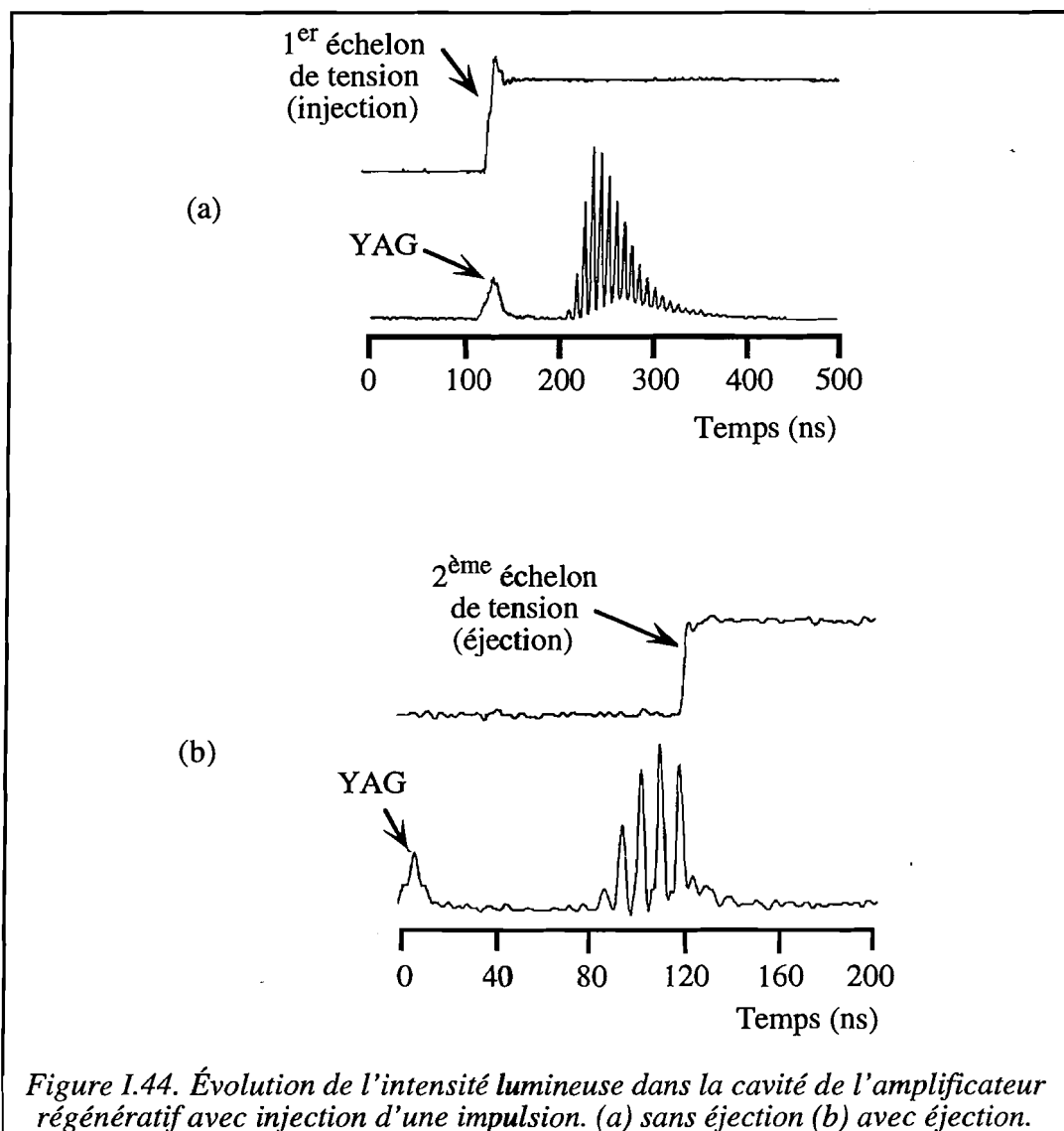




L'impulsion piégée peut donc faire un grand nombre d'allers et de retours dans la cavité en extrayant le gain du cristal de  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  à chaque passage. Au début le gain est beaucoup plus grand que les pertes et l'impulsion s'amplifie exponentiellement. Cependant, le gain diminue au fur et à mesure que l'impulsion extrait l'énergie du cristal. L'énergie de l'impulsion est maximale quand le gain est égal aux pertes de la cavité. À ce moment, on éjecte l'impulsion de la cavité en ajoutant un deuxième échelon de tension sur la cellule de Pockels pour la rendre lame trois-quarts d'onde. On remarque qu'ajouter un deuxième échelon de tension est équivalent à enlever le premier échelon puisqu'une lame trois-quarts d'onde est équivalente à une lame quart d'onde (à part le sens de la polarisation circulaire après un passage). On a choisi d'ajouter le deuxième échelon pour une question de vitesse de commutation, ce qui permet une meilleure éjection de l'impulsion. La figure I.43 démontre comment l'impulsion est alors éjectée après deux passages supplémentaires dans la cellule de Pockels.



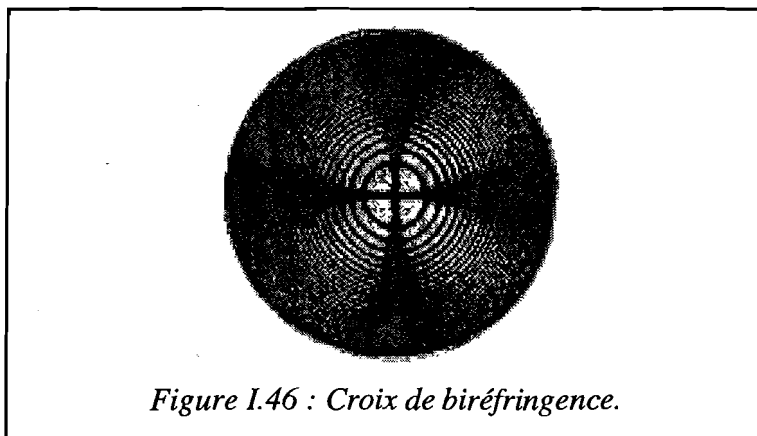
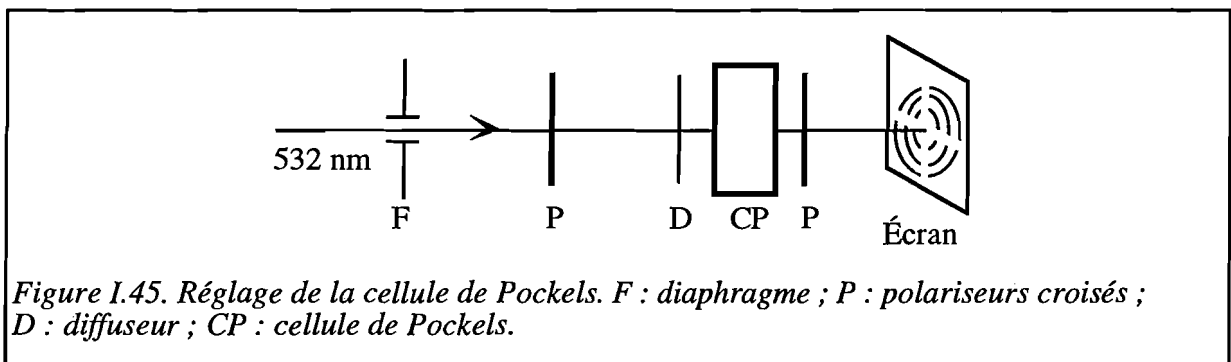
Dans la chronologie de l'amplification, l'impulsion de pompe arrive en premier et dure à peu près 10 ns. Le train d'impulsions de l'oscillateur arrive continuellement sur le polariseur, avec à peu près 11,7 ns de délai entre chaque impulsion. On commute le premier échelon de tension sur la cellule peu après le passage de la pompe, ce qui piège l'impulsion qui se trouve à ce moment-là dans la cavité et qui a une polarisation horizontale. Sur la figure I.44a, on peut voir l'évolution de l'intensité lumineuse dans la cavité avec l'injection d'une impulsion (sans l'éjecter). Le deuxième échelon de tension est rajouté après à peu près 150 ns, ou entre 15 et 20 allers et retours de l'impulsion dans la cavité (la longueur totale de la cavité étant 1,25 m). La figure I.44b donne l'évolution de l'intensité lumineuse dans la cavité quand l'impulsion est éjectée. Puisque l'on pompe à un taux de répétition de 20 Hz, la cellule de Pockels a presque 50 ms pour remettre ses tensions à zéro et recommencer le cycle.



On rappelle que la durée de vie de l'état excité du cristal de saphir dopé au titane est de l'ordre de 3  $\mu$ s. Cette durée est très longue par rapport à l'échelle de temps concernée par l'amplification d'une impulsion (qui est au maximum 200 ns). On considère donc que le pompage effectué par le Nd:YAG provoque une inversion de population dans le cristal de saphir dopé au titane qui persiste jusqu'à ce que l'impulsion vienne dépeupler le niveau.

#### 1.5.3.4. Le réglage de la cellule de Pockels

Le réglage de la cellule de Pockels pour un déphasage de  $\pi/2$  sans tension appliquée (lame quart d'onde) est très critique pour avoir une bonne injection et une bonne éjection d'impulsions. La méthode utilisée consiste à placer la cellule de Pockels entre deux polariseurs croisés et à y envoyer une impulsion Nd:YAG doublé en fréquence, légèrement diffusée, de faible intensité et de petite taille (voir la figure I.45). À la sortie, on peut voir sur un carton une croix de biréfringence (voir la figure I.46). Les cercles d'intensité nulle (noirs sur la figure) représentent alors une orientation de la cellule de Pockels pour laquelle elle agit en lame  $\lambda$  pour un faisceau à 532 nm. Le rayon des cercles varie comme  $\sqrt{\lambda}$  pour une lame  $\lambda$  mais comme  $\sqrt{\lambda}/2$  pour une lame quart d'onde. Donc, l'orientation  $\lambda/4$  pour un faisceau à 780 nm est à peu près à  $\sqrt{780 / 532} \times 1/2 \approx 60\%$  de la distance entre le centre de la croix et le premier cercle d'intensité nulle. On règle alors la cellule de Pockels pour que le faisceau vert non diffusé tombe à cet endroit.



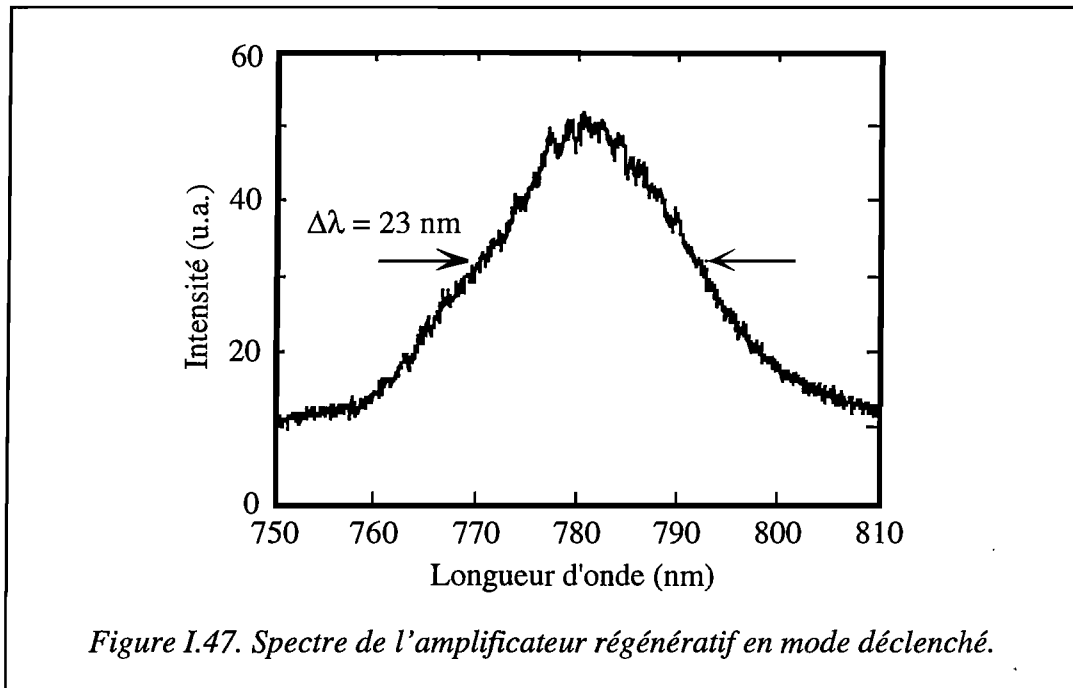
Le réglage de la cellule de Pockels est correct quand l'amplificateur ne peut pas fonctionner sans le premier échelon de tension sur la cellule. On doit aussi observer un minimum de pertes sur le polariseur quand la cavité est déclenchée avec le premier échelon de tension (voir les paragraphes suivants sur la cavité déclenchée) mais que le deuxième échelon n'est pas appliqué. Ce sont donc deux méthodes simples et sûres pour s'assurer un bon réglage de la cellule de Pockels.

#### *1.5.3.5. La cavité déclenchée*

Puisque l'amplificateur régénératif est un laser en lui-même, il est possible de le faire fonctionner sans injection d'impulsions. Ce fonctionnement a deux intérêts: il permet un alignement initial de la cavité et il donne une bonne indication de son spectre de gain. L'ajout du premier échelon de tension à la cellule de Pockels déclenche alors l'amplification de fluorescence spontanée. De la même manière que l'injection d'une impulsion, l'intensité de la lumière dans la cavité croît jusqu'à ce que le gain soit égal aux pertes. L'ajout du deuxième échelon de tension vide la cavité, ce qui crée un paquet de photons de longueur proche de deux fois la distance entre le miroir  $M_2$  et la cellule de Pockels, ce qui correspond à une impulsion de durée voisine de 7 ns.

Le temps de création, qui est le temps que l'impulsion met pour atteindre son énergie maximale, est plus long en mode déclenché qu'en mode injecté, de l'ordre de 30 à 50 ns. L'explication est simple: l'impulsion injectée représente déjà un grand nombre de photons (autour de  $10^8$ ) qui peuvent tout de suite dépeupler l'état excité tandis que l'impulsion déclenchée démarre sur la fluorescence du cristal qui représente un faible nombre de photons. Un plus grand nombre d'allers et de retours de la cavité est donc nécessaire dans le deuxième cas pour extraire le gain.

Le spectre de cette impulsion est déterminé par le spectre de gain du cristal de saphir dopé au titane et du spectre des pertes de la cavité. Puisque le processus de formation d'impulsions est transitoire, le gain du milieu est pendant cette période plus grand que les pertes de la cavité. On ne peut appliquer l'analyse utilisée pour les lasers continus qui tend à montrer qu'un faible nombre de modes doit laser (voir la section I.2.2.3). Le spectre peut donc être beaucoup plus large que celui de l'oscillateur. En effet, nous avons trouvé que ce spectre, qui se trouve sur la figure I.47, avait à peu près 23 nm de large et était centré sur 780 nm.

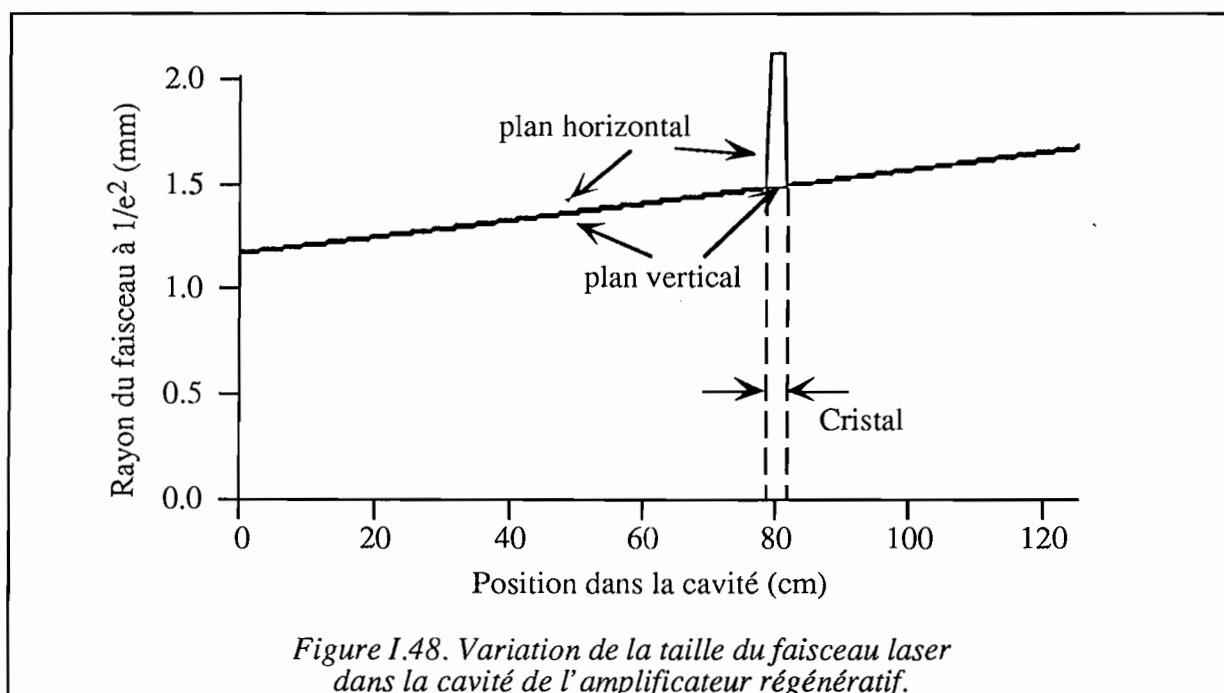


#### 1.5.3.6. La cavité laser de l'amplificateur régénératif

Le schéma de la cavité de l'amplificateur régénératif se trouve reproduit sur la figure I.39. La cellule de Pockels, CP, provient de chez MEDOX Electro-Optics, Inc. La cellule est un modèle 700-KDP et est constituée d'un cristal de KD\*P avec traitement sol-gel monté dans une cellule avec des fenêtres traitées anti-reflets à 800 nm. L'électronique de commande est un modèle DR 85-A avec synchronisation optique à 100 MHz. Chaque échelon de tension vaut 3396 V. Le polariseur *P* a des couches telles qu'une onde à 800 nm et polarisée verticalement incidente à 70° sera réfléchi tandis que la même onde mais polarisée horizontalement sera transmise. Ce polariseur est fabriqué par MATRA. Le cristal de saphir dopé au titane a une longueur de 20 mm et ses dimensions transverses sont de 5 mm par 5 mm. Il est taillé à l'angle de Brewster pour optimiser le maximum de la transmission d'une onde polarisée horizontalement.

Le cristal est pompé par des impulsions de 50 mJ à 532 nm avec un taux de répétition de 20 Hz. Ces impulsions "pompe" proviennent d'un laser Nd:YAG (B. M. Industries modèle 501-D.NS) déclenché et doublé en fréquence. La durée des impulsions est à peu près 10 ns. Une lentille *L* de longueur focale de 80 cm focalise la pompe sur le cristal.

En premier lieu, le miroir  $M_1$  du fond de la cavité était concave avec une longueur focale de 4 m tandis que le miroir  $M_2$  était convexe avec une longueur focale de -3 m. Ils avaient tous les deux une haute réflectivité à 800 nm et une haute transmission à 532 nm en incidence normale. La cavité de l'amplificateur était donc une cavité stable. L'analyse avec PARAXIA donne la figure I.48. Le faisceau est plus petit sur le miroir  $M_2$  ayant une taille de 1,17 mm et le plus gros sur le miroir  $M_1$  avec une taille de 1,67 mm. Malgré le relativement gros mode de la cavité, nous avons trouvé que cette cavité était susceptible de conduire à des dommages.



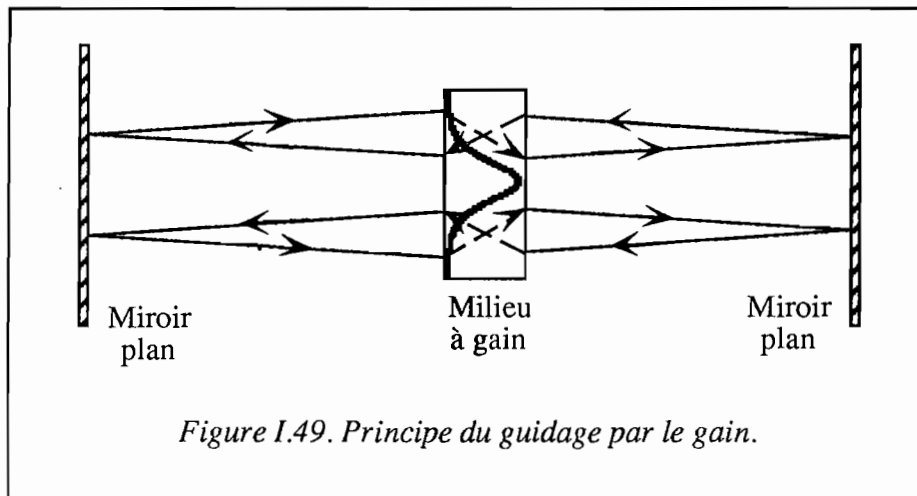
Nous avons par la suite remplacé les miroirs  $M_1$  et  $M_2$  par des miroirs plans. Le but de ce changement était d'éviter d'endommager les composants optiques (surtout le miroir  $M_2$ ) en faisant fonctionner l'amplificateur avec le plus gros faisceau possible. On remarque que cette cavité est à la limite de la stabilité géométrique. Le principe de son fonctionnement est celui du *guidage par le gain*.

Le guidage par le gain a été proposé en 1992 par Salin et Squier [50] et des résonateurs  $Ti:Al_2O_3$  basés sur ce principe ont été construits par Salin et Squier [50] et par Estable *et coll.* [51]. Ils ont démontré qu'il est possible de faire fonctionner un laser à l'état solide ayant une cavité instable pour produire un mode gaussien de grande taille et de bonne qualité.

Le guidage par le gain est fondé sur le principe qu'un milieu à gain à l'état solide qui est pompé par un faisceau de profil transverse gaussien agit en ouverture gaussienne de taille  $w_g$ :

$$w_g = \frac{w_p}{\sqrt{g_0}}, \quad (I.57)$$

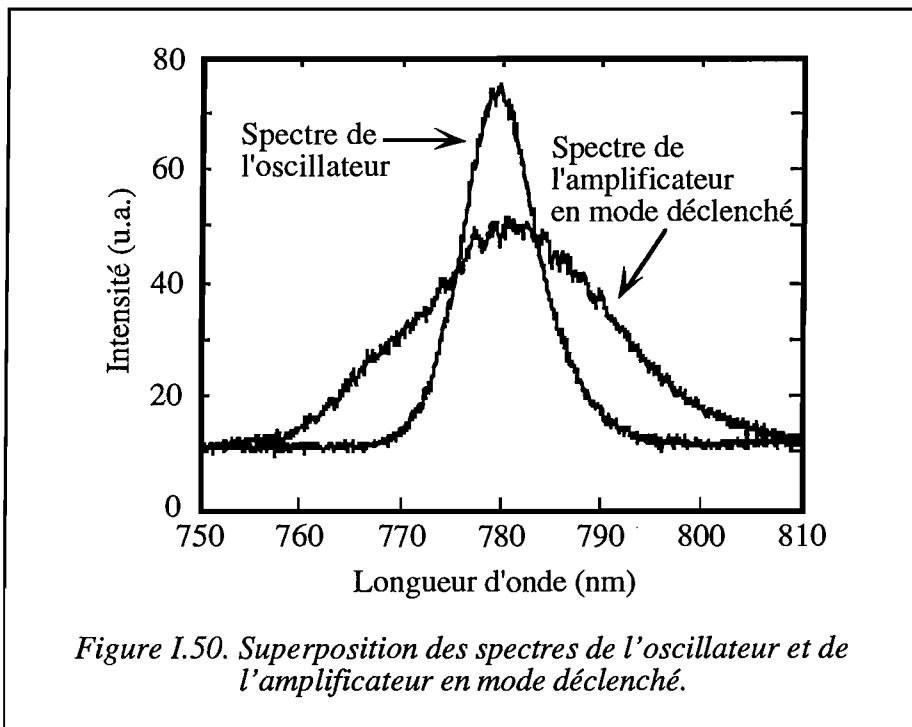
où  $w_p$  est la taille du faisceau de pompe et  $g_0$  est le gain en intensité à faible signal. La cavité équivalente est alors donnée par la figure I.49. La taille du faisceau laser en sortie du cristal est alors déterminée par la taille de l'ouverture créée par le profil de la pompe dans le cristal. Entre le cristal et les miroirs de fond de cavité, la taille du faisceau croîtra à cause de la divergence. Au retour sur le cristal, le faisceau sera beaucoup plus grand mais seulement le centre du faisceau pourra s'amplifier dans le cristal, le reste étant coupé par "l'ouverture gaussienne". Si le gain est suffisamment important pour compenser ces pertes, un fonctionnement stable de cette cavité "instable" est alors possible. Il est clair que la taille du faisceau laser est la plus petite sur le cristal et donc que les miroirs verront une densité d'énergie plus faible que précédemment. C'est donc ce montage que nous avons mis en oeuvre.



L'amplificateur régénératif délivre des impulsions picosecondes à 780 nm avec une énergie voisine de 6 mJ par impulsion pour une pompe de 50 mJ. Le taux de répétition est de 20 Hz. Nous ferons quelques commentaires supplémentaires:

- Le profil spatial des impulsions à la sortie de l'amplificateur régénératif est déterminé par la cavité de l'amplificateur et ne dépend pas du mode spatial des impulsions injectées. Ceci est un avantage de l'amplificateur régénératif sur l'amplificateur multipassage géométrique puisque le résultat est en général un faisceau plus beau à la sortie de la chaîne.

- Le spectre des impulsions à la sortie de l'amplificateur régénératif est déterminé par le produit du spectre de l'oscillateur par celui de l'amplificateur (gain). Le spectre de gain de l'amplificateur peut être visualisé en le faisant fonctionner en mode déclenché. En pratique, on essaie de centrer autant que possible le spectre de l'oscillateur et celui de l'amplificateur en mode déclenché, comme on voit sur la figure I.50.



- Les impulsions produites ont une forte dispersion positive qui est un résultat de la dispersion positive introduite par la cavité de l'oscillateur, par l'étireur et par la cavité de l'amplificateur. Cette dispersion sera compensée par le compresseur qui raccourcit les impulsions à presque leur durée initiale. Mais, avant cette ultime étape, il faut passer par l'intermédiaire d'un isolateur optique.

### I.5.3.7. L'isolateur optique

Le schéma complet de la chaîne laser se trouve sur la figure I.51. Une composante essentielle de la chaîne est l'isolateur optique qui se trouve entre l'oscillateur, l'étireur, l'amplificateur et le compresseur. Il a deux rôles: assurer qu'il n'y ait pas de retour du



faisceau laser dans l'oscillateur, puisque de tels retours déstabiliseraient le blocage de modes, et acheminer les impulsions vers la bonne partie de la chaîne.

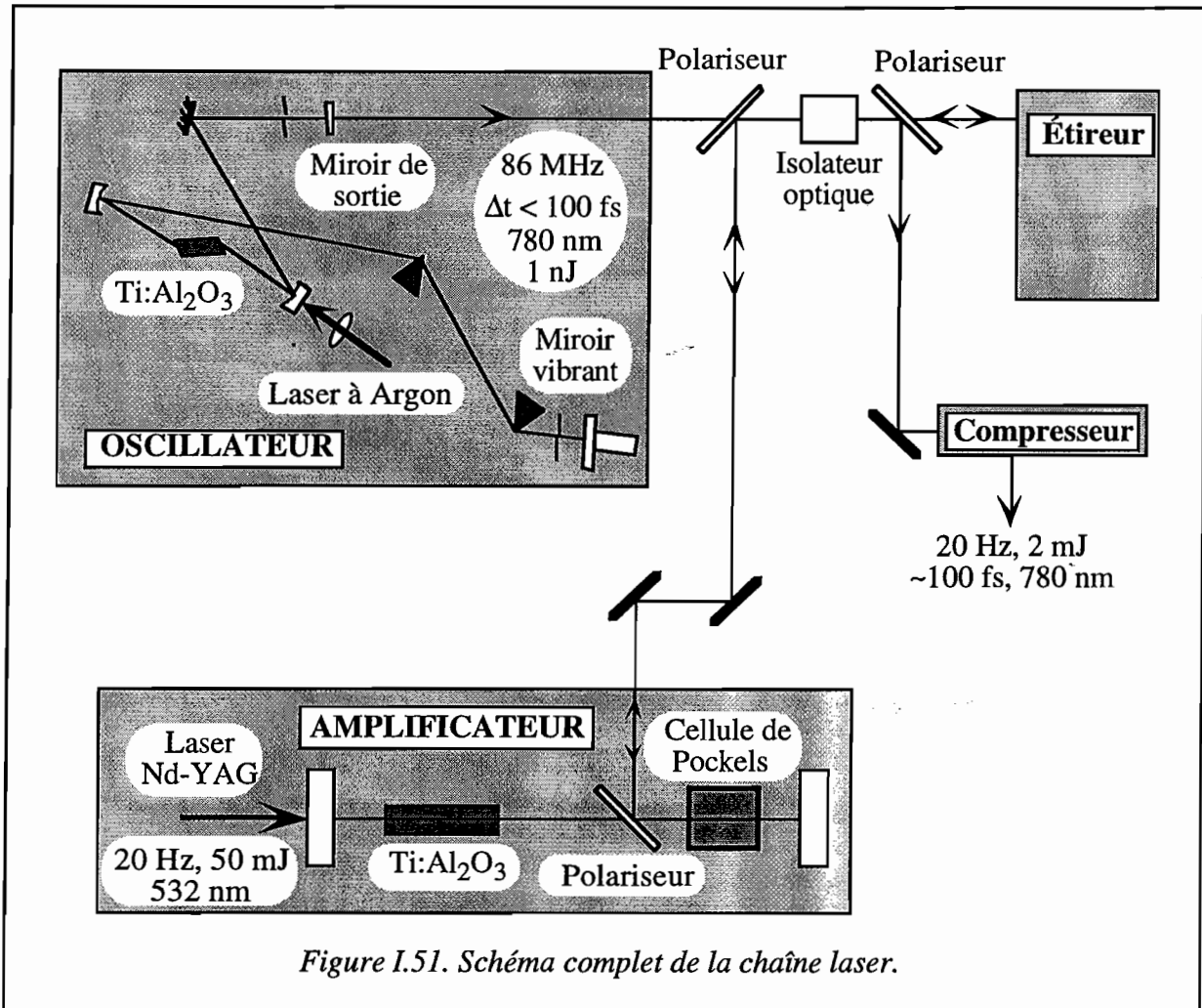
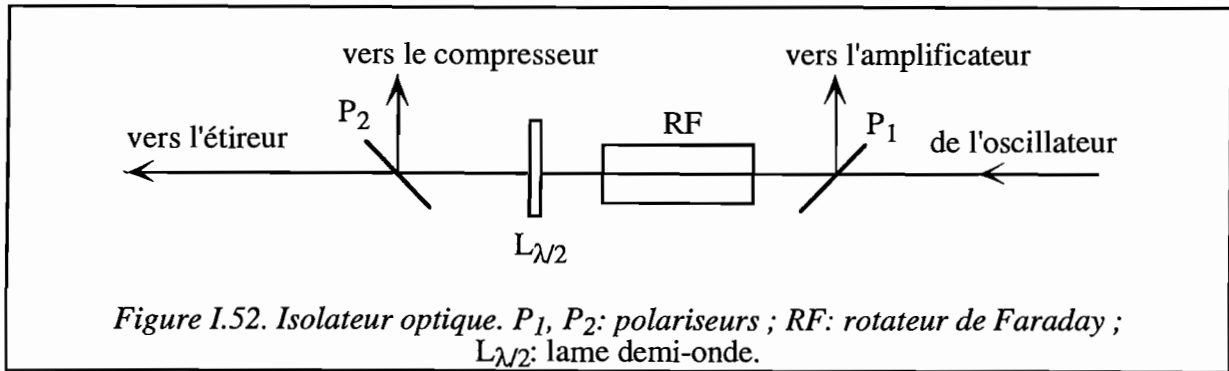
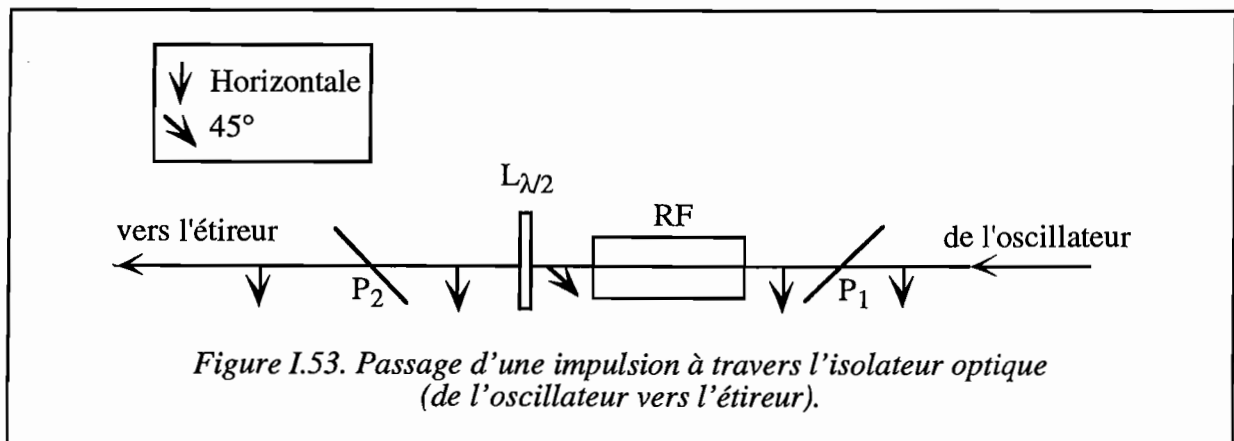


Figure I.51. Schéma complet de la chaîne laser.

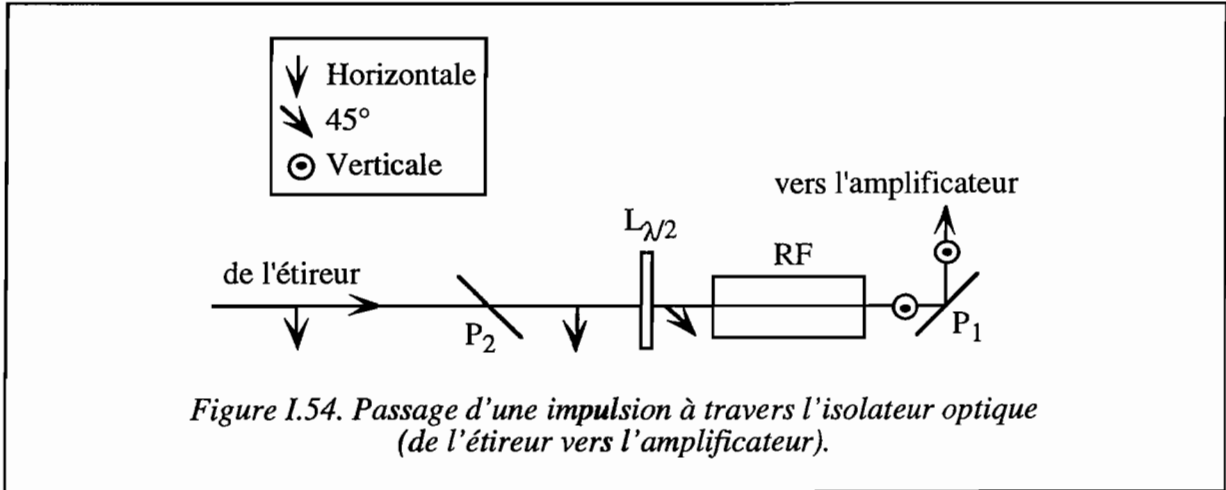
L'isolateur optique est composé d'un rotateur de Faraday (RF) et d'une lame demi-onde ( $L_{\lambda/2}$ ) placés entre deux polariseurs  $P_1$ ,  $P_2$  aux directions de polarisation parallèles (voir la figure I.52). Un rotateur de Faraday est un matériau qui tourne la polarisation d'une onde quand il est placé dans un champ magnétique statique. Le sens de la rotation dépend du champ magnétique et non pas du sens de propagation de l'onde. Le rotateur de Faraday dans ce cas tourne la polarisation d'une onde à 800 nm de  $45^\circ$ . La lame demi-onde est également orientée afin de tourner la polarisation des ondes de  $45^\circ$ .



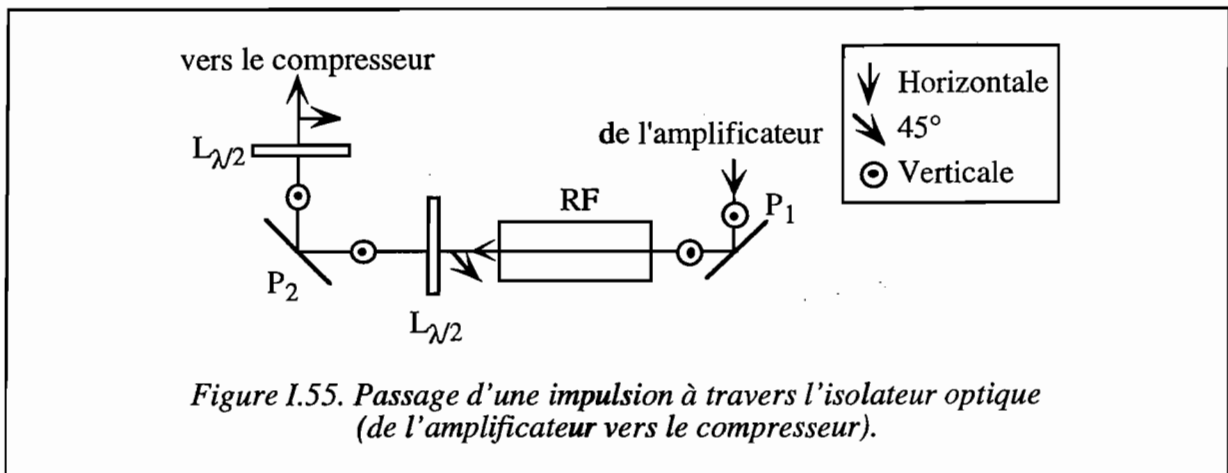
À l'aller, l'onde arrive de l'oscillateur vers l'isolateur avec une polarisation horizontale (voir la figure I.53). Elle traverse donc le premier polariseur  $P_1$  et entre dans le rotateur. Le rotateur tourne sa polarisation de  $45^\circ$  mais la lame demi-onde la ramène à l'horizontal. Elle traverse alors le deuxième polariseur  $P_2$  et passe dans l'étireur avec une polarisation horizontale.



Au retour, en provenance de l'étireur (voir la figure I.54), elle est toujours polarisée horizontalement et elle traverse le polariseur  $P_2$ . La lame demi-onde tourne la polarisation de  $45^\circ$ . Cette fois-ci, le rotateur de Faraday tourne la polarisation dans le même sens que la lame demi-onde puisque le sens de sa rotation est fixe tandis que celui de la lame demi-onde dépend de la direction de propagation de l'onde. L'onde arrive sur le polariseur  $P_1$  polarisée verticalement et est réfléchiée vers l'amplificateur. L'onde est donc polarisée comme il faut pour être injectée dans l'amplificateur.



Au retour de l'onde amplifiée (voir la figure I.55), elle est toujours polarisée verticalement. Elle se fait donc réfléchir par le polariseur  $P_1$  et passe dans le rotateur de Faraday. Dans ce sens, l'effet total du rotateur de Faraday et de la lame demi-onde sur la polarisation de l'onde est nulle. L'onde arrive donc sur le polariseur  $P_2$  polarisée verticalement et elle est réfléchi vers le compresseur. Une deuxième lame demi-onde  $L_{\lambda/2}$  ramène la polarisation à l'horizontale.



Le rotateur de Faraday est un modèle Isowave I-80-T4-H de Photonetics, S. A. spécifié à 800 nm. La lame demi-onde est également spécifié à 800 nm. Le polariseur  $P_1$  est un coin de cube spécifié pour la haute puissance entre 680 nm et 1000 nm. Le polariseur  $P_2$  est une lame fournie par MATRA et prévue pour transmettre la lumière à 800 nm polarisée horizontalement et réfléchir la lumière polarisée verticalement quand il est orienté à 70°.

#### I.5.4. Caractérisation des impulsions amplifiées

L'énergie des impulsions à la sortie du compresseur est typiquement de 2 mJ par impulsion et le taux de répétition de 20 Hz. L'énergie moyenne du laser est donc voisine de 40 mW. La stabilité en énergie de ces impulsions était de  $\pm 2\%$  (écart type). La figure I.56 donne l'énergie des impulsions durant une période d'une heure.

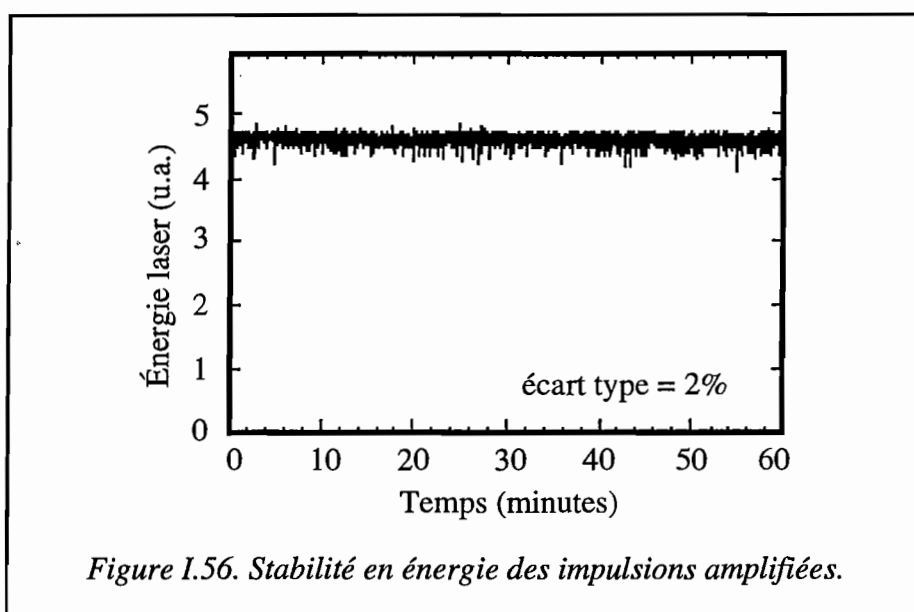
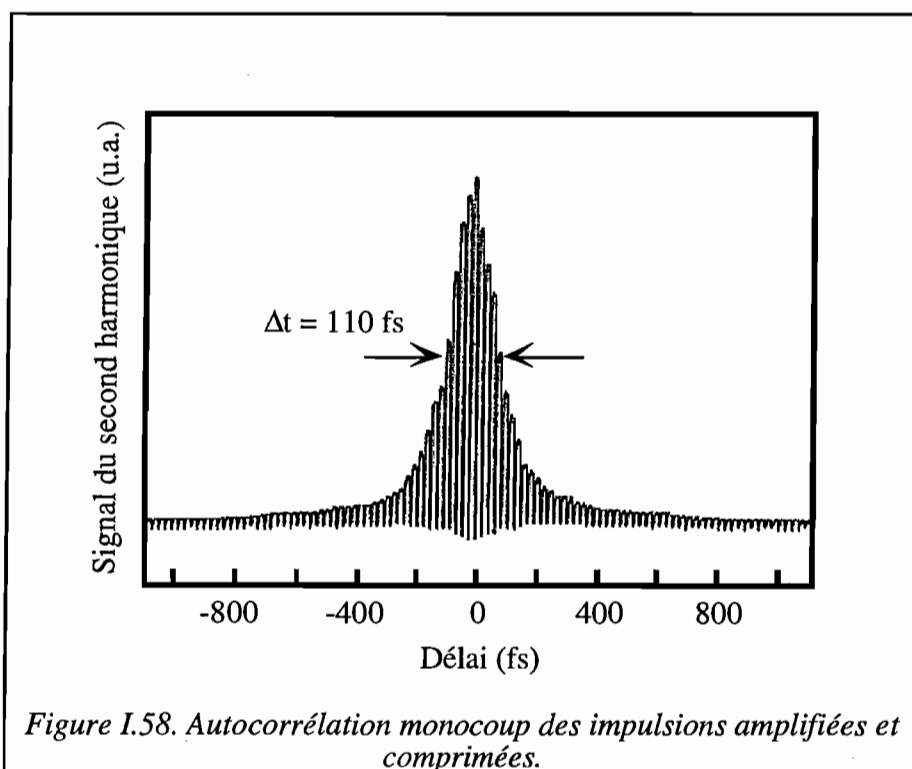
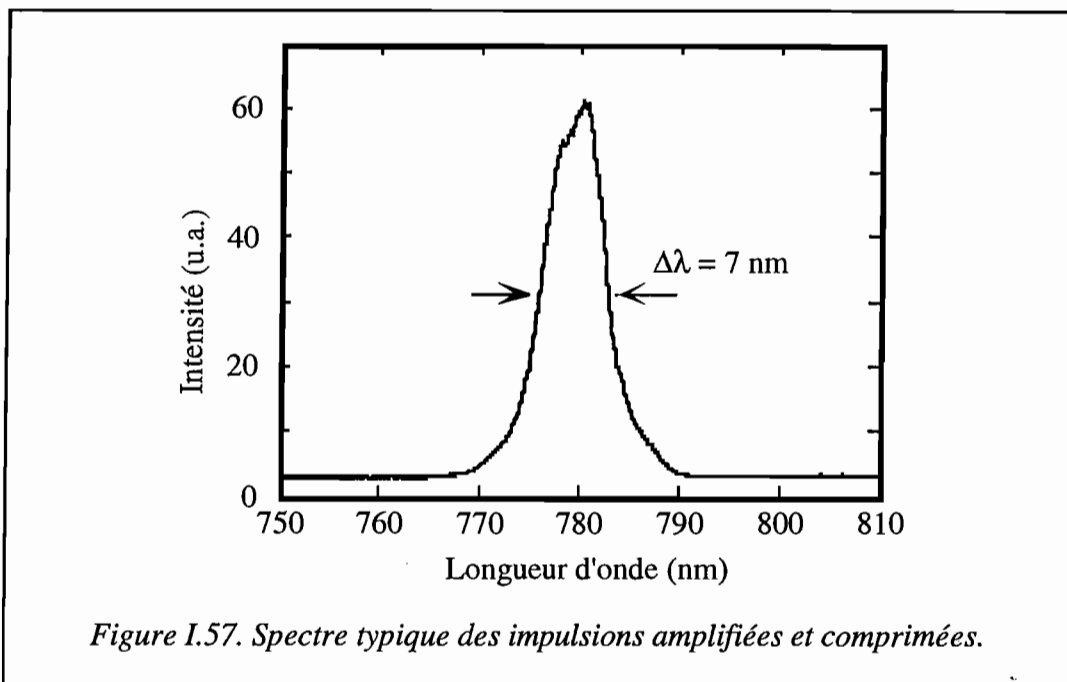


Figure I.56. Stabilité en énergie des impulsions amplifiées.

Un spectre typique se trouve reporté sur la figure I.57. Il est centré sur 780 nm et a une largeur de 7 nm. Des impulsions en forme de sécante hyperbolique au carré limitées par transformée de Fourier auraient donc une durée de 91 fs. En réalité, nous avons mesuré avec un autocorrélateur monocoup des impulsions ayant typiquement une durée de 110 fs (voir l'autocorrélation sur la figure I.58). Ces impulsions étaient donc 1,2 fois limitées par transformée de Fourier. On remarque que la puissance crête de telles impulsions est de l'ordre de 18 GW.



On remarque également que nous n'avons pas réussi à recomprimer les impulsions à leur durée initiale exacte. Ceci est dû au fait que le compresseur ne compense pas parfaitement la dispersion positive introduite par l'étireur et par l'amplificateur ainsi qu'au

filtrage spectral par le gain de l'amplificateur. En fait, on aurait pu s'attendre à une meilleure compression si l'on avait utilisé des réseaux à plus grand pas, donc moins de traits par millimètre. En revanche, un réseau à grand pas a non seulement une efficacité de diffraction réduite mais il impose à l'étireur et au compresseur d'être plus encombrants. Nous avons donc choisi de poursuivre nos travaux avec les réseaux à 2000 traits/mm.

## I.6. Conclusion

Nous avons donc construit une chaîne laser capable de produire avec une bonne stabilité des impulsions femtosecondes intenses (de l'ordre de 2 mJ et une centaine de femtosecondes) à 780 nm et à un taux de répétition de 20 Hz. Cette chaîne laser est basée sur le cristal laser de saphir dopé au titane ( $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ). Elle est composée d'un oscillateur pompé par un laser à argon suivi par un amplificateur d'impulsions pompé par un laser Nd:YAG déclenché et doublé en fréquence. L'oscillateur laser est verrouillé en phase par la méthode de la lentille de Kerr et délivre des impulsions femtosecondes nanojoules. La chaîne amplificatrice est basée sur la méthode d'amplification d'impulsions à dérive de fréquence: on étire temporellement les impulsions afin de réduire leurs intensités crêtes, on les amplifie dans un amplificateur régénératif et on les recomprime à leur durée initiale.

Les impulsions femtosecondes intenses produites par cette chaîne laser vont nous permettre d'étudier la génération d'un continuum de lumière blanche (voir le chapitre II) et l'amplification paramétrique appliquée au développement d'une source femtoseconde accordable dans le visible (voir le chapitre III) ainsi qu'à l'imagerie en milieu diffusant (voir le chapitre IV).



# **Chapitre II**

## **La génération d'un continuum de lumière blanche**





## II.1. Introduction

La génération d'un continuum de lumière blanche a été démontrée en 1970 par Alfano et Shapiro [1] mais n'est toujours pas entièrement comprise. Elle se manifeste par un élargissement très important du spectre d'une impulsion laser intense lors de son passage dans un milieu non linéaire. Typiquement, le spectre s'élargit tellement que l'impulsion devient "blanche", autrement dit, composée de fréquences couvrant tout le spectre visible.

La génération d'un continuum spectral a été démontrée dans des milieux solides [2-3], tels des cristaux et des verres, des liquides [3-4] et des gaz [5-7]. Elle est très intéressante pour la spectroscopie puisqu'elle représente une source hautement accordable: on peut choisir la longueur d'onde désirée avec un simple filtre passe-bande. En plus, nous verrons dans la section III.7 qu'il est possible d'amplifier un continuum dans un amplificateur paramétrique optique pour en faire une source intense femtoseconde et largement accordable.

L'explication de la génération d'un continuum spectral n'est pas simple à cause des hautes intensités mises en jeu. Pour être rigoureux, il faut tenir compte d'une grande quantité d'effets non linéaires, y compris l'autofocalisation et l'ionisation du milieu. Les explications que l'on propose couramment comprennent l'automodulation de phase [8-10], le mélange à quatre ondes [1,3-4], l'effet Raman [4] et la production d'un plasma [4-5]. En réalité, elle est de toute probabilité le résultat d'une combinaison de ces effets où la dominance d'un effet sur l'autre dépend de la nature exacte des conditions expérimentales.

Dans ce chapitre, je ne cherche pas à présenter une étude expérimentale approfondie de la génération d'un continuum spectral. Je me concentre plutôt sur un aspect spécifique de la génération d'un continuum spectral pour lequel on n'a jamais trouvé une explication convaincante: l'émission conique.

## II.2. L'émission conique

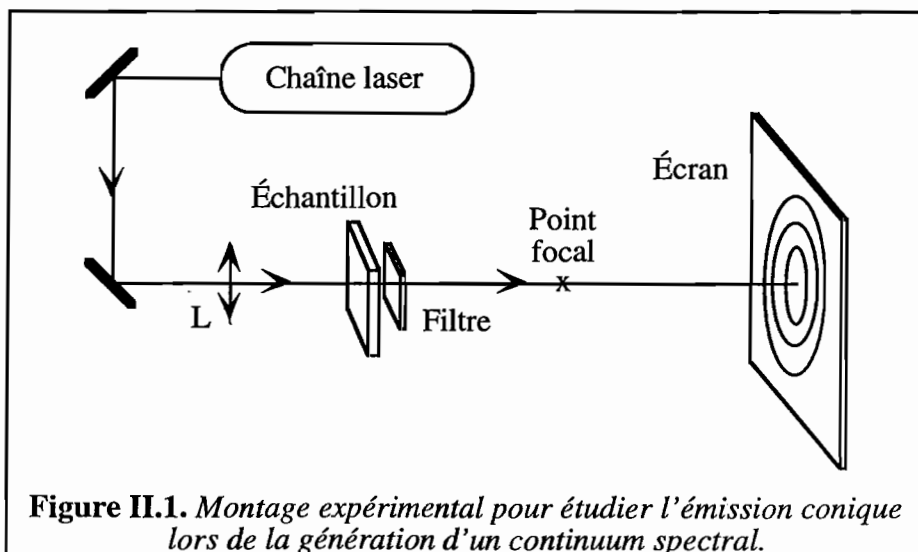
L'émission conique, qui accompagne la génération d'un continuum spectral et qui se manifeste comme un "arc-en-ciel circulaire", a été décrite pour la première fois en 1970 par Alfano et Shapiro simultanément avec leur première description de la génération d'un continuum spectral en milieu solide [1]. Ils ont tenté d'expliquer ce phénomène avec un modèle de mélange à quatre ondes du "deuxième type" (voir la section II.2.3.2 pour une

explication de ce modèle) avec une correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction [1,11]. Depuis, plusieurs autres auteurs ont remarqué la présence de ce phénomène simultanément avec la génération d'un continuum spectral en milieu liquide [4,12] et gazeux [7,13-14]. Une explication supplémentaire a été proposée pour expliquer ces expériences plus récentes: l'émission conique comme manifestation de la radiation Cerenkov [12,14].

Dans la suite, je présenterai nos observations expérimentales de l'émission conique en milieu solide et les comparerai avec les différents modèles possibles: la génération Raman, le mélange à quatre ondes et la radiation Cerenkov. Je conclurai ensuite avec une discussion sur les mérites relatifs de ces modèles à expliquer le phénomène de l'émission conique.

### II.2.1. L'expérience

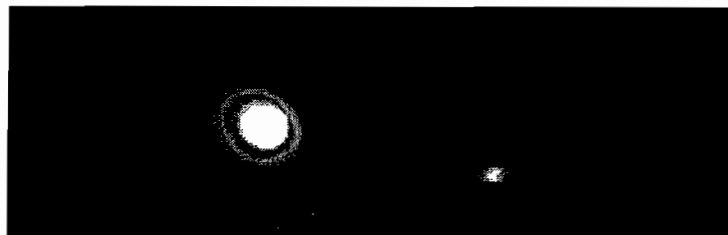
Le montage expérimental [15-16] mis en oeuvre pour étudier l'émission conique est très simple et se trouve sur la figure II.1. Une lentille sphérique L de longueur focale de 25 cm focalise les impulsions à 780 nm émises par la chaîne laser décrite dans le chapitre I de ce mémoire. On place ensuite un milieu solide devant le point focal et l'on visualise les anneaux de couleurs produits par le faisceau à la traversée du milieu sur un écran situé à environ 35 cm de l'échantillon. Comme milieu solide, nous avons utilisé une lame de silice et deux lames en verre, en FC A87-70 et en BSC B16-64. La silice a une épaisseur de 10 mm et des faces planes et parallèles. Les deux verres proviennent de la compagnie Sovirel et ont également des faces planes et parallèles. Le FC A87-70 a une épaisseur de 21,88 mm et le BSC B46-64 a une épaisseur de 7,90 mm. Pour la plupart des mesures, l'échantillon est placé à 10 cm devant le point focal, donc dans un faisceau convergent.



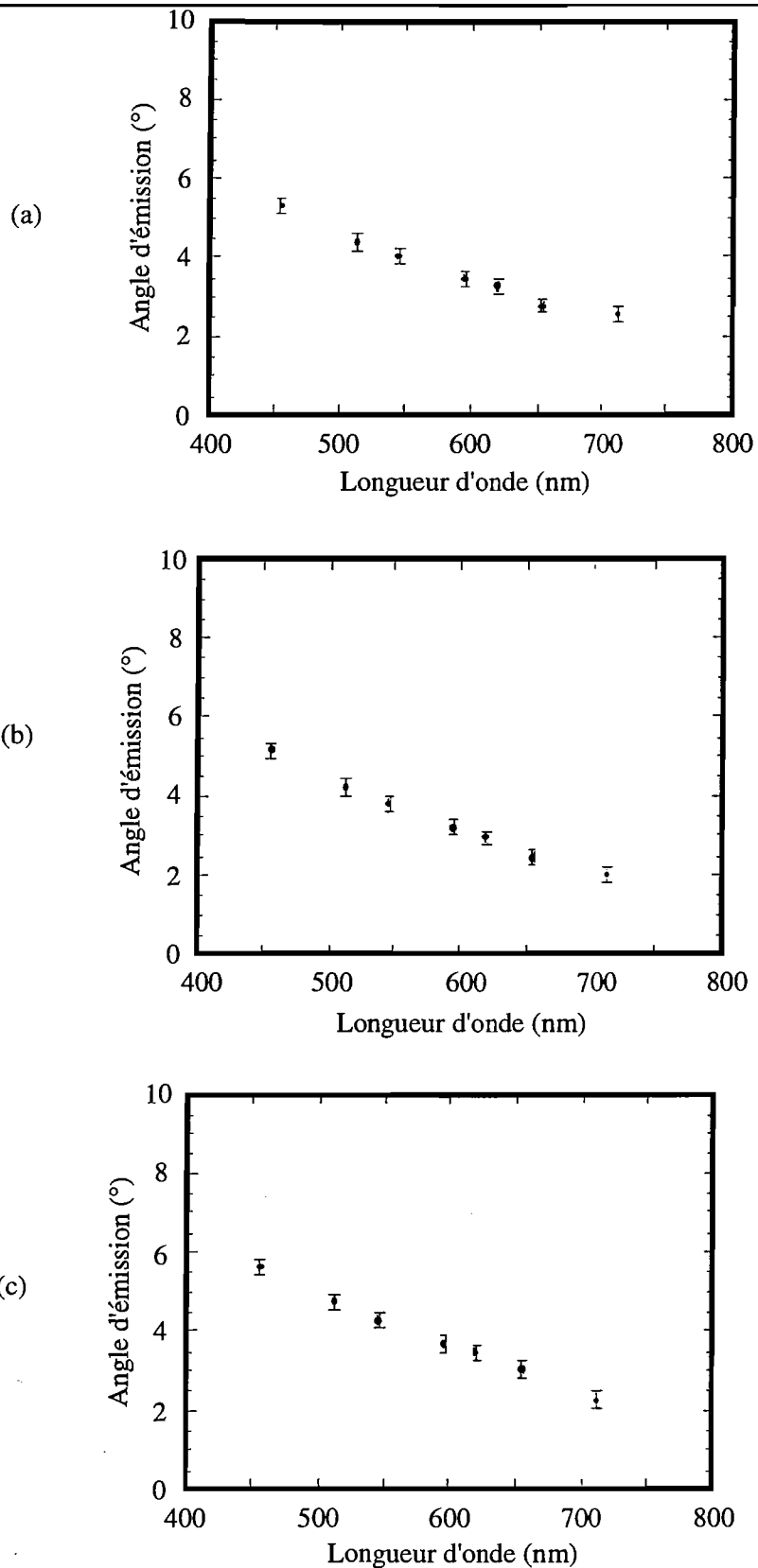
Des modifications ont été apportées à ce montage pour tester certaines propriétés de l'émission conique. Elles seront décrites plus loin en même temps que les observations correspondantes.

## II.2.2. Observations expérimentales

L'émission conique visualisée sur l'écran ressemble à un arc-en-ciel circulaire tel que représenté sur la figure II.2. Les anneaux de couleur correspondant aux hautes fréquences se trouvent à l'extérieur. Afin de sélectionner une faible bande spectrale dans le continuum, nous utilisons sept filtres interférentiels distincts. Leurs longueurs d'onde centrales sont distribuées entre 455 nm et 712 nm et ils transmettent une bande d'environ 10 nm de large. La variation du diamètre angulaire de ces anneaux est donnée sur la figure II.3 pour les trois échantillons. Les angles d'émission mesurés dans l'air sont corrigés de l'effet de réfraction à l'interface du verre et de l'air. Il est important de noter que ces anneaux ne correspondent qu'à des fréquences plus hautes que la fréquence de pompe (longueur d'onde 780 nm). Aucune émission conique n'est observée à des fréquences plus basses. La polarisation des anneaux est identique à celle du laser, linéaire et horizontale.



**Figure II.2.** *Photo de l'émission conique engendrée à partir d'un faisceau de pompe à 780 nm.*

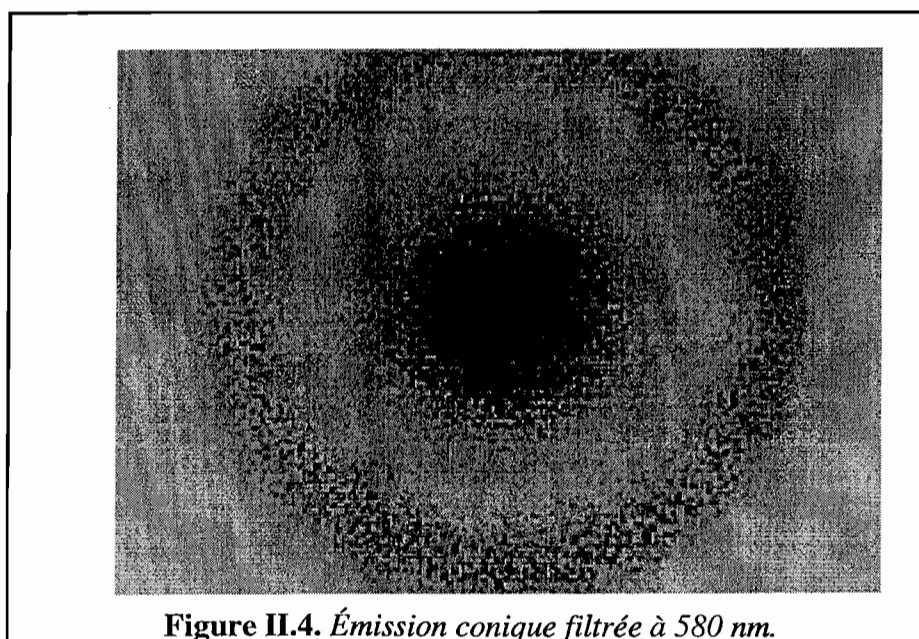


**Figure II.3.** La variation du diamètre angulaire des anneaux de l'émission conique. Résultats expérimentaux pour trois échantillons. (a) Silice ; (b) Verre (FC A87-70) ; (c) Verre (B16-64).

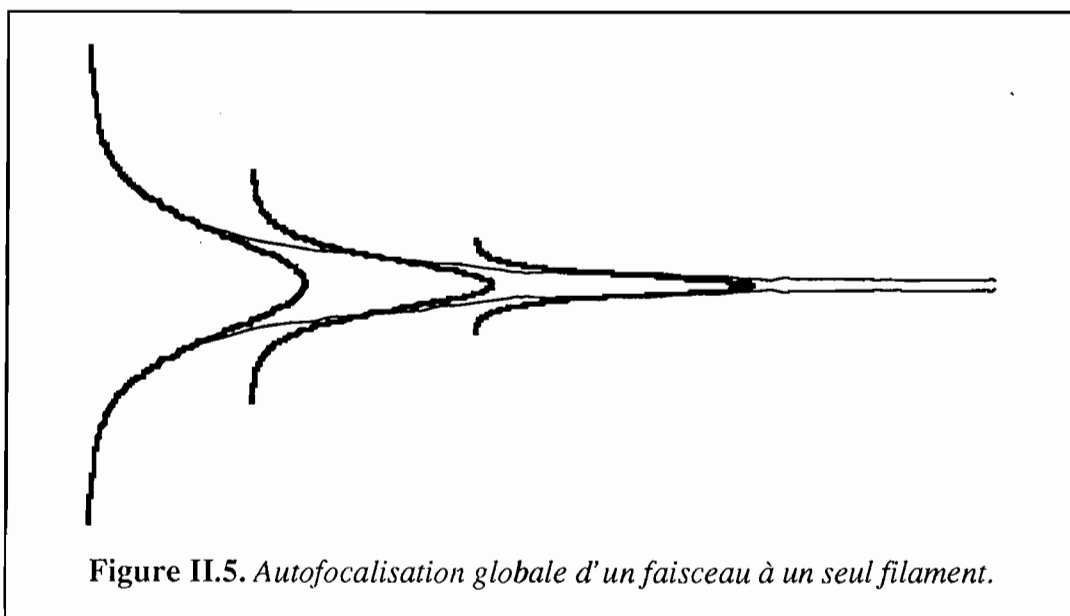
L'émission conique manifeste clairement un comportement à seuil qui dépend de l'intensité crête des impulsions. Donc, des impulsions de trop basse énergie, de trop longue durée ou trop peu focalisées ne provoquent pas la génération d'un continuum spectral et l'émission conique. Ceci dit, mis à part cet effet de seuil, l'angle d'émission des anneaux ne dépend ni de l'énergie des impulsions ni de leur durée temporelle, que nous avons ajustée en faisant varier la distance entre les réseaux du compresseur de la chaîne laser.

D'autre part, l'angle d'émission des anneaux de couleur ne dépend en aucune manière de la focalisation des impulsions. Des lentilles de différentes longueurs focales ont été utilisées pour focaliser les impulsions sur les échantillons sans changement mesurable des angles d'émission. Nous avons utilisé des lentilles cylindriques pour induire l'émission conique sans produire de modification dans la forme spatiale de cette émission. La focalisation des impulsions par une lentille cylindrique, comme par une lentille sphérique, mène donc à une émission parfaitement circulaire et non pas elliptique. Nous avons également tenté de faire varier la forme spatiale de cette émission en déplaçant les échantillons par rapport au point focal mais sans succès. Plus spécifiquement, la convergence ou la divergence du faisceau de pompe n'a pas d'effet sur l'émission conique.

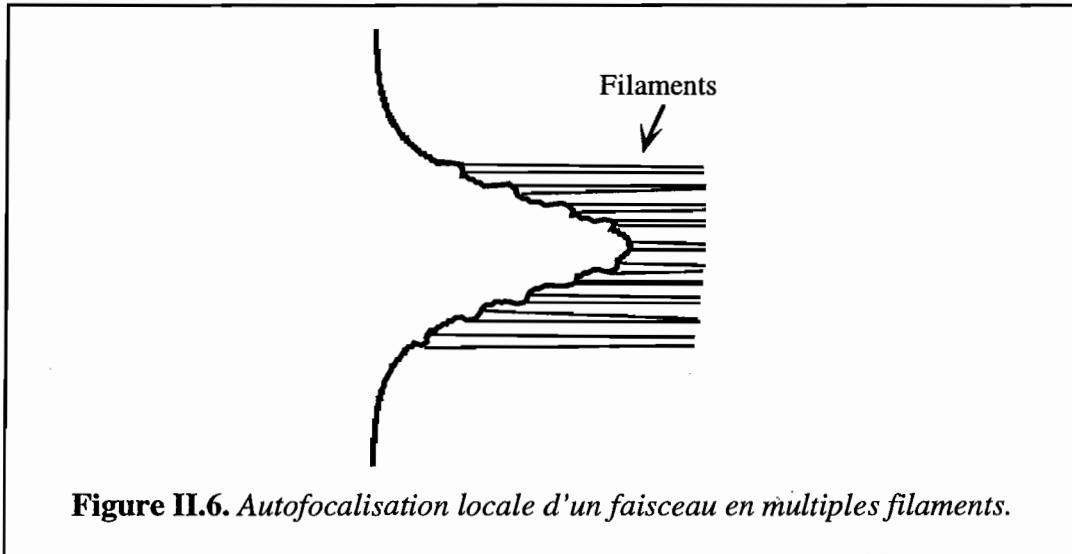
À une fréquence d'émission donnée, un anneau de couleur donnée (en choisissant le filtre) encercle un disque central de la même couleur (voir la figure II.4). Le rayon de ce disque est lui aussi plus grand aux fréquences plus élevées. Un phénomène intéressant est qu'au-dessus d'une valeur de seuil de l'intensité des impulsions, le disque central grandit et remplit l'anneau extérieur sans le dépasser. Donc, si l'on visualise le continuum à hautes intensités sans filtrage spectral, on voit un disque central blanc très brillant entouré d'une auréole bleue. Ce phénomène a déjà été décrit par Lee Smith *et coll.* [4] sans explication.



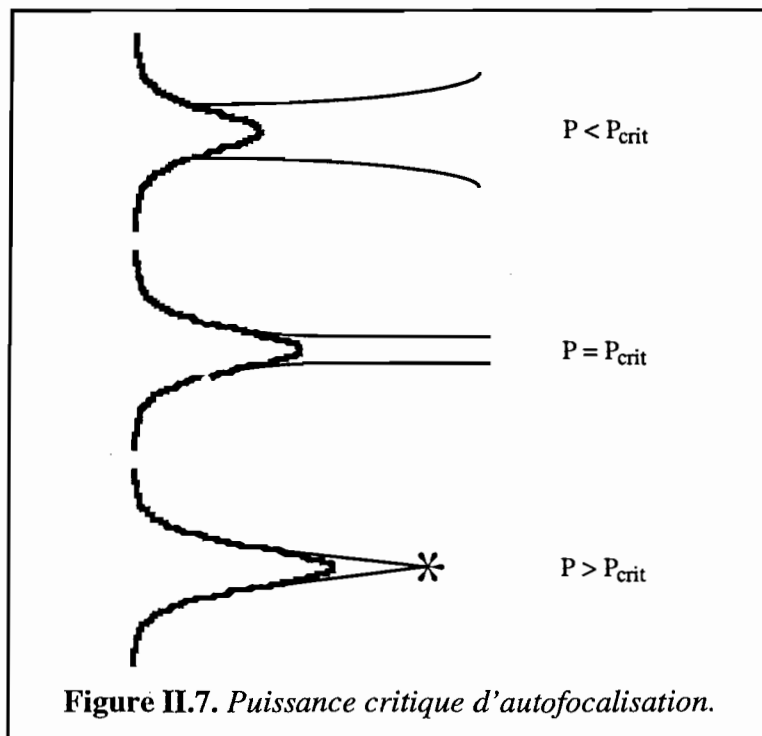
Nous avons observé que l'émission conique est toujours accompagnée d'autofocalisation (voir la section I.2.2.3 de ce mémoire) et de filamentation, qui est elle-même un résultat de l'autofocalisation. L'autofocalisation provient de l'effet lentille produit par la non linéarité de l'indice de réfraction du milieu (voir la section I.2.2.2d). Il existe deux types d'autofocalisation: l'autofocalisation globale et l'autofocalisation locale. Lorsque le profil transversal en intensité d'une impulsion ne présente aucune modulation, le faisceau peut s'autofocaliser en un filament selon la figure II.5 et on parle d'autofocalisation globale. Si, en revanche, le profil transverse en intensité du faisceau laser présente une modulation, chaque défaut du profil est équivalent à une microlentille et le faisceau se brise en multiples filaments (voir la figure II.6). Ce phénomène, que l'on appelle l'autofocalisation locale, est typique de nos expériences.



Le retard de phase introduit par l'effet lentille est égal à  $\Delta\varphi = (\omega z/c_0) n_2 I$ , où  $\omega$  est la fréquence angulaire de l'onde,  $z$  est la distance parcourue dans le milieu,  $c_0$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $n_2$  est l'indice non linéaire du milieu et  $I$  est l'intensité instantanée du faisceau. La longueur focale d'autofocalisation dépend donc de la courbure du profil en intensité du faisceau. On trouve donc que l'autofocalisation locale mène à une autofocalisation plus rapide du faisceau laser que l'autofocalisation globale puisque les courbures des modulations sur le profil transverse de l'intensité du faisceau (voir la figure II.6) sont plus grandes que celle du profil global (voir la figure II.5).

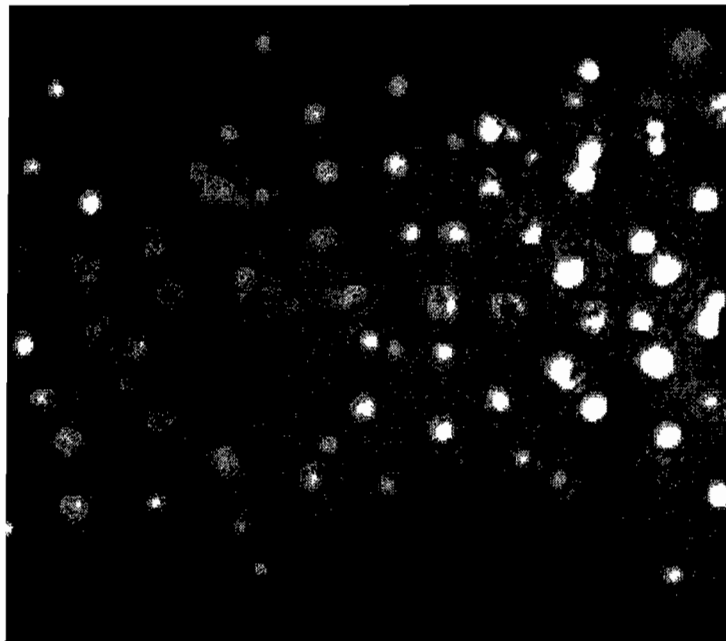


On a observé que cet effet d'autofocalisation présente un seuil. Il a par ailleurs été montré théoriquement qu'il existe une puissance critique d'autofocalisation [17] qui dépend du milieu. Pour une puissance inférieure à la puissance critique, la diffraction est plus importante que l'autofocalisation et le faisceau diverge. Théoriquement, quand la puissance du laser est exactement la puissance critique, l'autofocalisation compense parfaitement la diffraction et le faisceau est piégé (on note qu'en pratique cette situation ne peut se réaliser qu'en deux dimensions). Enfin, lorsque la puissance du faisceau est supérieure à la puissance critique, l'autofocalisation l'emporte. Ces trois cas sont représentés schématiquement sur la figure II.7.



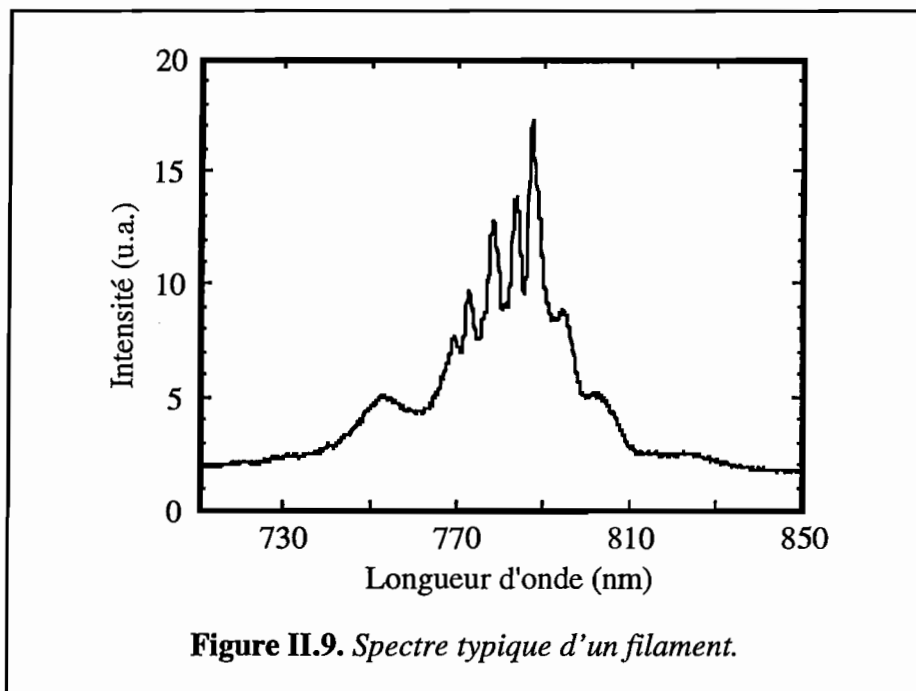


Afin de visualiser la filamentation, nous avons fait l'image de la face de sortie de l'échantillon éclairé par le faisceau laser (voir la figure II.8). Le nombre de filaments engendrés dépend de la puissance des impulsions, ce qui est en accord avec d'autres études qui démontrent qu'il existe une limite à l'intensité piégée dans un filament [4]. Nous avons trouvé que le diamètre de tous les filaments est identique et vaut environ  $8\ \mu\text{m}$  quelle que soit la puissance de l'impulsion. La puissance dans chaque filament est donc également limitée et de nouveaux filaments sont produits quand cette limite est dépassée [18]. Pour une puissance des impulsions donnée, le nombre et les positions des filaments sont parfaitement stables. Cependant, lors d'un déplacement de l'échantillon transversalement au faisceau laser, certains filaments se déplacent simultanément tandis que d'autres restent stationnaires. Ceci indique que la génération des filaments dépend à la fois des inhomogénéités spatiales de l'échantillon et du profil spatial du faisceau laser. Puisque l'autofocalisation est un effet spatial, toute modulation du profil spatial du faisceau peut être source d'autofocalisation et de filamentation. Donc, si le profil spatial du faisceau reste constant, les filaments devraient être stationnaires.



**Figure II.8.** *Image de la face de sortie de l'échantillon éclairé par le faisceau laser.*

Nous avons isolé un filament individuel et enregistré son spectre sur un analyseur optique multicanal. Un spectre typique se trouve sur la figure II.9. Qualitativement, il ressemble à un spectre élargi par automodulation de phase autour de la longueur d'onde de pompe de 780 nm. On remarque que l'élargissement du spectre se fait à des fréquences plus hautes et plus basses que la fréquence de pompe tandis que l'émission conique ne se fait qu'à des fréquences plus hautes. Un examen soigneux de l'émission d'un filament nous a appris que chaque filament est lui-même une source d'émission conique. Les anneaux de couleurs observés sont donc le résultat d'une sommation incohérente des anneaux individuels émis par chaque filament. Il faut être clair: l'émission conique et l'automodulation de phase présente dans les filaments sont des phénomènes indépendants. L'automodulation de phase se manifeste dans le faisceau lui-même (donc sur l'axe) tandis que l'émission conique entoure le faisceau central.



### II.2.3. Les explications proposées

La première caractéristique spectaculaire du continuum spectral est de produire un spectre extrêmement large. Dans l'état actuel des connaissances, il semblerait que cela soit en grande partie dû à l'automodulation de phase [13]. Nous avons vu dans la section I.2.2.3 qu'une impulsion intense voit un élargissement de son spectre en traversant un milieu non linéaire. S'il est clair que l'automodulation de phase doit jouer un rôle important dans la

création d'un continuum de lumière blanche, il est cependant moins évident d'envisager comment cette automodulation de phase pourrait engendrer une émission conique telle que nous avons décrite dans la section II.2.2. Il faut donc faire appel à d'autres effets pour expliquer les caractéristiques spatiales du continuum spectral, en particulier l'émission conique.

Dans la suite, nous chercherons à utiliser les modèles théoriques proposés dans la littérature pour expliquer nos observations expérimentales sur l'émission conique. De cette manière, nous pourrions tester les prédictions des différents modèles. Les explications principales de l'émission conique sont le mélange à quatre ondes, la génération Raman et la radiation Cerenkov.

### II.2.3.1. Le mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes est un processus non linéaire du troisième ordre. Il dépend donc de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre du milieu, le  $\chi^{(3)}$ . Il présente de nombreuses similitudes avec le mélange à trois ondes que nous verrons en détail dans la section III.3. Le principe est le suivant: une onde est créée à partir du mélange de trois autres ondes, soit par somme de fréquences, soit par différence de fréquences. Une étude approfondie de la génération des continua de lumière picoseconde par mélange à quatre ondes dans des liquides et des solides a été faite par Penzkofer et Kaiser [3]. Ici, nous nous intéresserons seulement à la possibilité d'expliquer l'émission conique à partir de cette théorie.

Le processus du mélange à quatre ondes que nous considérons est la sommation de deux photons à la fréquence du laser de pompe,  $\omega_l$ , pour créer un photon de fréquence  $\omega_b$  plus basse que  $\omega_l$  et un photon de fréquence  $\omega_h$  plus haute que  $\omega_l$ . Ce processus doit satisfaire à la conservation d'énergie et à la conservation de la quantité de mouvement. Par conséquent, on peut écrire

$$\omega_h = 2\omega_l - \omega_b \quad (\text{II.1})$$

et

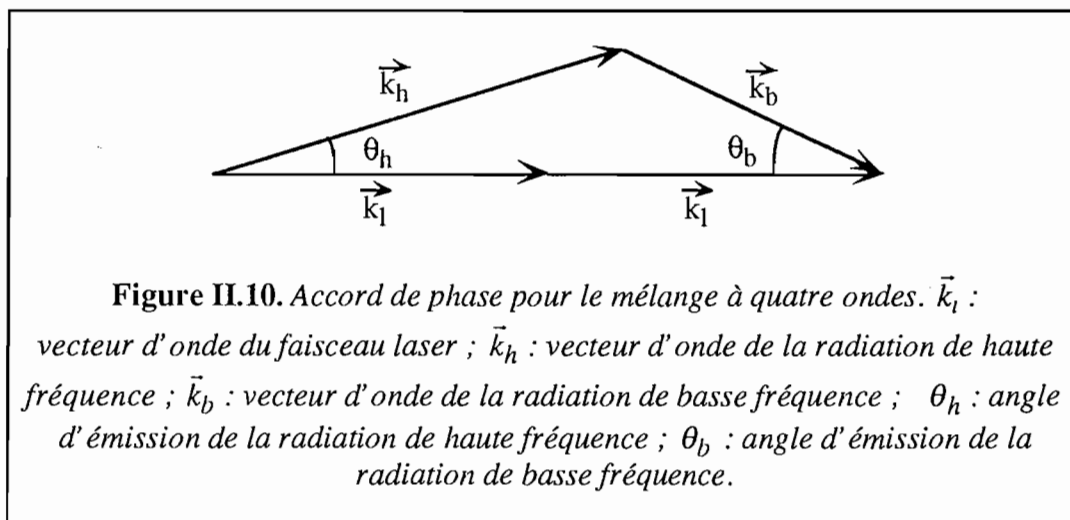
$$\vec{k}_h = 2\vec{k}_l - \vec{k}_b, \quad (\text{II.2})$$

où  $\vec{k}_h$ ,  $\vec{k}_l$  et  $\vec{k}_b$  sont respectivement les vecteurs d'ondes associés aux fréquences  $\omega_h$ ,  $\omega_l$  et  $\omega_b$ . L'équation II.2, également appelée l'équation d'accord de phase, est représentée graphiquement sur la figure II.10. L'angle  $\theta_h$  est alors l'angle d'émission de la radiation de plus haute fréquence que celle de la pompe tandis que l'angle  $\theta_b$  est l'angle d'émission de la

radiation de plus basse fréquence que celle de la pompe. Puisque  $k = n\omega/c$ , où  $n$  est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence  $\omega$ , et  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide, l'équation vectorielle II.2 est équivalente aux deux équations scalaires suivantes:

$$n_h \omega_h \cos \theta_h = 2 n_l \omega_l - n_b \omega_b \cos \theta_b \text{ et} \quad (\text{II.3})$$

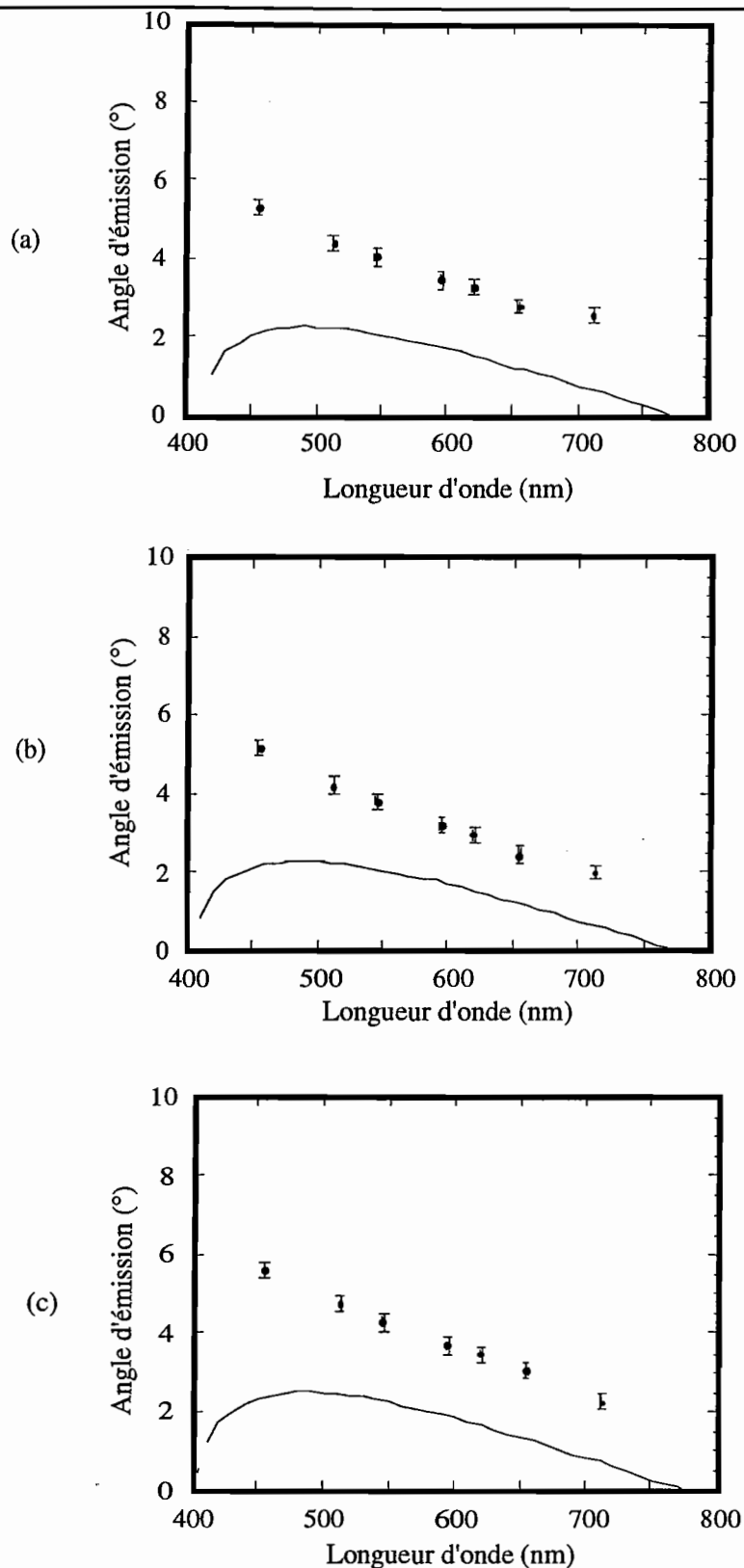
$$n_h \omega_h \sin \theta_h = n_b \omega_b \sin \theta_b . \quad (\text{II.4})$$



L'angle d'émission de la radiation de haute fréquence est donc donné par

$$\cos \theta_h = \frac{4 n_l^2 \omega_l^2 + n_h^2 \omega_h^2 - n_b^2 \omega_b^2}{4 n_l \omega_l n_h \omega_h} . \quad (\text{II.5})$$

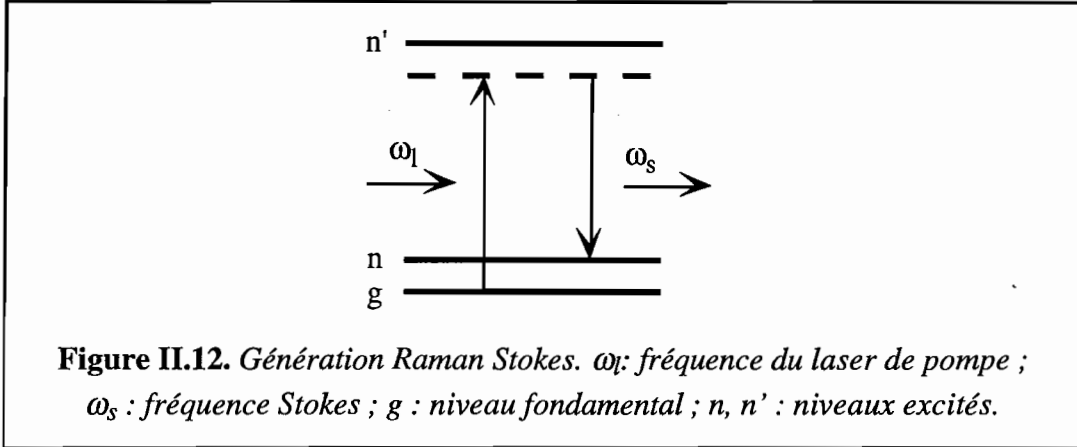
En se servant des équations II.1 et II.5, il est donc possible de tracer la dépendance théorique de l'angle d'émission de la radiation de haute fréquence en fonction de la longueur d'onde. Sur la figure II.11, nous avons reporté cette dépendance théorique pour les trois milieux que nous avons considérés et y avons ajouté les données expérimentales de la figure II.3. Il est clair que les angles prévus par la théorie sont plus petits d'environ 50%. De plus, cette théorie prévoit clairement l'émission conique de radiation à des fréquences plus basses que celle de la pompe, ce que nous n'avons pas observé. Cette théorie n'est donc pas convaincante comme explication de l'émission conique de nos expériences.



**Figure II.11.** Mélange à quatre ondes : dépendance théorique de l'angle d'émission de la radiation de fréquence plus haute que celle de la pompe en fonction de la longueur d'onde (en trait plein) et les résultats expérimentaux pour trois échantillons. (a) Silice, (b) Verre (FC A87-70), (c) Verre (B16-64).

### II.2.3.2. La génération Raman

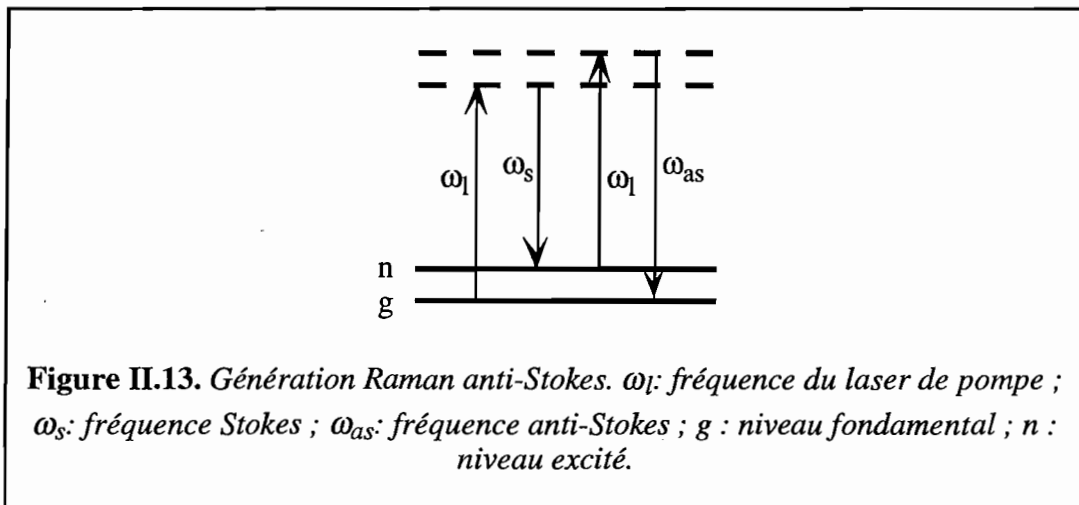
La génération Raman est un produit de l'interaction des photons de pompe avec les modes vibrationnels du matériau. Un photon de fréquence  $\omega_l$  excite les molécules du milieu traversé à des niveaux virtuels; ceux-ci se désexcitent rapidement à des niveaux vibrationnels avec émission d'un photon Stokes de fréquence  $\omega_s$ . La figure II.12 démontre cet effet schématiquement. La fréquence Stokes est nécessairement plus basse que la fréquence de pompe.



La génération de photons anti-Stokes (de fréquence plus hautes que celle de la pompe) n'est pas un processus purement Raman. Elle est le résultat d'un mélange à quatre ondes entre deux photons de pompe et un photon Stokes. Ainsi,

$$\omega_{as} = 2\omega_l - \omega_{st}, \quad (\text{II.6})$$

où  $\omega_{as}$  est la fréquence anti-Stokes,  $\omega_l$  est la fréquence du laser de pompe, et  $\omega_{st}$  est la fréquence Stokes. Ce processus peut être représenté selon la figure II.13.



Lorsque l'on considère le mélange à quatre ondes conjointement avec la génération Raman dans un filament, on est obligé de considérer deux classes de radiation. Une étude théorique approfondie de ces deux classes de radiation Raman a déjà été faite par Shimoda [19].

Quand l'angle entre les rayonnements Stokes et pompe est grand, on parle de radiation de *classe I*. Comme pour le mélange à quatre ondes seul, l'émission des radiations de fréquence plus haute que celle de la pompe (les radiations anti-Stokes dans la théorie de l'émission Raman) doit satisfaire à l'équation d'accord de phase (l'équation II.2). Par conséquent, on retrouve exactement les évolutions présentées sur la figure II.11. Cette classe d'émission est typique de la radiation Raman de filaments de grand diamètre (de l'ordre du millimètre). L'émission conique de nos expériences ne peut pas être décrite par la radiation de classe I. Tout d'abord, le diamètre des filaments que nous avons observés était de l'ordre de 8  $\mu\text{m}$ , et de plus, comme nous venons de le voir, l'angle d'émission prévu par cette théorie est trop petit.

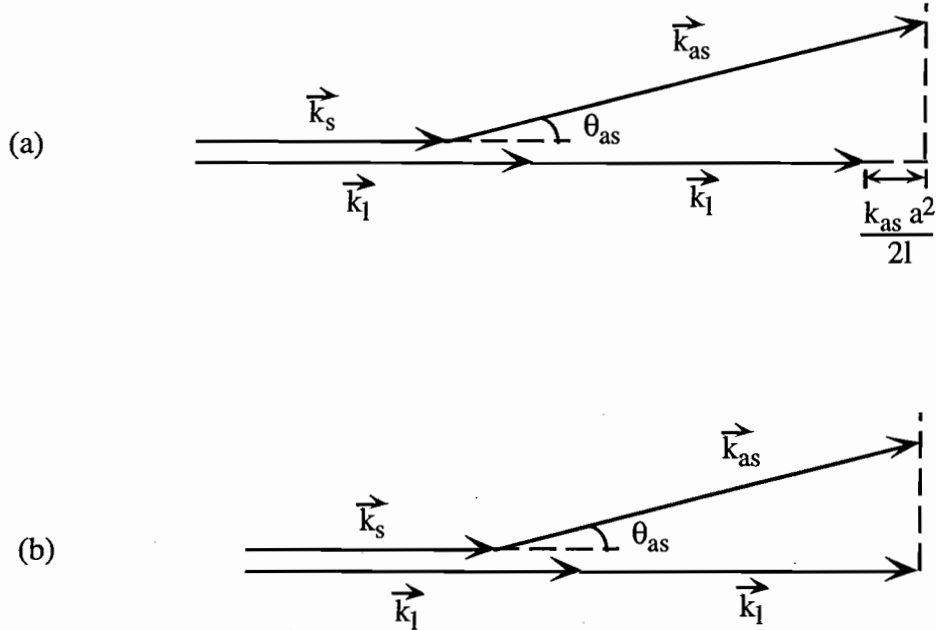
La radiation de *classe II* correspond au cas où la radiation Stokes est émise le long de l'axe de propagation de la pompe et le diamètre du filament est très petit (moins d'un millimètre). L'accord de phase du mélange à quatre ondes (l'équation II.2) peut alors ne pas être satisfait (voir la figure II.14a). L'angle d'émission de la radiation anti-Stokes peut être calculé à partir de l'équation suivante [19]:

$$\theta_{as}^2 = \frac{2 \Delta k_{as}}{k_{as}} - \frac{a^2}{2l}, \quad (\text{II.7})$$

où  $\Delta k_{as}$  est défini par

$$\Delta k_{as} = k_{as} + k_s - 2k_l, \quad (\text{II.8})$$

$2a$  est le diamètre du filament et  $2l$  est sa longueur. On peut remarquer que, lorsque le terme  $a^2/2l$  devient négligeable, on peut obtenir l'équation II.7 d'après la figure II.14b en supposant qu'il y a accord de phase dans le sens de la propagation du faisceau.



**Figure II.14.** Relation entre les vecteurs d'onde  $\vec{k}_l$  : vecteur d'onde du faisceau laser ;  $\vec{k}_{as}$  : vecteur d'onde de la radiation anti-Stokes ;  $\vec{k}_s$  : vecteur d'onde de la radiation Stokes ;  $\theta_{as}$  : angle d'émission de la radiation anti-Stokes.

a) Avec le terme correctif  $\frac{k_{as} a^2}{2l}$ .

b) Le terme correctif  $\frac{k_{as} a^2}{2l}$  est négligeable.

Xing *et coll.* [11] ont récemment utilisé cette théorie de l'émission Raman de classe II d'un filament pour expliquer l'émission conique qu'ils avaient observée lors de la propagation d'impulsions de 100 fs à 620 nm dans de l'éthylène glycol. Ils y ont ajouté une correction pour tenir compte de la non linéarité de l'indice de réfraction. L'équation II.7 devenait alors

$$\theta_{as}^2 = \frac{2 \Delta k_{as}}{k_{as}} + \frac{4 \Delta k}{k_{as}} - \frac{a^2}{2l}, \quad (\text{II.9})$$

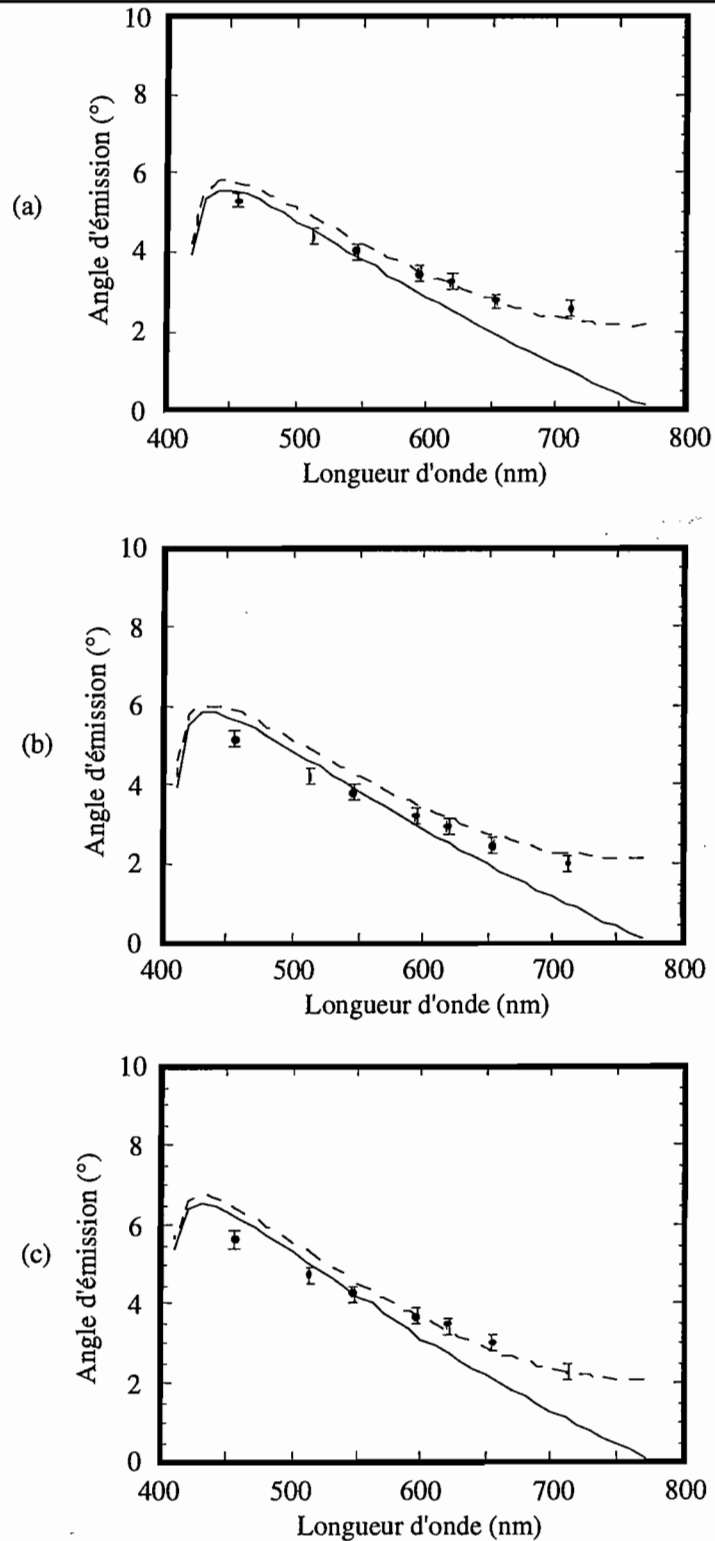
où  $\Delta k = \Delta n_l \omega_l / c$ ,  $\Delta n_l = n_2 I / 4 n_l$ ,  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire du milieu (voir l'annexe A),  $I$  est l'intensité du laser et  $n_l$  est l'indice de réfraction linéaire du milieu à la longueur d'onde du laser de pompe. L'accord de leurs résultats avec cette théorie n'est pas tout à fait convaincant puisque la pente de la courbe théorique est clairement différente de celle des données expérimentales. Malheureusement, ils n'ont pas donné la valeur de l'incertitude expérimentale pour permettre une comparaison claire entre l'expérience et la théorie.



Sur la figure II.15, nous avons dessiné les courbes théoriques de l'émission Raman de classe II pour nos trois échantillons. Nous avons également indiqué les données expérimentales de la figure II.3. La courbe en traits pleins correspond à l'émission selon l'équation II.7 sans correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction. Nous avons supposé que le terme  $a^2/2l$  était négligeable puisque  $2a \approx 8 \mu\text{m}$  et  $2l$  est de l'ordre de plusieurs millimètres. On voit que l'accord avec nos résultats n'est pas extraordinaire. La pente théorique ne correspond pas aux données expérimentales. La ligne pointillée comprend un terme de correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction selon l'équation II.9. Les valeurs de  $n_2$  et  $I$  utilisées étaient respectivement  $3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  et  $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ , ce qui correspond à la puissance critique d'autofocalisation. On voit qu'avec ce terme de correction l'accord de la théorie avec les données expérimentales est meilleur même s'il n'est toujours pas parfait. Ceci dit, il y a deux raisons pour lesquelles la génération Raman n'est pas convaincante comme explication de l'émission conique que nous avons observée. La première est que l'on devrait retrouver dans le spectre une structure correspondante aux fréquences Raman du milieu et non pas au spectre continu de nos expériences. La deuxième raison est liée au fait que nous observons des anneaux à des fréquences supérieures à celle de la pompe, qui correspondraient à des photons anti-Stokes; or pour les produire, il faut dans un premier temps engendrer des photons Stokes. Il est alors difficile d'expliquer la présence d'anneaux à 450 nm, ce qui d'après l'équation II.1 veut dire que l'émission Stokes se situait à 2925 nm, puisque l'absorption du verre à  $3 \mu\text{m}$  n'est pas négligeable et devrait empêcher l'émission Raman à cette longueur d'onde. Il faut donc trouver un mécanisme qui ne repose pas sur l'émission préalable de photons infrarouges.

### II.2.3.3. La radiation Cerenkov

En 1980, Skinner et Kleiber [20] ont étudié l'émission conique accompagnant l'autofocalisation dans une vapeur de baryum. Ils ont trouvé que les explications traditionnelles de cette émission (telle l'émission Raman) ne suffisaient pas pour expliquer leurs observations. Ils ont proposé que *la radiation Cerenkov* pourrait être responsable de cette émission mais n'ont pas fait de comparaison de leurs mesures avec la théorie.



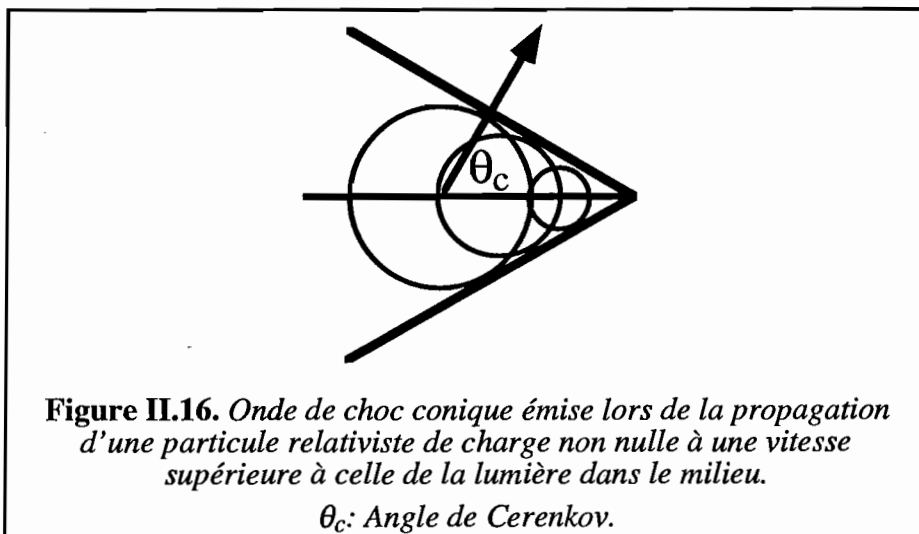
**Figure II.15.** Mélange à quatre ondes (Classe II) : Dépendance théorique de l'angle d'émission de la radiation anti-Stokes en fonction de la longueur d'onde avec (en pointillé) et sans (en trait plein) correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction et les résultats expérimentaux pour trois échantillons. (a) Silice, (b) Verre (FC A87-70), (c) Verre (B16-64).

En 1986, Golub *et coll.* [14,21] ont proposé que l'émission conique observée lors de l'autofocalisation et la filamentation d'un faisceau laser intense dans une vapeur de sodium était le résultat d'un processus de type Cerenkov. Ensuite, en 1990, Golub [12] a démontré que l'émission accompagnant la génération d'un continuum par des impulsions picosecondes dans de l'eau normale et de l'eau lourde avait également les propriétés optiques caractéristiques d'un processus de type Cerenkov.

La radiation *Cerenkov* des particules en mouvement, découverte en 1934 par Cerenkov, est un effet bien connu du domaine de la physique des particules [22]. La propagation d'une particule relativiste de charge non nulle dans un milieu mène à une polarisation électronique de ce milieu le long de la trajectoire de la particule lorsque celle-ci voyage plus vite que la lumière dans le milieu. Cette polarisation est temporaire; la dépolarisation du milieu donne lieu à l'émission d'une radiation. Puisque la particule, qui est la source de la radiation, voyage plus vite que la lumière dans le milieu, la radiation émise est en forme d'onde de choc conique vers l'avant (voir la figure II.16). Le rapport entre la vitesse de la lumière dans le milieu,  $c$ , et celle de la particule,  $v_p$ , donne le cosinus de l'angle d'émission,  $\theta_{cer}$ :

$$\begin{aligned} \cos \theta_{cer} &= \frac{c}{v_p} \\ &= \frac{c_0}{n(\omega_r) v_p}, \end{aligned} \tag{II.10}$$

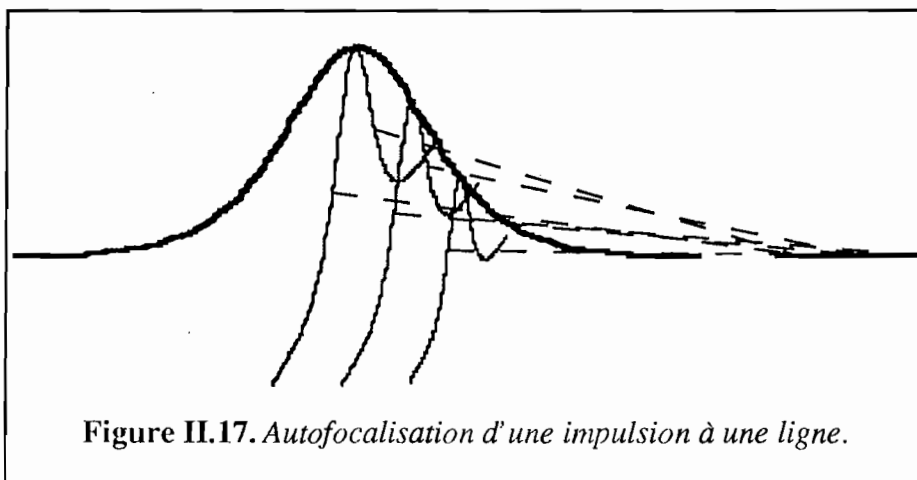
où  $c_0$  est la vitesse de la lumière dans le vide et  $n(\omega_r)$  est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence d'émission de la radiation  $\omega_r$ . Il existe une analogie entre cet effet et la création d'un bang supersonique lorsque la vitesse d'un avion est supérieure à celle du son.



Il est clair que, si l'émission conique qui accompagne la génération d'un continuum spectral est en fait le résultat d'un processus de type Cerenkov, elle doit être déclenchée par le passage d'une particule, ou de son équivalent, dans un milieu à une vitesse plus grande que celle de la lumière dans ce milieu. En 1962, Askar'yan [23] a démontré que des faisceaux électromagnétiques et des photons peuvent produire une radiation Cerenkov d'une manière analogue à la production de rayonnement Cerenkov par une particule de charge non nulle et que le rayonnement sera émis à l'angle de Cerenkov caractéristique. Avec ce principe et en considérant la dynamique de l'autofocalisation selon *le modèle du point focal en déplacement* [24], il est possible de prévoir une émission conique lors de l'autofocalisation dans un milieu, semblable à celle que nous avons observée.

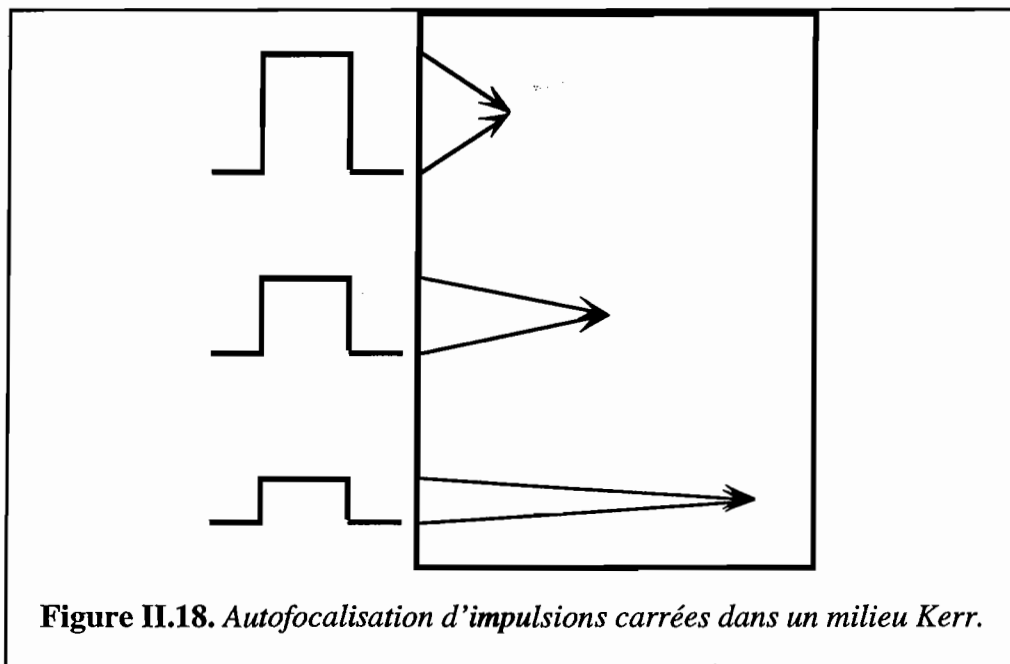
Loy et Shen [25] ont démontré que les filaments observés lors de l'autofocalisation sont le résultat d'un point focal en déplacement. Nous avons vu dans la section I.2.2.2 que l'effet Kerr peut mener à l'autofocalisation d'un faisceau intense dans un milieu. Un faisceau gaussien dans un milieu Kerr (voir l'annexe A) voit un indice de réfraction qui est variable le long de son profil spatial puisque l'indice de réfraction  $n(I)$  dépend de l'intensité instantanée  $I$  du rayonnement selon  $n(I) = n_0 + n_2 I$ , où  $n_0$  est l'indice de réfraction linéaire et  $n_2$  est l'indice de réfraction non linéaire du milieu (l'équation I.16). Cet effet est semblable à celui d'une lentille convergente dont la longueur focale dépend de l'intensité instantanée.

Lors de la propagation d'une impulsion brève dans un milieu Kerr, la longueur focale de l'autofocalisation dépend donc du profil temporel en intensité de l'impulsion. L'avant et l'arrière de l'impulsion, ayant une intensité crête faible, ont une longueur focale plus longue que celle du pic de l'impulsion. Une impulsion intense ne s'autofocalise donc pas en un seul point mais plutôt sur une ligne, comme sur la figure II.17.



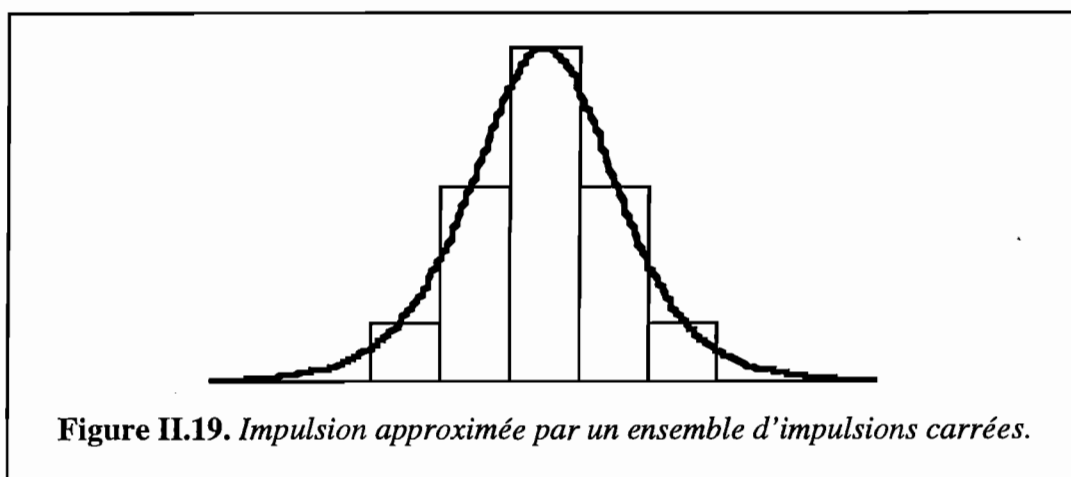
La dynamique de la création de cette “**ligne focale**” mène à une description du modèle du point focal en déplacement et nous permet de comprendre qualitativement l'origine de la “**particule**” qui se déplace plus vite que la lumière et qui engendre une polarisation dans le milieu. Cette polarisation sera la source du rayonnement Cerenkov. Puisque la longueur focale de l'autofocalisation dépend de l'intensité crête de l'impulsion et donc du point considéré dans son profil temporel, le temps requis pour s'autofocaliser dépend également de ce point. Les différents points du profil temporel de l'impulsion peuvent donc atteindre leurs foyers respectifs à des instants différents.

Considérons tout d'abord plusieurs impulsions carrées d'intensités différentes entrant dans un milieu de Kerr au même instant (voir la figure II.18). Sachant que la focale d'autofocalisation est d'autant plus courte que l'intensité est grande, on voit que les impulsions les plus intenses vont atteindre leur foyer en premier. Le foyer va donc se déplacer au fur et à mesure que des impulsions d'intensité plus faible vont se focaliser. Lorsque l'on intègre tous ces foyers instantanés, on obtient une **ligne focale** ou filament.



Si maintenant on considère une impulsion comme une succession d'impulsions de profil carré dont les intensités sont réparties sous une enveloppe représentant le profil temporel de l'impulsion (voir la figure II.19). Comme on vient de le voir, ces différentes impulsions carrées vont se focaliser à des endroits différents. Pour connaître celle qui va atteindre son foyer en premier, il faut faire attention au fait qu'elles n'arrivent pas toutes en même temps dans le milieu de Kerr. En particulier, le sommet de l'impulsion va se focaliser près de la face d'entrée du milieu et n'a donc que peu de chemin à parcourir pour atteindre son foyer.

Néanmoins, il arrive dans le milieu bien plus tard que l'avant de l'impulsion. Cette dernière a une intensité plus faible et doit parcourir plus de chemin pour atteindre son foyer. On voit donc qu'en fonction des intensités mises en jeu et de la durée de l'impulsion c'est un point variable du front avant de l'impulsion qui atteint son foyer en premier. La figure II.20 présente un exemple typique de chronogramme où l'on voit les différents points de l'impulsion se focaliser successivement. Si l'on trace la longueur focale d'autofocalisation (qui dépend de l'intensité instantanée) en fonction du temps auquel la partie correspondante de l'impulsion doit arriver à ce point focal, on retrouve une courbe en forme de  $U$  comme sur la figure II.21.



Le résultat intéressant de ce modèle est que le point focal en déplacement qui correspond au bras gauche de la figure II.21 voyage plus vite que la lumière. Autrement dit, si l'on considère seulement le début de l'avant de l'impulsion, la partie la moins intense commencera à focaliser en premier mais la partie la plus intense arrivera à son point focal en premier.

Les fortes intensités engendrées lors du passage d'un tel point focal dans un milieu exercent une force sur les électrons pour produire une polarisation non linéaire volumique qui peut irradier sur une large gamme de fréquences. Le déplacement de cette polarisation non linéaire est équivalent à la particule relativiste de charge non nulle responsable de l'effet Cerenkov. La radiation émise est donc contrainte par la condition de Cerenkov: l'angle d'émission dépend du rapport de la vitesse de la lumière  $v_{ph}$  à la fréquence de la radiation émise,  $\omega_r$ , à la vitesse de la lumière à la fréquence du laser,  $\omega_l$ , selon :

$$\begin{aligned} \cos \theta_{cer} &= \frac{v_{ph}(\omega_r)}{v_{ph}(\omega_l)} \\ &= \frac{n(\omega_l)}{n(\omega_r)}. \end{aligned} \tag{II.11}$$

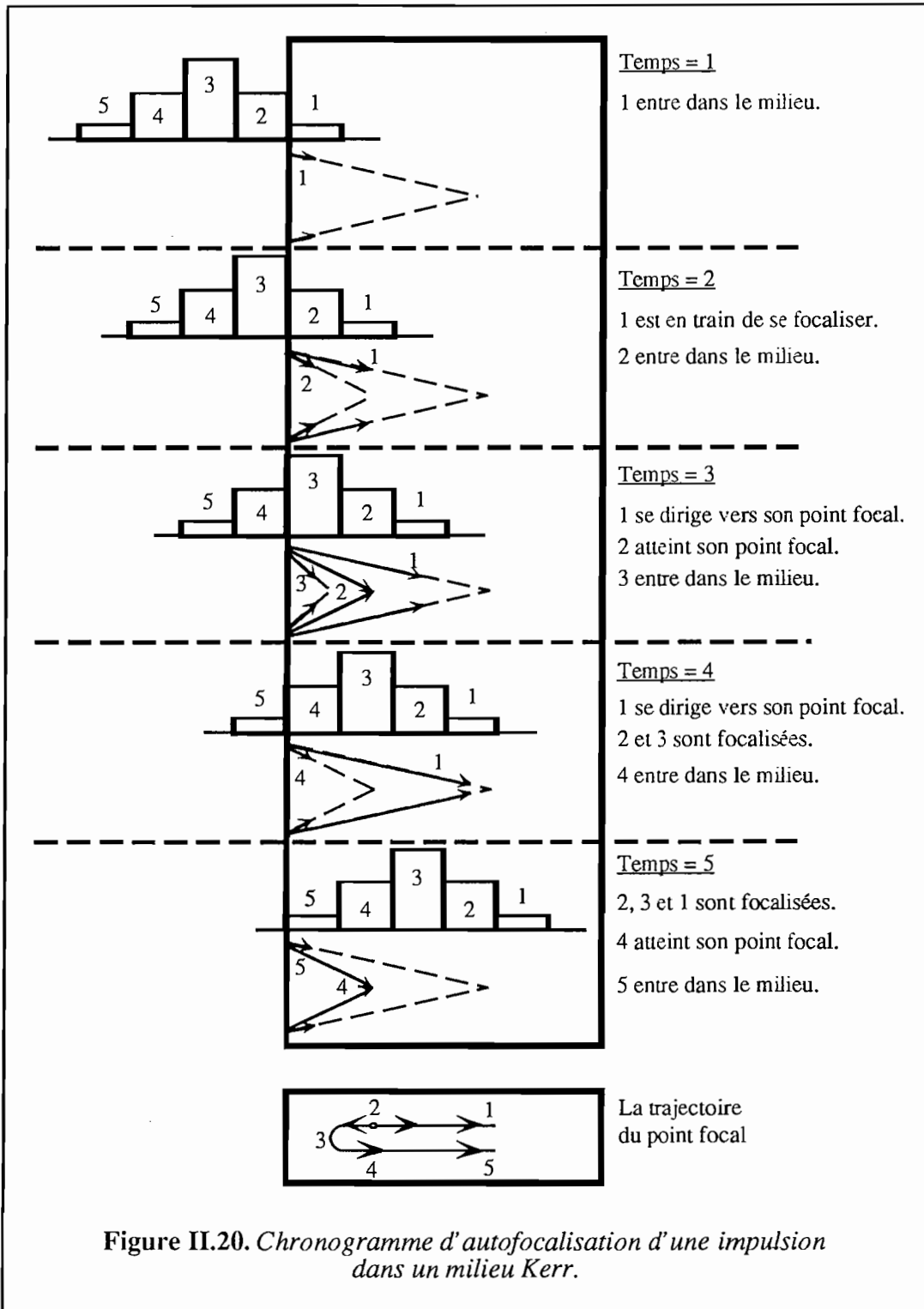
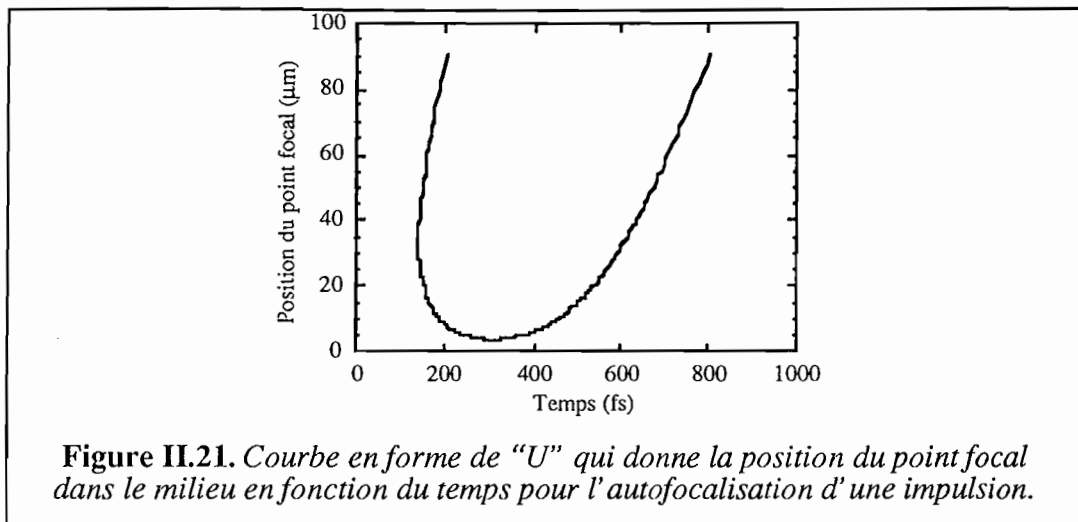


Figure II.20. Chronogramme d'autofocalisation d'une impulsion dans un milieu Kerr.



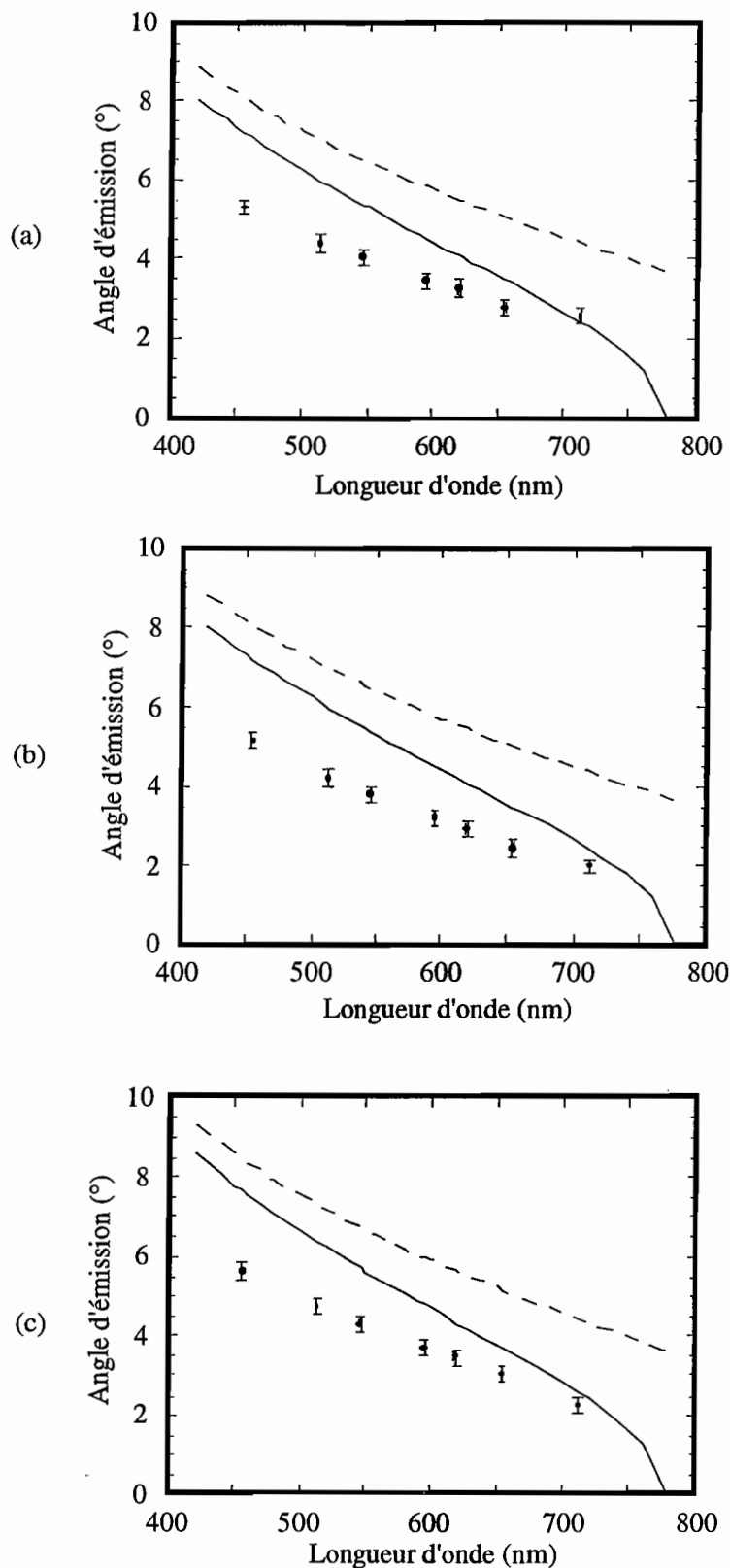
**Figure II.21.** Courbe en forme de "U" qui donne la position du point focal dans le milieu en fonction du temps pour l'autofocalisation d'une impulsion.

Il y a deux conséquences immédiates de cette relation. D'abord, il ne peut pas y avoir d'émission conique à des longueurs d'ondes supérieures à celle du laser de pompe pour l'autofocalisation dans un milieu de dispersion positive. Deuxièmement, il y a une dépendance angulaire de l'émission avec sa fréquence: les hautes fréquences sont émises à des angles supérieurs à ceux auxquels sont émises les basses fréquences. On remarque que qualitativement ces deux prévisions du modèle correspondent bien à nos observations expérimentales.

Le comportement à seuil de notre émission conique correspond bien au fait que l'émission Cerenkov est un résultat de l'autofocalisation, qui est elle-même un effet à seuil. De plus, nous avons toujours observé l'autofocalisation et la filamentation accompagnant l'émission conique, qui sont intrinsèquement liées au modèle. La polarisation des anneaux est identique à celle de notre laser de pompe, comme on s'y attend pour un processus Cerenkov [20]: l'émission conique est supposée être le résultat d'une dépolarisation d'atomes qui ont été d'abord polarisés par les impulsions laser. Enfin, ce modèle ne prévoit aucune dépendance de l'angle d'émission ni sur l'énergie des impulsions, ni sur leur durée, ni sur leur focalisation. Il semble donc y avoir un bon accord entre les prévisions qualitatives de ce modèle et nos observations expérimentales. Ceci dit, l'autofocalisation donnerait lieu à un point focal en déplacement dans une longueur de matériau de seulement une centaine de microns (voir la figure II.21). Il est donc difficile d'envisager que nos filaments étaient la manifestation du point focal puisqu'ils pouvaient être d'une longueur de l'ordre du centimètre. Il faudrait donc faire appel à l'optique guidée pour expliquer les filaments.

Une comparaison quantitative du modèle Cerenkov avec nos résultats n'est pas satisfaisante. Nous avons tracé en traits pleins la dépendance angulaire théorique (selon l'équation II.11) de l'émission conique en fonction de la longueur d'onde d'émission pour les trois échantillons sur la figure II.22.





**Figure II.22.** Dépendance théorique de l'angle d'émission de l'émission conique selon le modèle Cerenkov avec (en pointillé) et sans (en trait plein) correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction et les points expérimentaux pour les trois échantillons. (a) Silice, (b) Verre (FC A87-)70, (c) Verre (B16-64).

On voit que les angles prévus par ce modèle sont trop importants pour bien correspondre aux données expérimentales. Néanmoins, on devrait modifier l'équation II.11 pour tenir compte de la non linéarité de l'indice de réfraction à haute intensité. Ainsi,

$$\cos \theta_{cer} = \frac{n(\omega_l) + n_2 I}{n(\omega_r) + 2 n_2 I} , \quad (\text{II.12})$$

où l'indice de réfraction non linéaire  $n_2$  est de l'ordre de  $3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ . Le facteur de 2 dans le dénominateur de l'équation II.12 provient du fait que le changement non linéaire de l'indice du rayonnement émis est dû à la modulation de phase croisée et non pas à l'automodulation de phase: c'est l'intensité élevée du faisceau laser et non pas l'intensité du rayonnement émis qui induit la réponse non linéaire du milieu. Il y a une grande incertitude dans la valeur qu'il faut prendre pour  $I$  puisqu'elle correspond à l'intensité dans les filaments. On suppose alors que l'intensité est de l'ordre de  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ , ce qui correspond à peu près à la puissance critique. On a tracé les courbes correspondantes en pointillé sur la figure II.22. On voit que cette correction ne va même pas dans le bon sens et ne peut pas expliquer le désaccord entre l'expérience et la théorie. Le modèle Cerenkov n'est donc pas suffisant en soi comme explication de l'émission conique qui accompagne la génération d'un continuum de lumière blanche.

#### II.2.4. Discussion

Nous avons étudié l'émission conique qui a lieu lors de la génération d'un continuum de lumière blanche dans un milieu solide. Pour nos expériences, nous avons choisi deux échantillons de verre et un de silice. Nous avons comparé nos observations avec les trois approches principales que l'on considère aujourd'hui: le mélange quatre ondes, la génération Raman et l'effet Cerenkov. Aucune de ces théories ne donne une explication complète de l'émission conique que nous avons observée.

Le modèle de la génération Raman de classe II avec correction pour la non linéarité de l'indice de réfraction donne le meilleur accord quantitatif avec les angles d'émission de la radiation de fréquences plus hautes que celle de la pompe. Ceci dit, on peut difficilement expliquer l'émission conique à 450 nm en utilisant ce modèle puisqu'il ne peut pas y avoir d'émission préalable des radiations Stokes correspondants dans du verre.

Les autres modèles ne mènent pas à une aussi bonne prédiction des angles d'émission. Le mélange à quatre ondes avec accord de phase et la génération Raman de classe I prévoient des angles d'émission inférieurs d'environ 50% à ceux que nous avons observés. De plus, ces modèles supposent une émission conique à des fréquences inférieures à celle de la pompe. En

revanche, l'effet Cerenkov prévoit une émission à des angles plus grands que ceux que nous avons observés.

La génération d'un continuum de lumière blanche est un phénomène hautement non linéaire et donc nécessite l'utilisation de faisceaux laser intenses, tel celui produit par notre chaîne laser femtoseconde. Les désavantages principaux de cette source sont intimement liés à la filamentation. L'angle de divergence,  $\theta_{div}$ , du faisceau produit dépend de l'inverse du diamètre du filament  $a$ , soit  $\theta_{div} \sim \lambda/a$ . Puisque le diamètre du filament peut être très petit (environ 8  $\mu\text{m}$  dans notre cas), la divergence peut être très grande (de l'ordre de 4° pour un faisceau à 600 nm). De plus, un faisceau produit par un ensemble de filaments est spatialement incohérent. Il n'est donc pas possible de comprimer de telles impulsions à moins que le faisceau soit produit par autofocalisation globale à un seul filament. En outre, le spectre d'un continuum de lumière blanche est très large mais pas uniforme.

Bien que la génération d'un continuum de lumière blanche soit connue depuis plus de 20 ans, il est clair qu'il reste encore beaucoup de recherches à faire pour bien la comprendre. L'émission conique, phénomène spectaculaire et intrigant associé à la génération d'un continuum spectral, fait partie des questions ouvertes: de nos jours, aucune explication complète de ce phénomène n'existe.

Dans le chapitre suivant de ce mémoire, je présenterai un autre phénomène de l'optique non linéaire qui peut également être utilisé pour le développement de sources hautement accordables: l'amplification paramétrique. En fait, nous verrons qu'il est possible de lier ces deux phénomènes pour en faire une source femtoseconde accordable dans le visible par l'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche.



# **Chapitre III**

## **Amplification paramétrique**



### III.1. Introduction

La recherche de sources cohérentes largement accordables en longueur d'onde a suscité un fort intérêt dans le développement des oscillateurs et des amplificateurs paramétriques. Avec ces sources agiles, on espère accéder à une large gamme de longueurs d'onde avec une seule source. Elles présentent de forts avantages par rapport aux lasers accordables à cause de la facilité avec laquelle on peut les accorder et elles ne sont limitées en choix de gammes d'accordabilité que par l'existence des cristaux non linéaires efficaces aux longueurs d'onde données et par l'existence d'une source pompe à la longueur d'onde nécessaire.

Les sources cohérentes agiles trouvent des applications dans beaucoup de domaines tels la spectroscopie et le militaire. Si ces sources agiles sont également des sources d'impulsions courtes, elles deviennent extrêmement intéressantes pour comprendre la dynamique des processus chimiques ou biologiques en les utilisant dans des expériences types pompe-sonde [1-5].

Le premier oscillateur paramétrique optique (OPO) date de 1965 quand Giordmaine et Miller de Bell Telephone Laboratories, New Jersey, ont démontré le principe en pompant un cristal de  $\text{LiNbO}_3$  avec des impulsions à 529 nm et en produisant un faisceau accordable entre 970 nm et  $1,15 \mu\text{m}$  [6] et entre 730 nm et  $1,93 \mu\text{m}$  [7]. Pendant une vingtaine d'années après ces premières expériences, on a peu entendu parler de ces sources dites paramétriques. Mais avec le développement relativement récent de cristaux non linéaires hautement efficaces, on a vu une explosion de la recherche dans ce domaine. Depuis environ quatre ans, des OPO sont disponibles commercialement chez de nombreux fabricants.

Couramment, on parle des OPO comme étant les sources agiles de l'avenir. Cependant, dans le domaine des impulsions courtes, ces sources sont limitées en énergie. Un OPO est un oscillateur: le signal (et parfois l'idler) qui est engendré fait des allers et retours entre deux miroirs, dont l'un a une transmission faible. Un OPO impulsionnel doit être pompé de façon synchrone, autrement dit une nouvelle impulsion pompe doit arriver dans le cristal non linéaire à chaque passage du signal. Ceci veut dire qu'un OPO qui est long de 1 mètre doit être pompé à un taux de répétition de  $c/2l = 150 \text{ MHz}$ , où  $c$  est la vitesse de la lumière et  $l$  est la longueur de la cavité. Afin de pomper un OPO de façon synchrone à un taux de répétition en dessous de 1 MHz, il faudrait des cavités de plus de 150 m de longueur! On est donc nécessairement limité au pompage de ces OPO par des impulsions femtosecondes non-

amplifiées puisque les amplificateurs laser ne dépassent pas aujourd'hui un taux de répétition de 1 MHz. Typiquement, un OPO femtoseconde peut produire des impulsions ayant une énergie autour de 3 nJ [8-9].

Afin d'augmenter l'énergie de ces impulsions, on utilise aujourd'hui plutôt des APO, des *amplificateurs paramétriques optiques*, comme source paramétrique au lieu des OPO. Puisqu'il n'y a plus de cavité d'oscillation, il n'existe plus de problème de pompage synchrone. On peut donc pomper un APO à basse cadence avec des impulsions femtosecondes amplifiées, ce qui nous permet d'atteindre des énergies d'impulsion élevées.

L'appellation de ces sources comme étant "*paramétriques*" vient de la mécanique classique. Un processus paramétrique est un pour lequel il y a une modulation périodique d'un de ses paramètres (en général, sa fréquence de résonance). En mécanique quantique, la définition d'un processus paramétrique est un processus pour lequel l'état quantique initial du système est identique à l'état quantique final. Autrement dit, une population ne peut quitter son état quantique que pour de brèves périodes de temps pour rester dans un état virtuel. Le temps maximal  $\Delta t$  de son séjour dans cet état virtuel est déterminé par le principe d'incertitude d'Heisenberg; alors  $\Delta t = \hbar / \Delta E$ , où  $\hbar$  est la constante de Planck divisée par  $2\pi$  et  $\Delta E$  est la différence d'énergie entre l'état virtuel et l'état réel le plus proche. Deux caractéristiques fondamentales d'un processus paramétrique sont une susceptibilité purement réelle et la conservation de l'énergie des photons. Les OPO et les APO sont tous deux basés sur *la génération de différences de fréquences*, qui est un processus paramétrique.

Dans notre laboratoire, nous avons développé un APO femtoseconde accordable dans le visible. Dans la suite, je présenterai l'état actuel des recherches sur les APO à impulsion courte. Ensuite, je présenterai en détail la théorie nécessaire pour comprendre l'amplification paramétrique et pour calculer les caractéristiques de base de l'APO telles les courbes d'accord de phase, le "walk-off" et la différence des vitesses de groupe des trois ondes en interaction. Un logiciel nous permettant de faire ces calculs a été développé et sera présenté par la suite. Puis, je vais détailler les considérations importantes pour choisir le cristal non linéaire idéal pour son application. Enfin, je décrirai en détail notre APO femtoseconde et donnerai ses performances. Ce premier APO sera comparé à un deuxième que nous avons construit qui utilise comme premier étage non pas la génération de fluorescence paramétrique mais la génération d'un continuum de lumière blanche.



### III.2. Rappels historiques

La possibilité de faire de la génération de différences de fréquences a été suggérée au début des années 1960 par Kingston [10], par Kroll [11], par Ahkmanov [12], et par Armstrong *et coll.* [13]. Puis, en 1965, Wang et Racette [14] l'ont démontrée expérimentalement. En utilisant une pompe à 346,9 nm, ils ont amplifié un signal à 632,8 nm dans un cristal d'ADP avec un gain de 1 db. Ce premier APO était rapidement suivi dans la même année du premier OPO développé par Giordmaine et Miller.

Pendant la dernière moitié des années 1960, la plupart des recherches utilisaient comme laser de pompe des lasers déclenchés nanosecondes tels les lasers Nd:YAG et comme cristal non linéaire le niobate de lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ) [15]. À partir des années 1970, la disponibilité de lasers de pompe picosecondes a étendu ces recherches dans le domaine de la picoseconde. La génération de différences de fréquences a servi à produire des impulsions subpicosecondes pour la première fois en 1979 [16]. Fendt *et coll.* ont développé un système de génération et d'amplification paramétrique avec des cristaux de  $\text{LiNbO}_3$ , deux dans un étage de génération et un troisième dans un étage d'amplification. En utilisant des impulsions de pompe de 8 ps et en ajustant le retard entre la pompe et le signal au niveau du deuxième étage d'amplification, ils ont produit des impulsions de 500 fs. Ceci dit, le développement de ces sources paramétriques, surtout en régime femtoseconde, a été limité à la fois par les sources laser et par les cristaux non linéaires. L'invention en 1981 du laser à colorant CPM [17] (verrouillage en phase par la contrepropagation des impulsions) produisant des impulsions de 100 fs et le développement de cristaux non linéaires efficaces à la fin des années 1980 ont enfin ouvert la porte à la recherche des processus paramétriques en régime femtoseconde. En particulier, le premier OPO femtoseconde a été démontré en 1988 par Edelstein *et coll.* [18]. Cet OPO était basé sur le cristal non linéaire de KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ ) et utilisait comme pompe des impulsions émises par un laser CPM.

Les recherches sur les APO femtosecondes jusqu'à présent ont été limitées à la génération d'impulsions dans le proche et le moyen infrarouge. En 1986, Ledoux *et coll.* ont utilisé un laser CPM et des cristaux organiques de NPP (N-(4-nitrophenyl)-L-prolinol) pour amplifier paramétriquement un continuum spectral [19] ou de la luminescence [1] et ainsi produire des impulsions subpicosecondes entre 1,0 et 1,6  $\mu\text{m}$ . Ils ont par la suite étendu la gamme d'accordabilité à 0,8-1,6  $\mu\text{m}$  [2] et au-delà de 1,6  $\mu\text{m}$  [20]. Ensuite, Jedju et Rothberg [5] ont démontré la production d'impulsions de 350 fs entre 2,3 et 5,5  $\mu\text{m}$  par l'amplification paramétrique d'un continuum dans un cristal d'iodate de lithium ( $\text{LiIO}_3$ ) en se servant comme pompe d'un laser à colorant émettant des impulsions à 585 nm.

En 1991, Joosen *et coll.* [21] ont développé un APO à deux étages, le premier étage servant à produire de la fluorescence paramétrique et le deuxième à l'amplifier. Le laser de pompe était un laser à colorant CPM émettant des impulsions à 620 nm. Les deux cristaux non linéaires étaient des cristaux de  $\beta$ -borate de baryum (BBO) de 5 mm et de 7 mm de longueur. Avec ce système, ils ont produit des impulsions à 830 nm de 200 fs de durée et de 25  $\mu$ J d'énergie. Un APO [22] semblable mais avec un premier étage à deux passages a ensuite permis la production d'impulsions de 150 fs de durée et de 100  $\mu$ J d'énergie à 830 nm. Cet APO avait le potentiel d'être accordé entre 775 nm et 3  $\mu$ m.

Plus récemment, Danielius *et coll.* [23] ont développé un APO à deux étages qui produisait des impulsions de 600 fs et de 30  $\mu$ J entre 750 nm et 1,77  $\mu$ m. Les impulsions de pompe à 527,5 nm étaient émises par une chaîne laser de Nd:verre. Le premier étage était un *générateur paramétrique optique* (GPO) basé sur un cristal de KDP de 40 mm de long tandis que le deuxième étage était un APO basé sur un cristal de BBO de 10 mm de long. Par la suite, Danielius *et coll.* ont fait deux APO à deux étages, le premier étage étant un GPO à deux cristaux et le deuxième étage étant un APO à un cristal [24]. Un laser à colorant émettant des impulsions de 190 fs à 605 nm servait de pompe. Le premier APO utilisait des cristaux de BBO de 8 mm de long et produisait des impulsions de 200 fs et de 15  $\mu$ J entre 750 nm et 3  $\mu$ m [25]. Le deuxième APO était basé sur des cristaux de triborate de lithium (LBO) de 15 mm de long et produisait des impulsions de 200 fs et de 4  $\mu$ J entre 850 nm et 970 nm [26].

Avant de décrire l'APO que nous avons construit, je présenterai la théorie du mélange à trois ondes, la base de l'amplification paramétrique.

### III.3. Théorie du mélange à trois ondes

#### III.3.1. Introduction

Avant l'invention du laser en 1960, les intensités lumineuses auxquelles on pouvait accéder ne suffisaient pas pour modifier les propriétés optiques d'un milieu quelconque. La réponse du milieu à la lumière était donc dite "linéaire" et, par conséquent, on ne pouvait pas envisager l'interaction de la lumière avec de la lumière, autrement dit, le mélange d'ondes. Donc, le passage de la lumière à une fréquence donnée dans un milieu ne pouvait pas modifier la fréquence de cette lumière sans qu'il y ait de l'absorption et de ré-émission dans le

milieu. De plus, on considérait que les propriétés optiques du milieu, telles l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption, étaient indépendantes de l'intensité de la lumière incidente.

L'année suivant l'invention du laser a vu la naissance de l'optique non linéaire quand Franken *et coll.* [27] ont démontré la génération de la lumière à une fréquence double de celle du faisceau incident, ce que l'on appelle *la génération du second harmonique*, dans un cristal de quartz. Le laser nous permet désormais d'accéder à un régime où la lumière peut interagir avec de la lumière par l'intermédiaire d'un milieu matériel et créer de nouvelles fréquences à partir de la fréquence de la lumière incidente. Ceci est intéressant surtout pour rendre accessible des longueurs d'onde auxquelles auparavant il n'existait pas de source laser. Les propriétés optiques du milieu dépendent maintenant de l'intensité de la lumière incidente.

Nous nous intéressons dans la suite à deux effets du deuxième ordre: *la génération du second harmonique* et surtout la génération de la différence de fréquences, que l'on appelle également *l'amplification paramétrique*. Nous cherchons à comprendre l'origine physique de ces processus ainsi qu'à déterminer les facteurs qui vont les favoriser, leur nuire ou les restreindre.

### III.3.2. La polarisation non linéaire

Quand on parle de la linéarité d'un processus optique, on entend que la polarisation induite dans un milieu par le passage d'une onde électromagnétique dans ce milieu dépend de façon linéaire du champ électrique de l'onde. Donc,

$$\tilde{P}_i(t) = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} \tilde{E}_j(t), \quad (\text{III.1})$$

où  $\tilde{P}_i(t)$  est la polarisation,  $\epsilon_0$  est la permittivité de l'espace libre,  $\chi_{ij}^{(1)}$  est la susceptibilité électrique linéaire du milieu,  $\tilde{E}_j(t)$  est le champ électrique de l'onde incidente et les indices (i, j) font référence aux coordonnées cartésiennes (x, y, z).  $\tilde{P}_i(t)$  et  $\tilde{E}_j(t)$  sont tous deux des quantités mesurables et donc réelles. Cette relation est valable aussi longtemps que l'amplitude du champ électrique  $\tilde{E}_j(t)$  est petite devant le champ électrique caractéristique de l'atome. De plus, puisqu'elle est tensorielle, elle est valable pour des milieux anisotropes, où chaque composante du vecteur de polarisation P dépend des trois composantes du vecteur de champ électrique. Si l'on permet à  $\chi_{ij}^{(1)}$  d'être complexe, on peut tenir compte des effets d'absorption et de dispersion dans le milieu.

Lorsqu'on éclaire un milieu avec une source plus intense, tel un laser, la réponse du milieu devient non linéaire et on peut exprimer cette non linéarité par une série de Taylor:

$$\begin{aligned} \tilde{P}_i(t) = \varepsilon_0 \left[ \sum_m \sum_j \chi_{ij}^{(1)} \tilde{E}_j(\omega_m, t) + \sum_{mn} \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} \tilde{E}_j(\omega_m, t) \tilde{E}_k(\omega_n, t) \right. \\ \left. + \sum_{mnp} \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} \tilde{E}_j(\omega_m, t) \tilde{E}_k(\omega_n, t) \tilde{E}_l(\omega_p, t) \right] \end{aligned} \quad (\text{III.2})$$

où  $\chi_{ijk}^{(2)}$  et  $\chi_{ijkl}^{(3)}$  sont les susceptibilités électriques non linéaires du milieu des deuxième et troisième ordres respectivement. De cette équation, on voit le couplage qui se fait entre plusieurs ondes aux deuxième et troisième ordres, exprimé par la multiplication de leur champs électriques. C'est le couplage du deuxième ordre qui va nous intéresser pour expliquer la génération du second harmonique et l'amplification paramétrique. L'étude du couplage du troisième ordre nous permet d'expliquer l'effet Kerr optique que nous avons utilisé en chapitre 1 pour expliquer le blocage de modes de notre oscillateur. Tout de même, le but ici étant d'étudier l'amplification paramétrique optique, nous avons reporté les calculs de l'effet Kerr en annexe A.

Pour comprendre d'où viennent les nouvelles fréquences, il faut examiner l'équation d'onde dans un milieu non linéaire:

$$\nabla^2 \tilde{E} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 \tilde{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \tilde{P}}{\partial t^2} \quad (\text{III.3})$$

où  $\mu_0$  est la perméabilité de l'espace libre et  $c_0$  est la vitesse de la lumière dans le vide. On voit donc qu'une polarisation dépendante du temps peut être la source d'une nouvelle onde électromagnétique. On verra plus loin que, puisque la polarisation dépend du produit de plusieurs champs électriques, elle peut être d'une fréquence différente de celles des ondes couplées. L'onde produite n'a donc pas nécessairement la même fréquence que les ondes couplées.

La non linéarité du milieu peut avoir deux origines distinctes, soit le moment dipolaire des molécules individuelles  $\mu$ , soit la densité en nombre des moments dipolaires  $N$  [28]. Puisque la densité de polarisation,  $\tilde{P}$ , est le produit des deux,  $\tilde{P} = \tilde{\mu}N$ , une non linéarité dans la réponse de l'un ou de l'autre au champ électrique appliqué mène à une non linéarité de la polarisation. On peut comprendre la non linéarité de  $\mu$  en se servant du modèle de Lorentz et en prenant par exemple un électron lié à un atome. Un champ électrique  $\tilde{E}$  dans lequel se trouve cet électron de charge  $-e$  applique sur lui une force égale à  $-e\tilde{E}$ . Si l'on fait l'analogie de l'électron lié avec un ressort, on sait que le déplacement  $x$  de l'électron est linéairement proportionnel à la force appliquée quand cette force est petite (la loi de Hooke)

mais cette proportionnalité peut devenir non linéaire quand la force, et donc  $\vec{E}$ , devient importante. Puisque  $\mu = -ex$ , la dépendance du moment dipolaire sur le champ électrique appliqué peut également être non linéaire en champ fort. La non linéarité en  $N$  peut avoir comme origine l'absorption de la lumière incidente par le milieu ou l'émission stimulée, ce qui peut modifier la densité en nombre des moments dipolaires.

Dans la suite, on va considérer que les susceptibilités non linéaires sont des quantités réelles. En fait, elles peuvent être complexes mais c'est la partie réelle qui décrit les processus de mélange d'ondes telle l'amplification paramétrique. On a besoin de considérer des susceptibilités non linéaires complexes pour tenir compte des effets d'absorption et de dispersion non linéaires dans le milieu. Si, par contre, les longueurs d'onde d'interaction sont loin des résonances du milieu, on peut considérer le milieu comme étant sans perte et les susceptibilités non linéaires comme étant réelles. Dans nos expériences, nous allons travailler avec des cristaux non linéaires dans leurs zones de transparence, autrement dit, loin des résonances du cristal. C'est donc une approximation valable que de considérer des susceptibilités non linéaires réelles.

Il est important de comprendre que le mélange d'ondes n'est pas un processus d'absorption et d'émission dans un milieu. Les ondes sont couplées par la susceptibilité non linéaire réelle du milieu et les états excités sont virtuels. On peut opposer ceci à l'amplification laser qui est fondamentalement liée à l'absorption et à l'émission dans le milieu. Dans ce cas, la susceptibilité est complexe et les états excités réels. On peut donc parler d'inversion de population et d'émission stimulée, autrement dit d'effet *laser*. Le mélange d'ondes est un processus physique différent de l'effet laser.

### III.3.3. Les processus non linéaires du deuxième ordre

#### III.3.3.1. Le mélange à trois ondes

On a vu plus haut que la polarisation non linéaire du deuxième ordre est égale à

$$\tilde{P}_{(2)i}(t) = \epsilon_0 \sum_{mn} \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} \tilde{E}_j(\omega_m, t) \tilde{E}_k(\omega_n, t), \quad (\text{III.4})$$

où les indices  $ijk$  indiquent la nature tensorielle de la susceptibilité non linéaire. Le champ électrique correspondant à une onde incidente peut s'écrire de la façon suivante:

$$\tilde{E}(\omega_m, t) = \vec{E}(\omega_m) e^{-j\omega_m t} + \vec{E}^*(\omega_m) e^{j\omega_m t}, \quad (\text{III.5})$$

où  $\vec{E}(\omega_m)$  est l'amplitude complexe du champ électrique. Cette façon de l'écrire assure que le champ électrique, qui est une quantité mesurable, reste réel. Si l'on représente  $\vec{E}^*(\omega_m) e^{j\omega_m t}$  par  $\vec{E}(-\omega_m) e^{-j(-\omega_m)t}$ , on peut exprimer la polarisation réelle en fonction des amplitudes complexes du champ électrique:

$$\vec{P}_{(2)i}(t) = \epsilon_0 \sum_{mn} \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t}, \quad (\text{III.6})$$

où m, n prennent des valeurs négatives mais non nulles.

Pour bien comprendre les phénomènes non linéaires, on va d'abord analyser un milieu isotrope puisque, dans un tel milieu,  $\chi_{ijk}^{(2)}$  devient scalaire:

$$\vec{P}_{(2)i}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \sum_{mn} \vec{E}(\omega_m, t) \vec{E}(\omega_n, t). \quad (\text{III.7})$$

On cherche maintenant à calculer la polarisation du deuxième ordre induite par deux ondes électromagnétiques de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  qui sont incidentes sur un milieu non linéaire. On a donc, pour deux ondes  $\omega_m = \omega_1, \omega_2$ ,

$$\begin{aligned} \vec{P}_{(2)i}(\omega_1, \omega_2, t) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \left\{ \vec{E}_i^2(\omega_1, t) + 2 \vec{E}_i(\omega_1, t) \cdot \vec{E}_i(\omega_2, t) + \vec{E}_i^2(\omega_2, t) \right\} \\ &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \left\{ E_i^2(\omega_1) e^{-j2\omega_1 t} + E_i^2(\omega_2) e^{-j2\omega_2 t} + c.c. \right. \\ &\quad + 2 E_i^2(\omega_1) + 2 E_i^2(\omega_2) \\ &\quad + 2 E_i(\omega_1) E_i(\omega_2) e^{-j(\omega_1 + \omega_2)t} + c.c. \\ &\quad \left. + 2 E_i(\omega_1) E_i^*(\omega_2) e^{-j(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c. \right\}. \end{aligned} \quad (\text{III.8})$$

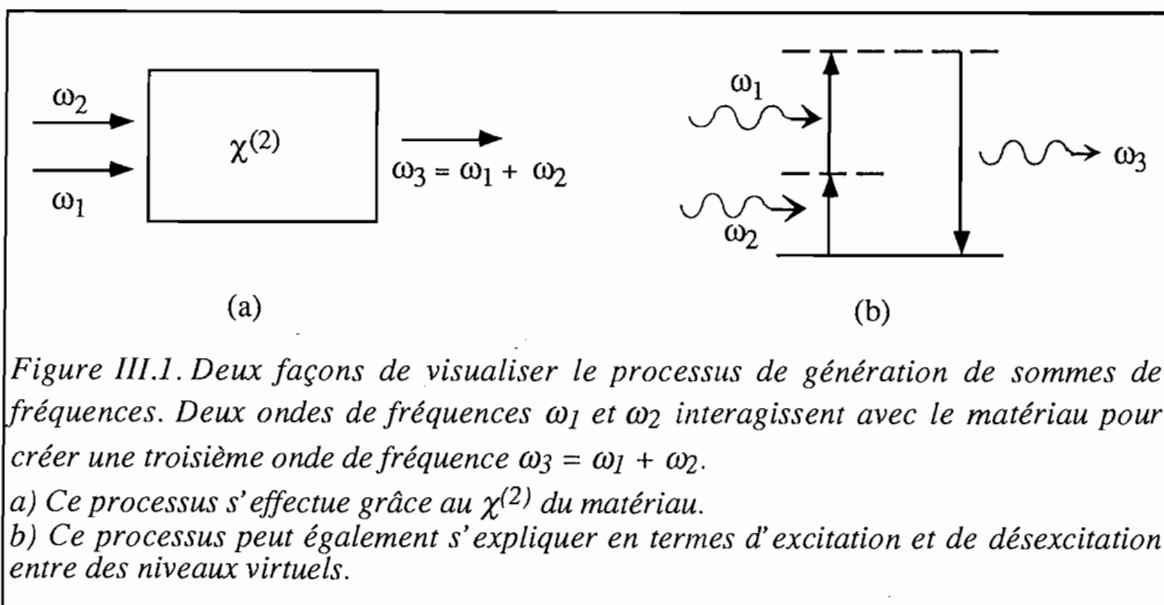
Ce résultat fait apparaître quatre processus distincts. Les termes  $E_i^2(\omega_1) e^{-j2\omega_1 t}$  et  $E_i^2(\omega_2) e^{-j2\omega_2 t}$  sont responsables de la *génération du second harmonique* des ondes de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  respectivement. On parle donc de *doublage de fréquence* des ondes incidentes. Les termes  $E_i^2(\omega_1)$  et  $E_i^2(\omega_2)$  mènent à la *rectification optique*, un processus équivalent à la rectification électronique, où un signal continu est créé à partir d'un signal alternatif. Le terme en  $\omega_1 + \omega_2$  correspond à la *génération de sommes de fréquences*, un processus fort utile pour la génération de lumière cohérente à des longueurs d'ondes dans le visible et l'ultraviolet à partir de longueurs d'onde infrarouges, telle l'émission à 1,064  $\mu\text{m}$  du Nd:YAG. En fait, on peut considérer que la génération du second harmonique est la génération de sommes de fréquences à la dégénérescence ( $\omega_1 = \omega_2$ ). Enfin, le terme en  $\omega_1 - \omega_2$  décrit la *génération de différences de fréquences*, qui sera abordée plus en détail plus loin. Un résumé de ces processus se trouve dans le tableau III.1.

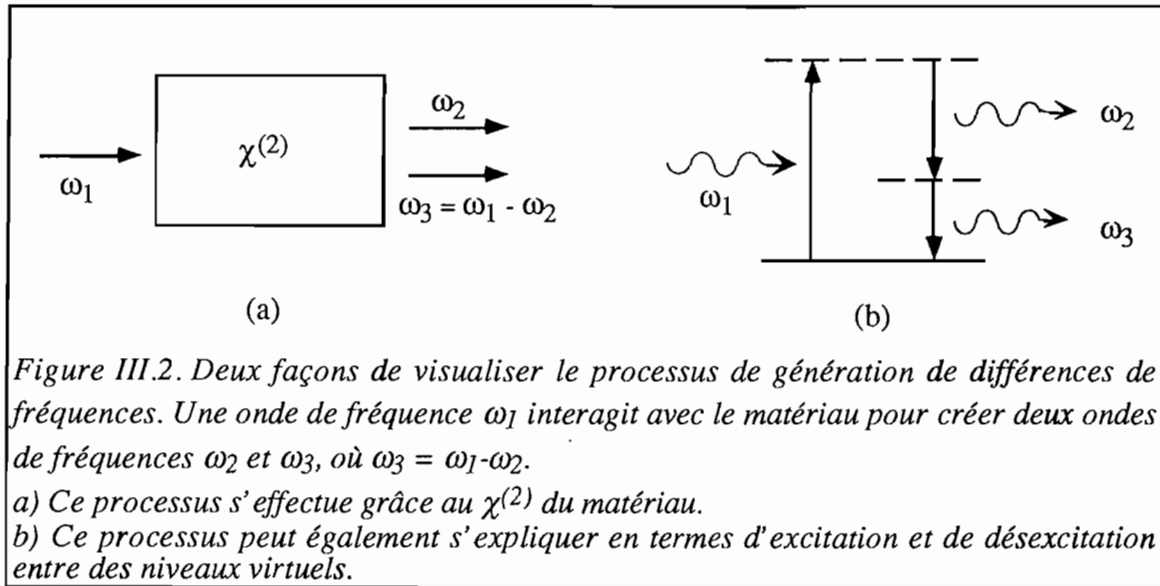
Polarisation non linéaire $\tilde{P}_{(2)i}(\omega_1, \omega_2, t)$	Processus	Fréquence engendrée
$2\epsilon_0\chi^{(2)}E_i^2(\omega_1)$	rectification optique	$\omega_1 - \omega_1 \Rightarrow 0$
$\epsilon_0\chi^{(2)}\{E_i^2(\omega_1)e^{-j2\omega_1 t} + c.c.\}$	génération du second harmonique	$\omega_1 + \omega_1 \Rightarrow 2\omega_1$
$2\epsilon_0\chi^{(2)}\{E_i(\omega_1)E_i(\omega_2)e^{-j(\omega_1+\omega_2)t} + c.c.\}$	génération de sommes de fréquences	$\omega_1 + \omega_2 \Rightarrow \omega_3$
$2\epsilon_0\chi^{(2)}\{E_i(\omega_1)E_i^*(\omega_2)e^{-j(\omega_1-\omega_2)t} + c.c.\}$	génération de différences de fréquences	$\omega_1 - \omega_2 \Rightarrow \omega_3$

Tableau III.1: Résumé des processus non linéaires du deuxième ordre.

Ces quatre processus n'auront pas, en général, lieu simultanément. Celui qui aura lieu est celui qui conservera non seulement l'énergie (i.e.  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) mais aussi la quantité de mouvement des photons associés au processus. Le problème de la conservation de la quantité de mouvement revient à analyser "l'accord de phase", que l'on verra plus loin.

Sur les figures III.1 et III.2, on voit deux façons de visualiser les processus de génération de sommes et de différences de fréquences respectivement. On rappelle que les niveaux d'énergie qui y sont représentés sont des niveaux virtuels, dans lesquels la molécule ne peut rester qu'un temps limité par le principe d'incertitude d'Heisenberg. Étant donné la largeur spectrale ( $\Delta\nu \sim 10^{15}$  Hz) de l'espace compris entre deux bandes d'absorption du milieu, on peut estimer la durée de vie aux alentours de la femtoseconde. Comparée à la période des rayonnements visibles, on peut considérer cette durée de vie comme instantanée.





### III.3.3.2. L'accord de phase

Comme tout processus physique, le mélange à trois ondes doit satisfaire à la loi de la conservation de l'énergie dans les limites du principe d'incertitude d'Heisenberg. Donc, pour un processus de génération de différences de fréquences, un photon de fréquence  $\omega_1$  va être détruit afin de créer un photon de fréquence  $\omega_2$  et un de fréquence  $\omega_3$  tel que, pour chaque valeur de  $\omega_2$ , on a

$$\omega_3 = \omega_1 - \omega_2. \quad (\text{III.9})$$

De même, pour un processus de génération de sommes de fréquences, on trouve la même condition quand deux ondes de fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$  s'additionnent pour en produire une troisième de fréquence  $\omega_1$ . Cette condition est dite "d'accord de fréquence" du processus.

En même temps, il y a une deuxième condition qui restreint le mélange d'ondes, celle de la conservation de la quantité de mouvement, ou "accord de phase". Puisque la quantité de mouvement d'une onde électromagnétique est déterminée par son vecteur d'onde  $\vec{k}$ , on peut écrire:

$$\vec{k}_3 = \vec{k}_1 - \vec{k}_2. \quad (\text{III.10})$$

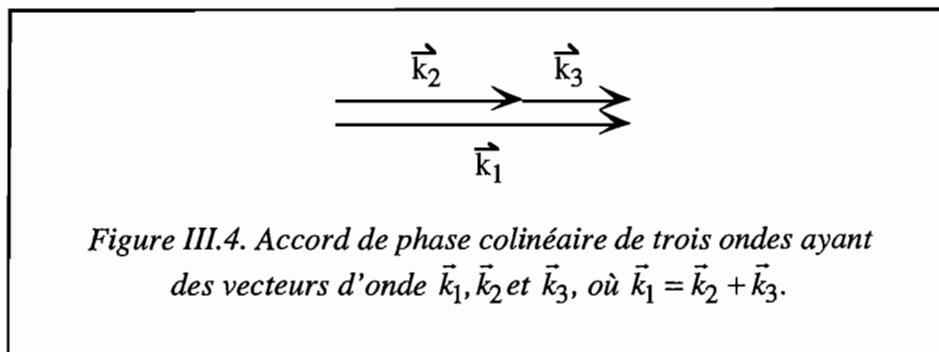
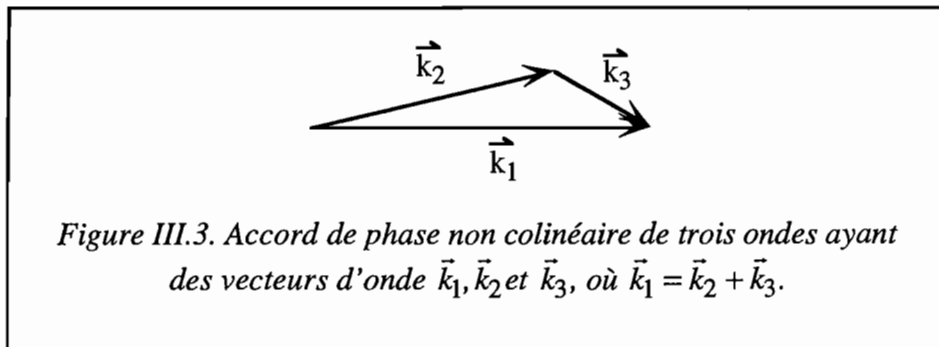
Or, le champ électrique  $\vec{E}$  d'une onde plane s'écrit

$$\vec{E} = E_0 e^{-j(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} + c.c., \quad (\text{III.11})$$



Ainsi on constate que la conservation de la quantité de mouvement implique bien un accord de phase *spatial* tandis que la conservation de l'énergie implique un accord de phase *temporel*.

Pour assurer l'accord de phase, on peut simplement ajuster les angles entre les vecteurs  $\vec{k}$  des trois ondes pour satisfaire à l'équation III.10 (voir figure III.3). On parle alors d'accord de phase non colinéaire. Le désavantage de celui-ci est que la longueur d'interaction des trois ondes est très courte, réduisant l'efficacité du processus. On préfère donc travailler en accord de phase colinéaire pour que les trois ondes restent en interaction le plus longtemps possible (voir figure III.4).



On se restreint maintenant au cas de l'accord de phase colinéaire. Puisque  $k = n\omega/c_0$ , l'équation III.10 s'écrit

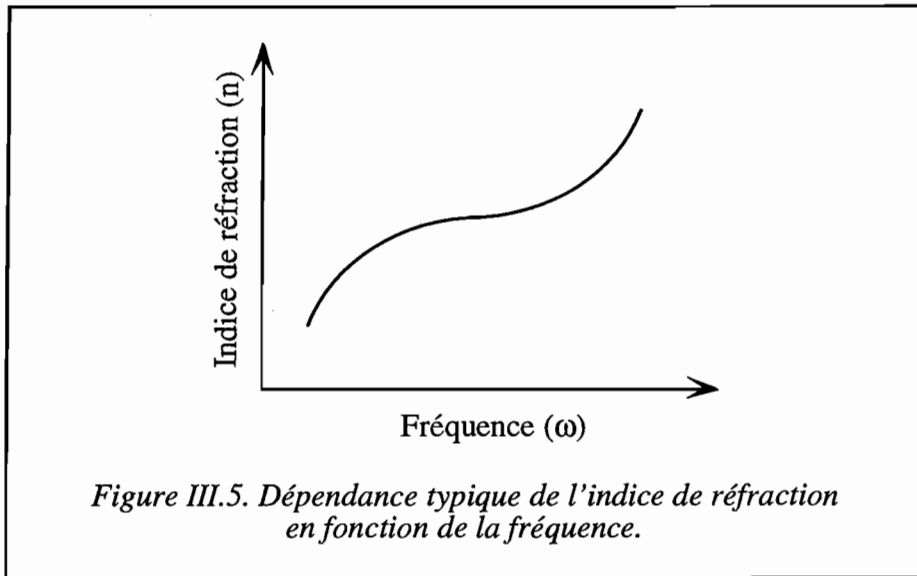
$$n_3\omega_3 = n_1\omega_1 - n_2\omega_2, \quad (\text{III.12})$$

où  $n_1, n_2$  et  $n_3$  sont les indices de réfraction dépendants de la fréquence et de la polarisation de l'onde. Si les indices de réfraction ne dépendaient pas de la fréquence, la condition d'accord de phase colinéaire reviendrait au même que la conservation d'énergie. De façon générale, loin des résonances du milieu, l'indice de réfraction croît de manière monotone avec la fréquence (voir figure III.5). Donc, si

$$\omega_1 > \omega_2 > \omega_3, \quad (\text{III.13})$$

alors

$$n_1 > n_2 > n_3. \quad (\text{III.14})$$



En remplaçant  $\omega_1$  par  $\omega_2 + \omega_3$  dans l'équation III.12 et en rassemblant les termes en  $\omega_2$  et en  $\omega_3$ , on trouve

$$(n_1 - n_2)\omega_2 + (n_1 - n_3)\omega_3 = 0. \quad (\text{III.15})$$

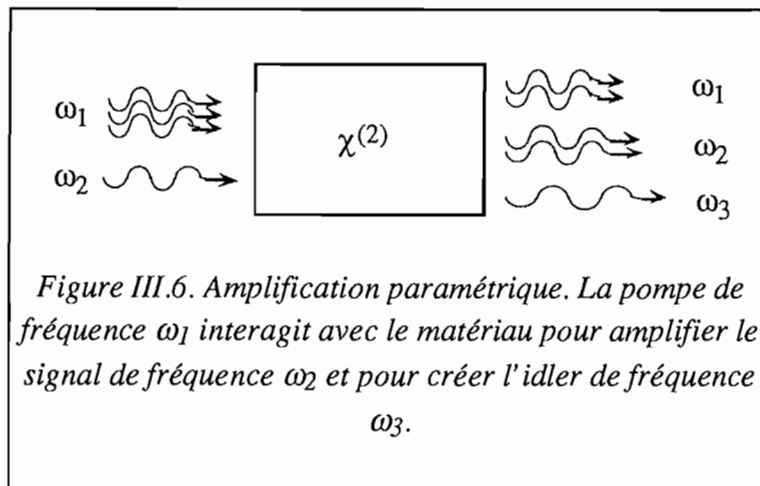
Or,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  sont toujours positives et  $n_1 - n_2$  et  $n_1 - n_3$  ont le même signe (positif). On constate alors qu'il n'y a pas d'accord de phase colinéaire, et donc pas de mélange d'ondes, dans un milieu isotrope et loin des résonances du milieu pour des ondes planes. Pour trouver l'accord de phase, une des trois ondes doit donc obligatoirement être polarisée perpendiculairement aux deux autres. Une des façons usuelles d'obtenir l'accord de phase est d'utiliser des milieux biréfringents dans lesquels on peut avoir  $n_1 - n_2$  et  $n_1 - n_3$  de signes opposés. On peut remarquer qu'il existe d'autres techniques basées sur des ondes guidées ou sur des milieux périodiques.

### III.3.3.3. L'amplification paramétrique

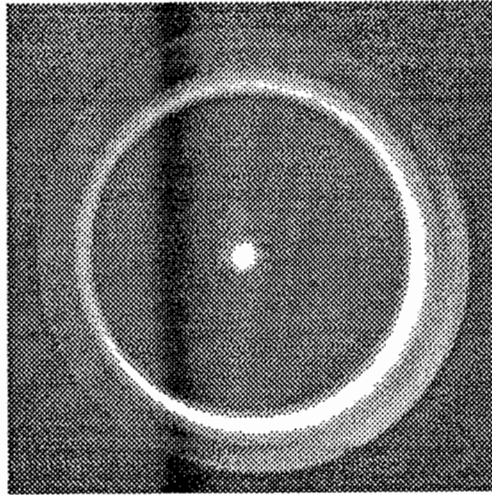
La génération de différences de fréquences est un des processus fondamentaux du mélange à trois ondes. C'est le couplage de deux ondes, de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , dans un milieu non linéaire tel un cristal, pour produire une troisième onde de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$  ( $\omega_1 > \omega_2$ ). Si la zone d'interaction est assez longue, la nouvelle onde de fréquence  $\omega_3$  peut se coupler avec celle de fréquence  $\omega_2$  pour créer une onde à la somme des deux fréquences,

autrement dit  $\omega_1$ , ou avec celle de fréquence  $\omega_1$  pour produire une onde à la différence des deux fréquences, autrement dit  $\omega_2$ . On voit donc l'origine du terme "mélange à trois ondes", car le couplage existe également entre les trois ondes.

Pour déterminer l'onde qui va être favorisée (ou amplifiée), il faut connaître la dynamique du processus dans laquelle les paramètres de longueurs d'interaction et d'intensités initiales des ondes jouent des rôles importants. Par exemple, si initialement l'intensité de l'onde de fréquence  $\omega_1$  est plus grande que celle de l'onde de fréquence  $\omega_2$  et que l'onde de fréquence  $\omega_3$  n'est pas présente, alors on verra que l'onde de fréquence  $\omega_2$  sera amplifiée tandis qu'une onde de fréquence  $\omega_3$  sera engendrée (voir la figure III.6). On parle alors de l'*amplification paramétrique* de l'onde de fréquence  $\omega_2$ . Dans ce cas-ci, on appellera  $\omega_1$  la *pompe* et  $\omega_2$  et  $\omega_3$  le *signal* et l'*idler*. De façon générale, on définit  $\omega_{\text{signal}} > \omega_{\text{idler}}$ .



Dans le cas où seul  $\tilde{E}(\omega_1)$  est présent initialement,  $\tilde{E}(\omega_2)$  et  $\tilde{E}(\omega_3)$  peuvent toujours être produits et on parle de la *fluorescence paramétrique*. En fait, on entend par fluorescence paramétrique l'amplification paramétrique du bruit de photons. La mécanique quantique nous apprend qu'il existe toujours, même dans le vide, un demi photon de bruit et c'est ce demi photon qui déclenchera le processus d'amplification paramétrique. On peut voir sur la figure III.7 la fluorescence paramétrique qui est produite quand un cristal de BBO est pompé par des impulsions à 390 nm. Les anneaux de couleur sont déterminés par l'accord de phase du processus (voir section III.3.3.2). Aussi intéressant est la longueur d'onde qui est en accord de phase colinéaire avec la pompe. Cette longueur d'onde est donc produite sur l'axe de la pompe et elle est déterminée par l'orientation du cristal, qui détermine l'accord de phase comme on le verra dans la section III.3.5.4. On peut donc *accorder* la longueur d'onde créée sur l'axe simplement en tournant le cristal.



*Figure III.7. Fluorescence paramétrique produite lorsqu'un cristal de BBO est pompé à 390 nm.*

### **III.3.4. La susceptibilité non linéaire du deuxième ordre**

#### *III.3.4.1. Les milieux non linéaires*

Il est important de comprendre que c'est la réponse du *milieu* à la lumière et non pas la lumière elle-même qui est non linéaire. On peut donc parler de *milieux non linéaires*, qui peuvent être des gaz, des liquides ou des solides. Cette réponse non linéaire est à son tour décrite par la susceptibilité non linéaire ( $\chi^{(2)}$ ,  $\chi^{(3)}$ ). La détermination du tenseur de susceptibilité nous permettra de calculer une susceptibilité non linéaire effective,  $d_{eff}$ , du processus non linéaire et ainsi optimiser son efficacité.

Dans le cadre de nos recherches, nous allons nous intéresser surtout aux solides et, en particulier, aux cristaux. L'intérêt des cristaux pour engendrer des effets non linéaires par rapport aux gaz, liquides et solides non cristallins tient à la facilité d'usage, l'efficacité de certains cristaux et l'accordabilité en longueur d'onde.

### III.3.4.2. Les symétries de $\chi^{(2)}$ [29]

#### III.3.4.2.1. Le tenseur $\chi_{ijk}^{(2)}$

La réponse non linéaire du deuxième ordre d'un milieu est décrite par le tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$ , où la sommation de  $i, j$  et  $k$  se fait sur les trois coordonnées cartésiennes  $x, y$  et  $z$ . À première vue, on a alors un tenseur de  $3 \times 3 \times 3 = 27$  éléments. Cependant,  $\chi_{ijk}^{(2)}$  est aussi une fonction des fréquences des trois ondes qu'il couple. Si maintenant on reprend l'équation III.4 et que l'on écrit explicitement la dépendance de  $\chi_{ijk}^{(2)}$  sur  $\omega_m, \omega_n$  et la somme des deux fréquences  $\omega_m + \omega_n$  (la différence est prise en compte par les valeurs négatives de  $\omega_m, \omega_n$ ):

$$\tilde{P}_{(2)i}(t) = \varepsilon_0 \sum_{mn} \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t}, \quad (\text{III.16})$$

et, rappelant que  $m, n$  peuvent prendre des valeurs négatives, on fait le décompte des processus que cette équation décrit. Les indices  $m$  et  $n$  font référence aux trois ondes couplées, que l'on représente par leurs fréquences  $\omega_1, \omega_2$  et  $\omega_3$ . Alors,  $m$  et  $n$  peuvent chacun prendre six valeurs (1, 2, 3, -1, -2, -3) mais seulement douze des trente-six combinaisons conservent l'énergie et ne répètent pas d'indices, et sont donc possibles:

$$\begin{aligned} \omega_1 &= \omega_2 + \omega_3, \\ \omega_2 &= -\omega_3 + \omega_1, \\ \omega_3 &= \omega_1 - \omega_2, \\ \omega_3 &= -\omega_2 + \omega_1, \\ \omega_2 &= \omega_1 - \omega_3 \text{ et} \\ \omega_1 &= \omega_3 + \omega_2, \end{aligned} \quad (\text{III.17})$$

et leurs opposés. Le tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$  a donc  $12 \times 27 = 324$  éléments qu'il faut connaître pour décrire complètement le processus de mélange trois ondes.

Heureusement, le nombre d'éléments indépendants de ce tenseur est largement réduit quand on tient compte des symétries du tenseur et des symétries spatiales du milieu. Déjà, on voit que notre notation qui permet aux indices  $m$  et  $n$  de prendre des valeurs négatives a doublé le nombre d'éléments qu'on aurait pu d'abord considérer. Considérons l'équation III.16 et séparons les sommations sur  $n$  en parties positives et négatives:

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{(2)i}(t) &= \varepsilon_0 \sum_m \sum_{jk} E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} \times \left( \sum_n \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t} \right. \\ &\quad \left. + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m - \omega_n; \omega_m, -\omega_n) E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t} \right). \end{aligned} \quad (\text{III.18})$$

où  $n$  ne peut prendre que des valeurs positives. Le fait que le champ électrique est réel nous a permis d'écrire:

$$E_k(-\omega_n) = E_n^*(\omega_n). \quad (\text{III.19})$$

Suivant le même cheminement pour  $\omega_m$ , on trouve:

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{(2)i}(t) = \varepsilon_0 \sum_{jk} \left( \sum_{mn} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t} \right. \\ + \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m + \omega_n; -\omega_m, \omega_n) E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t} \\ + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m - \omega_n; \omega_m, -\omega_n) E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t} \\ \left. + \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m - \omega_n; -\omega_m, -\omega_n) E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t} \right) \\ \tilde{P}_{(2)i}(t) = \varepsilon_0 \sum_{jk} \left( \sum_{mn} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t} \right. \\ + \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m - \omega_n; -\omega_m, -\omega_n) E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t} \\ + \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m + \omega_n; -\omega_m, \omega_n) E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t} \\ \left. + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m - \omega_n; \omega_m, -\omega_n) E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t} \right). \end{aligned} \quad (\text{III.20})$$

Puisque  $E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t}$  est le complexe conjugué de  $E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t}$  et  $E_j(\omega_m) e^{-j\omega_m t} E_k^*(\omega_n) e^{+j\omega_n t}$  est le complexe conjugué de  $E_j^*(\omega_m) e^{+j\omega_m t} E_k(\omega_n) e^{-j\omega_n t}$ , alors il est clair que, la polarisation étant réelle, on doit écrire:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m - \omega_n; -\omega_m, -\omega_n) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n)^*. \quad (\text{III.21})$$

Déjà, le tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$  n'a plus que 162 éléments indépendants.

### III.3.4.2.2. La symétrie intrinsèque de permutation

Cette symétrie vient du fait que les indices  $j, k, m$  et  $n$  sont des indices arbitraires. Or, parmi les six processus décrits auparavant, les trois derniers sont exactement équivalents aux trois premiers. Autrement dit, il n'y a pas de différence physique entre les processus décrits par  $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$  et par  $\omega_1 = \omega_3 + \omega_2$ . La valeur de  $\chi_{ijk}^{(2)}$  ne change donc pas si l'on échange les deux derniers indices:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_n + \omega_m; \omega_n, \omega_m). \quad (\text{III.22})$$

On ne considère plus que 81 éléments indépendants du tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$ .

### III.3.4.2.3. La symétrie de permutation complète

Si l'on considère un milieu *sans absorption* et donc *sans perte ou dispersion*, alors les susceptibilités non linéaires du deuxième ordre  $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ ,  $\chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3; \omega_2, \omega_3)$  et  $\chi_{kij}^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1; \omega_3, \omega_1)$  décrivent la même interaction et sont donc égales. Ces relations sont dites celles de ABDP ("Armstrong, Bloembergen, Ducuing et Pershan") [13]. On trouve ce résultat en considérant la symétrie de permutation complète des indices, ce qui nous permet de permuter les indices des fréquences pourvu que les indices cartésiens soient permutés en même temps. Par exemple, on peut écrire

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1 = \omega_2 - \omega_3; \omega_2, -\omega_3). \quad (\text{III.23})$$

De plus, puisque le champ électrique et la polarisation sont réels (section III.3.2) et puisque le milieu est sans perte (et donc  $\chi_{ijk}^{(2)}$  réel), on démontre que

$$\begin{aligned} \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1 = \omega_2 - \omega_3; \omega_2, -\omega_3) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3; -\omega_2, \omega_3)^* \\ &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3; -\omega_2, \omega_3). \end{aligned} \quad (\text{III.24})$$

Par suite, pour tout milieu sans perte, la susceptibilité non linéaire du deuxième ordre  $\chi_{ijk}^{(2)}$  est un tenseur  $3 \times 3 \times 3$ , et donc ayant au maximum 27 termes indépendants. Ces 27 termes tiennent compte de toutes les permutations des trois indices cartésiens  $ijk$  sans se soucier de la nature exacte du mélange à trois ondes; autrement dit, on ne différencie plus l'interaction de  $\omega_1$  et  $\omega_2$  pour produire la somme des deux fréquences à la fréquence  $\omega_3$  de l'interaction de  $\omega_1$  et  $\omega_3$  pour produire la différence des deux fréquences à la fréquence  $\omega_2$ . Cependant, on permet à la susceptibilité non linéaire d'être dépendante de la fréquence, d'où vient la

permutation des indices cartésiens en même temps que la permutation des fréquences des ondes.

#### III.3.4.2.4. La symétrie de Kleinman

Si maintenant on fait l'approximation que *la susceptibilité non linéaire est indépendante de la fréquence*, on peut permuter les indices cartésiens librement sans permuter les fréquences des ondes. Ceci revient à dire que le couplage de deux ondes,  $\omega_1$  dans la direction  $i$  et  $\omega_2$  dans la direction  $j$ , est le même que le couplage des mêmes deux ondes mais avec les directions des ondes inversées. Cette approximation est très bonne quand toutes les fréquences des ondes en interaction sont beaucoup plus petites que la plus petite fréquence de résonance du milieu. Ceci implique également que le milieu en question soit sans perte.

On appelle l'égalité des susceptibilités non linéaires qui ont leurs indices cartésiens permutés sans qu'il n'y ait permutation des fréquences des ondes *la symétrie de Kleinman*. Cette symétrie réduit le nombre d'éléments indépendants du tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$  à dix.

#### III.3.4.3. La notation contractée de $\chi^{(2)}$

De façon générale, on ne trouve jamais dans la littérature les 27 éléments dépendants de fréquences du tenseur  $\chi_{ijk}^{(2)}$ . On cite plutôt une forme contractée de la susceptibilité non linéaire n'ayant plus que 18 termes [30]. Pour ceci, il faut supposer que  $\chi_{ijk}^{(2)}$  est symétrique en  $j$  et  $k$ . Ceci est valable pour la génération de second harmonique, puisque les deux ondes ont la même fréquence, et pour toutes les interactions non linéaires du deuxième ordre quand la symétrie de Kleinman est valable.

La tradition veut aussi que l'on ne parle pas en termes de  $\chi_{ijk}^{(2)}$  mais plutôt en termes du tenseur  $d_{ijk}$ , qui est calculé très simplement à partir de  $\chi_{ijk}^{(2)}$ :

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}. \quad (\text{III.25})$$

C'est le tenseur  $d_{ijk}$  que l'on va contracter pour créer un nouveau tenseur  $d_{ik}$ . On impose à  $d_{ijk}$  la condition

$$d_{ijk} = d_{ikj} \quad (\text{III.26})$$



et on fait la substitution d'indices suivante:

$$\begin{aligned}
 jk &\rightarrow k \\
 11 &\rightarrow 1 \\
 22 &\rightarrow 2 \\
 33 &\rightarrow 3 \\
 23, 32 &\rightarrow 4 \\
 31, 13 &\rightarrow 5 \\
 12, 21 &\rightarrow 6.
 \end{aligned} \tag{III.27}$$

Le tenseur contracté  $d_{ik}$  peut alors être écrit sous la forme d'une matrice 3x6. L'application ensuite de la symétrie de Kleinman réduit le nombre d'éléments matriciels indépendants à 10 puisque

$$\begin{aligned}
 d_{14} &= d_{25} = d_{36} \\
 d_{15} &= d_{31} \\
 d_{16} &= d_{21} \\
 d_{24} &= d_{32} \\
 d_{26} &= d_{12} \\
 d_{34} &= d_{23} \\
 d_{35} &= d_{13}.
 \end{aligned} \tag{III.28}$$

Si l'on veut alors écrire la génération de la différence des fréquences de deux ondes sous forme matricielle en utilisant  $d_{ik}$ , il faut revenir à l'équation III.8 et écrire la polarisation complexe

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = 4\varepsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x^*(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y^*(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z^*(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z^*(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y^*(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_x^*(\omega_2) + E_x(\omega_1)E_z^*(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y^*(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x^*(\omega_2) \end{bmatrix} \tag{III.29}$$

où  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$  et  $\tilde{P}_i(\omega_3, t) = P_i(\omega_3)e^{-j(\omega_1 - \omega_2)t} + P_i^*(\omega_3)e^{+j(\omega_1 - \omega_2)t}$ .

De la même manière, on peut écrire la génération du second harmonique sous forme matricielle:

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2\epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix} \quad (\text{III.30})$$

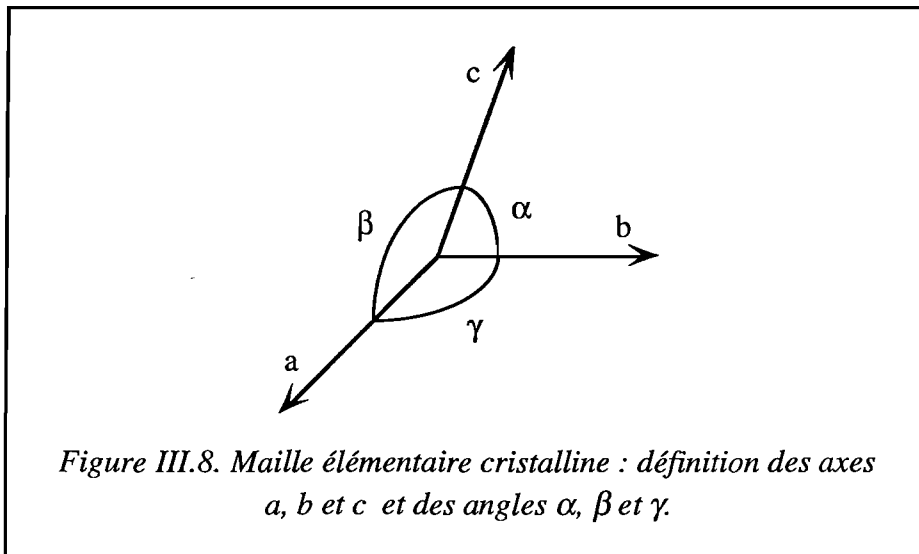
où  $\tilde{P}_i(2\omega, t) = P_i(2\omega)e^{-2j\omega t} + P_i^*(2\omega)e^{+2j\omega t}$ .

#### III.3.4.4. Les symétries spatiales du milieu

Il s'avère que le nombre d'éléments indépendants de la susceptibilité non linéaire peut être inférieur à dix si l'on tient compte des symétries spatiales du milieu. Puisque nous allons utiliser des cristaux pour nos expériences, nous devons d'abord définir la forme et les symétries des cristaux [31]. Ensuite, on verra les implications de ces symétries sur la forme du tenseur  $d_{ik}$ .

##### III.3.4.4.1. La maille élémentaire cristalline

Pour pouvoir définir les symétries d'un cristal, il faut examiner l'unité structurale de base qui définit la structure complète du cristal. On appelle cette unité la *maille élémentaire* puisqu'on peut reconstruire le cristal au complet à partir d'elle. C'est un parallélépipède comportant des atomes du réseau cristallin à ses sommets et défini par la longueur de ses trois arêtes non parallèles,  $a$ ,  $b$  et  $c$ , ainsi que les angles entre ses arêtes,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  (voir figure III.8).



### III.3.4.4.2. Les symétries

On peut diviser les symétries de la maille élémentaire en six éléments de symétrie différents.

Dans un cristal qui possède un *centre de symétrie*, on peut trouver un atome que l'on définit comme l'origine d'un système de coordonnées cartésiennes. Alors, pour tout atome qui se trouve au point  $(x, y, z)$  dans la maille élémentaire, il existe le même à  $(-x, -y, -z)$  dans la même maille. Ce centre de symétrie, s'il existe, se trouve nécessairement au centre de la maille élémentaire. L'importance de cette symétrie pour le calcul du tenseur  $d_{ik}$  est énorme puisque *tout élément du tenseur est nul pour un cristal centrosymétrique*. Il ne peut donc pas y avoir de processus non linéaire du deuxième ordre (ou de tout ordre supérieur pair) dans de tels cristaux. On peut démontrer ceci très simplement en considérant, par exemple, la génération du second harmonique dans un cristal centrosymétrique. La polarisation complexe est donnée par

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2\varepsilon_0 d_{ik} \begin{bmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix}. \quad (\text{III.31})$$

À cause de la symétrie du cristal, une inversion dans la direction du champ électrique doit mener à une simple inversion dans la direction de la polarisation, alors

$$\begin{bmatrix} -P_x(2\omega) \\ -P_y(2\omega) \\ -P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2\varepsilon_0 d_{ik} \begin{bmatrix} (-E_x(\omega))^2 \\ (-E_y(\omega))^2 \\ (-E_z(\omega))^2 \\ 2(-E_y(\omega))(-E_z(\omega)) \\ 2(-E_z(\omega))(-E_x(\omega)) \\ 2(-E_x(\omega))(-E_y(\omega)) \end{bmatrix} \quad (\text{III.32})$$

$$= \begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix}.$$

La polarisation du second harmonique doit donc être nulle, et alors le tenseur  $d_{ik}$  est nul. Quand on cherche un cristal pour des applications non linéaires du deuxième ordre, on peut en éliminer *a priori* un grand nombre à cause de la présence d'un centre de symétrie, que l'on appelle également *centre d'inversion*. Il est représenté par le symbole international  $\bar{1}$ .

Une deuxième symétrie importante est celle du *miroir plan*, représentée par le symbole international  $m$ . L'existence d'un miroir plan dans une maille élémentaire implique que la transformation de tout point de la maille en son image par rapport au miroir plan ne change en rien la forme et l'orientation de la maille.

Si un cristal possède un *axe de rotation d'ordre  $n$* , alors le cristal est symétrique à une rotation de  $2\pi/n$  autour de cet axe. L'indice  $n$  ne peut prendre que les valeurs suivantes:  $n = 1, 2, 3, 4$  et  $6$ . On parle alors des axes binaires (symbole international 2), ternaires (3), quaternaires (4) et hexagonaux (6). L'axe d'ordre 1 revient à dire qu'il n'y a pas de symétrie de rotation.

Les *axes inverses d'ordre  $n$*  sont semblables aux axes de rotation sauf que la rotation doit être suivie d'une symétrie par rapport à un point donné de cet axe. Les symboles internationaux sont ceux des axes de rotation, au-dessus desquels on place une barre, tels  $\bar{1}, \bar{2}, \bar{3}, \bar{4}$  et  $\bar{6}$ .

Deux autres symétries existent si l'on considère non seulement des orientations des éléments de symétrie mais aussi leurs positions relatives, le *plan de glissement* et l'*axe hélicoïdal d'ordre  $n$* . Puisque les propriétés macroscopiques du cristal ne dépendent que des orientations, nous ne sommes pas concernés par ces dernières symétries.

#### III.3.4.4.3. Les 32 classes cristallines

Tout cristal fait partie d'un *groupe spatial*, défini par l'ensemble de ses éléments de symétrie, y compris ceux qui dépendent de leurs positions relatives. Au total, il n'existe que 230 groupes spatiaux différents.

Si maintenant, on ne différencie les groupes spatiaux que par les orientations de leurs éléments de symétrie, on trouve que les 230 groupes spatiaux peuvent être divisés en seulement 32 *classes cristallines* que l'on appelle également *groupes à centre*. La forme du tenseur  $d_{ik}$  sera déterminée par la classe cristalline à laquelle le cristal appartient. Déjà 11 des 32 classes cristallines sont centrosymétriques et sont donc associées à un tenseur  $d_{ik}$  nul.

#### III.3.4.4.4. Les 7 systèmes cristallins

De manière conventionnelle, on a regroupé les 32 classes cristallines en 7 systèmes cristallins, définis par les relations entre les longueurs de leurs axes et leurs angles interaxiaux. Ces systèmes sont donnés dans le tableau III.2. En général, dans la littérature, on spécifie les cristaux selon leurs systèmes cristallins.

Système cristallin	Axes	Angles
cubique	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
hexagonal	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$
quadratique	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
rhomboédrique	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$
orthorhombique	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
monoclinique	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \gamma = 90^\circ \neq \beta$
triclinique	$a \neq b \neq c$	$\alpha \neq \beta \neq \gamma \neq 90^\circ$

Tableau III.2: Les systèmes cristallins.

#### III.3.4.4.5. Les implications pour la forme de $d_{ik}$

Comme on a dit précédemment, 11 des 32 classes cristallines ont des  $d_{ik}$  nuls à cause de leur centrosymétrie. Une douzième classe, la classe cubique 432 a également un  $d_{ik}$  nul. La forme des  $d_{ik}$  des 20 autres classes cristallines est donnée sur la figure III.9 [32].

#### III.3.4.5. Conventions cristallographiques

Il existe trois systèmes de coordonnées pour spécifier les propriétés physiques des cristaux [33]. Le premier est le système d'axes cristallographiques ( $abc$ ), défini selon la disposition des atomes dans le cristal. Ces axes ne sont orthogonaux que pour les systèmes cristallins cubique, quadratique et orthorhombique. On définit ensuite un système d'axes cristallographiques ( $XYZ$ ) pour lequel les axes sont mutuellement orthogonaux afin de spécifier plus facilement les propriétés cristallographiques. Enfin, ( $xyz$ ) sont les axes principaux optiques.

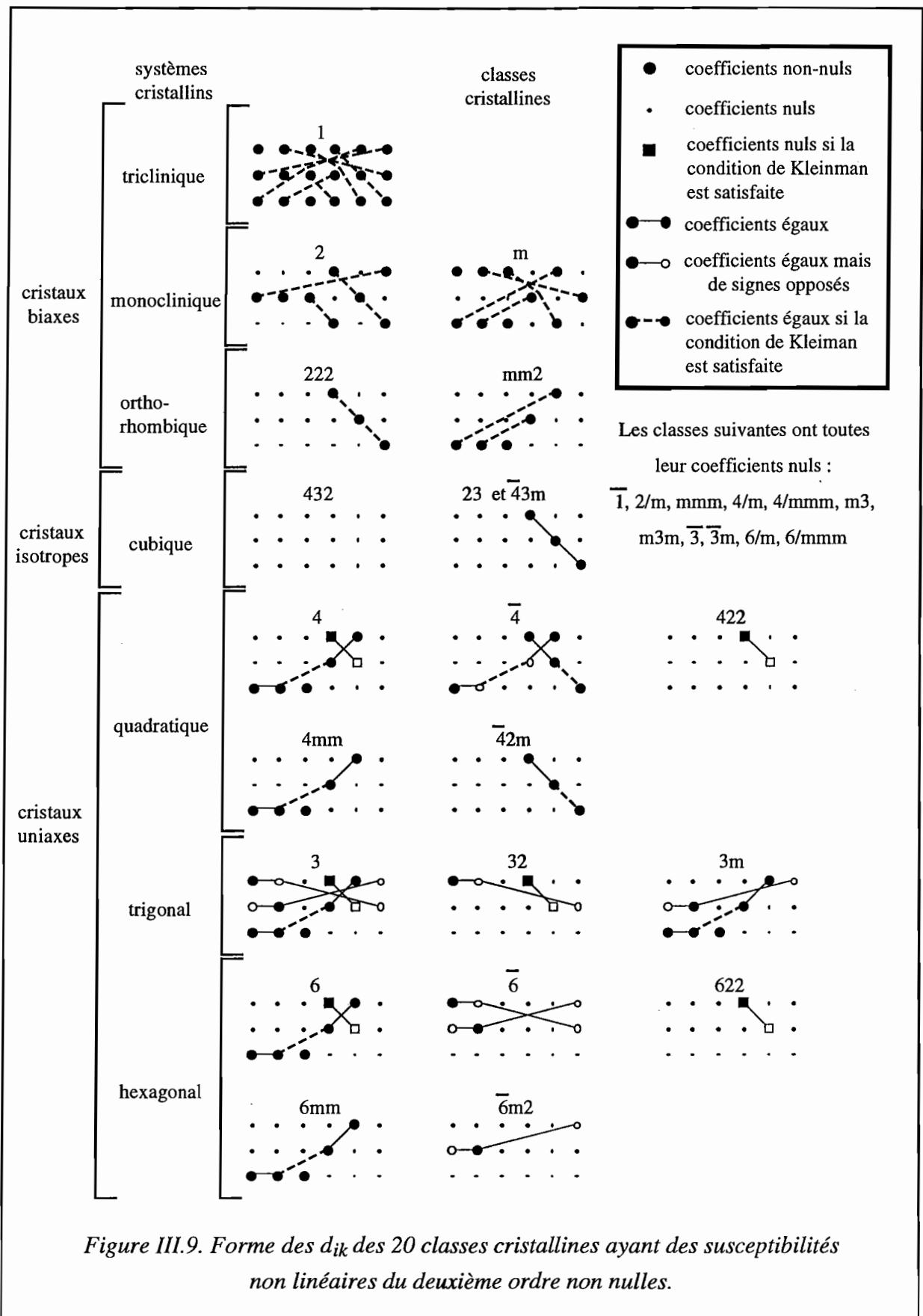


Figure III.9. Forme des  $d_{ik}$  des 20 classes cristallines ayant des susceptibilités non linéaires du deuxième ordre non nulles.

Il faut savoir que le tenseur  $d_{ik}$  est spécifié dans la littérature selon les axes cristallographiques ( $abc$ ) ou ( $XYZ$ ) mais que le calcul de l'efficacité d'un processus non linéaire du deuxième ordre se fait selon les axes principaux optiques ( $xyz$ ). Il faut donc pouvoir transformer le  $d_{ik}$  des axes cristallographiques ( $abc$ ) (ou dans certains cas ( $XYZ$ )) en axes principaux optiques ( $xyz$ ). Cette transformation devient compliquée quand les axes cristallographiques ne sont pas orthogonaux. Cependant, pour les systèmes cristallins cubiques, quadratique et orthorhombique, les axes ( $abc$ ) sont orthogonaux et la transformation est, en principe, simple. Mais c'est surtout pour les systèmes cubiques que la définition des axes est mal spécifiée dans la littérature.

D'abord, il n'existe pas de convention claire sur la définition des axes cristallographiques. De façon assez générale, l'axe  $c$  est celui qui est le plus petit. En fait, les standards IEEE/ANSI [33] définissent les axes selon  $c \leq a \leq b$ . Malgré ceci, certains auteurs utilisent une convention disant que  $c \leq b \leq a$  [34-37] et d'autres  $a \leq b \leq c$  [38].

Malheureusement, les axes principaux optiques ne sont pas non plus définis de façon uniforme dans la littérature. Certains les définissent pour que  $n_z \geq n_y \geq n_x$  [33-36,39-41] tandis que d'autres admettent non seulement  $n_z \geq n_y \geq n_x$  mais aussi  $n_x \geq n_y \geq n_z$  [42]. Parmi ceux qui suivent la deuxième convention, il y en a qui font leur choix entre les deux possibilités en imposant la nécessité de n'utiliser que des permutations positives des axes cristallographiques pour trouver les axes ( $xyz$ ). Autrement dit, si  $n_b \geq n_c \geq n_a$ , ils prennent  $n_x \geq n_y \geq n_z$ , tandis que, si  $n_b \geq n_a \geq n_c$ , ils prennent  $n_z \geq n_y \geq n_x$ . Certains d'autres définissent les axes ( $xyz$ ) selon les axes cristallographiques, donc  $x \leftrightarrow a$ ,  $y \leftrightarrow b$  et  $z \leftrightarrow c$  [43]. Les autres ne semblent pas suivre de règle [37,42].

Le cas des cristaux orthorhombiques polaires (tels le LBO et le KTP) est un problème sérieux à cause d'un manque de clarté dans la définition de leurs axes. Cette classe cristalline a deux miroirs plans ainsi qu'un axe de rotation d'ordre 2, dit axe polaire. Selon les standards IEEE/ANSI, on devrait utiliser les conventions  $c < a < b$ ,  $Z$ =axe polaire et  $X$  le plus petit des deux axes non polaires. On utilise donc la classification  $2mm$  (l'axe  $a$  polaire),  $m2m$  ( $b$  polaire) et  $mm2$  ( $c$  polaire). Selon cette convention, le KTP est classifié  $2mm$  (l'axe moyen polaire) et le LBO est classifié  $mm2$  (l'axe le plus court polaire). Cependant, dans la littérature, les gens définissent en général  $Z=c$ =l'axe polaire [33-35,39,44-45] et l'anarchie règne pour la définition des deux autres axes (souvent  $b < a$  [34-36,39,44-45]). Il est donc impératif de vérifier la définition des axes utilisée quand les valeurs des éléments de  $d_{ik}$  sont données dans la littérature.

Un exemple typique de cette confusion est celui du cristal LBO. Dans la littérature, on nous donne les valeurs des éléments tensoriels de  $d_{ik}$  selon la convention  $c < b < a$ . Puisque

$n_b > n_c > n_a$ , si l'on choisit les axes principaux optiques pour que  $n_z \geq n_y \geq n_x$ , il faut faire la transformation  $b \rightarrow z, c \rightarrow y, a \rightarrow x$ . Selon ces axes principaux optiques, le tenseur  $d_{ik}$  est alors

$$d_{ik} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15}^c \\ d_{31}^c & d_{33}^c & d_{32}^c & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24}^c & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{III.33})$$

où l'indice élevé  $c$  indique que c'est la valeur de  $d_{ik}$  donnée dans le système de coordonnées cristallin.

Dans le logiciel décrit dans la section III.5, on spécifie la valeur de  $d_{ik}$  selon la convention utilisée par la source des données mais on la transforme dans le système d'axes principaux optiques pour que  $n_z \geq n_y \geq n_x$ .

Pour les cristaux uniaxes tel le BBO, on définit  $c = \text{axe polaire}$ , autrement dit  $a = b \neq c$ , et on utilise la convention  $n_z \geq n_y \geq n_x$  pour définir les axes  $(xyz)$  [33]. Ceci dit, il arrive que dans la littérature on utilise une deuxième convention  $z = c = \text{axe polaire}$  [46-47]. Puisque l'angle d'accord de phase  $\theta$  est spécifié à partir de l'axe polaire (optique), dans la suite on prendra comme convention  $z = c = \text{axe polaire}$  pour éviter de devoir différencier dans les calculs entre les deux cas:  $\theta$  mesuré à partir de  $x$  et  $\theta$  mesuré à partir de  $z$ .

#### III.3.4.6. La susceptibilité non linéaire effective $d_{eff}$

Afin d'estimer l'efficacité relative des processus non linéaires du deuxième ordre, on calcule une susceptibilité non linéaire effective définie par [43]:

$$|\bar{P}_{(2)}(\omega_3)| = K \varepsilon_0 d_{eff} |\bar{E}(\omega_1)| |\bar{E}(\omega_2)|, \quad (\text{III.34})$$

où  $d_{eff}$  est une valeur numérique et  $K=2$  pour la génération du second harmonique et  $K=4$  pour les autres processus non linéaires du deuxième ordre. Cette équation nous donnera l'effet global des deux champs électriques de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  sur la polarisation non linéaire produite à la fréquence  $\omega_3$ . On cherche une équation indépendante des directions des ondes par rapport au cristal puisqu'elles sont fixées par l'accord de phase pour chaque triplet d'ondes. Pour déterminer la valeur de  $d_{eff}$ , il faut revenir à l'équation générale de la polarisation non linéaire du deuxième ordre:

$$P_{(2)i}(\omega_3) = K \varepsilon_0 \sum_{jk} d_{ijk} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2). \quad (\text{III.35})$$



Puisque, par définition,

$$|\vec{P}_{(2)}(\omega_3)| = \sum_i P_{(2)i}(\omega_3) \cos \alpha_i \quad (\text{III.36})$$

où les  $\cos \alpha_i$  sont les cosinus directeurs de la polarisation de fréquence  $\omega_3$ , on peut écrire

$$|\vec{P}_{(2)}(\omega_3)| = K \varepsilon_0 \sum_{ijk} \cos \alpha_i d_{ijk} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2). \quad (\text{III.37})$$

Également, puisque :

$$\begin{aligned} E_j(\omega_1) &= \cos \beta_j |\vec{E}(\omega_1)| \text{ et} \\ E_k(\omega_2) &= \cos \gamma_k |\vec{E}(\omega_2)|, \end{aligned} \quad (\text{III.38})$$

où  $\cos \beta_j$  et  $\cos \gamma_k$  sont les cosinus directeurs des champs électriques de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  respectivement, on peut écrire

$$|\vec{P}_{(2)}(\omega_3)| = K \varepsilon_0 \sum_{ijk} \cos \alpha_i d_{ijk} \cos \beta_j \cos \gamma_k |\vec{E}(\omega_1)| |\vec{E}(\omega_2)|. \quad (\text{III.39})$$

La susceptibilité non linéaire effective  $d_{eff}$  est donc donnée par

$$d_{eff} = \sum_{ijk} \cos \alpha_i d_{ijk} \cos \beta_j \cos \gamma_k. \quad (\text{III.40})$$

Cette valeur ne nous permet d'estimer que l'efficacité relative des processus du deuxième ordre puisque l'efficacité dépend aussi de la longueur de recouvrement des trois faisceaux dans le cristal ainsi que de l'accord de phase.

Il faut remarquer que, dans ce calcul, les  $\cos \alpha_i$  sont les cosinus directeurs de la polarisation  $\vec{P}_{(2)}(\omega_3)$  tandis que  $\cos \beta_j$  et  $\cos \gamma_k$  sont les cosinus directeurs des champs électriques  $\vec{E}(\omega_1)$  et  $\vec{E}(\omega_2)$  respectivement. Ce calcul peut être simplifié en faisant l'approximation que le vecteur de polarisation  $\vec{P}_{(2)}(\omega_3)$  est parallèle au champ électrique  $\vec{E}(\omega_3)$  (et donc le "walk-off" est nul: voir la section III.3.5.7). Les  $\cos \alpha_i$  sont alors les cosinus directeurs du champ électrique  $\vec{E}(\omega_3)$ .

### III.3.5. La propagation d'une onde électromagnétique dans un cristal biaxe ou uniaxe

On cherche à trouver toutes les conditions pour optimiser le rendement de l'interaction à trois ondes. Pour cela, on a déjà considéré la valeur de la susceptibilité effective du deuxième ordre, ce qui nous donne une estimation de l'efficacité relative du processus si le processus a lieu. Comme on l'a déjà constaté, les conditions de conservation de l'énergie ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) et de la conservation de la quantité de mouvement (l'accord de phase) doivent être satisfaites. Afin de connaître l'accord de phase, il faut pouvoir calculer les indices de réfraction linéaires du cristal en fonction de la longueur d'onde, de la direction de propagation et de la polarisation des ondes. En même temps, cette connaissance du comportement des indices de réfraction du cristal nous permet de déterminer l'écart des vitesses de groupe des différentes impulsions et alors d'estimer le recouvrement temporel des ondes dans le cristal.

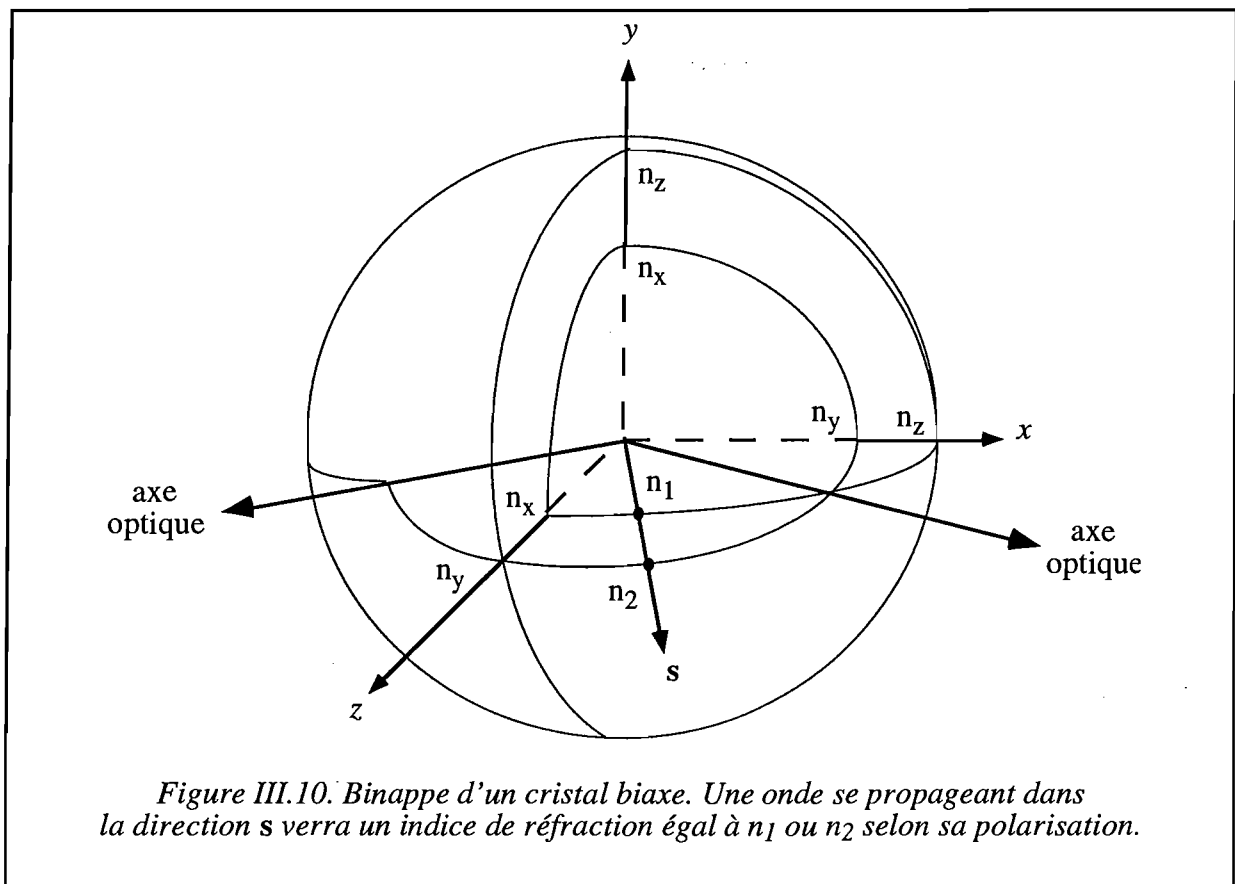
#### III.3.5.1. Les notions d'anisotropie

Quand on parle de *l'isotropie optique*, on entend que l'indice de réfraction du milieu ne dépend ni de la direction de propagation ni de la polarisation des ondes qui le traversent. Les cristaux cubiques sont tous des milieux isotropes. On a déjà vu que pour accorder en phase un processus non linéaire du deuxième ordre, il faut qu'il y ait une différence d'indice de réfraction selon la polarisation de l'onde. Or, cette différence n'existe pas dans les cristaux cubiques et on ne peut pas y trouver un accord de phase pour le mélange à trois ondes. On ne s'attend donc pas à faire du mélange à trois ondes dans ces cristaux même quand il existe un  $d_{eff}$  pour le processus.

Nous allons donc nous intéresser dans la suite aux cristaux *anisotropes*, qui sont classifiés *biaxes* ou *uniaxes*, selon la relation entre leurs *indices propres*. Les indices propres  $(n_x, n_y, n_z)$  sont les indices de réfraction que pourrait voir une onde en se propageant le long des axes principaux du cristal. La définition rigoureuse de ces axes ainsi que des indices propres se trouvera dans les calculs qui suivent.

Un cristal biaxe a nécessairement  $n_x \neq n_y \neq n_z$ , et on définit en général  $n_x < n_y < n_z$ . Une onde se propageant sur l'axe  $x$  verra un indice de réfraction  $n_y$  si elle est polarisée dans la

direction  $y$  et un indice de réfraction  $n_z$  si elle est polarisée dans la direction  $z$ . Également, une onde se propageant dans le plan  $x-z$ , un des *plans principaux* du cristal (les deux autres sont  $x-y$  et  $y-z$ ), verra un indice de réfraction  $n_y$  si elle est polarisée dans la direction  $y$ . Par contre, quand elle est polarisée dans le plan  $x-z$ , elle verra un indice de réfraction qui est entre  $n_z$  et  $n_x$ , tendant vers  $n_x$  quand elle propage plus dans la direction  $z$  et vers  $n_z$  quand elle propage plus dans la direction  $x$ . Puisque  $n_x < n_y < n_z$ , il existe deux directions (l'une à  $\theta_{crit}$  et l'autre à  $-\theta_{crit}$  de l'axe  $x$ ) dans le plan  $x-z$  où quelque soit la polarisation de l'onde, son indice de réfraction est  $n_y$  (voir figure III.10). Le milieu est donc optiquement isotrope sur ces axes, qui sont appelés *axes optiques* du cristal. Le cristal biaxe est défini comme étant *optiquement positif* si la bissectrice de l'angle aigu entre les deux axes optiques coïncide avec l'axe ayant la valeur maximale d'indice de réfraction, autrement dit l'axe  $z$  si  $n_x < n_y < n_z$ . Il est *optiquement négatif* dans le cas contraire [33]. Il faut noter que ces axes optiques sont définis pour une longueur d'onde de propagation donnée puisque les indices propres dépendent de la longueur d'onde. Les cristaux biaxes appartiennent à un des trois systèmes suivants: triclinique, monoclinique et orthorhombique.



Si maintenant il s'avère que  $n_x = n_y \neq n_z$ , le cristal est dit uniaxe puisqu'il n'a plus qu'un axe optique, l'axe  $z$ . On définit alors l'indice *ordinaire*  $n_o = n_x = n_y$  et l'indice *extraordinaire*  $n_e = n_z$ . Si  $n_o > n_e$ , le cristal est uniaxe *négatif*; autrement, il est uniaxe *positif*. Le plan

*principal* d'un cristal uniaxe pour une onde donnée est celui qui contient l'axe optique et le vecteur de propagation  $\vec{k}$  de l'onde (à noter que cette définition n'est pas la même que pour les cristaux biaxes). Une onde est alors dite *ordinaire* si elle est polarisée normale au plan principal et *extraordinaire* si elle est polarisée dans le plan principal. Une onde ordinaire voit toujours un indice de réfraction  $n = n_o$  tandis que l'onde extraordinaire voit un indice qui se trouve entre  $n_o$  et  $n_e$  selon sa direction de propagation. Les cristaux uniaxes appartiennent à un des trois systèmes suivants: quadratique, rhomboédrique et hexagonal.

On définit aussi la *biréfringence*  $\Delta n$  comme la différence entre les deux indices de réfraction qu'ont les deux polarisations orthogonales d'une onde. Par conséquent, les cristaux uniaxes et biaxes sont des milieux *biréfringents*. On peut alors définir pour le mélange à trois ondes deux types d'accord de phase, selon l'onde qui est polarisée perpendiculairement aux deux autres. On considère le cas où

$$\omega_1 = \omega_2 + \omega_3 \text{ et}$$

$$\omega_1 > \omega_2 > \omega_3.$$

Alors, si  $\vec{E}(\omega_2)$  est parallèle à  $\vec{E}(\omega_3)$  et perpendiculaire à  $\vec{E}(\omega_1)$ , on dit que l'accord de phase est de Type I. Par contre, si  $\vec{E}(\omega_2)$  et  $\vec{E}(\omega_3)$  sont perpendiculaires tandis que  $\vec{E}(\omega_1)$  est parallèle à l'un des deux, l'accord de phase est dit de Type II.

Il est intéressant de remarquer que les cristaux uniaxes et biaxes se comportent comme des cristaux isotropes pour la propagation d'une onde sur un axe optique. Également, les cristaux biaxes se comportent comme des cristaux uniaxes pour la propagation d'une onde dans leurs plans principaux. Par suite, pour ce cas spécifique de propagation d'une onde dans les plans principaux d'un cristal biaxe, on peut définir une onde extraordinaire et une onde ordinaire de la même manière que pour les cristaux uniaxes.

Puisque le cristal biaxe est le cas le plus général, nous développerons dans la suite une méthode de calcul des indices de réfraction d'une onde se propageant dans une direction quelconque dans un cristal biaxe. Ensuite, nous la simplifierons pour le cas spécifique d'un cristal uniaxe.

### III.3.5.2. Les équations de Maxwell

Pour connaître le comportement d'une onde électromagnétique dans un milieu non conducteur, il faut revenir aux équations de Maxwell:

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, & \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 0, \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \text{ et } \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0,\end{aligned}\tag{III.41}$$

ainsi qu'aux relations constitutives:

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \text{ et } \vec{B} = \mu \vec{H},\tag{III.42}$$

où  $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi_{ij}^{(1)})$  et  $\mu = \mu_0(1 + \mu_m)$ ;  $\mu_m$  est la perméabilité magnétique du milieu. A partir de ces équations de base, nous trouverons l'équation qui nous permettra de calculer les indices de réfraction et l'équation de Fresnel.

### III.3.5.3. L'équation de Fresnel

Afin de chercher l'accord de phase de trois ondes, on simplifie en considérant que l'accord se fait aux fréquences centrales des trois ondes et on néglige leurs largeurs spectrales. Alors, on fait l'approximation d'une onde plane monochromatique, où

$$\vec{E} = E_0 e^{-j(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})},\tag{III.43}$$

et on fait les substitutions suivantes:

$$\begin{aligned}\vec{k} &= \frac{n\omega}{c_0} \vec{s}, \\ \vec{\nabla} &\rightarrow j \frac{\omega n}{c_0} \vec{s} \text{ et} \\ \frac{\partial}{\partial t} &\rightarrow -j\omega,\end{aligned}\tag{III.44}$$

où  $\vec{s}$  donne la direction de propagation de l'onde et  $|\vec{s}| = 1$ .

Alors,

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \times \vec{H} &= j \frac{\omega n}{c_0} \vec{s} \times \vec{H} \\ &= -j\omega \epsilon \vec{E},\end{aligned}\tag{III.45}$$

ce qui donne

$$\vec{E} = -\frac{n}{\epsilon c_0} \vec{s} \times \vec{H}.\tag{III.46}$$

Également,

$$\begin{aligned}\nabla \times \vec{E} &= j \frac{\omega n}{c_0} \vec{s} \times \vec{E} \\ &= j \mu \omega \vec{H},\end{aligned}\quad (\text{III.47})$$

dont on trouve

$$\vec{H} = \frac{n}{\mu c_0} \vec{s} \times \vec{E}. \quad (\text{III.48})$$

Éliminant  $\vec{H}$  et utilisant l'identité vectorielle  $\vec{A} \times \vec{B} \times \vec{C} = \vec{B}(\vec{A} \cdot \vec{C}) - \vec{C}(\vec{A} \cdot \vec{B})$ , on trouve

$$\begin{aligned}\vec{E} &= -\frac{n^2}{\epsilon \mu c_0^2} \vec{s} \times \vec{s} \times \vec{E} \\ &= \frac{n^2}{\epsilon \mu c_0^2} [\vec{E} - \vec{s}(\vec{s} \cdot \vec{E})].\end{aligned}\quad (\text{III.49})$$

Jusqu'ici, on a négligé la nature tensorielle de la susceptibilité linéaire  $\epsilon$ . En fait,  $\epsilon$  est un tenseur 3x3 tel que

$$D_i = \epsilon_{ik} E_k. \quad (\text{III.50})$$

Le système de coordonnées pour lequel  $\epsilon_{ik}$  est diagonal est constitué des *axes principaux* et des indices de réfraction correspondants  $n_i$ , où  $n_i = \sqrt{\epsilon_i / \epsilon_0}$ , sont les *indices propres* du cristal. Notre calcul supposera que les axes  $x, y, z$  sont confondus avec les axes principaux du cristal. Alors, puisque  $\epsilon_0 = 1/\mu c_0^2$ , on peut écrire

$$\begin{aligned}E_i &= \frac{n^2}{\epsilon_i \mu c_0^2} [E_i - s_i (\vec{s} \cdot \vec{E})] \\ &= \frac{n^2}{n_i^2} [E_i - s_i (\vec{s} \cdot \vec{E})] \quad \text{et} \\ E_i &= \frac{n^2}{n^2 - n_i^2} s_i (\vec{s} \cdot \vec{E}).\end{aligned}\quad (\text{III.51})$$

Si ensuite on multiplie cette équation par  $s_i$  et fait une sommation sur  $i$ , on trouve que

$$\begin{aligned}\sum_i s_i E_i &= \sum_i \frac{n^2}{n^2 - n_i^2} s_i^2 (\vec{s} \cdot \vec{E}) \\ &= \vec{s} \cdot \vec{E} \quad \text{et}\end{aligned}\quad (\text{III.52})$$

$$(\vec{s} \cdot \vec{E}) \left( 1 - \sum_i \frac{n^2}{n^2 - n_i^2} s_i^2 \right) = 0. \quad (\text{III.53})$$

Puisque  $\vec{s}$  et  $\vec{E}$  ne sont pas nécessairement orthogonaux,

$$\sum_i \frac{n^2}{n^2 - n_i^2} s_i^2 = 1, \quad (\text{III.54})$$

ce qui donne l'équation de Fresnel [48]

$$\frac{s_x^2}{n^2 - n_x^2} + \frac{s_y^2}{n^2 - n_y^2} + \frac{s_z^2}{n^2 - n_z^2} = \frac{1}{n^2}. \quad (\text{III.55})$$

Pour une direction de propagation donnée et en connaissant les indices propres du cristal, on peut alors en déterminer l'indice de réfraction. Il faut noter que l'équation de Fresnel est quadratique en  $n^2$ : sa résolution (forcément numérique pour une propagation qui n'est pas dans les plans principaux) va donc donner deux indices distincts correspondant aux deux polarisations de l'onde. Afin d'éviter de diviser par zéro quand l'onde se propage dans les plans principaux, on écrit cette équation sous la forme:

$$\begin{aligned} 0 = & s_x^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_y^2} \right) \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_z^2} \right) \\ & + s_y^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_z^2} \right) \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_x^2} \right) \\ & + s_z^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_x^2} \right) \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_y^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{III.56})$$

et on l'appelle l'équation de la binappe.

#### III.3.5.4. L'indicatrice des indices

Une deuxième méthode existe pour calculer les indices de réfraction d'une onde se propageant dans une direction donnée dans un cristal biaxe, celle de l'*indicatrice*. L'indicatrice est un ellipsoïde qui définit les surfaces de densité d'énergie constante dans l'espace du vecteur de déplacement  $\vec{D}$ . Les demi longueurs des axes de l'ellipse d'intersection de l'indicatrice et d'un plan perpendiculaire à la direction de propagation  $\vec{s}$  donnent les valeurs des deux indices de réfraction. Les directions de ces deux axes donnent les directions de  $\vec{D}$ .

Pour trouver l'équation de l'ellipsoïde, il faut écrire l'équation de la densité d'énergie stockée:

$$w_e = \frac{1}{2} \vec{E} \cdot \vec{D}, \quad (\text{III.57})$$

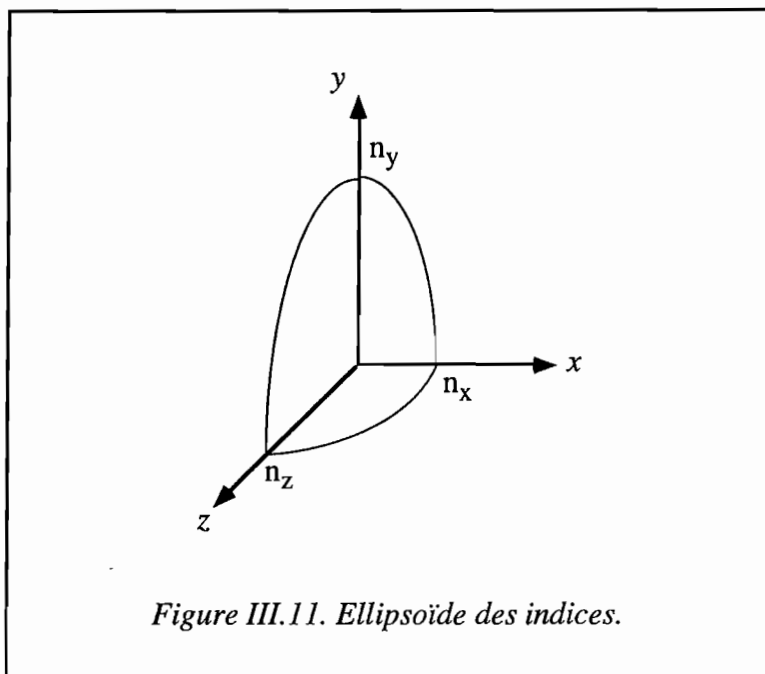
où  $E_i = D_i/\epsilon_i$  quand les axes du système de coordonnées sont confondus avec les axes principaux du cristal. Alors,

$$2w_e = \frac{D_x^2}{\epsilon_x} + \frac{D_y^2}{\epsilon_y} + \frac{D_z^2}{\epsilon_z} \quad (\text{III.58})$$

et, si l'on pose  $\vec{r} = \vec{D}/\sqrt{2w_e\epsilon_0}$  et  $n_i = \sqrt{\epsilon_i/\epsilon_0}$ , on trouve directement l'équation de l'indicatrice [49]:

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1. \quad (\text{III.59})$$

Cette équation est celle d'un ellipsoïde dont les longueurs des axes sont  $n_x$ ,  $n_y$  et  $n_z$  (voir figure III.11). On peut donc en déduire les valeurs des indices de réfraction d'une onde se propageant dans une direction donnée dans un cristal ainsi que la direction des vecteurs de déplacement de l'onde correspondant aux deux polarisations.



En pratique, nous résoudrons numériquement l'équation de Fresnel afin de trouver les valeurs numériques des deux indices  $n_1$  et  $n_2$  pour chaque onde. Ceci nous permettra de



tracer des courbes d'accord de phase pour le processus. Autrement dit, pour une fréquence de pompe donnée, on pourra trouver le doublet de fréquences qui satisfera à la conservation de l'énergie et à la condition de l'accord de phase (s'il existe), en fonction de la direction de propagation de l'onde incidente sur le cristal. Ensuite, nous trouverons l'intersection de l'indicatrice avec le plan perpendiculaire à la propagation de l'onde,  $s_x x + s_y y + s_z z = 0$ , et avec une sphère de rayon  $r = n_1$  ou  $n_2$  pour en déterminer les directions des vecteurs de déplacement correspondant aux deux polarisations de chaque onde.

En connaissant le tenseur de susceptibilité linéaire, on peut ensuite calculer la direction des vecteurs du champ électrique  $\vec{E}$  et en déduire les cosinus directeurs de l'onde. On utilisera ces résultats pour déterminer la valeur de la susceptibilité non linéaire effective,  $d_{eff}$ .

### III.3.5.5. Les équations de Sellmeier

Dans les calculs précédents, on n'a pas vu la dépendance de l'indice de réfraction sur la fréquence de l'onde. En fait, cette dépendance est introduite par les indices propres du cristal, qui sont eux-mêmes dépendants de la fréquence. Dans la littérature, on cite les indices propres soit en indiquant leurs valeurs à la fréquence explicite à laquelle elles ont été mesurées, soit en donnant les équations de Sellmeier du cristal. Les dernières sont plus intéressantes puisqu'elles donnent les dépendances empiriques des indices propres avec la fréquence. Les équations de Sellmeier prennent souvent la forme

$$n_i^2 = a_i + \frac{b_i}{\lambda^2 + c_i} + d_i \lambda^2, \quad (\text{III.60})$$

où  $i = x, y, z$ ,  $a_i$ ,  $b_i$ ,  $c_i$  et  $d_i$  sont les coefficients de Sellmeier (spécifiés dans la littérature) et  $\lambda$  est la longueur d'onde en microns.

### III.3.5.6. Cas spécifique d'un cristal uniaxe

Dans un cristal uniaxe, deux des indices propres sont égaux et on écrit  $n_x = n_y = n_o$  pour l'onde ordinaire et  $n_z = n_e$  pour l'onde extraordinaire. L'équation de la binappe devient alors

$$0 = s_{xy}^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_e^2} \right) + s_z^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) \quad (\text{III.61})$$

et on trouve que  $n = n_o$  pour l'onde ordinaire et

$$0 = s_{xy}^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_e^2} \right) + s_z^2 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) \quad (\text{III.62})$$

pour l'onde extraordinaire. Si  $\theta$  est l'angle entre l'axe  $z$  et la direction de propagation de l'onde, alors  $s_{xy}^2 = \sin^2 \theta$  et  $s_z^2 = \cos^2 \theta$  et l'équation qui donne l'indice de réfraction de l'onde extraordinaire,  $n_e(\theta)$ , s'écrit

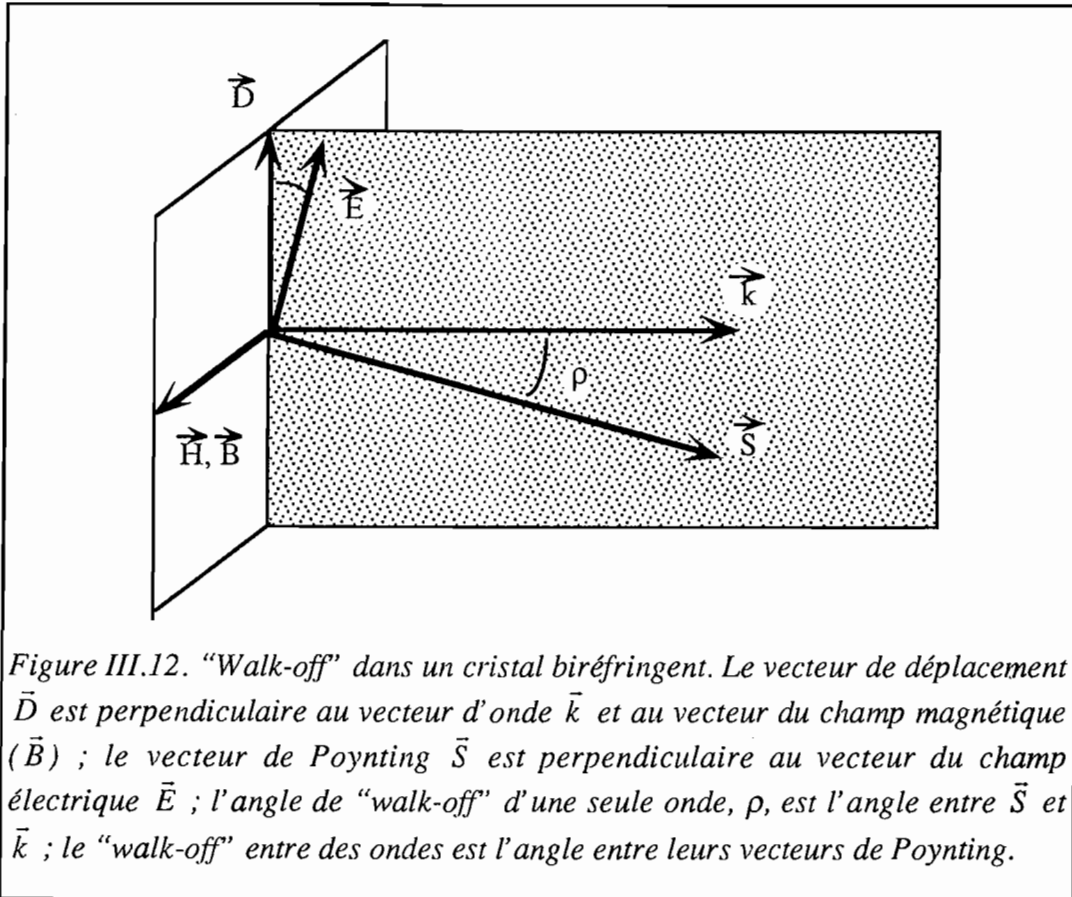
$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2}. \quad (\text{III.63})$$

Puisque la propagation d'une onde dans les plans principaux d'un cristal biréfringent est semblable à la propagation dans un cristal uniaxe, l'équation III.63 peut aussi être utilisée dans ce cas. L'indice de réfraction de l'onde "ordinaire" est égale à l'indice propre de l'axe perpendiculaire au plan principal dans lequel l'onde se propage. Pour l'onde extraordinaire, l'indice de réfraction variera entre les indices propres des deux axes dans ce plan principal, que l'on appellera  $n_1$  et  $n_2$ . Si l'angle  $\theta$  est mesuré à partir de l'axe 2, l'équation III.63 s'écrit alors

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_1^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_2^2}. \quad (\text{III.64})$$

### III.3.5.7. Le "walk-off"

Dans un cristal biréfringent, la direction du champ électrique  $\vec{E}$  n'est pas nécessairement la même que celle du vecteur de déplacement  $\vec{D}$  puisque  $D_i = \epsilon_i E_i$  et que les  $\epsilon_i$  sont distincts. Le vecteur  $\vec{D}$  est donc perpendiculaire à la normale au front d'onde et le vecteur  $\vec{E}$  est perpendiculaire à la direction du transport de l'énergie, autrement dit au vecteur de Poynting  $\vec{S}$  (voir la figure III.12). L'énergie de l'onde ne se propage donc pas nécessairement dans la même direction que son front d'onde. Pour le mélange à trois ondes, cela implique que trois ondes pour lesquelles les fronts d'onde sont alignés s'écarteront peu à peu les unes des autres au fur et à mesure qu'elles se propagent dans le cristal. On appelle le "walk-off" l'angle entre les vecteurs de Poynting des trois ondes. Pour optimiser le processus de mélange trois ondes, il faut minimiser cet angle.



Il est intéressant de noter que, pour les ondes dites ordinaires ainsi que pour toute onde polarisée selon un axe principal du cristal ou dans le plan  $x$ - $y$  d'un cristal uniaxe, le vecteur de Poynting est parallèle à la normale au front d'onde. C'est une des raisons pour laquelle on cherche à satisfaire l'accord de phase en propageant les ondes colinéairement dans le plan  $x$ - $y$  d'un cristal uniaxe, ce que l'on appelle *l'accord de phase à 90°* ou *l'accord de phase non critique*. Dans cette configuration, on peut avoir la biréfringence nécessaire pour réaliser l'accord de phase entre les trois ondes et, en même temps, toutes les ondes ont leurs vecteurs de Poynting parallèle à la normale au front d'onde, donc pas de "walk-off".

Pour déterminer le "walk-off", il faut donc calculer la direction des vecteurs de Poynting pour la pompe, le signal et l'idler. Le vecteur de Poynting  $\vec{S}$  s'écrit

$$\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H} \quad (\text{III.65})$$

et, puisque

$$\vec{H} = \frac{n}{\mu c_0} \vec{s} \times \vec{E}, \quad (\text{III.66})$$

on trouve

$$\vec{S} = \frac{n}{\mu c_0} \vec{E} \times \vec{s} \times \vec{E}. \quad (\text{III.67})$$

Seule la direction de  $\vec{S}$  nous intéresse, alors

$$\vec{S}_{dir} = \frac{\vec{S}}{|\vec{S}|} = \frac{1}{|\vec{E}|^2} \vec{E} \times \vec{s} \times \vec{E}. \quad (\text{III.68})$$

L'angle de "walk-off" entre deux ondes 1 et 2 est donc égal à

$$\theta_{wo}(\omega_1, \omega_2) = \arccos(\vec{S}_{dir}(\omega_1) \cdot \vec{S}_{dir}(\omega_2)). \quad (\text{III.69})$$

Une façon plus transparente de voir le vecteur de Poynting est de réécrire l'équation III.67 en utilisant l'identité vectorielle  $\vec{A} \times \vec{B} \times \vec{C} = \vec{B}(\vec{A} \cdot \vec{C}) - \vec{C}(\vec{A} \cdot \vec{B})$ :

$$\vec{S} = \frac{n}{\mu c_0} [\vec{s} - \vec{E}(\vec{s} \cdot \vec{E})]. \quad (\text{III.70})$$

Il est alors évident que les ondes ordinaires, qui sont caractérisées par  $\vec{s} \cdot \vec{E} = 0$ , ont leurs vecteurs de Poynting parallèles à leurs directions de propagation.

### III.3.5.8. La dispersion de vitesse de groupe et l'écart des vitesses de groupe

L'efficacité du mélange à trois ondes dépend fortement de la longueur d'interaction des faisceaux dans le cristal. Il est donc important que les trois faisceaux soient superposés dans le cristal le plus longtemps possible. Dans nos expériences, nous nous servons d'impulsions brèves (< 1 ps) pour réaliser du mélange à trois ondes (de l'amplification paramétrique ainsi que de la génération du second harmonique). Un facteur qui peut donc nuire énormément à l'efficacité est la dispersion dans le cristal. Puisque les trois faisceaux ne sont pas de même fréquence, ils ont des vitesses de groupe différentes, c'est à dire que l'énergie ne voyage pas à la même vitesse pour les trois ondes. Cette différence des vitesses de groupe peut être suffisante pour séparer les trois impulsions après propagation dans seulement quelques millimètres de cristal. Dans ces cas-là, il n'y a donc pas d'intérêt à utiliser de longs cristaux pour faire le mélange d'ondes.

Un autre effet de la dispersion de vitesse de groupe est l'allongement temporel des impulsions. Puisque chaque impulsion a une largeur spectrale non négligeable, les basses fréquences voyageront plus vite dans le cristal que les hautes fréquences. L'allongement des

impulsions mène à la baisse de leurs intensités crêtes et donc à une réduction d'efficacité du processus.

La vitesse de groupe d'un paquet d'ondes est donnée par

$$v_g = \frac{1}{\left(\frac{dk}{d\omega}\right)_{k_0}} \quad (\text{III.71})$$

calculée au vecteur d'onde central du paquet d'ondes,  $k_0$ . Alors,  $k = n\omega/c_0$  et

$$\frac{dk}{d\omega} = \frac{\partial k}{\partial \omega} + \frac{\partial k}{\partial n} \frac{dn}{d\omega}, \quad (\text{III.72})$$

ce qui donne

$$v_g = \frac{c_0}{n + \omega \frac{dn}{d\omega}}. \quad (\text{III.73})$$

On a vu dans la section III.3.5.3 comment calculer l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde pour une direction de propagation donnée. En prenant la dérivée numériquement, on peut donc calculer les vitesses de groupe de la pompe, du signal et de l'idler. L'écart des vitesses de groupe (pour nous, spécifié en fs/mm) de deux ondes 1 et 2 sera ensuite donné par

$$\text{évg} = \frac{1}{v_g(\omega_1)} - \frac{1}{v_g(\omega_2)}. \quad (\text{III.74})$$

L'écart des vitesses de groupe  $\text{évg}$  de deux ondes n'est pas la même chose que la dispersion de vitesse de groupe d'une seule onde. Celle-ci correspond à la dispersion dans une impulsion à cause de la largeur spectrale finie de l'onde et est à l'origine de l'allongement temporel de l'impulsion. L' $\text{évg}$ , par contre, nous permet d'estimer la distance de parcours que peuvent avoir les trois ondes du mélange d'ondes avant qu'elles ne soient plus superposées. On définit alors la longueur de cohérence de l'interaction,  $L_c$ ,

$$L_c = \frac{\Delta t}{\text{évg}} \quad (\text{III.75})$$

où  $\Delta t$  est la durée des impulsions.

### III.3.6. Résumé des processus non linéaires du deuxième ordre

Nous avons vu que le champ électrique d'une source lumineuse comme un laser peut engendrer une réponse non linéaire du milieu. Cette réponse non linéaire permettra alors à deux faisceaux d'interagir durant leur traversée du milieu. Dans ce mémoire, on s'intéresse à la génération du second harmonique et à l'amplification paramétrique, deux processus du mélange trois ondes, dans des cristaux anisotropes.

Pour que le processus à trois ondes ait lieu dans un milieu, il faut répondre aux conditions de conservation de l'énergie (une des fréquences est égale à la somme des deux autres) et de conservation de la quantité de mouvement, autrement dit l'accord de phase. L'accord de phase dépend des indices de réfraction des trois ondes, que l'on calcule à partir de l'équation de Fresnel. Expérimentalement, l'accord de phase se fait habituellement en tournant le cristal. Cependant, certains cristaux ont des indices propres qui dépendent fortement de la température et pourront donc être accordés en ajustant la température du cristal.

L'efficacité du processus non linéaire dépend de plusieurs facteurs. Premièrement, elle dépend du coefficient de couplage des trois ondes, la susceptibilité non linéaire du deuxième ordre,  $\chi^{(2)}$ . Puisque  $\chi^{(2)}$  est un tenseur, on calcule la valeur de la susceptibilité non linéaire effective,  $d_{eff}$ , qui donne la valeur qu'a  $\chi^{(2)}$  pour des directions de propagation données des trois ondes. Ensuite, elle dépend du recouvrement des trois faisceaux qui sera rendu maximal par l'accord de phase colinéaire et réduit par les effets de "walk-off" et de dispersion.

Les calculs ont été effectués en supposant des faisceaux monochromatiques et collimatés; alors que dans la réalité on focalisera des impulsions ayant des spectres larges ce qui réduira l'efficacité du processus. On parle alors de l'*acceptance spectrale et angulaire*. Un cristal ayant une acceptance spectrale petite ne pourra pas utiliser tout le spectre d'une impulsion de pompe à spectre large pour faire le mélange à trois ondes. Également, plus l'acceptance angulaire d'un cristal est petite, plus l'efficacité du processus chute pour des faisceaux non-collimatés. Puisque l'efficacité augmente avec l'intensité, on a souvent intérêt à focaliser les faisceaux, mais il faut se limiter à l'acceptance angulaire du cristal.

D'autres considérations pour augmenter le rendement du processus non linéaire sont liées aux zones de transparence du cristal, dans lesquelles les longueurs d'onde des trois ondes doivent se trouver, et aux seuils de dommage, qui limiteront les intensités de lumière que l'on peut utiliser.

### III.4. Choix de cristaux

La fabrication de cristaux non linéaires efficaces est critique pour le développement de systèmes paramétriques. Aujourd'hui, il existe un grand choix de cristaux non linéaires dont il faut savoir choisir le plus approprié pour son application.

Le choix du cristal non linéaire est réglé par un ensemble de critères. Il faut d'abord que le cristal en question ait une susceptibilité non linéaire effective ( $d_{eff}$ ) élevée et qu'il soit accordable en phase pour le processus donné. Il faut également que le cristal soit hautement transparent dans toute la gamme de longueurs d'ondes que l'on veut produire ainsi que pour la longueur d'onde de la pompe. Le cristal doit avoir un seuil de dommage suffisamment élevé pour l'application ainsi qu'une stabilité chimique et mécanique. Idéalement, le cristal aura des largeurs d'acceptance spectrale et angulaire importantes afin de permettre à toute la largeur du spectre de participer au processus non linéaire et pour enlever des contraintes sur la focalisation du faisceau de pompe dans le cristal. D'autres considérations sont le coût du cristal ainsi que la facilité de fabrication et l'existence de cristaux de bonne qualité et de taille suffisante. Enfin, il est préférable que le cristal permette l'accord de phase non-critique.

Notre application exige des cristaux qui permettent l'amplification paramétrique dans le visible et proche infrarouge avec une pompe à 390 nm. On peut donc déjà éliminer les cristaux n'ayant pas la transparence nécessaire, tels le niobate de potassium ( $\text{KNbO}_3$ ) et le niobate de lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ), qui sont transparents de 400 nm à 5  $\mu\text{m}$ , et le  $\text{AgGaSe}_2$ , qui est transparent de 780 nm à 18  $\mu\text{m}$  [50]. Par contre, on voit dans le tableau III.3 [50], qu'il existe plusieurs cristaux ayant une transparence suffisante pour notre application. C'est parmi ces cristaux que l'on a choisi le cristal à utiliser.

Cristal non linéaire	Transparence ( $\mu\text{m}$ )	$d/d_{36}(\text{KDP})$
KDP : phosphate dihydrogène de potassium	0,2 - 1,5	1
D-KDP : KDP deutéré	0,2 - 1,5	0,92
KTP : phosphate titanyl de potassium	0,35 - 4,5	11 - 15
LBO : triborate de lithium	0,16 - 2,6	2,6 - 2,9
BBO: $\beta$ -borate de baryum ( $\text{BaB}_2\text{O}_4$ )	0,19 - 3,5	4,4
$\text{LiIO}_3$ : iodate de lithium	0,3 - 5,5	12
urée	0,21 - 1,4	3

Tableau III.3 : Cristaux non linéaires transparents dans le visible.

De ces cristaux, ceux qui sont intéressants pour leur  $d_{eff}$  élevé sont le KTP, le LBO, le BBO, le  $\text{LiIO}_3$ , et l'urée. Pour comparer ces coefficients non linéaires sans directement considérer le processus non linéaire, on donne la valeur de  $d_{36}$  relative à celle du KDP. On voit dans le tableau III.3 que le KTP et le  $\text{LiIO}_3$  ont des non linéarités très importantes et sont susceptibles de constituer le choix idéal.

Quand on considère les seuils de dommage des cristaux, on est obligé d'éliminer le  $\text{LiIO}_3$ . En fait, le seuil de dommage du cristal de BBO est 100 fois plus important que celui du cristal de  $\text{LiIO}_3$  pour une impulsion de 10 ns à  $1,06 \mu\text{m}$  [51]. Ce seuil de dommage est d'autant plus important que l'on utilise des impulsions amplifiées ayant des intensités crêtes très élevées.

Le KTP est ensuite éliminé de nos choix quand on essaie de réaliser l'accord de phase pour une pompe à 390 nm et un signal dans le visible. Le KTP est surtout utilisé en type II puisque son  $d_{eff}$  est à peu près un ordre de grandeur plus élevé qu'en type I [44,52]. Ceci dit, on ne trouve pas d'accord de phase en type II pour une pompe à 390 nm. Si l'on considère tout de même la possibilité d'utiliser le KTP en type I, on se rend compte que le cristal doit être coupé à  $\varphi = 90^\circ$  (orientation dans le plan y-z) pour pouvoir accorder en phase dans toute la gamme du visible. Alors, le  $d_{eff}$  dans le plan y-z en type I est nul [50]. Il s'avère donc que le KTP n'est pas un bon cristal pour notre application malgré sa forte non linéarité.

Il nous reste donc à considérer les cristaux de LBO, de BBO et d'urée. Nous avons choisi le cristal de BBO puisque sa non linéarité est la plus élevée parmi ces trois cristaux. De plus, il est non hygroscopique [51] tandis que l'urée a besoin d'être monté dans une cellule de protection contre l'humidité [53]. Son seuil de dommage est à peu près 3 fois plus élevé que celui de l'urée pour des impulsions de 10 ns à  $1,06 \mu\text{m}$  [51] mais moins élevé que celui de LBO [54].

Le BBO est un cristal uniaxe trigonal de classe cristalline 3m. Il est optiquement négatif ayant son indice de réfraction ordinaire plus grand que son indice de réfraction extraordinaire ( $n_o > n_e$ ) [37]. Les équations de Sellmeier sont les suivantes [55]:

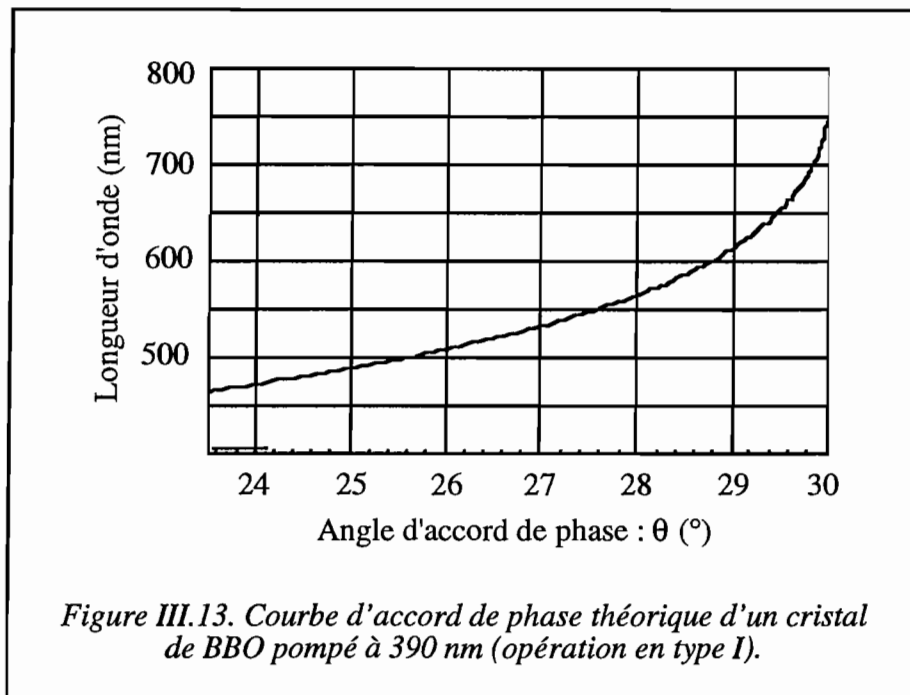
$$n_o^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2 \quad (\text{III.76})$$

$$n_e^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516\lambda^2, \quad (\text{III.77})$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde donnée en microns.



Le BBO s'accorde en phase pour opération en type I avec une pompe à 390 nm et un signal dans le visible. La courbe d'accord de phase théorique est donnée sur la figure III.13. Son acceptation angulaire se trouve entre 0,6 et 2 mrad-cm, plus faible que celle de LBO (10 à 60 mrad-cm) [50]. Il est vendu par Castech-Phoenix, Inc., en Chine, et il est possible d'avoir des cristaux de 20x20x15 mm<sup>3</sup> [55-56].



Une limitation au cristal de BBO est qu'il n'est pas possible de l'utiliser en accord de phase non critique (taillé pour  $\theta = 90^\circ$ ) [54]. Il y a plusieurs intérêts de l'accord de phase non critique [50]. Le premier est que le  $d_{eff}$  est souvent maximal à cet angle puisqu'il est en général une fonction sinusoïdale de  $\theta$ . En plus, les acceptances angulaire et spectrale sont plus élevées. Enfin, le "walk-off" est nul, ce qui permet une forte efficacité de conversion. Malheureusement, pour le BBO, il s'avère que le  $d_{eff}$  à  $\theta = 90^\circ$  n'est pas maximal. En fait, en type II, il est nul et, en type I, il dépend de  $d_{31}$ , qui est très petit [51].

Dans nos expériences, nous nous servons du cristal de BBO pour faire de la génération du second harmonique à 780 nm et de l'amplification paramétrique avec une pompe à 390 nm et un signal dans le visible.

### III.5. Logiciel

Nous avons développé un logiciel permettant de déterminer les courbes d'accord de phase d'un cristal quelconque uniaxe ou biaxe, ainsi que la susceptibilité non linéaire effective,  $d_{eff}$ , l'écart des vitesses de groupe et le "walk-off" d'un processus de génération de différences de fréquences. Ainsi, on a pu calculer les angles de coupe des cristaux et estimer l'influence des effets d'écart de vitesses de groupe et de "walk-off" sur nos expériences.

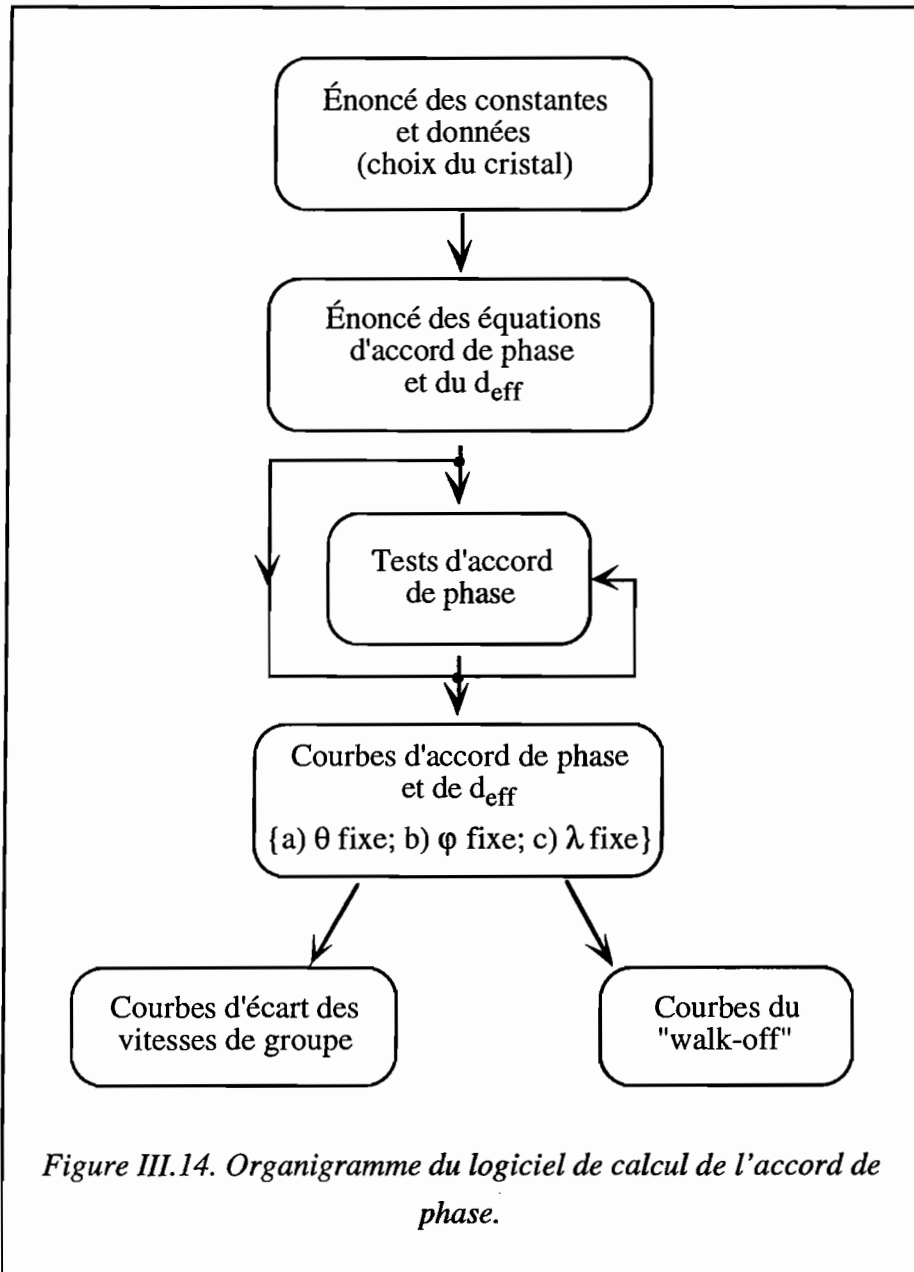
Le logiciel était basé sur l'environnement *Mathematica* et a été conçu pour tourner sur *Macintosh*. *Mathematica* est un logiciel qui comporte un langage d'informatique et qui vise des applications mathématiques. Il comprend de nombreux modules de calculs analytique et numérique ainsi que des graphiques à deux et trois dimensions. Les programmes écrits avec *Mathematica* sont interactifs, permettant à l'utilisateur d'interroger le programme à tout moment.

Un organigramme de notre programme, intitulé pm- $\Delta$ fréq-(OPO), se trouve sur la figure III.14. On y constate six sections distinctes: l'énoncé des valeurs des constantes et des données; l'énoncé des équations d'accord de phase et de  $d_{eff}$ ; les tests d'accord de phase; le calcul des courbes d'accord de phase et de  $d_{eff}$ ; le calcul de l'écart de vitesses de groupe de deux ondes se propageant dans un cristal; et le calcul du "walk-off" de deux ondes.

Le choix du cristal à considérer se fait dans la section d'énoncé des valeurs des constantes et des données. Actuellement, il est possible de choisir entre les cristaux non linéaires de LBO (biaxe), de BBO (uniaxe), de KTP (biaxe), de LiNbO<sub>3</sub> (uniaxe) et de KTA (biaxe). On y donne les valeurs des constantes de Sellmeier et les matrices de  $d_{ik}$ , spécifiées selon les axes principaux optiques, permettant plus tard de calculer la valeur de  $d_{eff}$ .

L'énoncé des équations d'accord de phase et de  $d_{eff}$  présente l'ensemble des équations nécessaires aux calculs des courbes de caractérisation du processus de génération de différences de fréquences pour le cristal choisi. On commence par poser la condition de conservation de l'énergie, autrement dit,

$$\omega_i = \omega_p - \omega_s, \quad (\text{III.78})$$



où les indices  $i$ ,  $p$  et  $s$  correspondent à l'idler, à la pompe et au signal respectivement. Ensuite, on détermine les indices propres du cristal à chaque longueur d'onde en utilisant les équations de Sellmeier et on s'en sert pour faire le calcul de l'équation de la binappe (voir section III.3.5.3). Ce dernier calcul fournit deux valeurs d'indice,  $n_1$  et  $n_2$ , pour chaque onde (pompe, signal, idler) correspondant aux deux polarisations possibles. On calcule ensuite les directions de polarisation de l'onde, autrement dit les directions des vecteurs de déplacement  $\vec{D}$  correspondant à ces deux polarisations. Comme on a vu dans la section III.3.5.4, ce calcul se réalise en trouvant l'intersection de trois surfaces: l'indicatrice, le plan perpendiculaire à la

propagation de l'onde passant par l'origine,  $s_x x + s_y y + s_z z = 0$ , et une sphère de rayon  $r = n_1$  ou  $n_2$ . En connaissant les indices propres du cristal, on peut alors calculer les cosinus directeurs des champs électriques  $\vec{E}$  puisque

$$D_i = \varepsilon_0 n_i^2 E_i, \quad (\text{III.79})$$

où  $\varepsilon_0$  est la permittivité de l'espace libre. Ces cosinus directeurs nous permettront ensuite de calculer le  $d_{eff}$ .

Dans la suite des calculs, on a considéré six cas correspondants aux six combinaisons possibles des polarisations des ondes pompe, signal et idler. Si l'on définit la direction 1 comme étant la direction de polarisation correspondant à l'indice de réfraction  $n_1$  et la direction 2 comme étant la direction de polarisation correspondant à l'indice de réfraction  $n_2$ , on peut faire un tableau de ces six cas (voir tableau III.4). On voit que le cas 1 et le cas 2 sont des accords de phase de type I puisque le signal et l'idler sont polarisés dans la même direction et perpendiculaires à la pompe. Également, les cas 3, 4, 5 et 6 sont de type II puisque le signal et l'idler sont mutuellement orthogonaux.

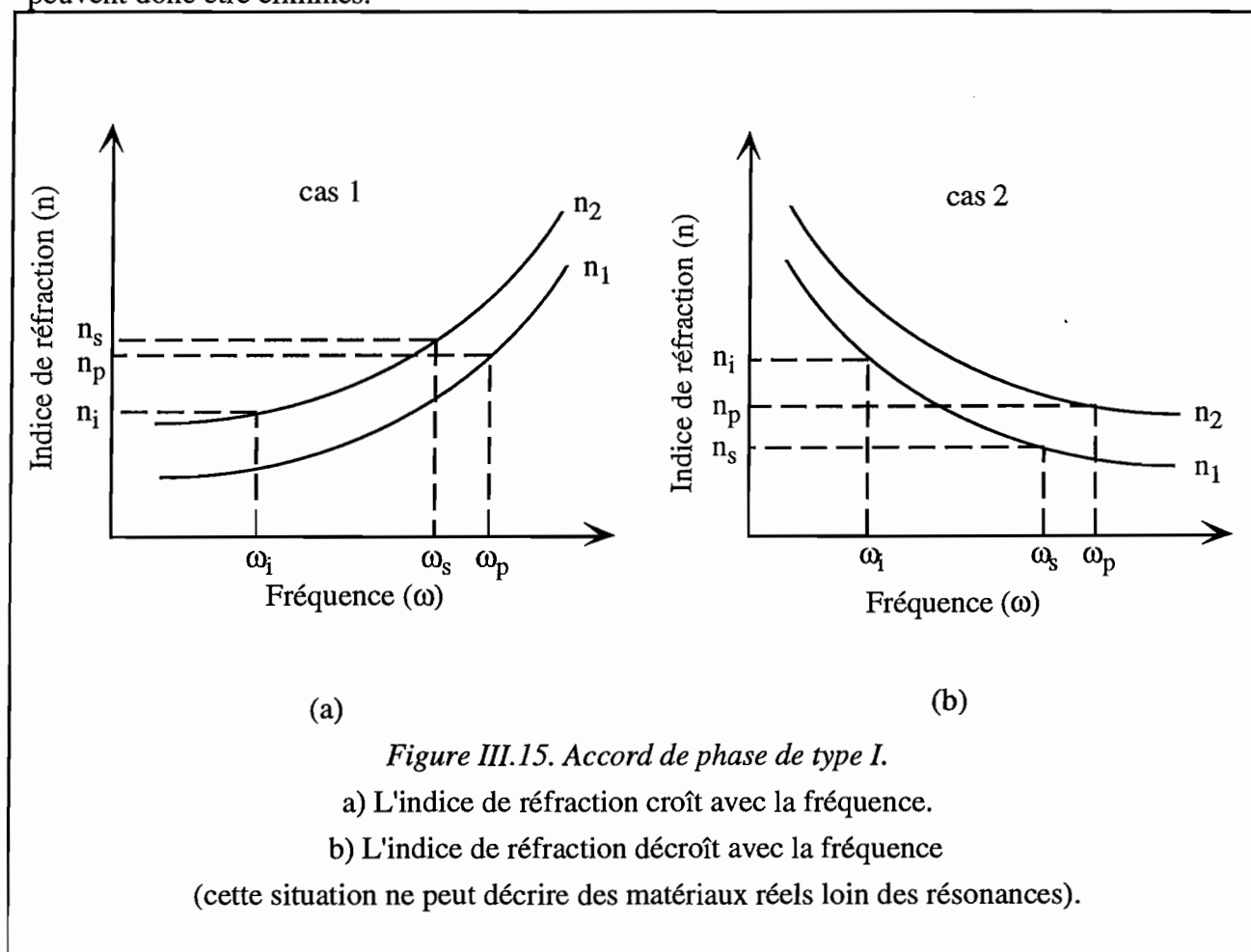
Type	Cas	Direction de la pompe	Direction du signal	Direction de l'idler
I	1	1	2	2
I	2	2	1	1
II	3	1	1	2
II	4	1	2	1
II	5	2	1	2
II	6	2	2	1

*Tableau III.4 : Résumé des différents cas de génération de différences de fréquences.*

Loin des résonances d'un milieu, l'indice de réfraction est toujours une fonction croissante de la fréquence. En définissant les six cas de génération de différences de fréquences, nous n'avons pas tenu compte de ce fait. On cherche donc à savoir quels cas correspondent à un indice de réfraction décroissant avec la fréquence afin de les éliminer. Pour cela, on considère l'équation d'accord de phase  $n_p \omega_p = n_s \omega_s + n_i \omega_i$  et on y injecte la condition de conservation d'énergie  $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ , ce qui donne

$$(n_p - n_i)\omega_p = (n_s - n_i)\omega_s. \quad (\text{III.80})$$

Puisque  $\omega_p > \omega_s$ , alors  $n_p - n_i < n_s - n_i$ . Selon notre convention,  $n_1$  est toujours plus petit que  $n_2$ . Si l'on prend, par exemple, le type I et l'on se réfère à la figure III.15, on voit que le cas 1 correspond à un indice de réfraction qui croît avec la fréquence tandis que le cas 2 correspond à un indice de réfraction qui est une fonction décroissante de la fréquence. De la même manière, on constate que les cas 5 et 4 se comportent comme le cas 2. Ces trois cas peuvent donc être éliminés.



Ensuite, dans cette deuxième section du programme, on pose simplement le calcul de l'accord de phase:

$$\Delta k = (n_p \omega_p - n_s \omega_s - n_i \omega_i) / c. \quad (\text{III.81})$$

L'accord de phase se fera quand  $\Delta k = 0$ .

On a vu dans la section III.3.4.6, que le tenseur de susceptibilité non linéaire effective est donné par l'expression

$$d_{eff} = \sum_{ijk} \cos \alpha_i d_{ijk} \cos \beta_j \cos \gamma_k, \quad (\text{III.82})$$

où  $\cos \alpha_i$  est le cosinus directeur de l'idler,  $\cos \beta_j$  est le cosinus directeur du signal et  $\cos \gamma_k$  est le cosinus directeur de la pompe. Pour faciliter le calcul de l'ordinateur, on transforme cette équation sous la forme d'un produit de matrices et on se sert du tenseur de susceptibilité contracté  $d_{ik}$  défini dans la section III.3.4.3. Pour ce faire, on définit la matrice "vectmatrice<sub>s</sub>" suivante:

$$vectmatrice_s = \begin{bmatrix} \cos \beta_x & 0 & 0 \\ 0 & \cos \beta_y & 0 \\ 0 & 0 & \cos \beta_z \\ 0 & \cos \beta_z & \cos \beta_y \\ \cos \beta_z & 0 & \cos \beta_x \\ \cos \beta_y & \cos \beta_x & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{III.83})$$

et on trouve:

$$d_{eff} = [\cos \alpha] \cdot d_{ik} \cdot vectmatrice_s \cdot [\cos \gamma], \quad (\text{III.84})$$

où  $[\cos \alpha]$  et  $[\cos \gamma]$  sont les matrices correspondantes aux cosinus directeurs de l'idler et de la pompe respectivement.

La troisième section du programme permet de faire des tests simples pour déterminer si l'accord de phase existe pour un jeu de paramètres donné (type, longueur d'onde). Dans un premier temps, on fixe l'angle  $\theta$  et on trouve l'angle  $\varphi$  pour lequel il y a accord de phase; dans un deuxième temps, on fait le contraire. Cette section est surtout conçue pour déterminer pour quels cas et dans quels plans du cristal il y a accord de phase afin de permettre par la suite de tracer les courbes d'accord de phase.

Les trois parties de la quatrième section du programme sont consacrées à tracer les courbes d'accord de phase et à déterminer les valeurs de  $d_{eff}$  correspondantes. On doit toujours fixer le cas de génération de différences de fréquences et la longueur d'onde de la pompe. Ensuite, dans la première partie, on fixe  $\theta$  et trouve l'angle  $\varphi$  en fonction des longueurs d'onde du signal et de l'idler en posant  $\Delta k = 0$ . Dans la deuxième partie, on fixe  $\varphi$  et on détermine  $\theta$  en fonction des longueurs d'onde du signal et de l'idler et, dans la troisième partie, on fixe les longueurs d'onde du signal et de l'idler et on détermine  $\varphi$  en fonction de  $\theta$ . Dans chaque partie, le calcul de la courbe d'accord de phase est suivi directement par le calcul du  $d_{eff}$  correspondant. Il faut noter tout de même que ce calcul de  $d_{eff}$  est très approximatif, les valeurs exactes des coefficients de la matrice étant très mal connues.

La cinquième section du programme permet le calcul de l'écart des vitesses de groupe  $v_{vg}$  de la pompe, du signal et de l'idler. Pour une direction de propagation et une polarisation données, on calcule l'indice de réfraction en fonction de la fréquence autour de la fréquence de l'onde considérée. Ce résultat sert ensuite à calculer la vitesse de groupe de l'onde en utilisant l'équation III.73 dans la section III.3.5.8. Après avoir fait ce calcul pour la pompe, le signal et l'idler, on détermine l'écart des vitesses de groupe avec l'équation III.74.

La dernière section du programme permet le calcul du "walk-off" des trois ondes et nous donne le choix de faire varier soit  $\theta$ , soit  $\varphi$ . Selon la procédure décrite dans la section III.3.5.7, on calcule d'abord les vecteurs de Poynting des trois ondes en connaissant leurs cosinus directeurs. L'angle de "walk-off" est alors l'angle entre les vecteurs de Poynting. On rappelle que quand deux des ondes sont des ondes ordinaires, il n'y a pas de "walk-off" entre les deux.

Ce programme nous a servi à calculer toutes les courbes d'accords de phase ainsi que les valeurs théoriques d'écart de vitesses de groupe et de "walk-off" mentionnées dans ce mémoire.

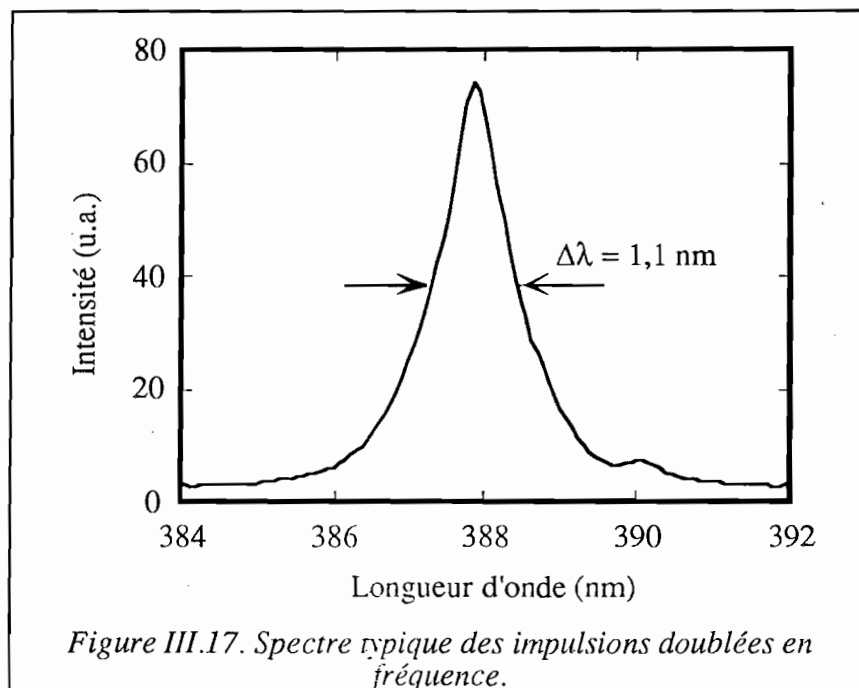
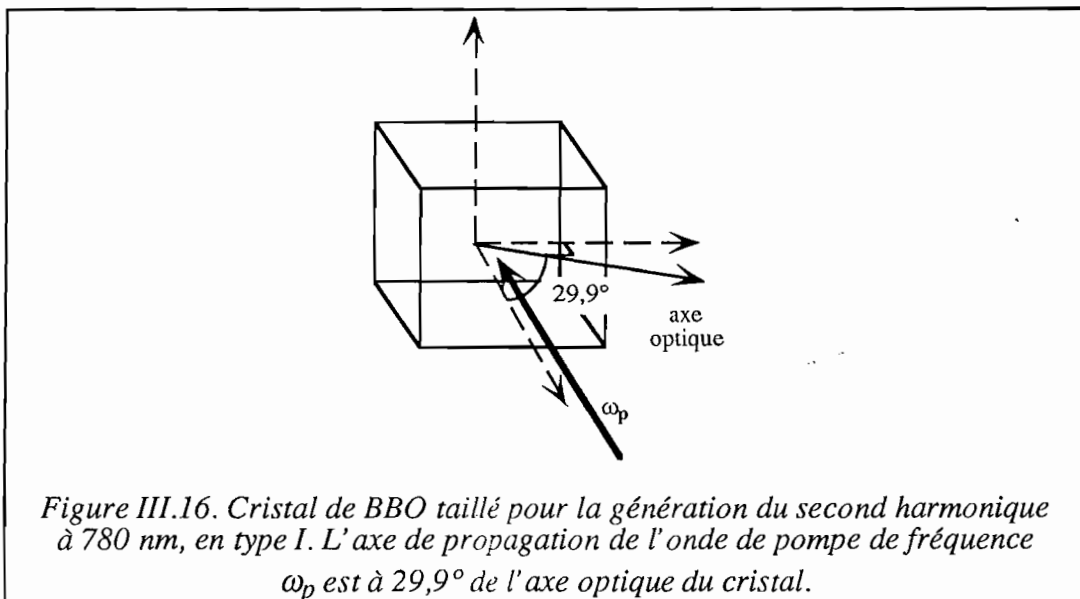
## **III.6. APO femtoseconde accordable dans le visible**

Nous avons décidé de construire un APO femtoseconde accordable sur tout le spectre visible [1-3] afin de répondre aux besoins de notre laboratoire. En même temps, cela nous a permis de combler une lacune dans le développement d'APO femtosecondes. Nous avons vu précédemment qu'il existe des APO femtosecondes accordables dans l'infrarouge. Par contre, à nos connaissances, une source semblable mais accordable dans le visible n'a jamais été démontrée.

### **III.6.1. Les impulsions pompe**

L'accordabilité d'un APO est limitée partiellement par la longueur d'onde des impulsions pompe. Comme on a vu dans la section III.3.3.2, les fréquences des trois ondes en interaction, la pompe ( $\omega_p$ ), le signal ( $\omega_s$ ) et l'idler ( $\omega_i$ ), sont liées par la relation simple  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ . La fréquence de la pompe représente alors la limite supérieure à l'accordabilité de l'APO. Il y a donc un intérêt à fixer la longueur d'onde de la pompe autour de 400 nm. Le signal seul nous suffirait alors pour accéder aux longueurs d'onde entre 400 nm et 800 nm, effectivement sur tout le spectre visible.

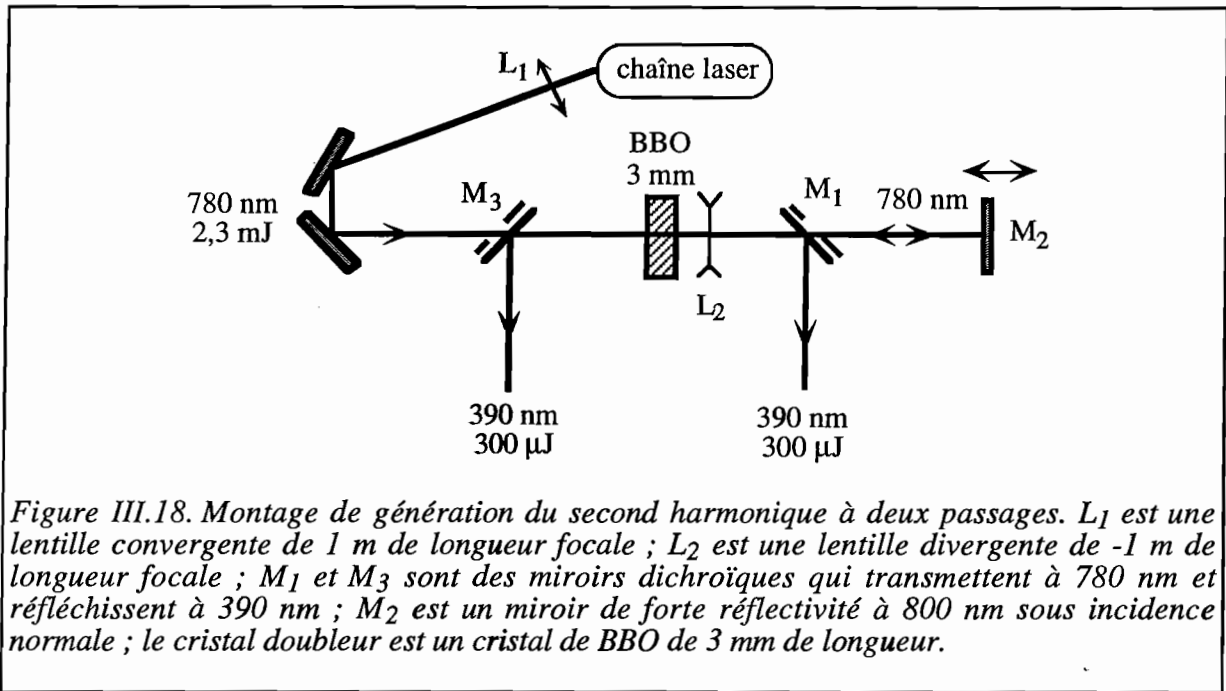
La longueur d'onde des impulsions amplifiées sortant de notre chaîne laser saphir dopé au titane se trouve à 780 nm. Il était donc simple de prendre ces impulsions et de les doubler pour créer des impulsions pompe à 390 nm, longueur d'onde idéale pour notre application. Le cristal doubleur utilisé est un cristal de  $\beta$ -borate de baryum (BBO) taillé pour la génération du second harmonique à 780 nm, type I. Le BBO étant un cristal uniaxe, on peut spécifier sa coupe par un seul angle  $\theta$ , l'angle entre la normale à la face d'entrée du cristal et l'axe optique. Dans ce cas-ci, cet angle est de  $29,9^\circ$ . La longueur du cristal est de 3 mm avec des faces de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  protégées par des couches anti-réfléchissantes à 780 nm. La figure III.16 montre comment a été taillé ce cristal. Un spectre typique des impulsions à 390 nm est donné sur la figure III.17. La largeur à mi-hauteur est de 1,1 nm.





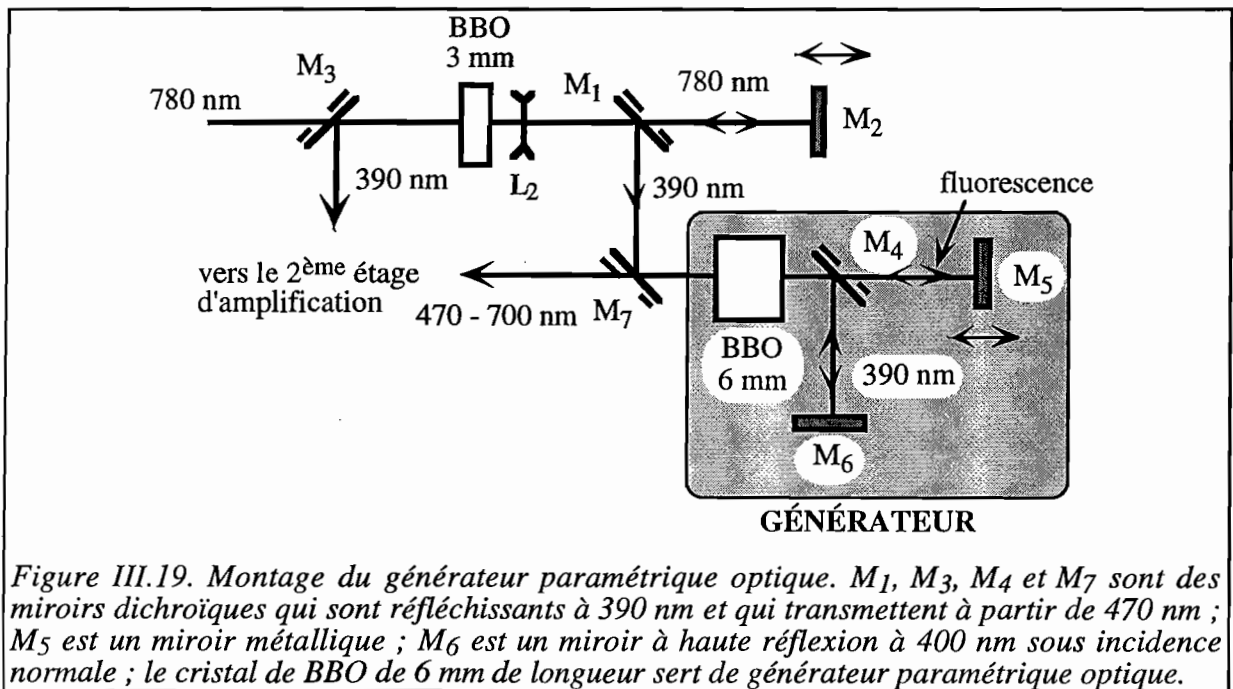
On peut donner une limite inférieure à la durée de ces impulsions (la largeur à mi-hauteur temporelle) en calculant la limite de la transformée de Fourier pour des impulsions en forme de sécante hyperbolique au carré (voir section I.2.1). Alors  $\Delta t \geq K\lambda^2/c\Delta\lambda$ , où  $K = 0,315$  pour des impulsions en sécante hyperbolique carrée,  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $\lambda$  est la longueur d'onde de l'impulsion et  $\Delta\lambda$  est sa largeur à mi-hauteur spectrale. Pour des impulsions à 390 nm qui ont une largeur spectrale de 1,1 nm, leur durée temporelle doit être d'au moins 145 fs. Il n'est pas possible de prendre une autocorrélation de ces impulsions dans notre laboratoire afin de déterminer leur durée à cause de leur haute fréquence. Puisque le principe de l'autocorrélateur est de mesurer le signal du second harmonique engendré par l'interaction de deux impulsions qui se croisent dans un cristal non linéaire, il serait nécessaire de doubler les impulsions à 390 nm et de détecter le signal à 195 nm. Malheureusement, il n'existe pas de cristaux susceptibles de doubler la fréquence d'un rayonnement à 390 nm. Ceci dit, notre intérêt principal n'était pas de connaître la durée des impulsions pompe mais plutôt de s'assurer que l'on pourrait les utiliser pour produire des impulsions signal brèves. On a donc considéré que des impulsions limitées à 145 fs ne limiteraient pas la génération d'impulsions signal entre 150 fs et 500 fs.

Puisque nous avons envisagé de monter un APO à deux étages d'amplification, nous avons eu besoin de deux faisceaux pompe à 390 nm. Afin d'optimiser le rendement de l'APO, il était indésirable de simplement diviser en deux le faisceau pompe engendré par le doublage. Nous avons donc innové en utilisant un montage de génération du second harmonique à deux passages. Le schéma de ce montage se trouve reporté sur la figure III.18. Il consiste à séparer les faisceaux à 780 nm et à 390 nm après le premier passage avec un miroir dichroïque  $M_1$  et de renvoyer le restant du faisceau à 780 nm dans le cristal doubleur avec le miroir  $M_2$ . Ce miroir de forte réflectivité à 800 nm sous incidence normale est monté sur un déplacement à butée différentielle afin de permettre un ajustement fin du délai entre les deux étages de l'APO. Après le deuxième passage, les faisceaux à 780 nm et 390 nm sont séparés par le miroir dichroïque  $M_3$ . Une lentille convergente de 1 m de longueur focale ( $L_1$ ) se trouvant avant le cristal de BBO permettait une focalisation légère dans le cristal pour augmenter le rendement ainsi qu'une compensation des aberrations introduites par le compresseur. La lentille divergente  $L_2$  ( $f = -1$  m) recollimate alors les faisceaux à 780 nm et à 390 nm. Les deux sorties de ce montage fournissent chacune de façon régulière 300  $\mu$ J par impulsion quand il est pompé par des impulsions à 780 nm de 2,3 mJ, ce qui représente en rendement par passage de 13%. Les formes spatiales des deux sorties sont suffisamment uniformes pour pomper les deux étages de l'APO.



### III.6.2. Montage expérimental du générateur paramétrique optique à double passage

Le premier étage de notre APO femtoseconde accordable dans le visible est un générateur paramétrique optique (GPO) à double passage. Le schéma de ce GPO se trouve sur la figure III.19. Le but principal de cet étage du montage est de créer des impulsions dans le visible afin de les amplifier dans un deuxième étage.



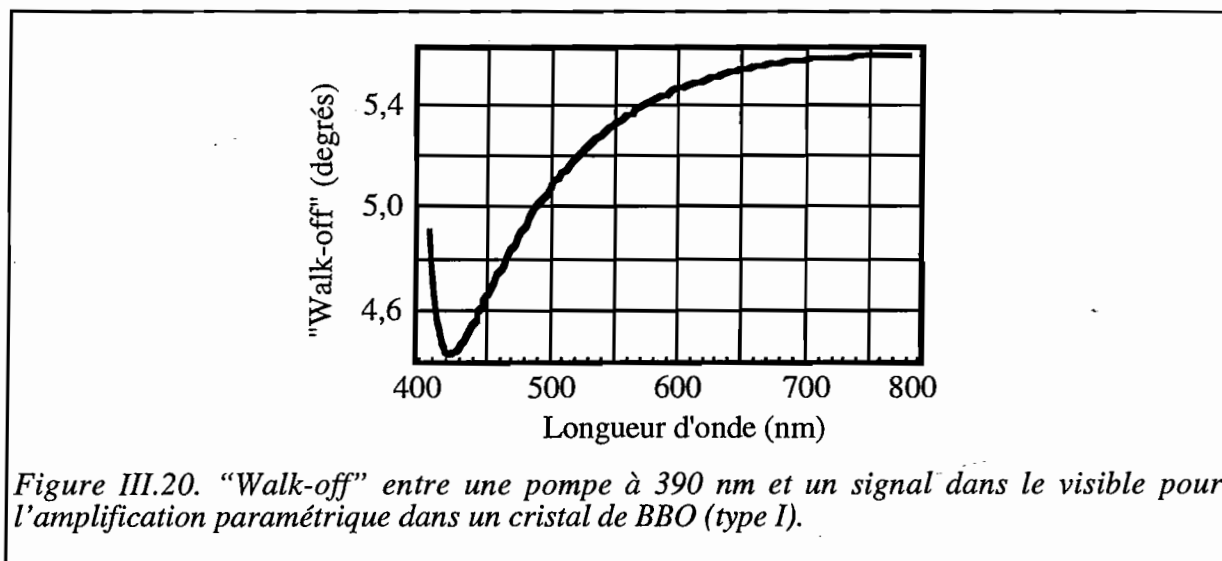
Le cristal non linéaire choisi pour ce premier étage est un cristal de BBO d'une longueur de 6 mm, d'une face de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ , et taillé pour la génération du second harmonique à  $1,06 \mu\text{m}$  ( $22,8^\circ$  de l'axe optique). Le fait que ce cristal ne soit pas taillé pour la génération de différences de fréquences pour une pompe à 390 nm n'était pas critique, sa seule conséquence étant que le cristal a dû être incliné légèrement pour l'accorder en phase. La longueur du cristal a été choisie pour avoir un fort gain.

Le premier passage dans le cristal sert à la production de la fluorescence paramétrique. Cette fluorescence est produite selon l'accord de phase dans le cristal. Autrement dit, la longueur d'onde de la fluorescence paramétrique engendrée sur l'axe de la pompe doit répondre aux critères de l'accord de phase colinéaire pour cette orientation du cristal (voir section III.3.3.2). Également, la longueur d'onde de la fluorescence paramétrique émise à un angle donné par rapport à l'axe de la pompe est déterminée par l'accord de phase noncolinéaire dans le cristal. C'est cette génération de fluorescence paramétrique hors axe qui donne lieu aux anneaux de couleurs associés aux OPO, aux APO et aux GPO (voir la figure III.7). Ceci dit, c'est la génération de fluorescence paramétrique dans l'axe de la pompe qui nous intéressait pour cette application. La fluorescence paramétrique émise hors de l'axe représente pour nous une simple perte en rendement du GPO.

Il est clair que, pour une orientation donnée du cristal, deux impulsions sont émises sur l'axe de la pompe, ces impulsions correspondant au signal et à l'idler (voir la section III.3.3.3). Dans notre cas, on appellera "signal" les impulsions émises ayant une longueur d'onde entre 390 nm (la longueur d'onde de la pompe) et 780 nm (la dégénérescence) et "idler" celles ayant une longueur d'onde au-delà de 780 nm. Puisque nous avons choisi comme but principal la génération d'impulsions dans le visible, nous avons cherché à amplifier seulement le signal. Cependant, l'idler existe et aurait pu être récupéré si nécessaire.

Après le premier passage de la pompe dans le cristal de BBO, un miroir dichroïque  $M_4$  sert à séparer les impulsions pompe des impulsions signal (voir la figure III.19). Cette séparation des deux faisceaux permet alors d'ajouter une ligne à retard sur l'une des deux voies, dans notre cas celle de la fluorescence paramétrique (le choix est entièrement arbitraire). Cette ligne à retard est indispensable pour compenser l'écart des vitesses de groupe des impulsions pompe et signal et ainsi optimiser le recouvrement temporel des deux impulsions pendant le deuxième passage dans le cristal. Ce deuxième passage se réalise simplement à l'aide de deux miroirs, l'un normal au faisceau signal et placé sur une translation qui sert de ligne à retard ( $M_5$ ) et l'autre normal au faisceau à 390 nm ( $M_6$ ).  $M_5$  est un miroir métallique pour réfléchir la lumière visible tandis que  $M_6$  est un miroir à haute réflexion à 400 nm sous incidence normale.

Il est important d'optimiser la superposition non seulement temporelle mais aussi spatiale des impulsions signal et pompe dans le cristal au retour. Pour cette raison, l'alignement de ce retour pour que les deux faisceaux retracent leurs trajets du premier passage est en principe nécessaire. En pratique, cet alignement est modifié par l'effet de "walk-off" dans le cristal, discuté auparavant dans la section III.3.5.7. Le "walk-off" entre un signal à 600 nm et une pompe à 390 nm est calculé voisin de  $5,5^\circ$  (voir la figure III.20). L'alignement se fait donc pour optimiser le rendement à la sortie sans trop se soucier de la colinéarité des faisceaux au premier et au deuxième passages.



Le signal amplifié par le deuxième passage dans le cristal de BBO est séparé du trajet de la pompe par le miroir dichroïque M<sub>7</sub>. Cette sortie est ensuite utilisée afin d'injecter le deuxième étage de l'APO. Le restant de la pompe à 390 nm se trouve renvoyé dans le cristal doubleur et suit ensuite le cheminement de la deuxième sortie de pompe à 390 nm (voir figure III.19). Il ne sert plus après ce deuxième passage.

L'accord du GPO se fait très simplement en tournant le cristal de BBO autour d'un axe orthogonal à l'axe optique et à l'axe de la propagation de la pompe. Ceci est possible car, si le cristal est orienté pour la génération de fluorescence paramétrique sur l'axe à une longueur d'onde donnée au premier passage, il est nécessairement orienté pour l'amplification paramétrique à la même longueur d'onde au deuxième passage. Pour bien optimiser le rendement du GPO, il est toutefois nécessaire d'ajuster le retard entre la pompe et le signal au deuxième passage pour compenser l'écart des vitesses de groupe.



Le cristal non linéaire choisi pour ce deuxième étage est une fois de plus un cristal de BBO. Afin de tester l'effet de la longueur du cristal sur l'énergie et la durée des impulsions de sortie, nous avons fait des essais avec deux cristaux, un de 8 mm de longueur et l'autre de 3 mm de longueur. Le cristal de 3 mm de longueur est identique au cristal utilisé pour le doublage, c'est-à-dire, taillé pour la génération du second harmonique à 780 nm (type I), à  $29,9^\circ$  de l'axe optique. Il a une face de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  et des couches anti-réfléchissantes à 780 nm. Le cristal de 8 mm de longueur est taillé pour l'amplification paramétrique (type I) avec une pompe à 390 nm et un signal à 650 nm ( $29,4^\circ$  de l'axe optique). Ses faces sont de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  et elles ont un traitement protecteur anti-hygroscopique.

Afin de superposer spatialement les faisceaux pompe et signal dans le cristal du deuxième étage, on se sert du miroir dichroïque  $M_8$  (voir la figure III.21). Ensuite, pour les superposer temporellement, on utilise la ligne à retard créée par le miroir  $M_2$  monté sur une translation.

L'orientation du cristal de BBO de ce deuxième étage doit impérativement être identique à celle du GPO afin de bien satisfaire à la condition d'accord de phase. L'accord en longueur d'onde de l'APO à deux étages se fait donc en deux étapes. D'abord, il faut accorder le premier étage en tournant le cristal et en optimisant le retard entre la pompe et le signal avec le miroir  $M_5$ . Ensuite, il est nécessaire de tourner le cristal du deuxième étage pour optimiser le rendement de l'amplification et, encore une fois, bien ajuster le retard entre le signal et la pompe avec le miroir  $M_2$ .

La lentille  $L_3$  de longueur focale de 25 cm sert à focaliser légèrement les faisceaux dans le cristal afin d'augmenter le rendement. Enfin, le miroir dichroïque  $M_9$  (voir la figure III.21) sert à séparer le restant de la pompe du signal de sortie amplifié.

#### **III.6.4. Résultats: APO à deux étages**

L'APO à deux étages que nous venons de décrire est une source cohérente qui peut, en principe, être accordée entre 390 nm et 780 nm pour le signal et au-delà de 780 nm pour l'idler. Le fait de la pomper par des impulsions femtosecondes nous permet d'espérer qu'elle sera aussi bien une source d'impulsions ultra-brèves qu'une source accordable. Dans cette

section, je vais présenter les performances réelles de cette source et discuter des facteurs qui limitent l'opération de l'APO.

#### III.6.4.1. L'énergie et la durée des impulsions de sortie

Les impulsions à 780 nm utilisées pour pomper le cristal doubleur avaient une énergie d'environ 2,3 mJ. De façon typique, cette énergie a permis la production d'impulsions à 390 nm de 300  $\mu$ J pour pomper chaque étage de l'APO.

Dans le tableau III.5, on trouve un résumé des performances de l'APO. On remarque que des résultats sont donnés pour un cristal de BBO de 8 mm dans le deuxième étage ainsi que pour un cristal de BBO de 3 mm dans ce même étage. La longueur du cristal de BBO dans le premier étage est toujours de 6 mm.

Longueur du cristal 2 <sup>ème</sup> étage	Longueur d'onde (nm)	Durée 780 nm (fs)	Durée GPO (fs)	Durée APO (fs)	Énergie GPO ( $\mu$ J)	Énergie APO ( $\mu$ J)	Gain ( $E_G/E_A$ )
8 mm	640	13000	1400	980	1,65	29	10,6
8 mm	645	4000	595	670	1,7	17,6	10
8 mm	650	1700	570	430	0,9	9	10
3 mm	600	1800	750	900	2	10,2	5,1
3 mm	600	1300	620	550	2,5	7,5	3
3 mm	560	1200	*	350	1,1	4,5	4,1

Tableau III.5 : Résumé des performances de l'APO à deux étages.

Sur la figure III.22, ces mêmes résultats sont présentés graphiquement. On remarque que pour les deux longueurs de cristal il existe un compromis entre l'énergie des impulsions et leur durée. Autrement dit, on peut chercher des impulsions plus courtes si on est prêt à sacrifier l'énergie.

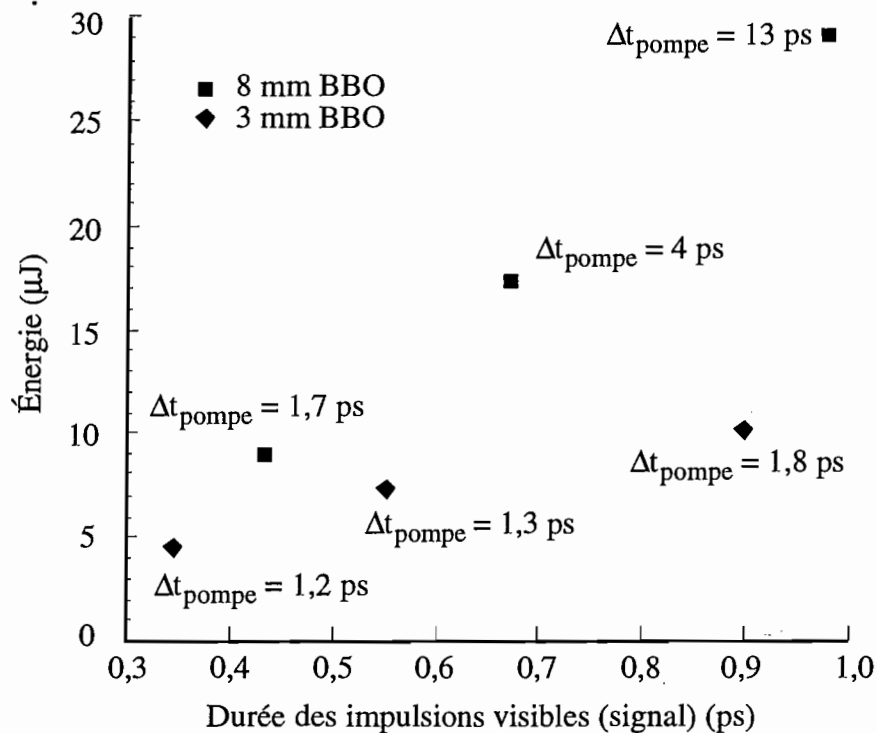
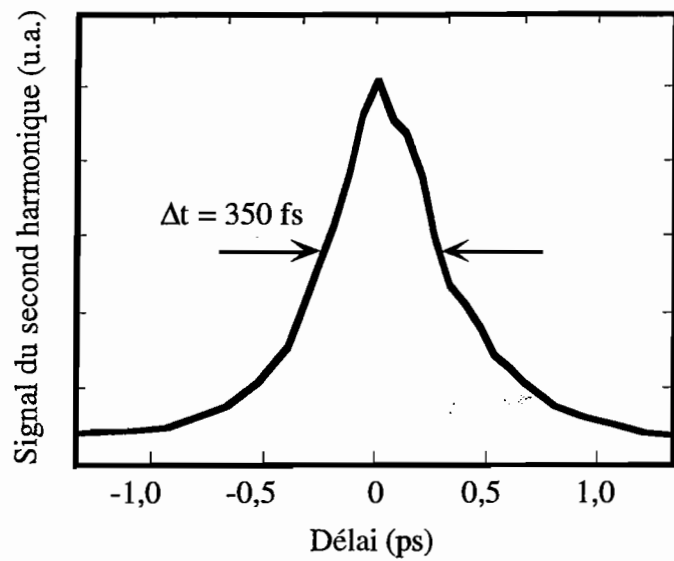


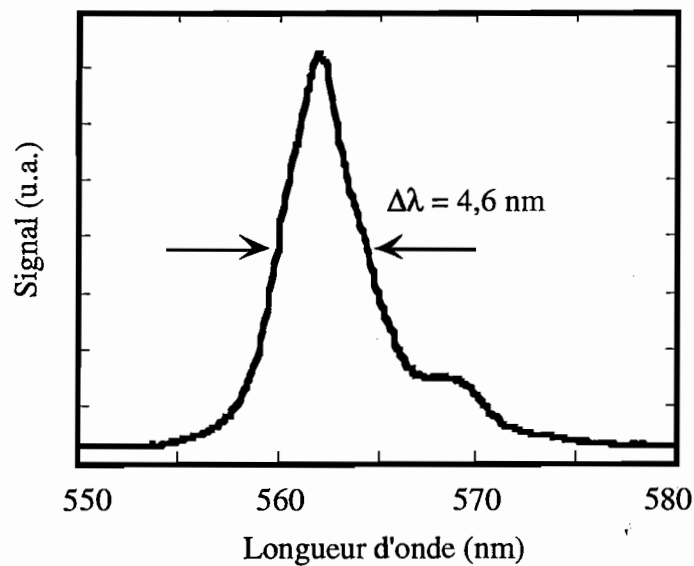
Figure III.22. Résumé des performances de l'APO à deux étages : énergie des impulsions à la sortie du deuxième étage en fonction de leur durée. Le cristal du premier étage est un cristal de BBO de 6 mm de longueur ; celui du deuxième étage est un cristal de BBO soit de 3 mm ou de 8 mm de longueur ;  $\Delta t_{\text{pompe}}$  donne la durée des impulsions à 780 nm.

L'énergie des impulsions de sortie pouvait atteindre 30  $\mu\text{J}$  pour le cristal le plus long mais seulement 10  $\mu\text{J}$  pour le plus court. On voit que le gain en énergie dans le deuxième étage est deux fois plus grand pour le cristal le plus long. Par contre, le cristal de 3 mm nous a permis de produire les impulsions les plus courtes, celles de 350 fs. L'autocorrélation et le spectre de ces impulsions courtes de 4,5  $\mu\text{J}$  sont présentés sur la figure III.23.





(a)



(b)

Figure III.23. Impulsions courtes de 350 fs de durée et de 4,5  $\mu$ J d'énergie.  
a) autocorrélation - b) spectre.

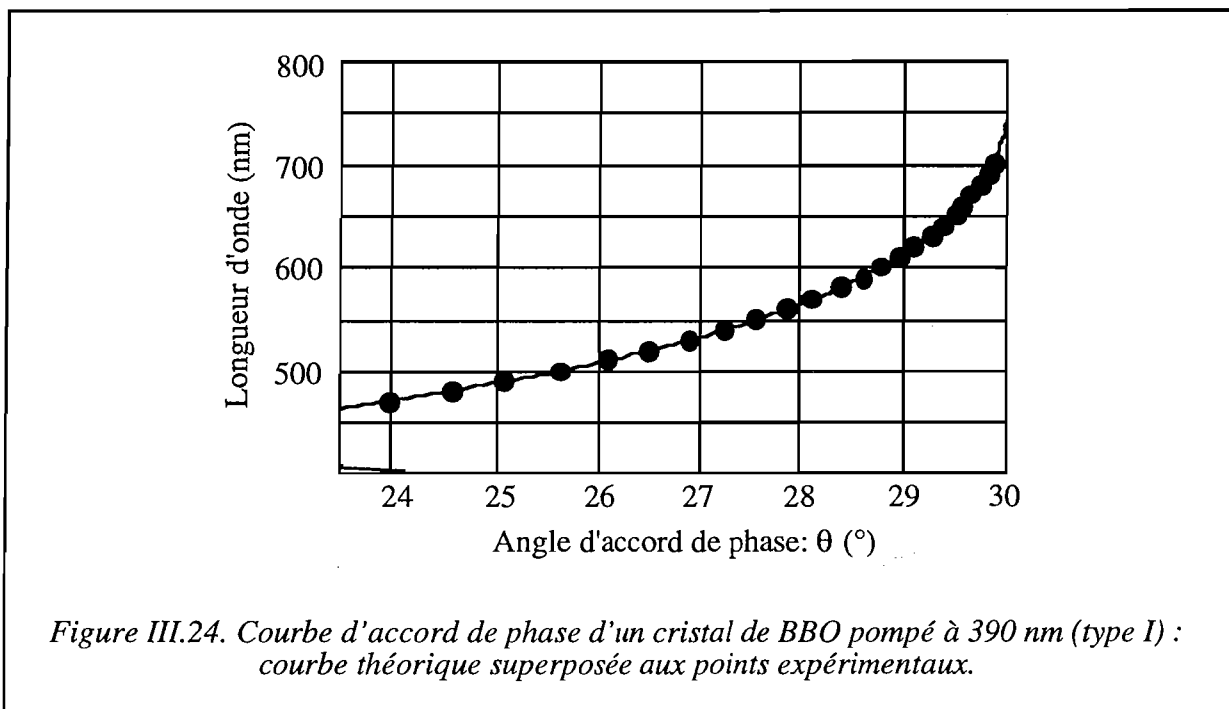
#### III.6.4.2. La dispersion de vitesse de groupe

La dispersion de vitesse de groupe joue un rôle important dans la production de ces impulsions subpicosecondes. En fait, la dispersion dans les cristaux de BBO était tellement importante qu'il était nécessaire de précompenser cette dispersion en ajoutant de la dispersion négative aux impulsions à 780 nm. Ceci est obtenu en ajustant la séparation des réseaux du

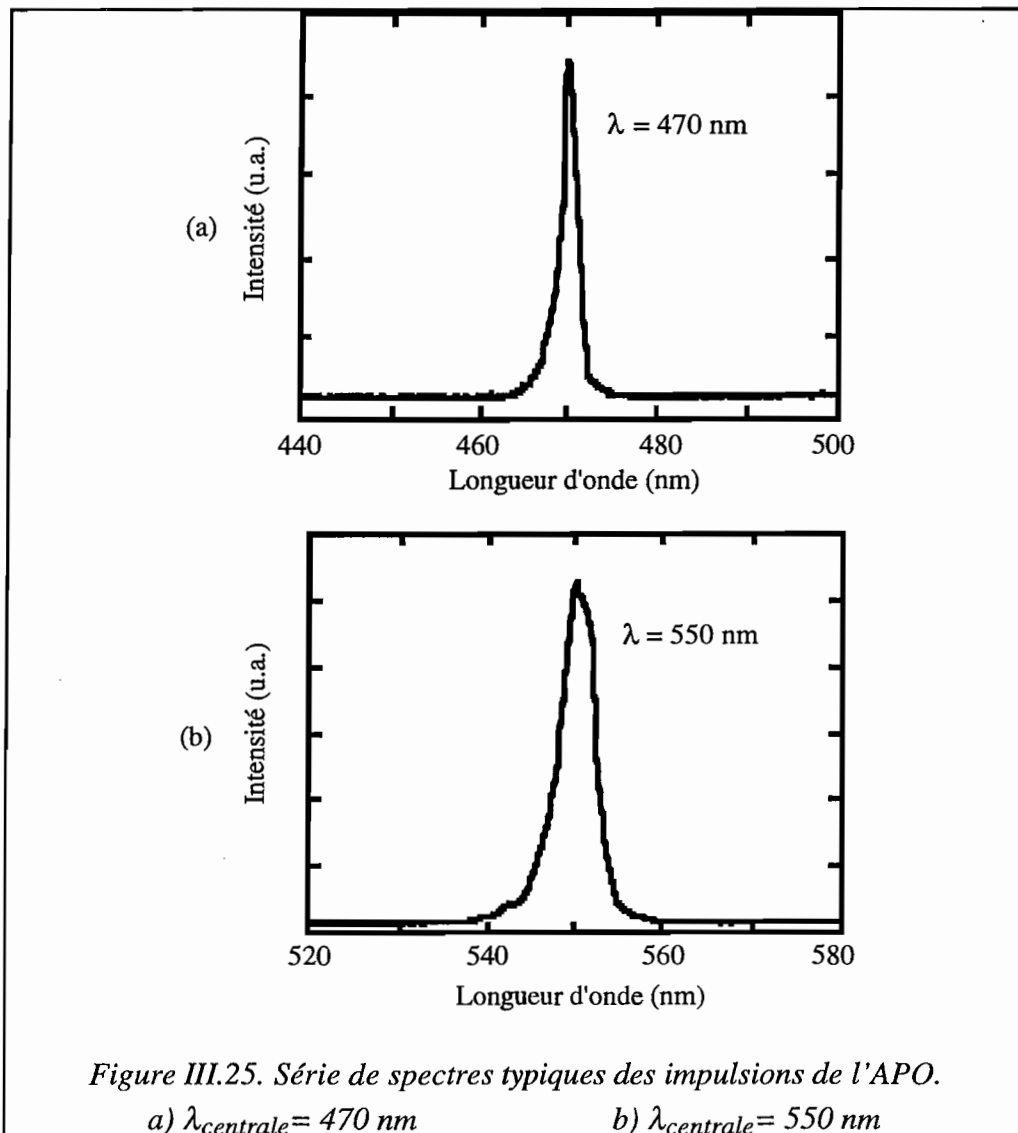
compresseur situé à la sortie de la chaîne laser. C'est pour cette raison que l'on trouve dans le tableau III.5 que les impulsions à 780 nm ne sont pas des impulsions d'une centaine de femtosecondes mais de plus d'une picoseconde. De plus, c'est cet ajustement du compresseur qui nous a permis d'obtenir soit des impulsions plus courtes, soit des impulsions plus énergétiques. Il est clair que nous n'avons pas réussi à précompenser parfaitement la dispersion positive dans les trois cristaux. Les impulsions de sortie ne sont pas limitées par leurs transformées de Fourier. Par exemple, les impulsions à 560 nm et de 350 fs de durée ont un produit  $\Delta\nu \cdot \Delta t$  de l'ordre de 1,5, cinq fois la limite théorique (0,315 pour des impulsions en forme de sécante hyperbolique carrée). Ceci nous permet d'espérer qu'il sera possible de recomprimer ces impulsions afin de réaliser des impulsions encore plus courtes.

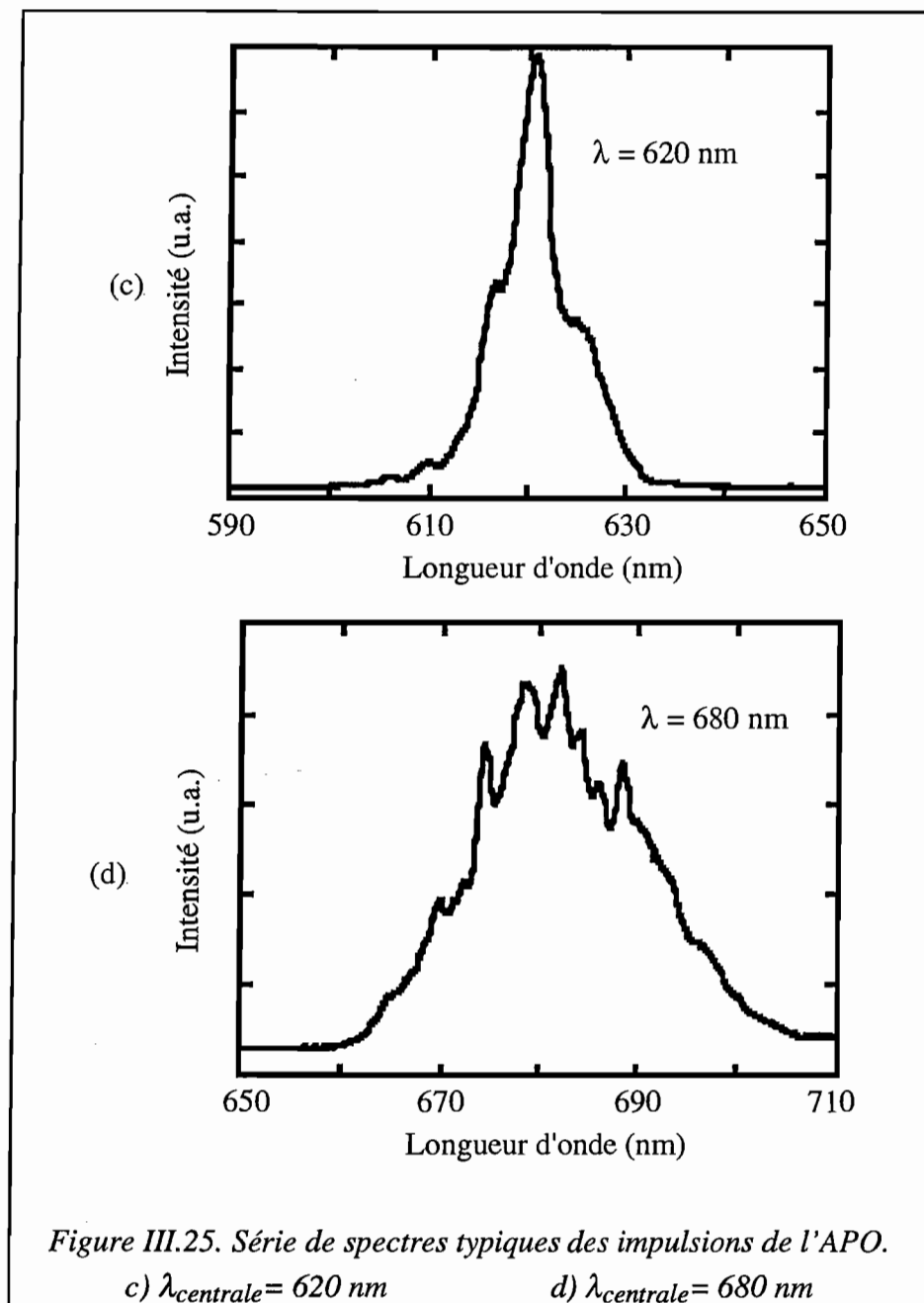
### III.6.4.3. L'accordabilité

Nous avons mesuré la longueur d'onde centrale des impulsions de sortie en fonction de l'orientation du cristal de BBO dans le GPO. Cette courbe, dite la courbe d'accord de phase, se trouve sur la figure III.24. Les points expérimentaux sont superposés sur la courbe théorique calculée à l'aide de notre logiciel décrit dans la section III.5 de ce mémoire. On voit que l'accord entre l'expérience et la théorie est très bon.

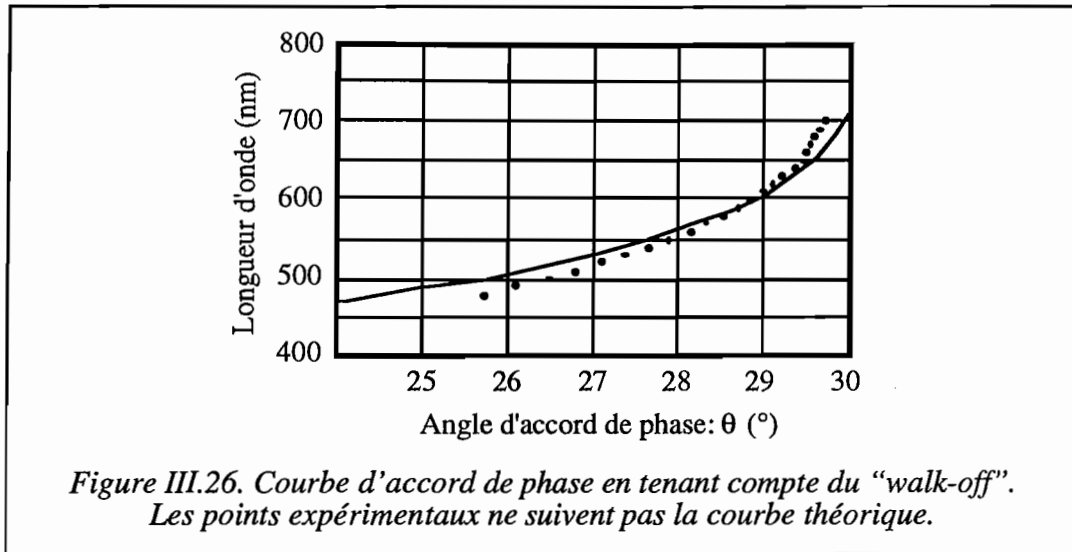


L'accordabilité de l'APO s'étend de 470 nm à 700 nm. En dessous de 470 nm, elle est surtout limitée par les miroirs dichroïques qui sont utilisés à chaque fois pour séparer et recombinaer le faisceau visible et celui à 390 nm. Ces miroirs sont prévus pour transmettre seulement à partir de 470 nm . Pour les longueurs d'onde plus hautes que 700 nm, nous avons remarqué une dégradation et un élargissement importants du spectre, ce qui a limité la production d'impulsions entre 700 nm et 780 nm. La figure III.25 donne une série de spectres typiques pour différentes longueurs d'onde centrales et démontre clairement ce problème d'élargissement. En fait, les impulsions à 680 nm ont une largeur spectrale de 19 nm tandis que celles à 620 nm ont une largeur spectrale de seulement 5 nm. Nous expliquons ce phénomène en considérant la courbe d'accord de phase sur la figure III.24. On voit qu'il y a une forte variation en longueur d'onde pour peu de variation en angle au-delà de 650 nm. Ceci veut dire que, compte tenu d'une acceptation angulaire finie du cristal (entre 0,6 et 2 mrad·cm), une plus large gamme de fréquences peut interagir pour une orientation donnée du cristal.





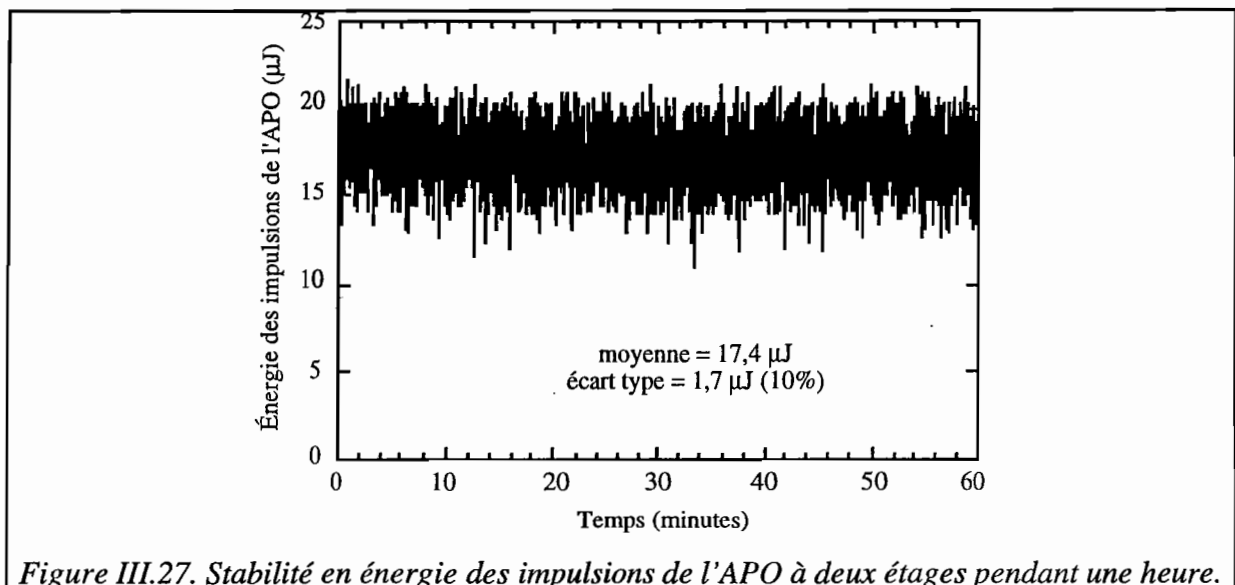
La mesure de cette courbe d'accord de phase a été faite en alignant l'APO pour que tous les faisceaux soient aussi colinéaires que possible. Autrement dit, l'alignement s'est fait sans tenir compte du phénomène de "walk-off" et l'énergie des impulsions de sortie était réduite. Répétant la mesure en tenant compte du "walk-off" et en optimisant l'énergie des impulsions, on obtient une courbe d'accord de phase qui ne s'accorde pas avec la théorie (voir la figure III.26). Ceci est une indication claire de la présence de "walk-off" dans les cristaux.

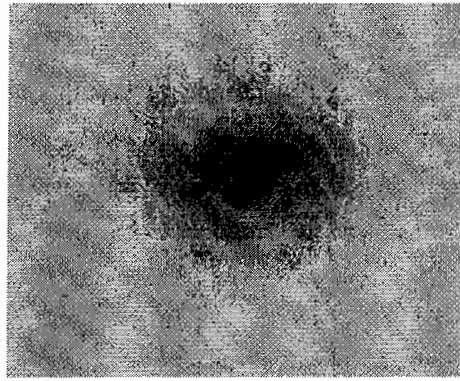


Il est intéressant de rappeler que l'idler existe même si nous n'avons pas cherché à le mesurer. Pour une accordabilité du signal entre 470 nm et 700 nm, l'idler doit pouvoir s'accorder entre 880 nm et 2,3  $\mu\text{m}$ . Cette gamme d'accordabilité pourrait être intéressante pour des études dans le proche infrarouge.

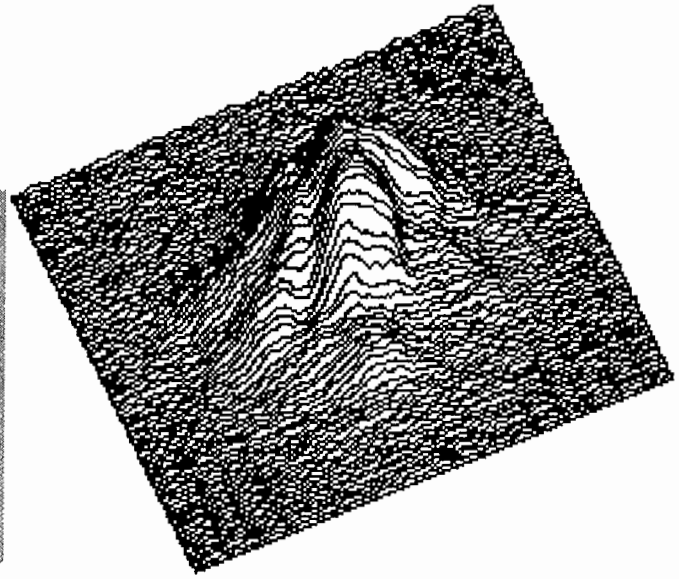
#### III.6.4.4. Stabilité

Nous avons mesuré la stabilité en énergie de l'APO à deux étages pendant une durée de plus d'une heure. Cette courbe de stabilité se trouve sur la figure III.27. Les variations en énergie sont de l'ordre de  $\pm 10\%$  (mesure de l'écart type). Cette valeur se compare avec la stabilité des impulsions amplifiées à 780 nm qui est de l'ordre de  $\pm 2\%$  (voir la section 1.5.4). L'augmentation de l'instabilité n'est pas surprenante si l'on considère le nombre de processus non linéaires mis en jeu.

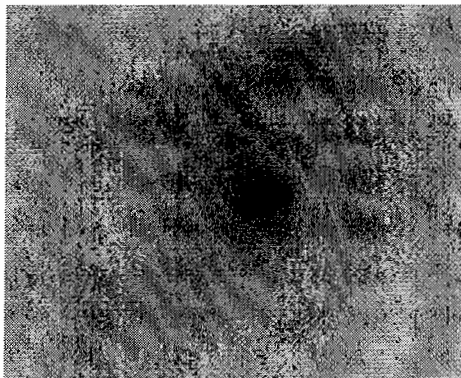




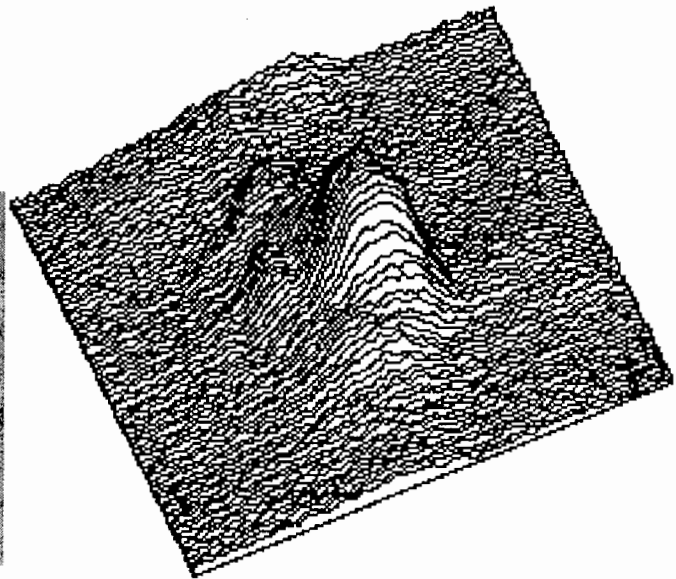
(a)



(b)



(c)



(d)

*Figure III.28. Profils spatiaux des impulsions.  
a et b) À la sortie du premier étage de l'APO.  
c et d) À la sortie du deuxième étage de l'APO.*

#### *III.6.4.5. Profils spatiaux*

Une autre caractéristique importante des impulsions de sortie est leur profil spatial. Nous avons capté ces profils avec une caméra CCD. Des profils typiques pour les deux étages de l'APO sont présentés sur la figure III.28. On voit que les profils sont assez ronds et lisses compte tenu du fait que les impulsions ne sont pas émises par une cavité résonante. La cavité résonante a l'avantage de donner un filtrage spatial au faisceau. Tout de même, on voit qu'il y a un filtrage spatial qui a lieu entre le premier et deuxième étages qui fait en sorte que le profil spatial à la sortie du deuxième étage est plus beau qu'à la sortie du premier étage.

#### *III.6.4.6. L'écart des vitesses de groupe*

Nous avons vu dans la section III.6.4 qu'il a fallu mettre des lignes à retard entre les deux passages du GPO et entre les deux étages de l'APO afin de compenser l'écart des vitesses de groupe de la pompe et du signal. Cet écart des vitesses de groupe est en fait un des facteurs principaux qui limite le fonctionnement de l'APO.

L'origine de ce phénomène est la dépendance avec la longueur d'onde de la vitesse de groupe dans un milieu (voir la section III.3.5.8). En fait, pour un milieu à dispersion positive tel le cristal de BBO, les impulsions signal doivent voyager plus vite que les impulsions pompe. Nous avons calculé théoriquement à l'aide du logiciel présenté dans la section III.5 cet écart des vitesses de groupe entre un signal dans le visible et une pompe à 390 nm quand ils traversent un cristal de BBO. La figure III.29 donne le résultat de ces calculs en femtosecondes par millimètre de cristal traversé en fonction de la longueur d'onde du signal. On remarque que pour un signal à 640 nm, l'écart des vitesses de groupe est de 160 fs/mm. Ceci veut dire que les impulsions pompe et signal sont séparées de 1 ps après la traversée d'un cristal de 6 mm si elles étaient initialement superposées. Évidemment, l'efficacité du mélange d'ondes est sévèrement limitée par ce phénomène. Les lignes à retard entre chaque passage dans un cristal aident à combattre cette limitation en optimisant le recouvrement temporel des impulsions dans les cristaux.

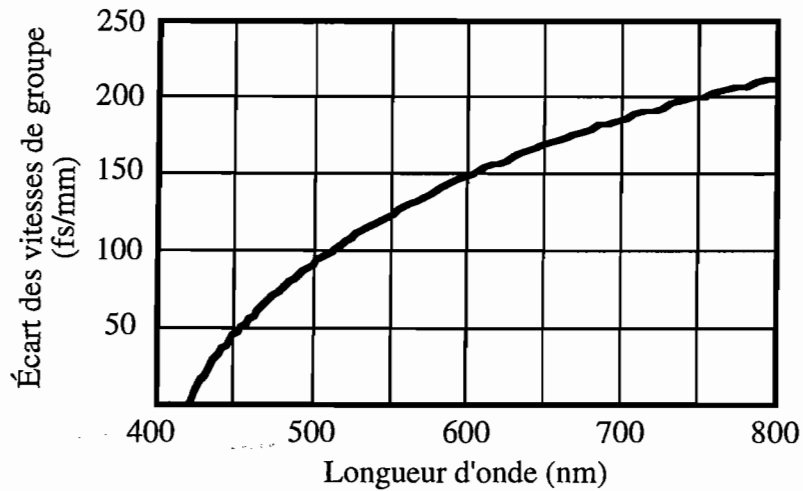


Figure III.29. Écart des vitesses de groupe entre un signal dans le visible et une pompe à 390 nm quand ils traversent un cristal de BBO (type I).

En même temps, il est intéressant de comparer cette valeur d'écart des vitesses de groupe avec celle des expériences de Joosen *et coll.* [21-22], qui pompent un cristal de BBO à 620 nm pour créer un signal à 830 nm. L'écart des vitesses de groupe de la pompe et du signal dans ce cas est en fait inférieur à 20 fs/mm de cristal (voir la figure III.30). Il est clair que l'avantage de travailler avec une pompe à 620 nm est important si l'on considère seulement le phénomène de décalage temporel entre les ondes pompe et signal. Par contre, une pompe à 620 nm ne permettrait pas l'accordabilité de l'APO dans tout le spectre visible, ce qui est un but principal de notre APO.

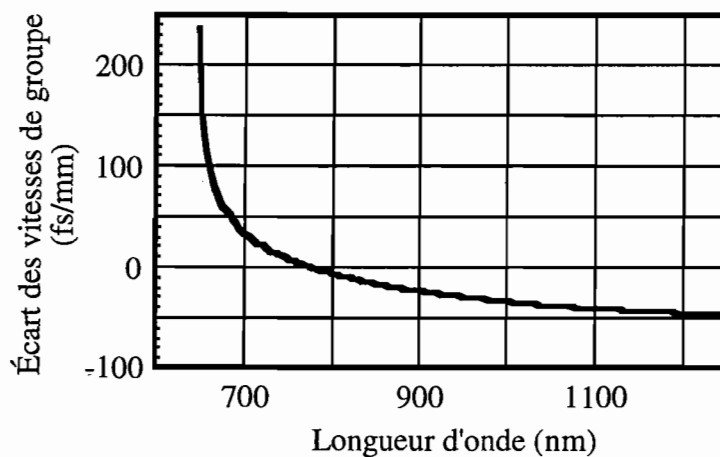
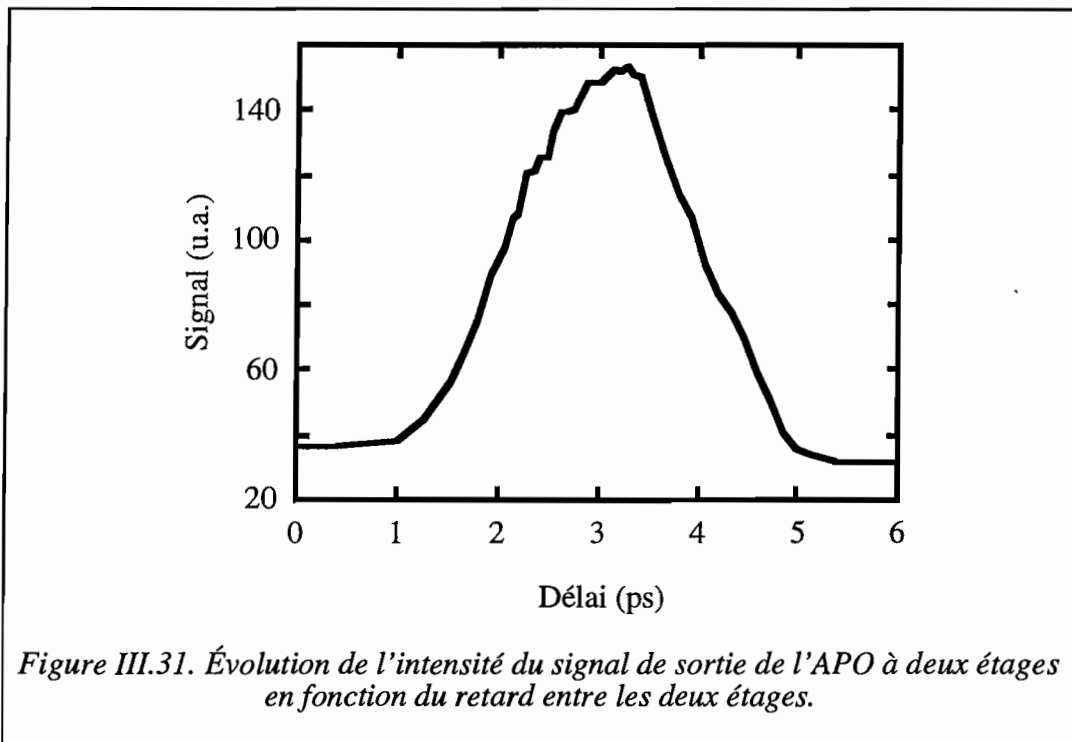


Figure III.30. Écart des vitesses de groupe entre un signal dans le proche infrarouge et une pompe à 620 nm quand ils traversent un cristal de BBO (type I).



Il est clair qu'avec un tel écart des vitesses de groupe, il est inutile de considérer l'utilisation de cristaux trop longs puisque les impulsions pompe et signal n'y seraient pas superposées temporellement pendant toute la longueur du cristal. En même temps, on cherche à utiliser des cristaux aussi longs que possible afin d'augmenter le gain. Il est nécessaire de trouver un compromis entre les deux facteurs en choisissant la longueur du cristal. Nous avons vu dans la section III.6.4.1 que le remplacement du cristal de 3 mm dans le deuxième étage de l'APO par un cristal de 8 mm n'augmentait le gain de l'étage que par un facteur 2, ce qui est peu quand on considère que l'on a presque triplé la longueur du cristal.



Afin de donner une idée qualitative de l'effet du retard entre la pompe et le signal qui entrent dans le deuxième étage de l'APO, nous avons mesuré le signal de sortie en faisant varier le retard ajouté par le miroir  $M_2$  de la figure III.21. L'évolution de l'intensité du signal de sortie en fonction du retard est reportée sur la figure III.31. On remarque que le réglage de ce retard est assez critique. Un dérèglement de plus de  $100\ \mu\text{m}$ , correspondant à un retard de 330 fs, pour des impulsions de presque 1 ps de durée donne lieu à une baisse importante de l'énergie de sortie. Lorsque le montage est optimisé, ces résultats correspondent à des impulsions incidentes à amplifier de 750 fs de durée à 600 nm. Après amplification, leur durée est de 900 fs et leurs autocorrélations se trouvent sur la figure III.32.

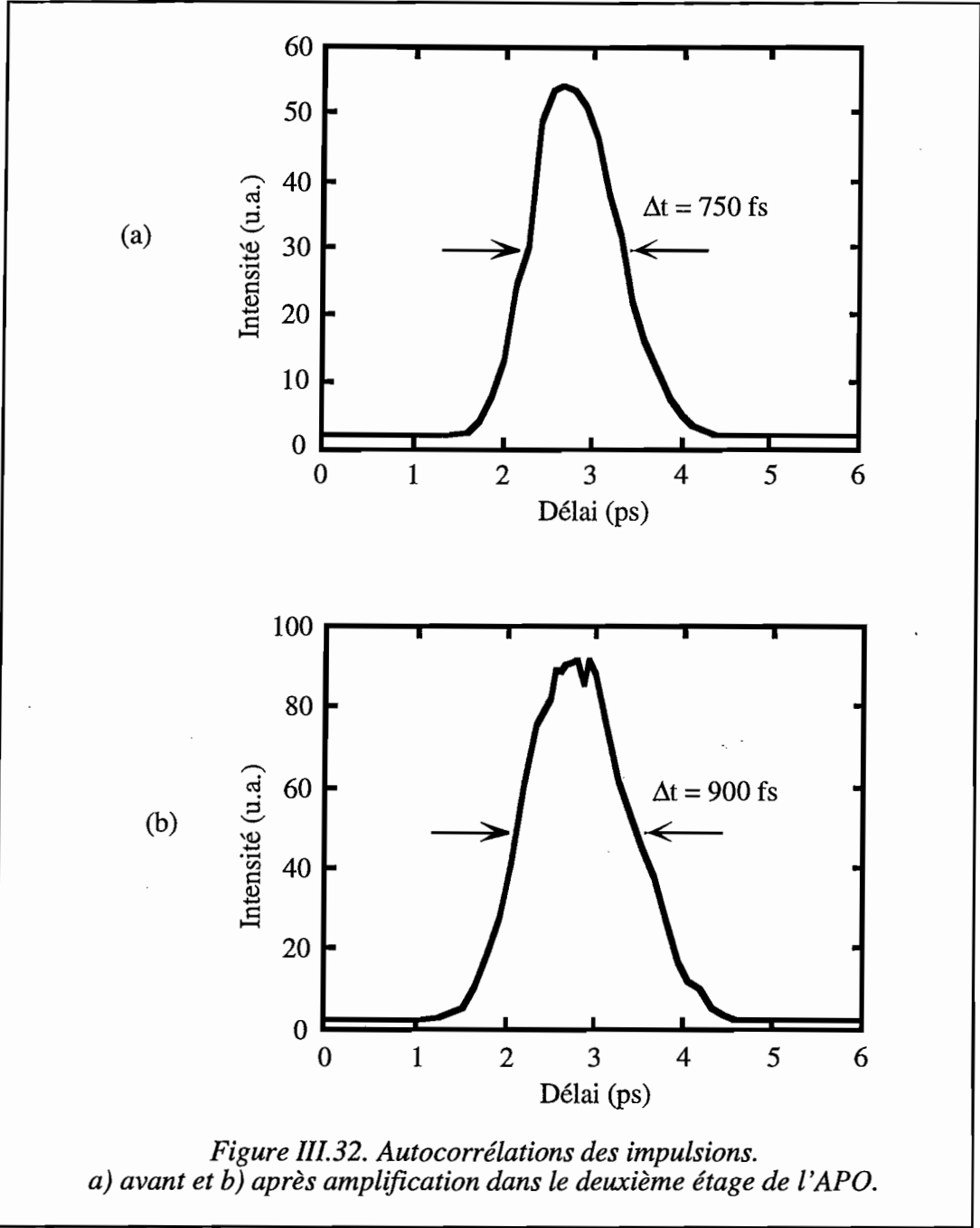


Figure III.32. Autocorrélations des impulsions.  
 a) avant et b) après amplification dans le deuxième étage de l'APO.

### III.7. L'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche

#### III.7.1. Introduction

En développant l'APO à deux étages, on cherchait une source cohérente femtoseconde accordable dans le visible. Historiquement, les scientifiques qui avaient besoin d'une source femtoseconde couvrant tout le visible utilisaient un continuum de lumière blanche produit

lors de la focalisation d'une source intense femtoseconde dans une lame de verre ou une cuve d'eau [60]. En général, la source utilisée pour créer cet effet était un laser à colorant femtoseconde amplifié. On utilisait ensuite des filtres interférentiels pour choisir une portion du spectre à utiliser. L'énergie de telles "impulsions" se trouvait comprise entre quelques nanojoules et quelques microjoules, et dépendait fortement de la longueur d'onde.

Dans le montage de l'APO à deux étages, la fluorescence paramétrique a initié le processus de production d'impulsions brèves accordables dans le visible. Il est également possible d'envisager de remplacer le GPO par un générateur de continuum de lumière blanche. Ce "générateur de continuum" consisterait très simplement en une lame de verre ou une cuve d'eau placée au point focal d'un afocal. Il serait ensuite relativement simple d'amplifier une partie de ce continuum dans un cristal de BBO pour produire des impulsions brèves et accordables.

### III.7.2. Historique

L'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche a été démontré en premier en 1986 par Ledoux *et coll.* du CNET, Bagneux, France et Migus *et coll.* de l'ENSTA, Palaiseau, France [2,19-20,61]. En focalisant des impulsions femtosecondes à 620 nm issues d'une chaîne laser à colorant dans une cuve d'eau, ils ont réalisé un continuum d'une durée d'à peu près 100 fs. Ensuite, ils ont amplifié ce continuum dans deux étages d'un amplificateur paramétrique basé sur le cristal organique NPP. Ils ont réalisé un gain de  $10^7$  pour un signal entre 1  $\mu\text{m}$  et 1,6  $\mu\text{m}$ .

Par la suite, Jedju et Rothberg [5] en 1988 et Planken *et coll.* [62] en 1991 ont réalisé la génération de différences de fréquences d'un continuum produit dans une cuve d'eau et des impulsions émises par un laser à colorant (autour de 600 nm). Utilisant un cristal de  $\text{LiIO}_3$  comme milieu non linéaire, Jedju et Rothberg ont produit des impulsions de 100 pJ et de 350 fs accordables entre 2,3 et 5,5  $\mu\text{m}$ . Planken *et coll.* se sont servis d'un cristal de BBO pour produire des impulsions de 4  $\mu\text{J}$  et de 500 fs à 2,5  $\mu\text{m}$ . Ces derniers ont dû tout de même faire une préamplification du continuum dans trois cellules de colorant type Bethune.

Plus récemment, Reed *et coll.* [63] de Coherent Laser Group, Californie ont réalisé l'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche à un taux de répétition de 250 kHz. En focalisant des impulsions de 1  $\mu\text{J}$  et de 220 fs à 820 nm dans une lame de saphir, ils ont produit un continuum de lumière blanche qu'ils ont ensuite amplifié dans un

cristal de BBO. Cet APO était pompé par le second harmonique d'impulsions à 820 nm. L'amplification paramétrique du continuum produisait une sortie accordable entre 450 nm et 700 nm d'impulsions de 30 nJ et de 142 fs.

### III.7.3. Le montage

Le montage d'amplification d'un continuum de lumière blanche que nous avons utilisé est présenté sur la figure III.33. Comme pour l'APO présenté ci-dessus, les impulsions amplifiées à 780 nm ont servi à pomper un cristal de BBO (type I) de 3 mm de longueur ( $5 \times 5 \times 3 \text{ mm}^3$ ) orienté pour le doublage de fréquence à cette longueur d'onde. Le reste du faisceau à 780 nm a ensuite servi à engendrer le continuum après avoir été séparé du faisceau doublé à 390 nm par le miroir dichroïque  $M_1$ . Comme auparavant, les impulsions à 390 nm agissent en tant que pompe de l'amplificateur paramétrique optique simple passage. Cet APO utilise le même cristal que celui qui a servi de deuxième étage de l'APO décrit précédemment (voir section III.6.3). C'est un cristal de BBO (type I) de 3 mm de longueur et de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  de surface. Il est taillé pour doubler à 780 nm, donc à  $29,9^\circ$  de l'axe optique.

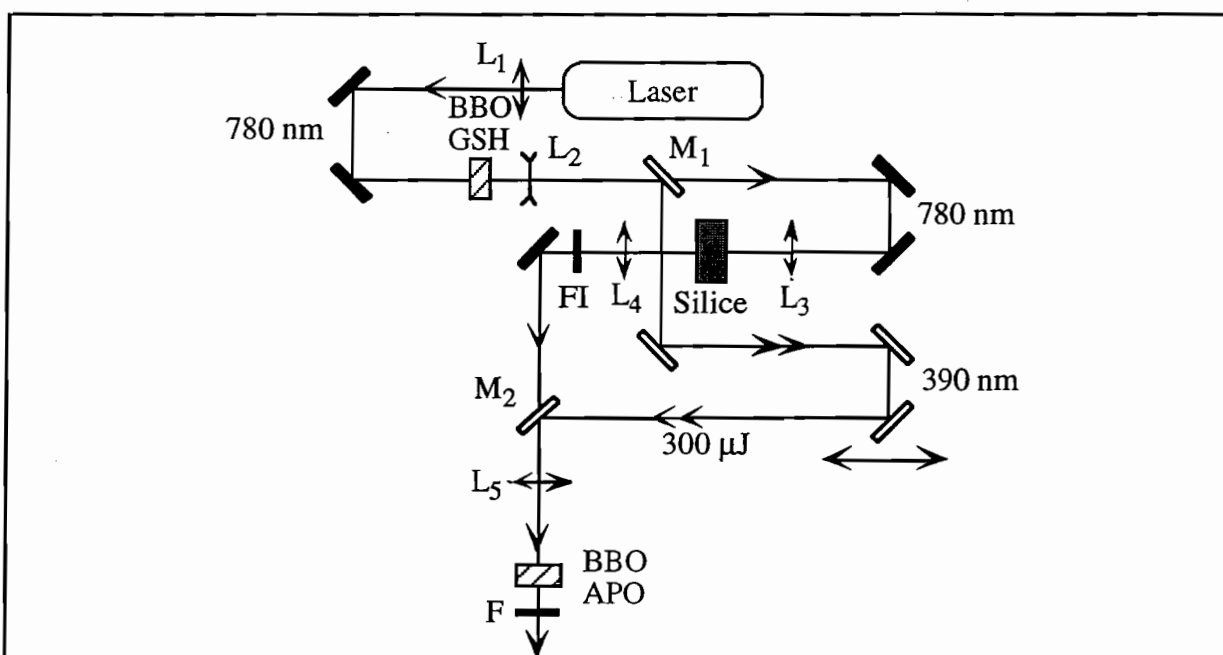


Figure III.33. Schéma du montage d'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche. GSH : générateur du second harmonique. (BBO, 3 mm) ;  $M_1, M_2$  : miroirs dichroïques qui sont réfléchissants à 390 nm et qui transmettent à partir de 470 nm ;  $L_1$  : lentille convergente de 1 m de longueur focale ;  $L_2$  : lentille divergente de -1 m de longueur focale ;  $L_3, L_4$  : lentilles convergentes de 7,5 cm de longueur focale et séparées de 15 cm ; FI : filtre interférentiel ;  $L_5$  : lentille convergente de 50 cm de longueur focale ; BBO APO : cristal de BBO de 3 mm de longueur utilisé comme amplificateur paramétrique optique ; F : filtre RG570.

Le générateur de continuum dans notre cas comprend une lame de silice placée entre deux lentilles convergentes,  $L_3$  et  $L_4$ , d'une longueur focale de 7,5 cm chacune. Ces deux lentilles sont séparées de 15 cm. La lame de silice a une épaisseur de 8 mm et a été remplacée par une lame de verre de 3 mm d'épaisseur pour une série de mesures afin de donner une indication de l'influence de l'épaisseur de ce verre sur la longueur d'impulsions à la sortie.

Avant d'envoyer la lumière blanche dans l'APO, il était nécessaire de filtrer le restant du faisceau à 780 nm puisqu'il nuisait à l'amplification. Pour ce faire, nous nous sommes servi d'un filtre interférentiel à 620 nm (largeur de bande d'environ 12 nm). Évidemment, ce filtre ne permettait plus l'accord du système. Pour cela, il aurait fallu un filtre qui coupait le faisceau à 780 nm en transmettant toute la gamme du visible. Tout de même, le filtre interférentiel à 620 nm nous a permis de caractériser le système à cette longueur d'onde et démontrer le principe d'amplification d'un continuum de lumière blanche.

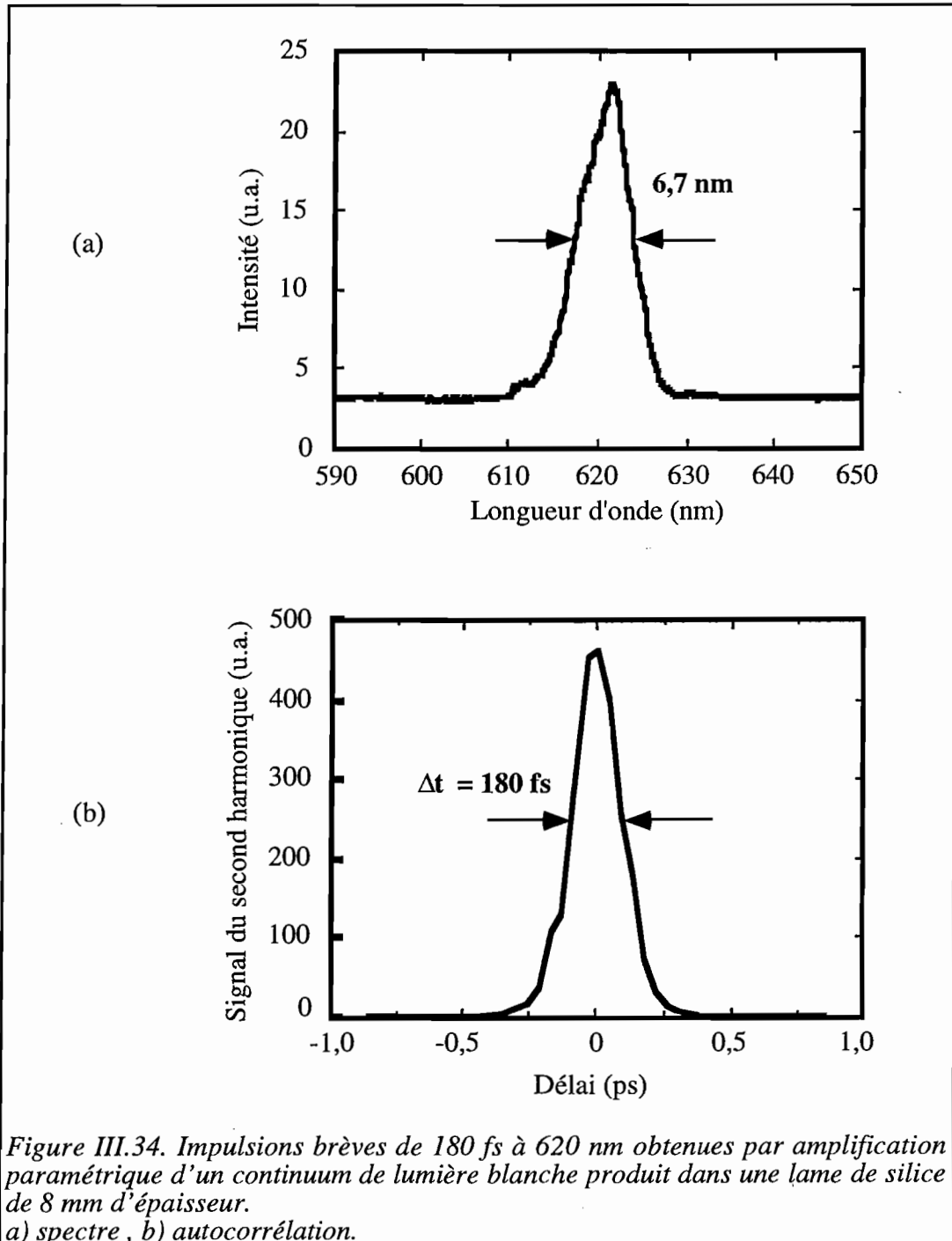
Une ligne à retard placée dans la voie de la pompe permet l'optimisation du recouvrement temporel des impulsions pompe et signal. Avant l'APO, nous avons mis une lentille convergente,  $L_5$ , de longueur focale de 50 cm afin de légèrement focaliser les faisceaux dans le cristal de BBO et ainsi augmenter l'efficacité du mélange trois ondes. Après l'APO, nous avons placé un filtre RG570, qui sert à couper le restant de la pompe à 390 nm. Le joulemètre, le spectromètre, l'autocorrélateur et la caméra CCD sont placés derrière ce filtre.

Ce montage est celui d'un APO simple passage, simple étage. Il est en fait équivalent au GPO double passage qui est détaillé en section III.6.2. Le générateur de continuum de lumière blanche remplace le premier passage du GPO dans lequel est produite la fluorescence paramétrique. L'APO simple passage de continuum est donc équivalent au deuxième passage du GPO, dans lequel la fluorescence paramétrique est amplifiée. Le montage actuel d'APO de continuum de lumière blanche ne met en oeuvre qu'un étage parce que le restant du faisceau à 780 nm qui a traversé le cristal doubleur sert maintenant à créer le continuum et ne peut donc pas servir à produire un deuxième faisceau de pompe à 390 nm comme pour l'APO décrit dans la section III.6.3.

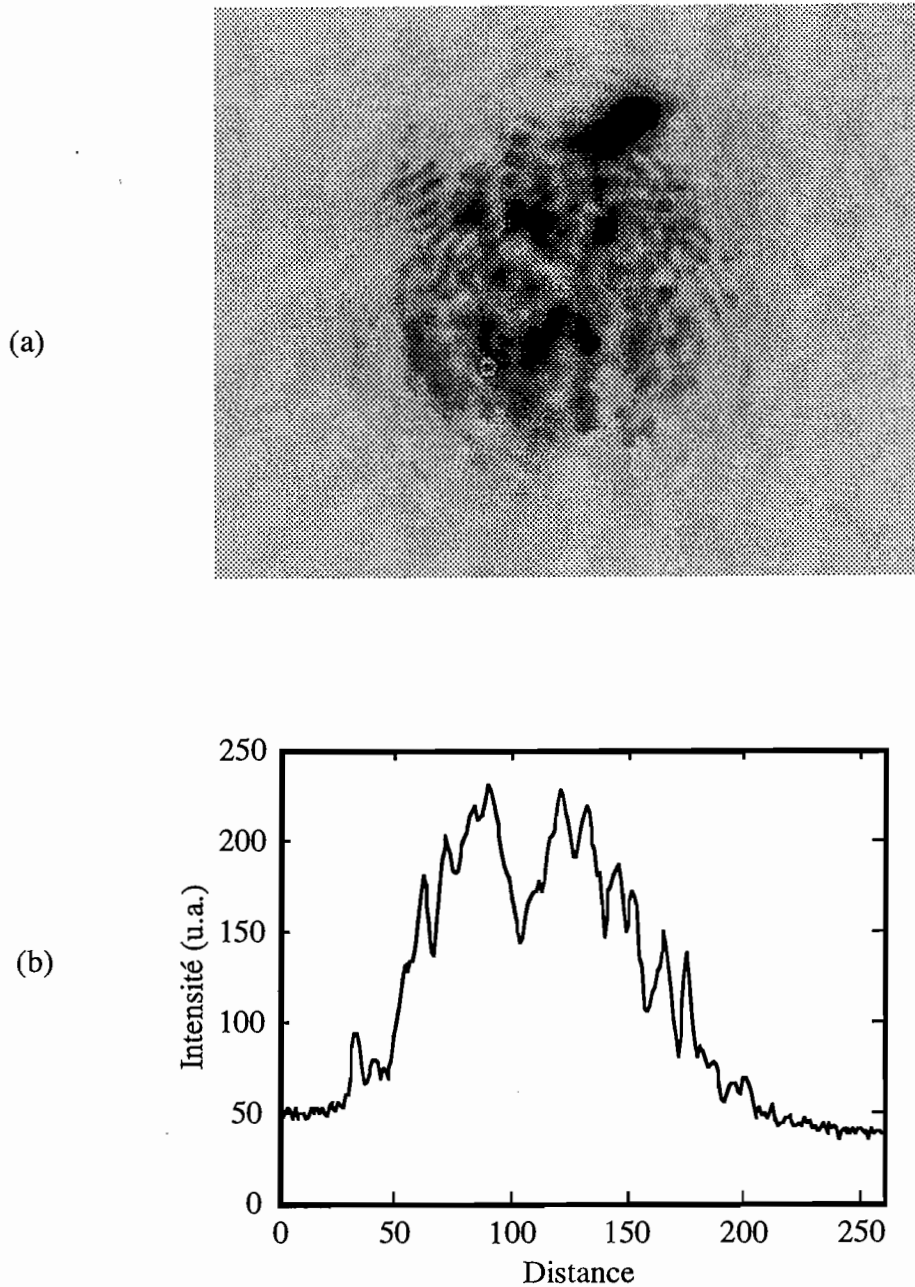
### III.7.4. Résultats

En réalisant l'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche produit dans une lame de silice de 8 mm d'épaisseur, nous avons réussi à créer des impulsions brèves de 180 fs à 620 nm. L'énergie de ces impulsions étaient de 1  $\mu$ J pour 300  $\mu$ J de pompe à

390 nm. Des impulsions de 1 mJ à 780 nm ont été utilisées afin de créer le continuum. Le spectre et l'autocorrélation de ces impulsions se trouvent sur la figure III.34. On remarque que ces impulsions ont une largeur spectrale de 6,7 nm, ce qui correspond à un produit  $\Delta\nu \cdot \Delta t = 0,94$ , trois fois la limite de transformée de Fourier pour des impulsions en sécante hyperbolique carrée.

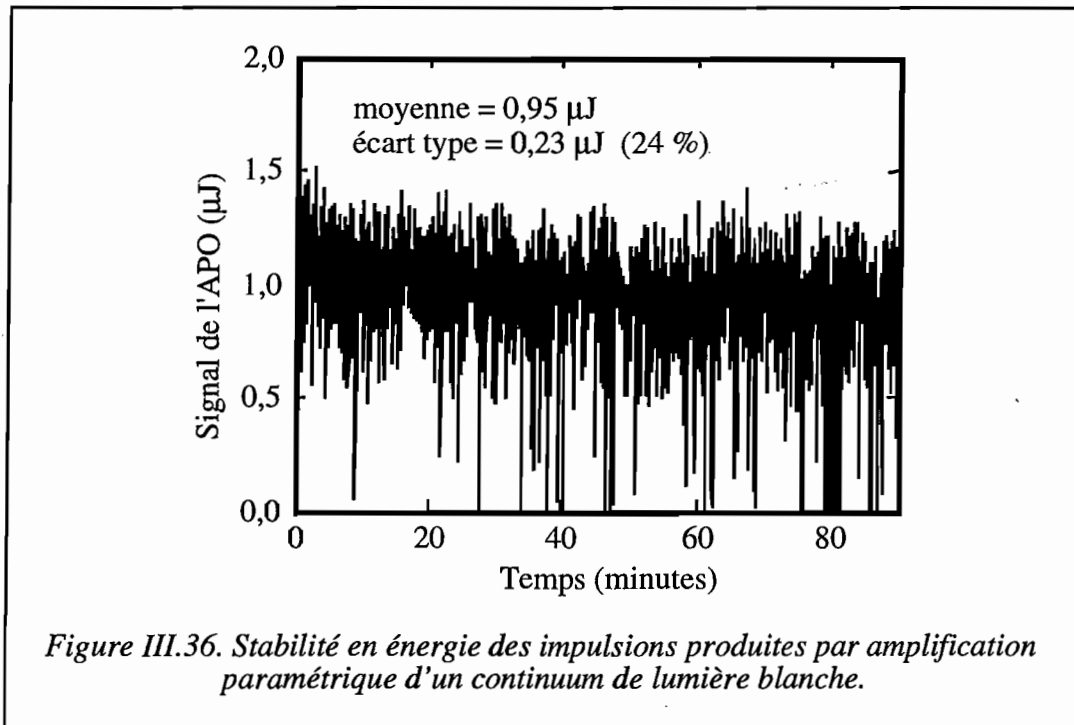


La forme spatiale de ces impulsions brèves est très bruitée (voir la figure III.35), ce qui n'est pas étonnant à cause de la filamentation du continuum dans la lame de silice. Cette forme spatiale représente un désavantage par rapport aux impulsions produites par l'APO à deux étages. Elle pourrait cependant être améliorée en diminuant fortement l'énergie utilisée pour créer le continuum mais au détriment de l'énergie finale à 620 nm.



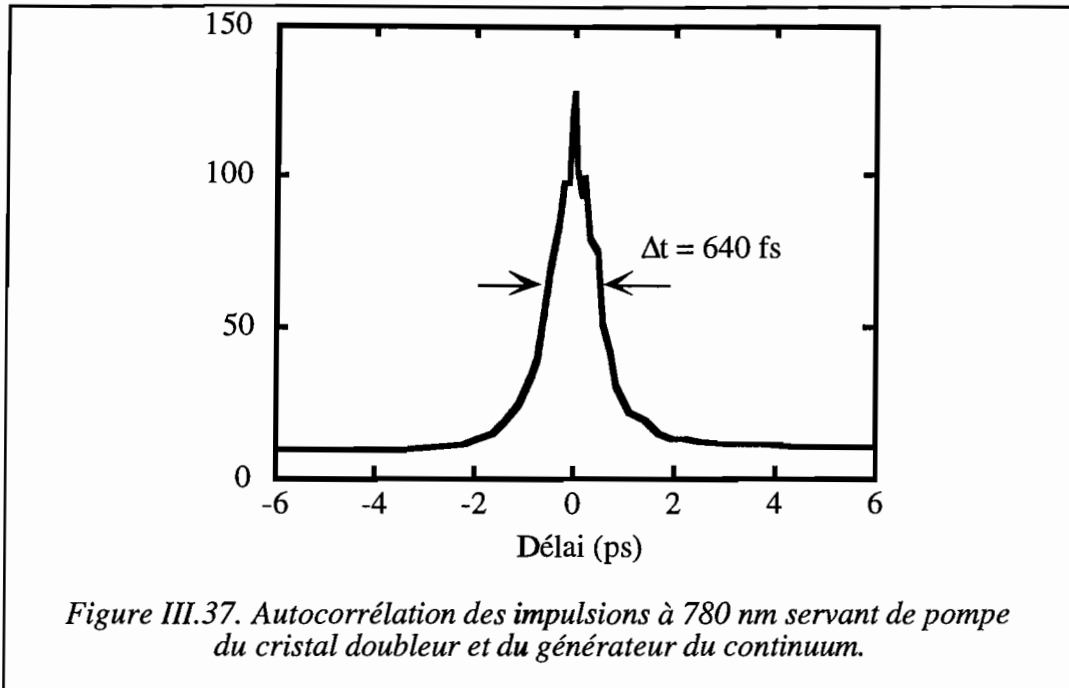
*Figure III.35. Profil spatial des impulsions de 180 fs à 620 nm produites par amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche.  
a) Profil spatial - b) Coupe transverse.*

Nous avons mesuré l'énergie coup par coup des impulsions émises de cet APO pendant une heure. On voit sur la figure III.36 que la stabilité de cette énergie est moins bonne que pour l'APO à deux étages. En fait, les variations en énergie sont de l'ordre de  $\pm 24\%$  (mesure de l'écart type) tandis qu'elle n'étaient que de l'ordre de  $\pm 10\%$  pour l'APO à deux étages.



De façon semblable à l'APO à deux étages décrit dans la section III.6, il était nécessaire de précompenser la dispersion des vitesses de groupe dans les cristaux de BBO et dans la lame de silice. Encore une fois, nous avons ajouté de la dispersion négative aux impulsions à 780 nm en ajustant la séparation des deux réseaux du compresseur afin de réaliser cette précompensation. De cette manière, les impulsions à 780 nm avaient une durée de 640 fs avant d'être focalisées dans la silice. L'autocorrélation correspondante à ces impulsions se trouve sur la figure III.37. On voit que cette précompensation est moins importante que pour notre APO deux étages. Pour ce dernier, nous avons typiquement étiré les impulsions à 780 nm à plus de 1 ps de durée. L'explication de cette différence se trouve dans les longueurs de cristaux et de silice traversées dans chaque cas. Pour l'APO à deux étages, les impulsions avaient 18 mm de cristal à traverser tandis que pour l'APO du continuum elles n'avaient que 6 mm de cristal et 8 mm de silice.





L'alignement du montage d'APO d'un continuum n'était pas aussi critique que celui de l'APO à deux étages. En fait, on obtient facilement des impulsions de moins de 200 fs simplement en ajustant la séparation des deux réseaux du compresseur pour avoir le maximum d'énergie à la sortie de l'APO. Par contre, le GPO double passage ne nous permettait pas de réaliser des impulsions aussi courtes et son réglage n'était pas évident puisque les impulsions les plus courtes ne correspondaient pas aux impulsions les plus énergétiques. Toutefois, le GPO nous a permis d'accéder à des énergies plus importantes (jusqu'à 3  $\mu\text{J}$ ), libérant le restant du faisceau à 780 nm pour la génération du deuxième faisceau à 390 nm pour pomper un deuxième étage.

Nous avons trouvé que l'utilisation d'un cristal de BBO plus long (de 8 mm) pour l'APO n'augmentait pas l'énergie de sortie des impulsions à 620 nm. Ceci est en grande partie dû à la grande différence des vitesses de groupe des impulsions pompe à 390 nm et les impulsions signal à 620 nm qui est de l'ordre de 150 fs par millimètre de BBO (calculée par le logiciel présenté dans la section III.5), autrement dit 450 fs après la traversée du cristal de 3 mm et 1,2 ps après la traversée du cristal de 8 mm. Puisque les impulsions de sortie ont une durée de moins de 200 fs et les impulsions de pompe ont une durée de seulement 640 fs, il est clair que l'efficacité du mélange à trois ondes est limitée par le décalage temporel qui se crée entre les impulsions pompe et signal.

Afin d'étudier l'influence de l'épaisseur de la lame de silice utilisée dans le générateur de continuum, nous avons remplacé la silice par une lame de verre de 3 mm d'épaisseur. Ce nouveau générateur de continuum nous a permis de produire des impulsions de 190 fs avec

une énergie de  $0,5 \mu\text{J}$  à  $620 \text{ nm}$ . L'énergie des impulsions de pompe à  $390 \text{ nm}$  était de  $420 \mu\text{J}$  tandis que l'énergie des impulsions à  $780 \text{ nm}$  utilisées pour créer le continuum était de  $650 \mu\text{J}$ . Cette dernière a dû être réduite afin d'éviter de brûler le verre. Le spectre et l'autocorrélation correspondant à ces impulsions se trouvent sur la figure III.38. Ces impulsions ont une largeur spectrale de  $7,6 \text{ nm}$ , ce qui correspond à un produit  $\Delta\nu \cdot \Delta t = 1,1$ , trois fois et demie la limite de transformée de Fourier pour des impulsions en sécante hyperbolique carrée.

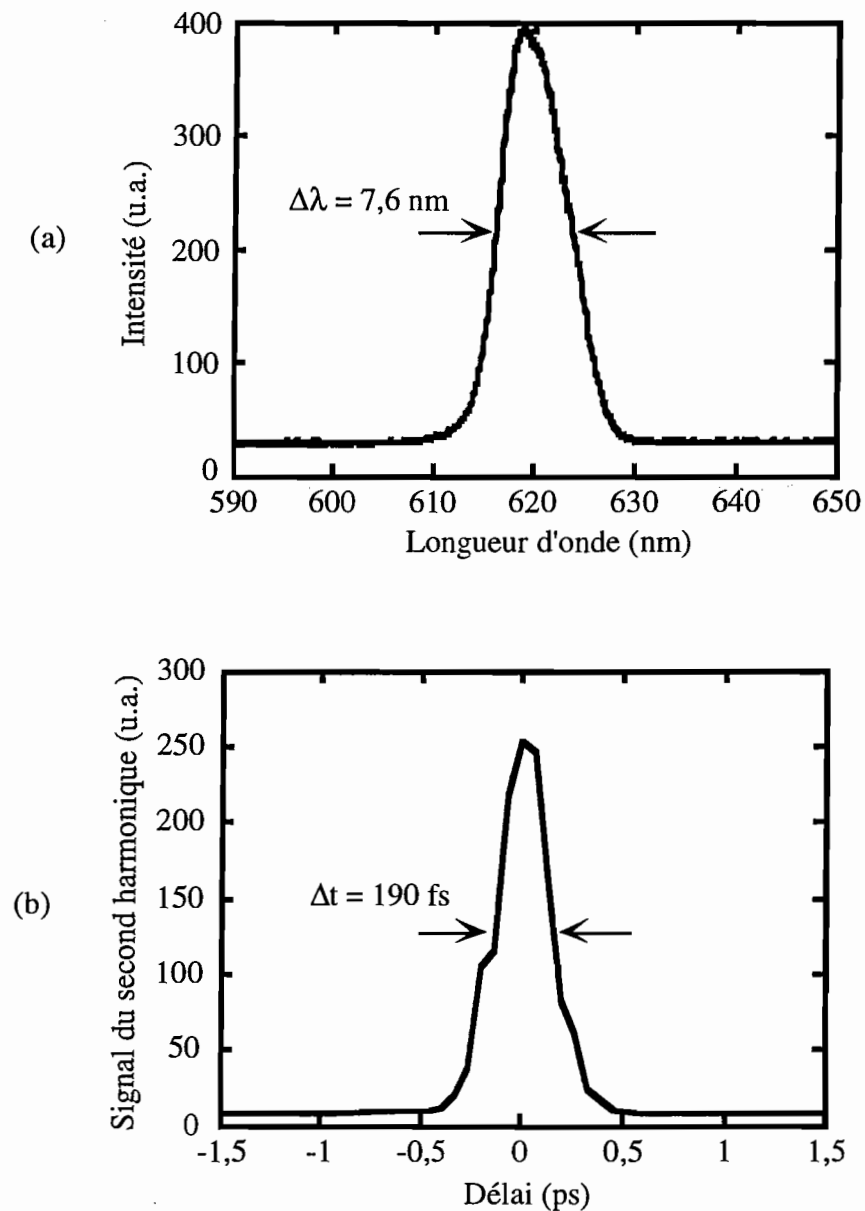


Figure III.38. Impulsions brèves de  $190 \text{ fs}$  à  $620 \text{ nm}$  par amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche produit dans une lame de verre de  $3 \text{ mm}$  d'épaisseur.  
a) spectre , b) autocorrélation.

À part la diminution de l'énergie de sortie des impulsions à 620 nm, la plus grande différence entre les deux montages était la quantité de précompensation de dispersion de vitesse de groupe nécessaire. Pour ce dernier montage, les impulsions à 780 nm utilisées pour créer le continuum avait une durée de 235 fs tandis que, quand le continuum avait été créé dans la silice de 8 mm d'épaisseur, il a été nécessaire d'étirer les impulsions à 780 nm jusqu'à 640 fs.

Encore pour estimer les effets de dispersion de vitesse de groupe, nous avons mesuré la durée des impulsions à 780 nm avant le cristal doubleur. Pour le montage avec la lame de verre de 3 mm d'épaisseur, ces impulsions avait une durée de 250 fs, précompensée pour la dispersion de vitesse de groupe. Le passage dans le cristal doubleur de 3 mm de BBO les a recomprimées par la suite à 235 fs.

### **III.8. Conclusion**

L'amplification paramétrique optique a un grand intérêt de nos jours pour le développement de sources cohérentes largement accordables en longueur d'onde. Nous avons construit un APO à deux étages accordable dans le visible émettant des impulsions subpicosecondes avec des énergies supérieures à 4  $\mu\text{J}$ . Ensuite, nous avons construit une deuxième source plus simple basée sur l'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche. Nous avons comparé ces deux sources et avons conclu que l'amplificateur paramétrique d'un continuum mène plus facilement à des impulsions courtes, de l'ordre de 200 fs, mais moins stables et moins énergétiques, seulement 1  $\mu\text{J}$ . L'APO à deux étages nous a permis d'accéder à des énergies plus importantes mais la durée des impulsions était toujours supérieure à 350 fs.

Le facteur limitant dans ces sources paramétriques est la dispersion présente dans les cristaux non linéaires. Cette dispersion est responsable de l'étirement temporel des impulsions, ce qui a dû être précompensé en ajoutant de la dispersion négative aux impulsions à 780 nm au niveau du compresseur. Elle est également responsable du décalage temporel qui se produit entre les ondes en interaction dans les cristaux non linéaires. Ce décalage est dû à l'écart des vitesses de groupe des ondes pompe, signal et idler et il est de l'ordre de 150 fs par millimètre de BBO traversé par une pompe à 390 nm et un signal à 620 nm. Pour des impulsions courtes, ce décalage est suffisant pour séparer temporellement les trois ondes

après un passage dans un cristal. Il est donc idéal d'utiliser plusieurs cristaux courts séparés par une ligne à retard afin de remettre les trois ondes en superposition temporelle. C'est pour cette raison que nous avons développé un APO ayant deux étages, avec un premier étage à deux passages.

Nous verrons dans la suite une deuxième application de l'amplification paramétrique : l'imagerie en milieu diffusant.

# **Chapitre IV**

## **Imagerie**



## IV.1. Introduction

De nos jours, la méthode de transillumination présente un grand intérêt pour faire de l'imagerie à travers des milieux diffusants, tels des tissus biologiques. Le problème de détection du cancer du sein, un des cancers les plus fréquents chez la femme (après le cancer du poumon), rend cette recherche d'autant plus cruciale. En fait, au Canada, les statistiques démontrent qu'une femme sur neuf développera le cancer du sein pendant sa vie. Plus de 5000 Canadiennes en mourront en 1994.

Actuellement, la méthode la plus sûre et la plus répandue de détection du cancer du sein est la mammographie par rayons X. Cependant, elle présente plusieurs désavantages, le plus important étant que les rayons X sont des radiations ionisantes et donc potentiellement dangereuses. Même si les doses sont considérées comme faibles, il existe toujours un risque que les rayons X utilisés afin de détecter un cancer puissent provoquer la croissance d'une nouvelle tumeur. La détection de tumeurs à un stade précoce de leur croissance est extrêmement importante pour améliorer les chances de guérir la maladie. Il serait donc désirable de mettre au point une méthode de détection de tumeurs qui utilise des radiations non-ionisantes et qui a une bonne résolution.

On étudie actuellement une possibilité alternative qui est la transillumination utilisant des lasers émettant dans la dite "fenêtre thérapeutique", autrement dit dans le rouge et le proche infrarouge entre 600 nm et 1,3  $\mu\text{m}$ . Cette fenêtre correspond à un minimum d'absorption par les tissus biologiques [1-2]. À des longueurs d'onde plus longues, l'absorption est beaucoup plus intense à cause des bandes d'absorption des modes fondamentaux de vibration de l'eau tandis qu'à des longueurs d'onde inférieures à 600 nm il existe une forte absorption due aux chromophores, telles que l'hémoglobine dans le sang, la myoglobine dans le muscle rouge et la mélanine dans la peau, ainsi qu'aux protéines et aux acides nucléiques.

La transillumination utilisée comme méthode d'analyse du sein a été proposée pour la première fois en 1928 par James Ewing et Frank Adair du *Breast Clinic* à Memorial Hospital, New York, mais les premiers résultats cliniques ont été présentés par Max Cutler en 1929 [3]. La procédure utilisée était très simple: dans une salle noire, on éclairait le sein avec une lampe électrique placée contre la peau et on visualisait avec les yeux. Dans les années 1970, Gros *et coll.* [4] ont poursuivi ces recherches et ont développé un appareil de "diaphanologie mammaire", se servant d'une lampe intense de type quartz-halogène et d'une plaque

photographique pour enregistrer les images. Au début des années 1980, un système commercial a été développé qui utilisait des caméras vidéo dans le visible et le proche infrarouge. Ceci dit, la technique reste moins utilisée et moins fiable que la mammographie par rayons X.

Aujourd'hui, la recherche se poursuit sur la transillumination pour faire de l'imagerie en milieu diffusant. Les méthodes proposées sont en général basées sur le principe du temps de vol. Une description détaillée de ces différentes recherches sera présentée dans la section IV.5. Quant à nous, nous avons démontré l'utilisation d'un amplificateur paramétrique optique en régime femtoseconde pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant. L'intérêt particulier d'un APO femtoseconde pour cette application réside dans ses propriétés de porte ultrarapide et amplificatrice.

Dans la section suivante, je présenterai un résumé de la théorie nécessaire pour comprendre la diffusion et expliquerai l'importance d'un système de porte ultrarapide amplificatrice pour faire de l'imagerie. Ensuite, je discuterai des propriétés optiques des tissus et détaillerai les recherches qui se font actuellement dans le domaine de la transillumination. Je décrirai notre montage d'APO femtoseconde et présenterai les résultats initiaux que nous avons obtenus. Enfin, je discuterai de ces résultats et de leurs implications pour l'avenir de ces recherches.

## **IV.2. Contexte théorique de la transillumination des tissus**

Si l'on cherche à construire l'image d'un milieu diffusant tel un milieu biologique et à y détecter des objets, il faut comprendre les mécanismes des processus d'interaction de la lumière avec le milieu ainsi que la façon dont elle s'y propage. Il faut également pouvoir quantifier les paramètres de diffusion et d'absorption du milieu et de l'objet à détecter.

Il existe deux théories fondamentales utilisées pour décrire la propagation de la lumière dans des tissus biologiques [1,5-6]. L'approche analytique utilise les équations de Maxwell et associe les processus d'absorption et de diffusion à des variations spatiales microscopiques des propriétés diélectriques des tissus. Cette approche est en fait peu réaliste car les tissus biologiques sont très inhomogènes. La deuxième approche, qui est celle utilisée couramment, est la théorie de transport radiatif, où l'on utilise l'aspect corpusculaire de la lumière. La propagation de la lumière est alors représentée par des photons, qui peuvent ensuite être absorbés ou diffusés élastiquement. Cette utilisation du mot "photon" pour la propagation de



la lumière est quelque peu abusive et il est plus correct de parler de rayons lumineux. Par contre, pour la détection, on mesure des photoélectrons; on est donc obligé de revenir au concept de photons.

Pour la suite, on peut définir plusieurs quantités qui aideront à décrire les propriétés d'un milieu diffusant. Dans le tableau IV.1 se trouve un résumé de ces paramètres que l'on utilise pour quantifier la propagation de la lumière dans un milieu diffusant.

Paramètre	Symbole	Formule
Coefficient d'absorption	$\mu_a$	
Longueur d'absorption	$l_a$	$l_a = \frac{1}{\mu_a} = lpm_a$
Densité optique	DO	$\frac{\mu_a l}{\ln 10}$
Coefficient de diffusion	$\mu_s$	
Longueur de diffusion	$l_s$	$l_s = \frac{1}{\mu_s} = lpm_s$
Coefficient d'interaction totale	$\mu_t$	$\mu_a + \mu_s$
Libre parcours moyen	$lpm$	$lpm = \frac{1}{\mu_t}$
Distribution angulaire normalisée de diffusion	$S(\theta)$	
Anisotropie de diffusion (cosinus moyen de l'angle de diffusion)	$g$	$\int S(\theta) \cos \theta d(\cos \theta)$
Coefficient de transport	$\mu_{tr}$	$\mu_a + \mu_s (1 - g)$
Libre parcours moyen de transport	$lpm_{tr}$	$\frac{1}{\mu_{tr}}$
Coefficient effectif de diffusion	$D$	$\frac{1}{3 [\mu_a + \mu_s (1 - g)]} = \frac{1}{3 \mu_{tr}}$
Longueur effective de diffusion	$L_D$	$\sqrt{\frac{D}{\mu_a}} = \sqrt{\frac{1}{3 \mu_{tr} \mu_a}}$
Albédo	$a$	$\frac{\mu_s}{\mu_t}$

*Tableau IV.1: Résumé des paramètres utilisés pour quantifier la diffusion dans des tissus.*

Le coefficient d'absorption,  $\mu_a$ , d'un milieu décrit ses propriétés d'absorption. La longueur d'absorption  $l_a = 1/\mu_a$  donne la distance qu'une onde, avec une probabilité de  $1/e$ , peut parcourir dans le milieu diffusant sans être absorbée. Donc, si la diffusion est négligeable, la transmission  $T$  de photons à travers une épaisseur  $l$  est donnée par :

$$T = e^{-\mu_a l} = e^{-l/l_a}. \quad (\text{IV.1})$$

On appelle  $l_a$  également *le libre parcours moyen d'absorption*  $lpm_a$ . Dans ce cas de diffusion négligeable, on peut définir une densité optique  $DO$  où :

$$\begin{aligned} DO &= -\log T \\ &= \frac{\mu_a l}{\ln 10}. \end{aligned} \quad (\text{IV.2})$$

De la même façon, on peut définir un coefficient de diffusion,  $\mu_s$ , qui décrit la diffusion de la lumière par un milieu sans tenir compte de l'absorption. La longueur de diffusion,  $l_s$ , ou le libre parcours moyen de diffusion,  $lpm_s$ , est alors donnée par  $l_s = lpm_s = 1/\mu_s$ . Donc, si l'absorption est négligeable, la transmission de rayons lumineux non-diffusés à travers une épaisseur  $l$  est décrite par :

$$T = e^{-\mu_s l} = e^{-l/l_s}. \quad (\text{IV.3})$$

Enfin, on définit un coefficient d'interaction totale de la lumière avec un milieu,  $\mu_t = \mu_s + \mu_a$ , (que l'on appelle simplement *le coefficient d'interaction totale*) qui tient compte à la fois de l'absorption et de la diffusion. Ce coefficient d'interaction totale nous permet alors de définir un libre parcours moyen total par  $lpm = 1/\mu_t$ , et de calculer la transmission de rayons lumineux non-absorbés et non-diffusés:

$$T = e^{-l/lpm}. \quad (\text{IV.4})$$

On caractérise la diffusion par sa *distribution angulaire normalisée*,  $S(\theta)$ , qui nous permet de savoir si la diffusion se fait dans une direction préférentielle par rapport à la direction d'incidence de la lumière. On peut alors calculer *le cosinus moyen de l'angle de diffusion*,  $g$ , que l'on appelle également *l'anisotropie de diffusion*:

$$g = \int S(\theta) \cos \theta d(\cos \theta). \quad (\text{IV.5})$$

Si  $g = 1$ , la diffusion se fait préférentiellement dans la direction d'incidence de la lumière.

On définit ensuite *le coefficient de transport*  $\mu_{tr}$ , qui est équivalent au coefficient d'interaction totale mais qui est modifié pour tenir compte de l'anisotropie du milieu :

$$\mu_{tr} = \mu_a + \mu_s (1 - g). \quad (\text{IV.6})$$

Le libre parcours moyen de transport,  $lpm_{tr}$ , est donc  $lpm_{tr} = 1/\mu_{tr}$ . À partir du coefficient de transport, on définit le coefficient effectif de diffusion,  $D$ , donné par :

$$D = \frac{1}{3 \mu_{tr}}. \quad (\text{IV.7})$$

Ce coefficient tient compte non seulement de la diffusion ( $\mu_s$ ) mais aussi de l'absorption ( $\mu_a$ ) et de l'anisotropie ( $g$ ) de diffusion. La longueur effective de diffusion,  $L_D$ , est alors définie par :

$$\begin{aligned} L_D &= \sqrt{\frac{D}{\mu_a}} \\ &= \sqrt{\frac{1}{3 \mu_{tr} \mu_a}}. \end{aligned} \quad (\text{IV.8})$$

Enfin, l'albédo,  $a$ , est défini comme étant la fraction de la lumière reçue que diffuse un corps non lumineux. Donc :

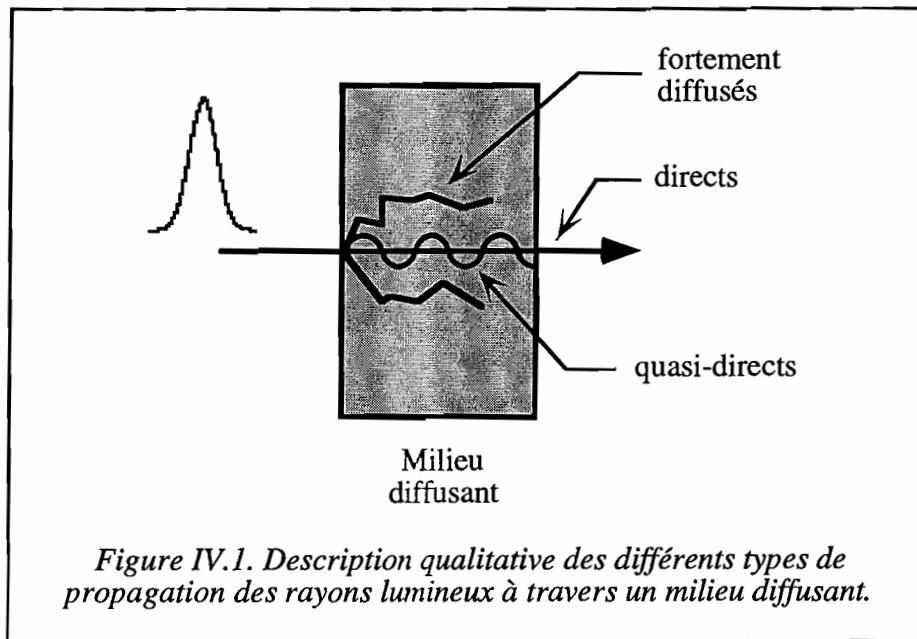
$$a = \mu_s / \mu_t. \quad (\text{IV.9})$$

C'est un paramètre qui décrit un milieu selon le processus dominant d'interaction; autrement dit, un milieu dominé par l'absorption aura un faible albédo (proche à 0) tandis qu'un milieu dominé par la diffusion aura un fort albédo (proche à 1). Il est intéressant de noter que les tissus biologiques ont un albédo qui varie entre 0,99 et 0,999 dans la fenêtre thérapeutique [1].

Nous allons étudier dans les paragraphes suivants la propagation et l'amplification paramétrique d'ondes lumineuses. Bien qu'il soit plus correct de parler uniquement en termes de rayons lumineux ou d'ondes, ceci complique souvent la description des phénomènes rencontrés. Afin de quantifier plus facilement les propriétés énergétiques de la transmission à travers un milieu diffusant, nous dérogerons à la règle et nous utiliserons le mot "photon".

Qualitativement, la propagation d'une impulsion courte à travers un milieu diffusant peut être perçue comme sur la figure IV.1. Il existe une certaine probabilité pour qu'un photon puisse traverser un milieu sans être dévié de sa trajectoire initiale et sans être absorbé. On appelle couramment un tel photon non-diffusé *direct*. La quantité de photons directs qui peuvent traverser un milieu diffusant d'épaisseur  $l$  est caractérisée par le coefficient d'interaction totale  $\mu_t$  et le libre parcours moyen  $lpm$ . Cette transmission est donc donnée par  $T = e^{-\mu_t l}$ . Le reste des rayons qui traversent le milieu est constitué de photons qui ont

été plus ou moins diffusés. La transmission de ces rayons diffusés est caractérisée par le coefficient de transport,  $\mu_{tr}$ , qui peut être beaucoup plus petit que  $\mu_t$  pour un milieu de forte anisotropie de diffusion. Autrement dit, la transmission des rayons diffusés à travers un milieu diffusant peut être beaucoup plus grande que celle des rayons directs.

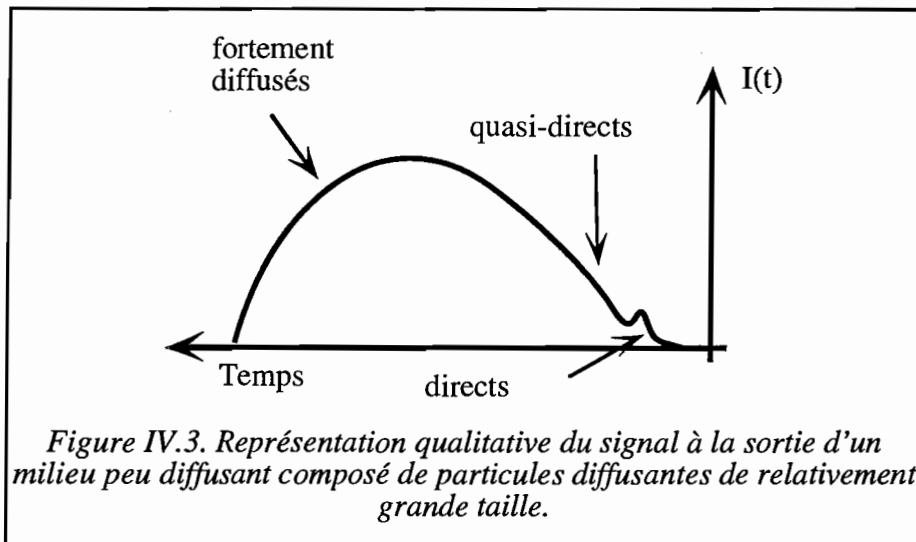
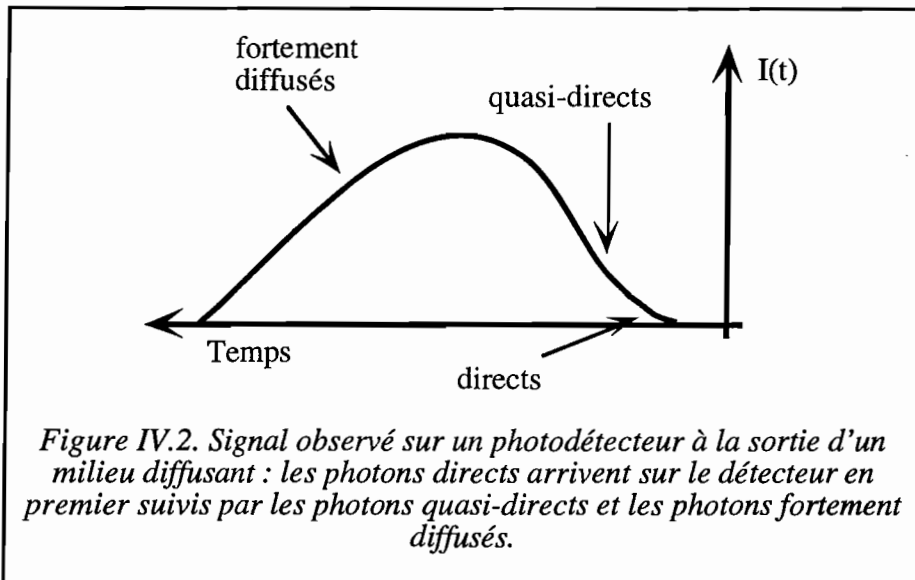


Les rayons lumineux diffusés peuvent être classés en deux catégories: ceux qui ont été peu diffusés, dits *rayons quasi-directs*, et ceux qui ont été fortement diffusés. L'appellation "*quasi-direct*" provient du fait que ces rayons sont peu déviés de la trajectoire des rayons directs et sortent à peu près colinéaires. On remarque que cette distinction entre les rayons quasi-directs et les rayons diffus est très qualitative et il n'existe pas de démarcation réelle entre ces deux catégories.

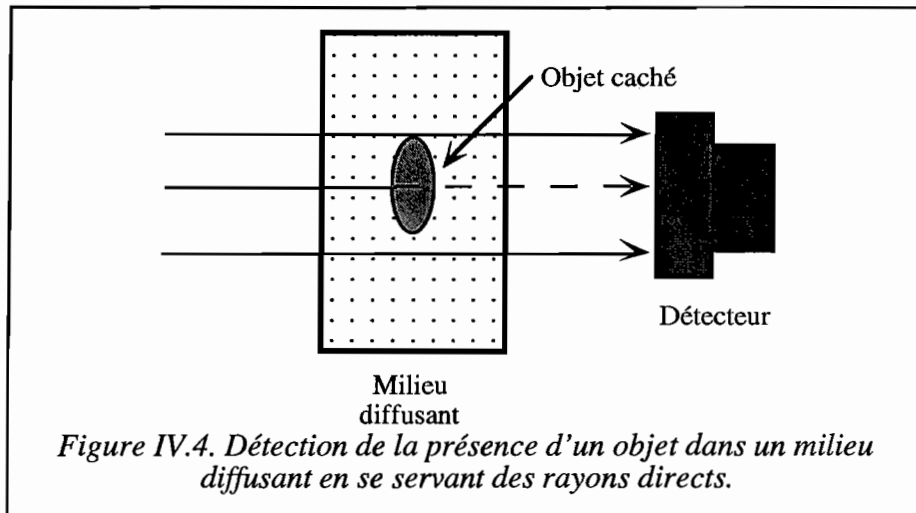
On remarque que, dans la littérature, il arrive que l'on appelle les rayons peu diffusés ou quasi-directs sous le nom de "*photons serpentiles*" [7]. Ce nom tente de décrire l'idée que les photons peu diffusés suivent plus ou moins la trajectoire des photons directs (aussi appelés "*balistiques*") avec de petites déviations. Par contre, il n'est pas très précis parce qu'il laisse sous-entendre qu'un photon "serpentile" est distinct d'un photon diffusé. En réalité, les photons "serpentiles" sont des photons diffusés. Nous avons donc préféré utiliser la terminologie de *quasi-direct* ou, simplement, de *peu diffusé*.

Le signal à la sortie du milieu diffusant aura donc une allure telle que celle représentée sur la figure IV.2. Puisque les rayons directs suivent le chemin le plus court dans le milieu, ils mettent moins de temps à traverser le milieu que les rayons quasi-directs et les rayons fortement diffusés. Cependant, certains auteurs ont observé sur un photodétecteur rapide un signal comme représenté sur la figure IV.3: un pic de photons directs, suivi un peu plus tard

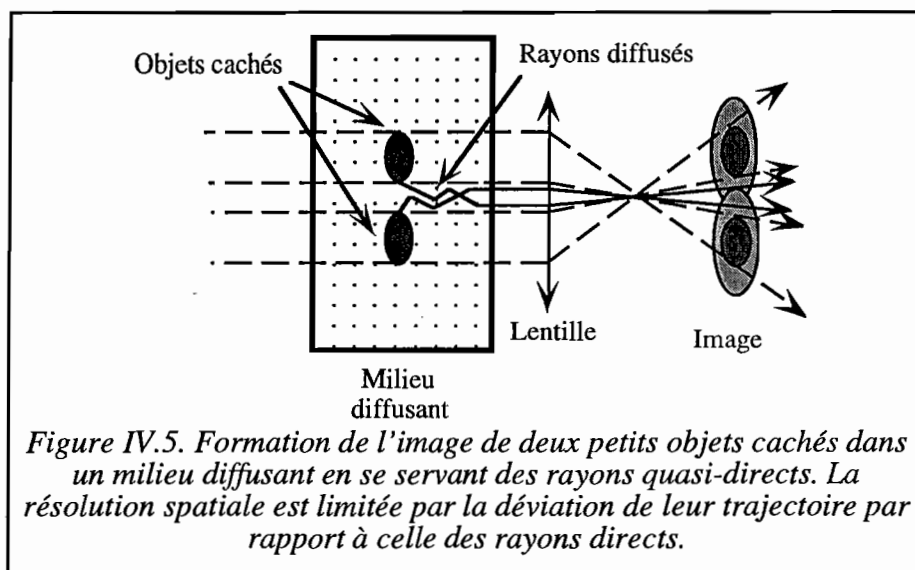
de la grande bosse due aux photons diffusés [7]. Cette figure correspondrait à un milieu assez peu diffusant (puisque un nombre non négligeable de photons directs arrivent quand même à traverser le milieu) composé de particules diffusantes de relativement grande taille; la diffusion se fait alors sous un grand angle par rapport à l'axe de propagation des rayons directs. Puisque nous nous concentrons surtout sur des milieux diffusants tels que des tissus biologiques, la figure IV.2 est une représentation qualitative du signal plus réaliste.



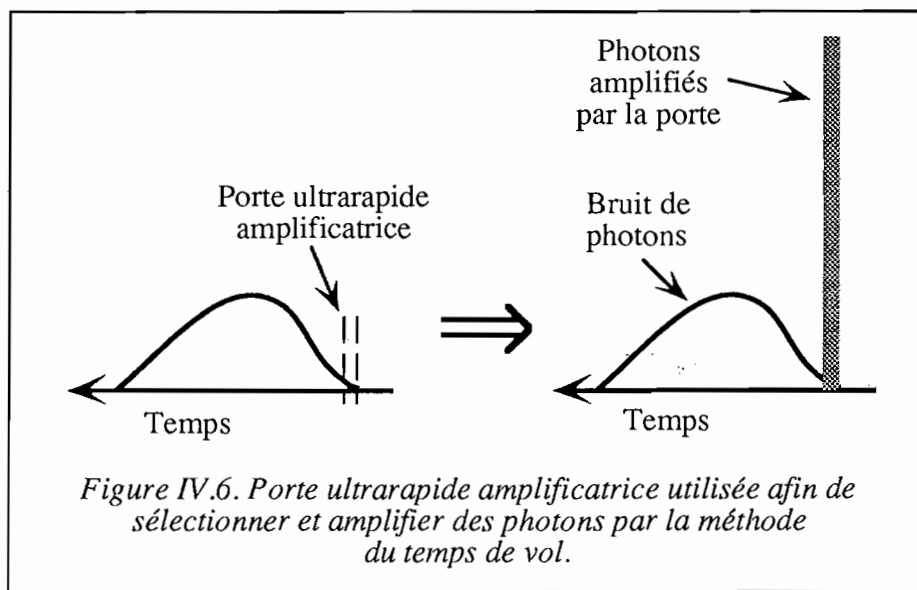
Si l'on cherche à localiser un objet caché dans un milieu diffusant, il est idéal d'utiliser seulement des rayons directs en éliminant tous les rayons diffusés du système de détection. Puisque les rayons directs ne sont pas déviés en traversant le milieu, on peut connaître leurs trajectoires avec précision. La présence d'un objet plus absorbant ou diffusant que le milieu qui l'entoure se manifestera comme une baisse du signal de photons directs à cet endroit (voir la figure IV.4). La résolution spatiale de la détection est donc surtout déterminée par la taille du faisceau dans le milieu.



Si l'on considère cependant un milieu très fortement diffusant, la probabilité pour qu'un rayon arrive à traverser le milieu sans être diffusé devient négligeable. Il n'est donc plus possible d'utiliser les rayons directs pour sonder le milieu. On est alors obligé de considérer les rayons diffusés si l'on veut localiser un objet caché. Malheureusement, on n'est pas capable de connaître la trajectoire exacte des rayons diffusés. Tout de même, les rayons quasi-directs, qui ont été seulement légèrement diffusés et qui suivent plus ou moins la trajectoire des rayons directs, peuvent donner des informations utiles sur la structure interne du milieu. La résolution spatiale est alors limitée par la déviation de leur trajectoire par rapport à celle des rayons directs. Cette idée est illustrée sur la figure IV.5. Si l'on essaie de faire une image de deux petits objets absorbants dans le milieu avec des rayons diffusés, leurs images sont nécessairement floues. Si les rayons ont été déviés par une distance de l'ordre de la séparation physique des deux objets, on ne sera plus capable de distinguer un objet de l'autre. Les rayons fortement diffusés contribuent donc au "bruit" et doivent être éliminés de tout système utilisé pour la localisation d'objet caché.



En s'appuyant du fait que les photons directs vont être détectés en premier suivis ensuite par les photons quasi-directs et enfin par les photons fortement diffusés, l'idée que nous avons développée est basée sur le fait que l'on peut utiliser une porte ultrarapide amplificatrice pour d'abord sélectionner temporellement et ensuite amplifier les photons désirés (soit directs ou quasi-directs). On peut donc espérer amplifier le nombre des photons utiles à un niveau plus important que celui des photons fortement diffusés. On appelle cette méthode de détection *la méthode du temps de vol* puisque la sélection des photons est déterminée par leur temps de vol dans le milieu diffusant. On illustre ce principe sur la figure IV.6.



### IV.3. La théorie de Mie

Pour les tissus biologiques, les valeurs des paramètres de diffusion et d'absorption sont mesurées expérimentalement et dépendent fortement de l'échantillon. Dans nos expériences, nous avons simulé un tissu biologique avec une solution de microsphères de latex dans de l'eau. L'avantage que présente ce milieu est que l'on est capable de calculer les paramètres de diffusion à partir de la théorie de Mie, ce qui nous permet par la suite de caractériser notre échantillon et, ainsi, notre méthode de détection. Les échantillons biologiques (de viande), même s'ils sont plus réalistes, ont le désavantage à ce niveau d'être impossibles à caractériser exactement compte tenu de leurs inhomogénéités ainsi que des effets de séchage et de perte de sang.

La théorie de Mie permet de calculer la section efficace,  $\sigma_s$ , d'une solution aqueuse de microsphères à partir de leur diamètre, de leur indice de réfraction, de l'indice de réfraction de l'eau et de la longueur d'onde de la lumière incidente. Le coefficient de diffusion est ensuite calculé en connaissant la densité de particules  $n$  dans la solution :

$$\mu_s = \sigma_s n. \quad (\text{IV.10})$$

On peut donc en déduire, en négligeant l'absorption, le nombre de libres parcours moyens traversés par les faisceaux dans nos expériences.

La théorie de Mie est basée sur la théorie électromagnétique et non pas sur la théorie du transport radiatif. Elle donne une solution rigoureuse de la diffraction d'une onde monochromatique plane par une sphère homogène dans un milieu homogène. Cette théorie s'applique également à un ensemble de sphères identiques ayant une distribution aléatoire et séparées par une distance plus grande que la longueur d'onde de la lumière. Sa solution complète se trouve par exemple dans *Principles of Optics* de Born et Wolf [8].

Nous avons développé un logiciel basé sur le langage "*Mathematica*" permettant de calculer la section efficace de notre solution de microsphères de latex. Un résumé des équations utilisées se trouve dans l'annexe B.

#### IV.4. Les propriétés optiques des tissus

Afin d'utiliser la transillumination de tissus biologiques, il faut connaître autant que possible leurs propriétés optiques. Nous allons donc considérer dans la suite les valeurs des paramètres définis dans la section IV.2 de ce mémoire pour des tissus mous illuminés par de la lumière dans la fenêtre thérapeutique (entre 600 nm et 1,3  $\mu\text{m}$ ) [1]. Les tissus mous sont des tissus tels la cervelle, le foie, le poumon, la peau et le sein.

Il est important de reconnaître que c'est la diffusion, due largement aux discontinuités microscopiques de l'indice de réfraction dans les tissus, et non l'absorption, qui est le processus dominant d'interaction d'un tissu avec de la lumière à ces longueurs d'onde. En fait l'albédo des tissus mous se trouve entre 0,99 et 0,999. Le coefficient d'absorption  $\mu_a$  varie de 0,01 à 1  $\text{mm}^{-1}$ , ce qui veut dire que la longueur d'absorption  $l_a$  varie de 1 à 100 mm. En même temps, le coefficient de diffusion  $\mu_s$  se trouve entre 10 et 100  $\text{mm}^{-1}$  et la longueur de



diffusion  $l_s$  entre 0,01 et 0,1 mm [1]. Il est donc possible de négliger l'absorption dans le calcul des libres parcours moyens. Ainsi :

$$l_{pm} \approx l_s = \frac{1}{\mu_s}. \quad (IV.11)$$

Ce paramètre décrit la propagation de rayons directs dans un tissu. On peut calculer que seulement 1 photon sur 500 millions sera encore direct après avoir traversé 20 libres parcours moyens de tissu! On remarque également que le coefficient de diffusion varie légèrement avec l'inverse de la longueur d'onde tandis que les variations du coefficient d'absorption peuvent être importantes selon la quantité de sang et d'oxygénation du tissu [1].

Le paramètre d'anisotropie  $g$  est à peu près indépendant de la longueur d'onde. Il se trouve compris entre 0,8 et 0,95 pour la plupart des tissus [1], ce qui veut dire que la grande majorité des rayons est diffusée dans une direction proche de la direction initiale de propagation du rayon. Le coefficient de transport  $\mu_{tr}$  se situe alors entre 0,5 et 20 mm<sup>-1</sup> et la longueur effective de diffusion,  $L_D$ , entre 0,2 et 25 mm. L'anisotropie importante des tissus mous explique le fait que la lumière de longueur d'onde comprise dans la fenêtre thérapeutique peut pénétrer profondément dans du tissu malgré un faible libre parcours moyen: cette lumière est surtout diffusée et non pas absorbée et elle est diffusée en grande majorité vers l'avant.

On conclut donc que, pour les tissus mous illuminés dans la fenêtre thérapeutique, il y a peu d'absorption mais énormément de diffusion. La probabilité qu'un rayon direct arrive à traverser plus de quelques millimètres de tissu est négligeable. Cependant, les rayons diffusés peuvent pénétrer profondément dans les tissus grâce à la forte anisotropie de ceux-ci. Pour nos expériences, ceci veut dire que l'on sera obligé de chercher à détecter les photons quasi-directs en sacrifiant la résolution spatiale et que l'on s'attend à être gêné par la quantité importante de photons fortement diffusés qui arriveront à traverser le milieu.

## IV.5. Contexte scientifique

La transillumination utilisée comme méthode d'imagerie en milieu diffusant a trouvé un nouvel élan ces dernières années, des recherches se faisant selon une grande variété de techniques. La base de la plupart de ces techniques est la méthode du temps de vol; autrement dit, on essaie de sélectionner les photons qui prennent le minimum de temps pour traverser le milieu et sont donc ceux qui sont les moins diffusés (voir la section IV.2). On verra dans la suite que les principales méthodes étudiées de nos jours pour faire cette

sélection sont la caméra à balayage de fente, la détection hétérodyne, l'holographie électronique, la porte à effet Kerr, l'amplification Raman et la corrélation croisée par génération du second harmonique.

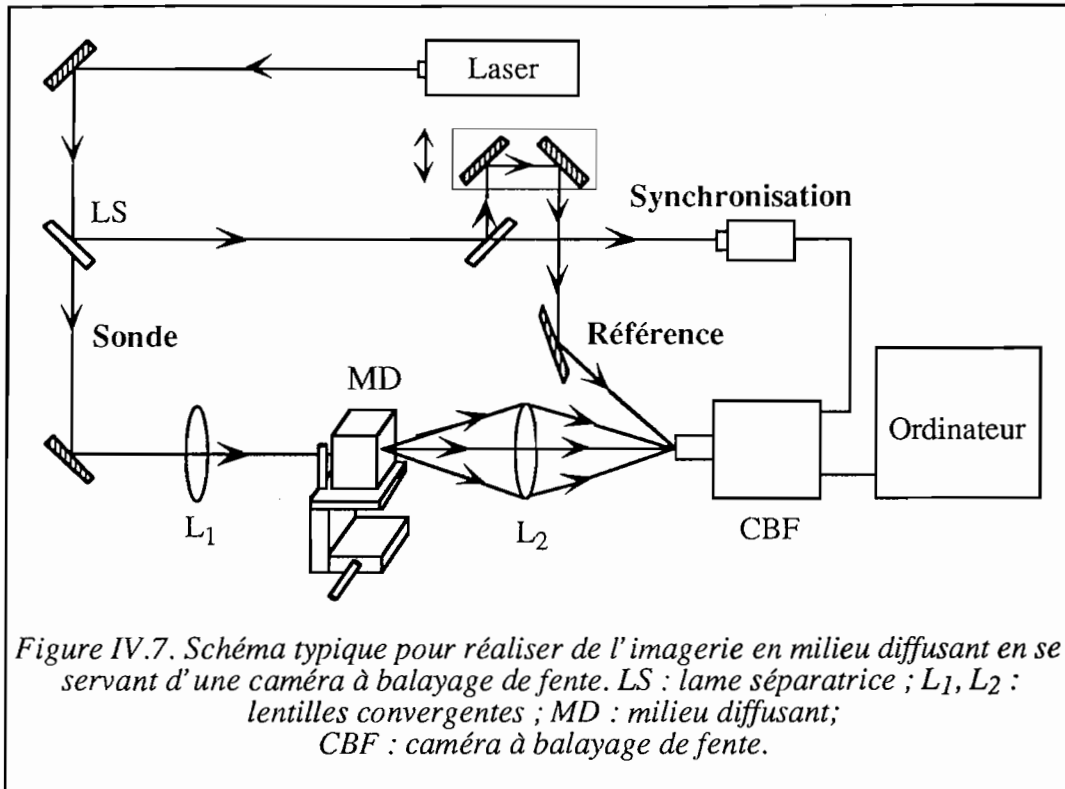
Malheureusement, une comparaison exacte des différentes méthodes est très difficile compte tenu des contextes très divers dans lesquels les résultats ont été obtenus. On remarque que, outre la vraie viande telle la poitrine de poulet, on utilise comme milieu diffusant des solutions de microsphères de latex, de la solution Intralipide et de la crème non-laitière. On caractérise ces solutions en citant le nombre de densités optiques traversées, l'atténuation exponentielle du signal, le nombre de libres parcours moyens totaux ou de transport traversés, ou simplement la concentration de la solution et son épaisseur. Il arrive même que l'on cite la densité optique d'un milieu, qui est une caractérisation des photons directs, quand on utilise la détection de photons diffusés [9]. Un résumé des méthodes et des résultats expérimentaux cités dans la littérature se trouve dans le tableau IV.2. Nous allons les analyser rapidement afin de détecter leurs avantages et inconvénients.

#### **IV.5.1. La caméra à balayage de fente**

La méthode la plus simple pour faire une détection temporellement sélective de photons ayant traversé un milieu diffusant est l'utilisation d'une caméra à balayage de fente. Cette caméra est couplée avec une caméra CCD ("charge coupled device") très sensible et permet la détection d'un signal lumineux avec une résolution proche de la picoseconde. Un schéma typique de cette technique se trouve sur la figure IV.7. Le laser utilisé doit fournir des impulsions de durée inférieure à la résolution temporelle désirée. Le faisceau laser est séparé en deux voies par la lame séparatrice, LS de la figure IV.7. La voie principale sert à sonder le milieu diffusant, MD, qui est monté sur un étage de translation. La lentille convergente  $L_2$  focalise le signal diffusé sur la fente de la caméra à balayage de fente. La deuxième voie a deux fonctions. Elle permet la synchronisation de la caméra à balayage de fente et elle fournit un signal de référence afin de pouvoir déterminer le retard absolu produit par le milieu diffusant. De cette manière, on peut connaître la répartition temporelle de l'énergie du signal ayant traversé le milieu diffusant. On peut donc sélectionner la partie intéressante du signal, autrement dit les photons directs et quasi-directs, avec une résolution de l'ordre de la picoseconde.

TECHNIQUE	RÉF.	MILIEU	ÉPAISSEUR (mm)	RÉSOLUTION (mm)
Caméra à balayage de fente	10	crème non-laitière	50 (D0 = 500)	8,5
	11	solution de latex	51 (10* $l_{pm_{tr}}$ )	8
	12	lait entier	51,5 (11,7* $l_{pm_{tr}}$ )	"mm"
	13	poulet	40 (16* $l_{pm_{tr}}$ )	2,5
Détection hétérodyne	14	lait-gélatine	2 (T = 10 <sup>-5</sup> )	0,4
	15	solution de latex	10 (27* $l_s$ )	0,125
	16	poulet	15	1
Holographie électronique	17	solution de latex	40 (conc. inconnue)	1
	18	poulet	6	0,55
Porte à effet Kerr optique	19	poulet	4	0,4
	7	poitrine humaine	3,5	0,1
	7	solution de polystyrène	50 (21,7* $l_s$ )	0,1
	20	solution Intralipide	55 (23* $l_{pm_{tr}}$ )	0,25
Amplification Raman	21	crème non-laitière	50 (33* $l_{pm_{tr}}$ )	0,315
	22	crème non-laitière	50 conc. 8 mg/mL	0,5
	23	solution de polystyrène	50 (28* $l_s$ )	0,315
	23	crème non-laitière	50 (24* $l_s$ )	0,125
Corrélation croisée	24	solution de latex	20 (28* $l_s$ )	<1
	25	poulet	6,5	<1

Tableau IV.2: Résumé des méthodes et des résultats expérimentaux cités dans la littérature.



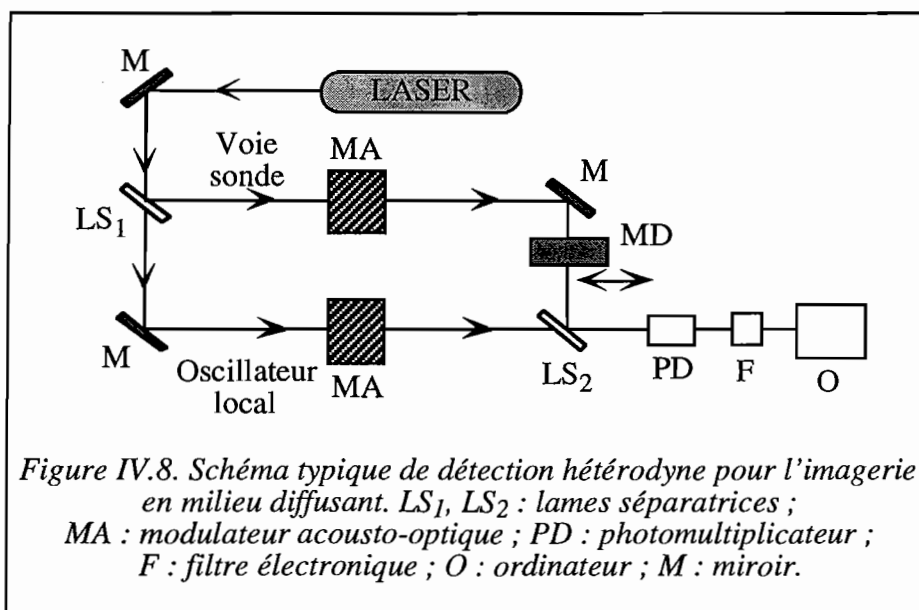
Les avantages de cette méthode sont sa facilité d'usage, sa haute sensibilité de détection et sa capacité à construire une image ligne par ligne et non pas seulement point-par-point. En revanche, il existe plusieurs inconvénients. D'abord, la résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente est limitée à la picoseconde, ce qui limite par la suite la résolution spatiale que l'on peut espérer obtenir. En plus, il n'y a pas de sélectivité angulaire dans la détection, ce qui aurait éliminé une proportion importante des photons de bruit. Enfin, une caméra à balayage de fente est très coûteuse et ne donne pas d'amplification intrinsèque de l'image.

Il y a deux groupes de recherche principaux qui cherchent à faire de l'imagerie en milieu diffusant en se servant d'une caméra à balayage de fente. Hebden *et coll.* [9-11] utilisent un laser à colorant émettant des impulsions de 1 ps autour de 580 nm et avec une puissance moyenne de 50 mW à 76 MHz. Ils détectent les photons quasi-directs (entre 6 et 50 ps) qui traversent des solutions de crème non-laitière et de microsphères de latex. À travers 50 mm de crème non-laitière, ils arrivent à distinguer des tubes remplis de colorant de 8,5 mm de diamètre. Cette solution est équivalente à 500 densités optiques [10]. Également, ils arrivent à distinguer des sphères de verre de 8 mm de diamètre à travers 51 mm de solution de latex ayant un coefficient de transport égal à  $0,2 \text{ mm}^{-1}$  [11]. L'équipe d'Alfano a utilisé un laser à colorant à 620 nm émettant des impulsions de 100 fs avec une puissance moyenne de 5 mW à 82 MHz comme sonde et comme détecteur une caméra à balayage de fente dans laquelle le signal est moyenné sur une fenêtre de plusieurs dizaines de picosecondes. De cette

manière, ils ont réalisé la détection d'un objet de 10 mm dans 51,5 mm de lait entier (intégration sur 20 ps) [12] et de 2,5 mm de gras dans 40 mm de poitrine de poulet (intégration sur 50 ps) [13].

#### IV.5.2. La détection hétérodyne

La détection hétérodyne est une technique qui utilise les propriétés de cohérence de la lumière pour réaliser une porte temporelle et ainsi sélectionner les photons qui n'ont pas été trop diffusés (voir le schéma de la figure IV.8). Cette méthode est de type pompe-sonde où les deux voies sont modulées à des fréquences voisines mais non identiques. Pour cela, on utilise typiquement des modulateurs acousto-optiques et la détection se fait à la différence des deux fréquences. Par exemple, on peut moduler la voie sonde à 80 MHz et la voie pompe, appelée oscillateur local, à 81 MHz. Une lame séparatrice,  $LS_2$  de la figure IV.8, permet de superposer les deux faisceaux après que le faisceau de pompe a traversé le milieu diffusant. Un photomultiplicateur lié à un filtre électronique sert à détecter le signal de battement à 1 MHz. De cette manière, seule la lumière qui sort du milieu diffusant et qui est toujours cohérente spatialement et temporellement avec la lumière de pompe est détectée. On remarque que la durée des impulsions n'a pas d'importance et que seule compte la cohérence de la source. La source peut donc même être continue. Les principaux avantages de cette méthode sont sa bonne sélectivité angulaire et le fait qu'elle ne nécessite pas de laser puissant. Par contre, l'image doit être construite point-par-point et la méthode a peu de gain intrinsèque.



En 1991, Toida *et coll.* [14] ont utilisé un laser hélium-néon à 632,8 nm émettant quelques milliwatts de puissance moyenne pour résoudre avec la détection hétérodyne une mire dans 2 mm de solution de lait et de gélatine avec une résolution de 400  $\mu\text{m}$ . Plus récemment, l'équipe de Fujimoto a utilisé un laser femtoseconde de saphir dopé au titane à 830 nm émettant des impulsions à 82 MHz ayant une puissance moyenne de 45 mW. Ils ont détecté une mire dans 1 cm (27 longueurs de diffusion) de solution de microsphères de latex avec une résolution de 125  $\mu\text{m}$  [26] et une mire de 1 mm dans 15 mm de poitrine de poulet [27].

Mentionnons également les expériences de Huang *et coll.* [28] sur l'utilisation de la détection hétérodyne pour faire des mesures de la structure antérieure de l'oeil. Ces mesures ont été faites en réflexion avec une sensibilité de détection de  $10^{-10}$ , une résolution transverse de 2  $\mu\text{m}$ , et une résolution longitudinale de 10  $\mu\text{m}$ .

#### IV.5.3. L'holographie électronique

Une autre technique de détection cohérente est l'holographie électronique. Dans cette technique, on crée un hologramme sur la surface d'une caméra CCD; cet hologramme est par la suite reconstruit par un ordinateur pour faire l'image de l'objet diffusant. L'holographie électronique a l'avantage d'avoir une bonne sélectivité angulaire et une résolution temporelle déterminée par la longueur de cohérence. Elle donne également la possibilité de faire des images bi-dimensionnelles sans passer par un échantillonnage point-par-point. En revanche, c'est une technique sans gain intrinsèque où le temps d'exposition est limité au temps de stabilité de l'objet. De plus, les photons diffusés arrivent toujours sur le détecteur et ont tendance à éblouir l'image.

L'équipe de Valdmanis a utilisé l'holographie électronique pour faire de l'imagerie en milieu diffusant. En se servant d'un laser à colorant émettant des impulsions à 620 nm de 150 fs et de 20 mW de puissance moyenne à 100 MHz, ils ont détecté des fils de 1 mm dans 4 cm de solution de latex de concentration inconnue [29]. Par la suite, ils ont utilisé un laser de saphir dopé au titane produisant des impulsions de 120 fs à 840 nm ayant une puissance moyenne de 70 mW à un taux de répétition de 76 MHz pour faire l'image de fils de 0,55 mm dans 6 mm de poulet [18].

#### IV.5.4. La porte à effet Kerr

Le principe de la porte Kerr a été démontré par Duguay et Hansen [30] en 1969. Un milieu Kerr (voir l'annexe A), tel le disulfide de carbone ( $\text{CS}_2$ ), placé entre deux polariseurs croisés a une transmission nulle. Cependant, on peut illuminer ce milieu Kerr par des impulsions courtes, qui vont induire une biréfringence transitoire. La transmission du système devient non nulle pendant un temps déterminé par le temps de relaxation de l'effet Kerr et par la durée de l'impulsion excitatrice. Ce système est donc une porte optique rapide qui peut servir à sélectionner les photons peu diffusés et faire ainsi de l'imagerie. Cette technique a l'avantage de permettre théoriquement la construction d'images bi-dimensionnelles sans échantillonnage point-par-point. Les inconvénients sont que la résolution temporelle reste de l'ordre de la picoseconde (pour des milieux Kerr à forte non linéarité ( $\text{CS}_2$ )), qu'il n'y a pas de sélectivité angulaire et que les pertes dans la porte sont importantes (autour de 90%).

La figure IV.9 donne un schéma simplifié de cette technique. Comme pour le système basé sur la caméra à balayage de fente (section IV.5.1), le laser doit fournir des impulsions de durée inférieure à la résolution temporelle désirée. Le faisceau émis par le laser est séparé en deux par la lame séparatrice LS. Une voie sert de pompe de la cellule Kerr pour la faire fonctionner en porte rapide. L'autre voie agit en tant que sonde du milieu diffusant. Le signal qui traverse ce milieu est focalisé sur la cellule Kerr, qui est placée entre deux polariseurs croisés  $P_1$  et  $P_2$ . La partie du signal qui arrive dans la cellule en même temps que l'impulsion de pompe voit une biréfringence induite. Sa polarisation va être modifiée et est analysée par le deuxième polariseur  $P_2$ . Le restant du signal ne voit pas de biréfringence et ne traverse donc pas ce deuxième polariseur. La caméra CCD détecte le signal ainsi tronqué.

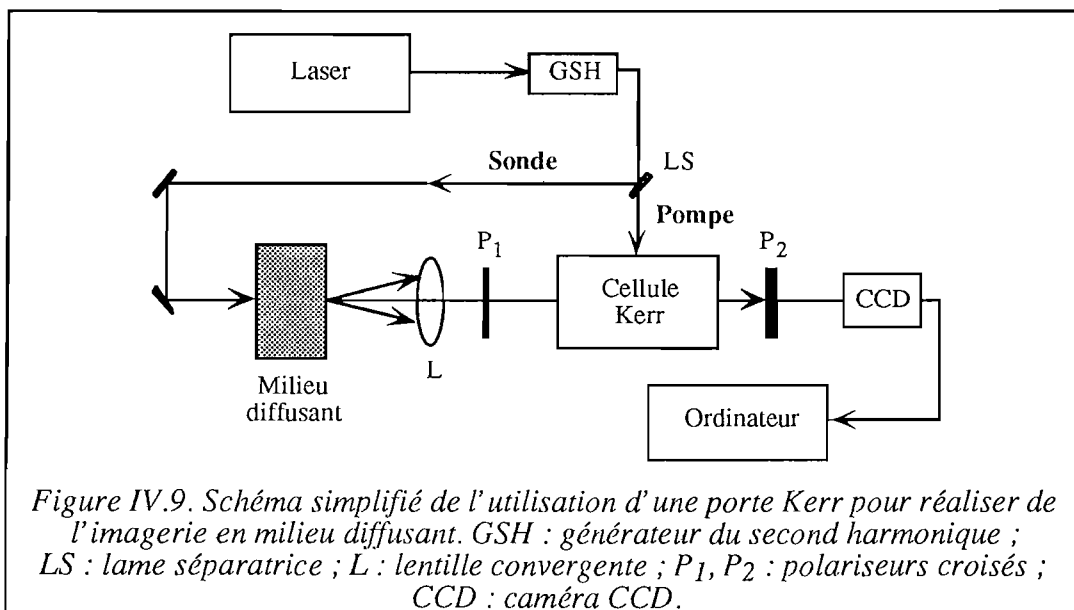


Figure IV.9. Schéma simplifié de l'utilisation d'une porte Kerr pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant. GSH : générateur du second harmonique ; LS : lame séparatrice ; L : lentille convergente ;  $P_1, P_2$  : polariseurs croisés ; CCD : caméra CCD.

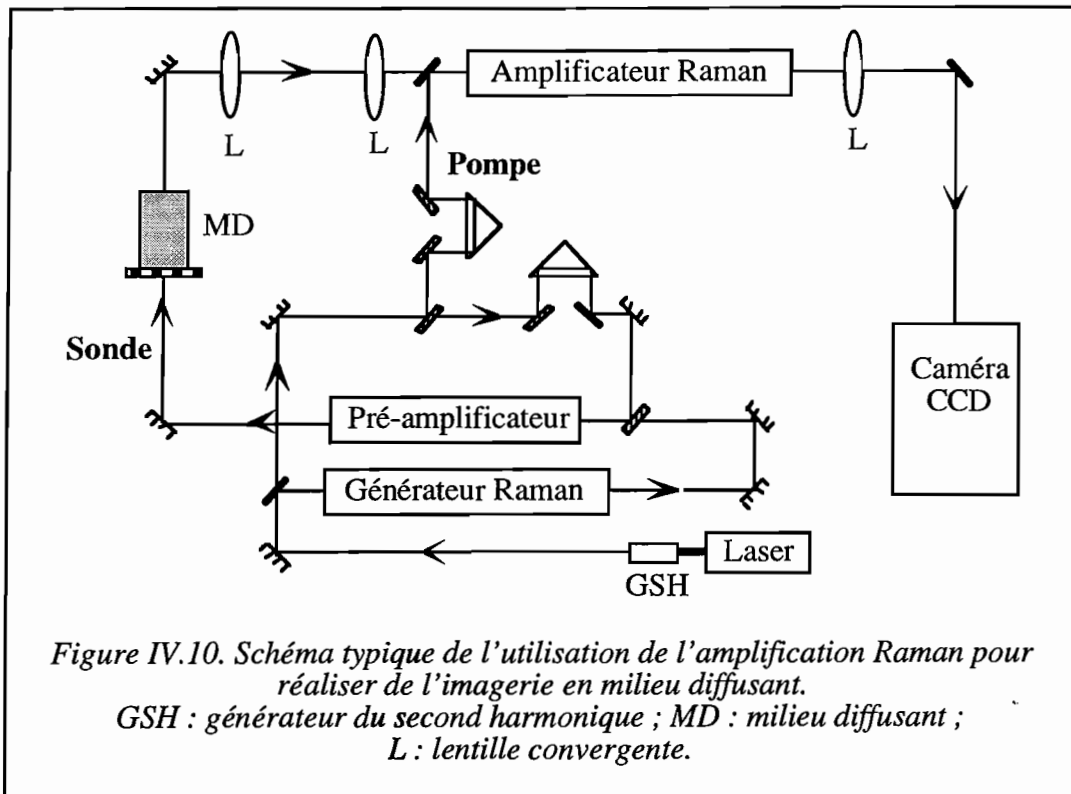
L'équipe d'Alfano au City College de New York travaille depuis plusieurs années à appliquer cette porte à l'imagerie en milieu diffusant. Ils utilisent un laser de Nd:verre verrouillé en phase émettant des impulsions de 8 ps à 1054 nm. En général, les impulsions à 1054 nm servent de pompe de la cellule de Kerr tandis que leur second harmonique sert de sonde du milieu diffusant [7,19]. En utilisant cette technique, ils ont fait l'image d'une mire à travers 4 mm de poitrine de poulet avec une résolution spatiale de 400  $\mu\text{m}$  [19], à travers 3,5 mm de poitrine humaine avec une résolution de 100  $\mu\text{m}$  [7] et à travers l'équivalent de 21,7 longueurs de diffusion d'une solution de sphères de polystyrène avec une résolution de 100  $\mu\text{m}$  [7]. Enfin, dans les expériences utilisant un filtre spatial de Fourier ainsi qu'une porte Kerr et dans lesquelles la pompe se trouve être à 527 nm et la sonde à 1054 nm, ils ont réussi à résoudre une mire de 250  $\mu\text{m}$  dans 23 livres parcours moyens de transport de solution Intralipide [20].

#### IV.5.5. L'amplification Raman

La diffusion Raman se produit par l'interaction de la lumière avec les modes vibrationnels des molécules. Pour la diffusion Raman Stokes, les molécules sont excitées à des niveaux virtuels par un photon de fréquence  $\omega$  et se dés excitent rapidement à des niveaux vibrationnels avec l'émission d'un photon à la fréquence Stokes  $\omega_s$ , où  $\omega_s < \omega$ . L'efficacité de ce processus est faible quand il se produit spontanément mais peut être grande si la diffusion Raman est stimulée par la présence de photons de fréquence  $\omega_s$ . La diffusion Raman stimulée se traduit alors par une amplification des photons de fréquence  $\omega_s$ , que l'on appelle *amplification Raman*.

L'équipe de Reintjes à Washington, D.C. utilise l'amplification Raman pour obtenir une porte ultrarapide amplificatrice qu'ils appliquent à l'imagerie en milieu diffusant [21-23] (voir la figure IV.10). Ils pompent d'abord une cellule Raman agissant en générateur d'impulsions Stokes. Après pré-amplification, les impulsions Stokes servent ensuite de sonde du milieu diffusant, MD, et sont amplifiées à la sortie du milieu dans un amplificateur Raman pompé par une partie de l'énergie des impulsions utilisées pour pomper le générateur. La durée de l'amplification est égale à la durée de la pompe, qui peut être femtoseconde. On remarque plusieurs avantages: une amplification intrinsèque de l'image, la possibilité de faire l'imagerie en temps réel, une résolution temporelle limitée par la durée de la pompe et la possibilité de faire la détection à des longueurs d'ondes autres que celle du laser de pompe. En revanche, cette technique nécessite l'utilisation de lasers de puissance et ne donne pas de sélectivité angulaire.

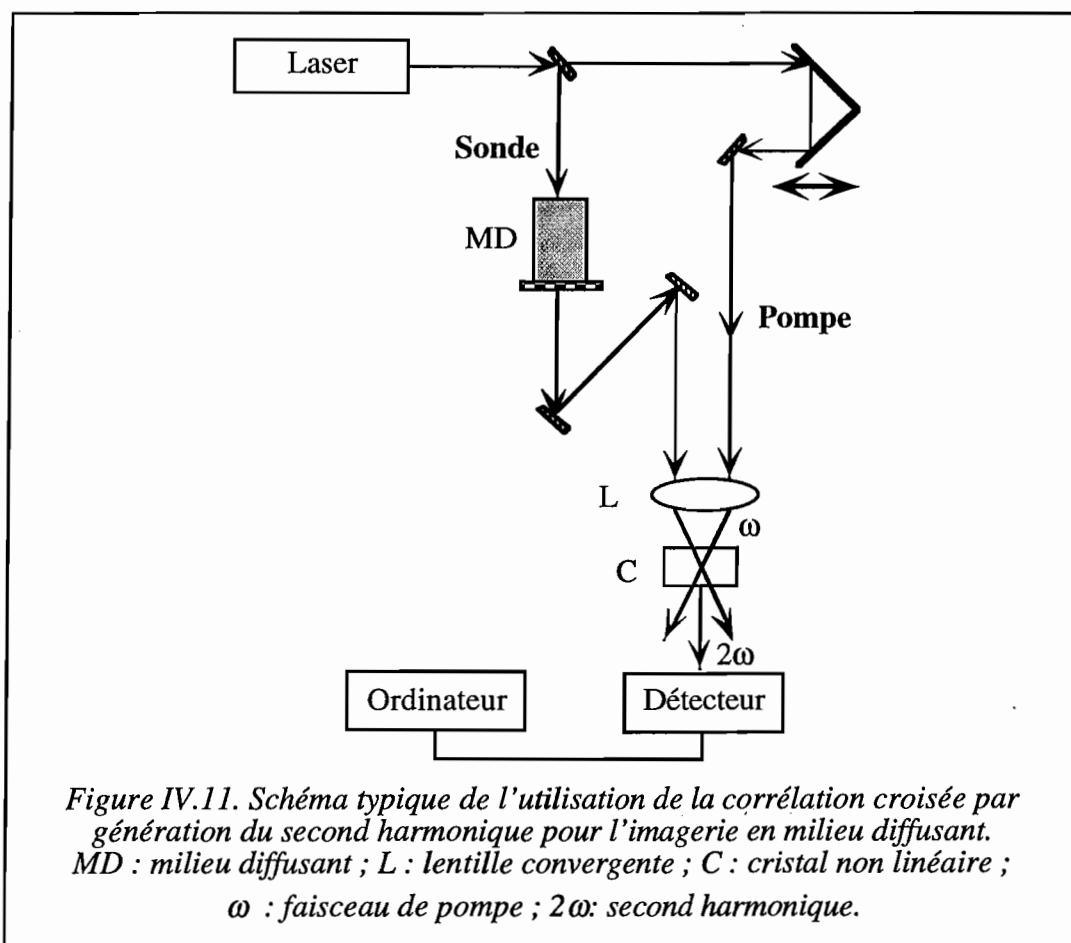




Le laser de pompe utilisé était un laser Nd:YAG doublé en fréquence. Ce laser produisait des impulsions à 532 nm de 30 ps et de 8 mJ à un taux de répétition de 5 Hz. Ces chercheurs ont ainsi imagé une mire de 315  $\mu\text{m}$  dans 33 livres parcours moyens de crème non-laitière [21] et dans 28 longueurs de diffusion de solution de sphères de polystyrène [23]. De plus, ils ont imagé une mire de 125  $\mu\text{m}$  dans 24 livres parcours moyens de crème non-laitière [23].

#### IV.5.6. La corrélation croisée par génération du second harmonique

Une dernière méthode de temps de vol utilisée est la corrélation croisée par génération du second harmonique. Un schéma simplifié de ce genre d'expérience se trouve sur la figure IV.11. Le faisceau laser est divisé en deux voies, une pour sonder le milieu diffusant, MD, et l'autre pour pomper le cristal non linéaire, C, dans lequel on fait de la génération du second harmonique. Le faisceau qui traverse le milieu diffusant est coïncident dans ce cristal avec la voie pompe et on détecte un signal à la fréquence double du laser sur la bissectrice de l'angle entre les voies pompe et sonde. Cette technique a une résolution temporelle égale à la durée de l'impulsion pompe. De plus, il y a une sélection angulaire qui se fait naturellement par l'accord de phase et qui élimine une grande partie des photons fortement diffusés. Les inconvénients principaux sont qu'elle nécessite un échantillonnage point-par-point et que l'amplification intrinsèque du signal est limitée à deux en énergie.



L'équipe d'Alfano a utilisé des impulsions de 100 fs à 620 nm avec une puissance moyenne de 5 mW et à un taux de répétition de 82 MHz émises par un laser à colorant et amplifiées à 5 mW de puissance moyenne à un taux de répétition de 6,5 kHz. Ils ont ainsi réussi à détecter une mire de 1 mm dans une épaisseur de solution de microsphères de latex équivalente à 28 longueurs de diffusion [24] ainsi qu'une mire de 1,8 mm dans 6,5 mm de poitrine de poulet [25].

Après cette présentation des principales méthodes déjà utilisées pour l'imagerie en milieu diffusant, nous allons décrire maintenant une nouvelle technique que nous avons développée dans le laboratoire. Elle est basée sur l'amplification paramétrique optique.

## IV.6. L'amplificateur paramétrique optique à la dégénérescence

### IV.6.1. Amplification paramétrique pour l'imagerie

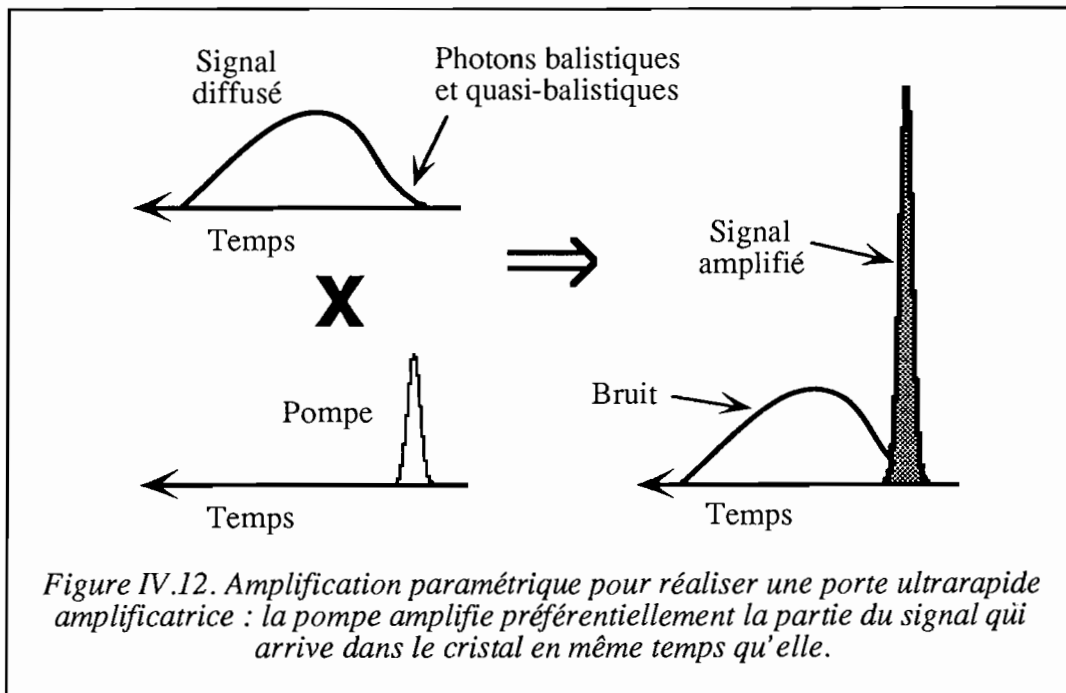
Une porte ultrarapide amplificatrice est intéressante pour faire de l'imagerie en milieu diffusant puisqu'elle permet l'amplification sélective des photons ayant traversé le milieu

diffusant selon leur temps de vol dans le milieu. Puisque les photons qui ont été peu diffusés ou pas du tout diffusés suivent un chemin plus direct que les photons fortement diffusés en traversant le milieu, leur temps de vol est plus court. Avec une porte ultrarapide amplificatrice, on peut donc sélectionner et amplifier ces photons peu diffusés (quasi-directs) ou pas du tout diffusés (directs).

On rappelle que la détection sélective des photons directs traversant un milieu permet de reconstruire l'image du milieu avec une très bonne résolution spatiale. Par contre, on sait que la probabilité qu'un rayon reste direct après avoir traversé plus de quelques millimètres de tissu est très faible, voire négligeable. Il est alors nécessaire d'utiliser les rayons quasi-directs, qui ont été faiblement diffusés en traversant le milieu, pour construire l'image du milieu avec une résolution limitée par la déviation de ces rayons par rapport à la trajectoire des rayons directs (voir la figure IV.5).

Nous proposons d'utiliser l'amplification paramétrique pour créer une porte ultrarapide amplificatrice avec application en imagerie en milieu diffusant. Un signal qui a traversé un milieu diffusant peut être mélangé avec une impulsion pompe dans un cristal non linéaire tel le BBO. La partie du signal qui se trouve coïncidente spatialement et temporellement avec l'impulsion de pompe est alors amplifiée paramétriquement avec un gain qui peut dépasser  $10^4$  pour des signaux très faibles. De cette manière, on peut espérer extraire un signal initialement noyé dans un bruit de fond de photons fortement diffusés. Une telle porte construite à partir d'un APO est *ultrarapide* car la durée des impulsions de pompe est subpicoseconde et donc l'amplification a lieu pendant moins d'une picoseconde et elle est *amplificatrice* à cause des forts gains intrinsèques à l'APO.

Le schéma de la figure IV.12 présente ce principe: la pompe amplifie préférentiellement la petite partie du signal qui arrive dans le cristal en même temps qu'elle. Tout de même, la quantité de photons qui se trouvent dans la queue du signal diffusé peut toujours excéder la quantité dans la partie amplifiée, malgré une importante amplification de ceux-ci. Prenons par exemple un signal ayant traversé 20 livres parcours moyens d'un milieu biologique ayant une anisotropie de seulement 0,8. Le coefficient de transport est alors de l'ordre de  $4/l$ , où  $l$  est la longueur du milieu. On peut estimer très grossièrement qu'environ  $e^{-4}$  (ou 2%) des photons incidents sur le milieu biologique arriveront à traverser le milieu malgré la diffusion. Le nombre de photons directs est donné par  $e^{-20}$ . Ceci veut dire qu'avant amplification le rapport du nombre de photons directs au nombre de photons diffusés doit être de l'ordre de  $e^{16} \approx 10^7$ ! Une amplification de  $10^4$  donnerait alors un rapport signal à bruit de seulement  $10^{-3}$ . Il faudrait donc soit qu'il y ait une amplification plus grande, soit que l'on mette en place un filtrage des photons diffusés, soit que l'on utilise des photons légèrement diffusés mais beaucoup plus nombreux que les photons directs.



#### IV.6.2. L'amplificateur paramétrique à la dégénérescence

Pour tester notre proposition, nous avons décidé de construire une porte ultrarapide amplificatrice basée sur l'amplification paramétrique à la dégénérescence [31-35]; autrement dit des impulsions à 390 nm agissent en qualité de pompe pour amplifier des impulsions à 780 nm. Le choix de la dégénérescence avait deux origines: la simplicité du montage et l'intérêt pour l'imagerie médicale d'avoir un signal dans le proche infrarouge.

Le montage expérimental de cet APO se trouve sur la figure IV.13. Les impulsions à 780 nm émises par la chaîne laser de saphir dopé au titane servent à pomper un cristal doubleur (de fréquence) pour produire des impulsions à 390 nm. Ce cristal de BBO, 3 mm de long et taillé pour la génération du second harmonique (type I) à 780 nm, est identique à celui utilisé pour l'APO à deux étages et décrit dans la section III.6.1. Les impulsions à 780 nm ont une énergie avant doublage d'environ 1,5 mJ à un taux de répétition de 20 Hz tandis que les impulsions doublées en fréquence à 390 nm ont une énergie de 300  $\mu$ J. Les impulsions à 390 nm sont séparées du restant des impulsions à 780 nm par le miroir dichroïque DM<sub>1</sub> qui réfléchit à 390 nm et transmet à 780 nm. Les deux voies correspondent donc à une voie *sonde* et à une voie *pompe*: les impulsions à 780 nm servent à sonder le milieu diffusant et les impulsions à 390 nm servent à pomper l'amplificateur paramétrique.

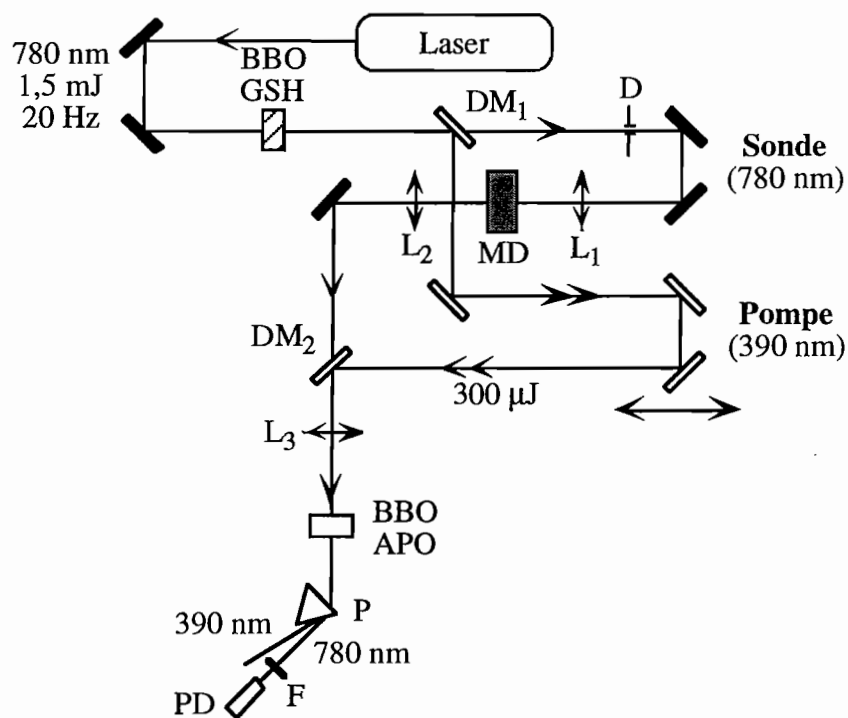


Figure IV.13. Montage expérimental de l'amplificateur paramétrique utilisé pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant.

*BBO GSH* : cristal de BBO utilisé en générateur du second harmonique ;  
*DM<sub>1</sub>, DM<sub>2</sub>* : miroirs dichroïques ; *D* : diaphragme ; *L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>, L<sub>3</sub>* : lentilles convergentes ;  
*MD* : milieu diffusant ; *BBO APO* : cristal de BBO utilisé en amplificateur paramétrique ;  
*P* : prisme ; *F* : filtre (RG570) ; *PD* : photodiode.

Le milieu diffusant, MD, est placé dans un système afocal, légèrement avant le point focal. L'afocal est constitué de deux lentilles convergentes,  $L_1$  et  $L_2$ , d'une longueur focale de 75 mm séparées de 150 mm. Le faisceau à 780 nm est limité spatialement par un diaphragme avant l'afocal. L'énergie des impulsions sondes est alors de  $100 \mu\text{J}$  et la taille du faisceau dans le milieu diffusant est d'environ  $80 \mu\text{m}$ , vérifiée à l'aide d'un analyseur de profil qui montre de plus une bonne qualité de faisceau.

Après passage dans le milieu diffusant, le signal à 780 nm est recombinaison avec la pompe à 390 nm par le miroir dichroïque  $DM_2$ . En ajustant la ligne à retard sur la voie pompe afin de superposer temporellement les deux impulsions, on amplifie le signal dans un cristal de BBO orienté pour l'amplification paramétrique à la dégénérescence. Ce cristal est identique au cristal doubleur : sa longueur est de 3 mm et il est taillé pour la génération du second harmonique (type I) à 780 nm. Une lentille convergente,  $L_3$ , d'une longueur focale de 50 mm placée 15 cm avant le cristal de l'APO sert à légèrement focaliser les faisceaux dans ce cristal pour augmenter l'efficacité du mélange à trois ondes. Un prisme et un filtre (RG570) servent à éliminer le restant de pompe pour détecter uniquement le signal à 780 nm. Cette détection

s'effectue avec une photodiode en silice associée à un oscilloscope Tektronix TDS 640. Cet oscilloscope permet un moyennage du signal (typiquement 200 coups ont été moyennés) ainsi qu'un déclenchement limité à une fenêtre étroite d'énergies des impulsions émises par la chaîne laser titane-saphir. De cette manière, les résultats sont moins sensibles aux instabilités des impulsions à 780 nm.

Le milieu diffusant utilisé est une solution de microsphères de latex dans de l'eau fournie par la compagnie DOW France (référence de la solution: DL465). Comme nous avons expliqué dans la section IV.3, l'avantage d'utiliser une telle solution pour simuler les propriétés optiques des tissus est que l'on peut connaître les paramètres de diffusion à partir de la théorie de Mie. De plus, on peut facilement ajuster ces paramètres en modifiant la concentration de la solution. Les microsphères dans notre solution ont un rayon  $a = 100$  nm. L'indice des microsphères de latex est 1,59 et l'indice de l'eau est 1,33. La section efficace de diffusion pour un faisceau incident à 780 nm, calculée par le logiciel décrit dans l'annexe B, est donc  $1,3 \times 10^{-11}$  cm<sup>2</sup>. La densité des microsphères dans la solution est de  $1,57 \times 10^{12}$  cm<sup>-3</sup> (la solution originale était diluée à 1/70), ce qui donne une longueur de diffusion  $l_s$  de 0,5 mm ( $\mu_s = 2$  mm<sup>-1</sup>). Cette solution est placée dans une cuve de 10 x 10 x 40 mm<sup>3</sup>. L'épaisseur de milieu traversée est de 10 mm; elle est donc équivalente à 20 libres parcours moyens de diffusion.

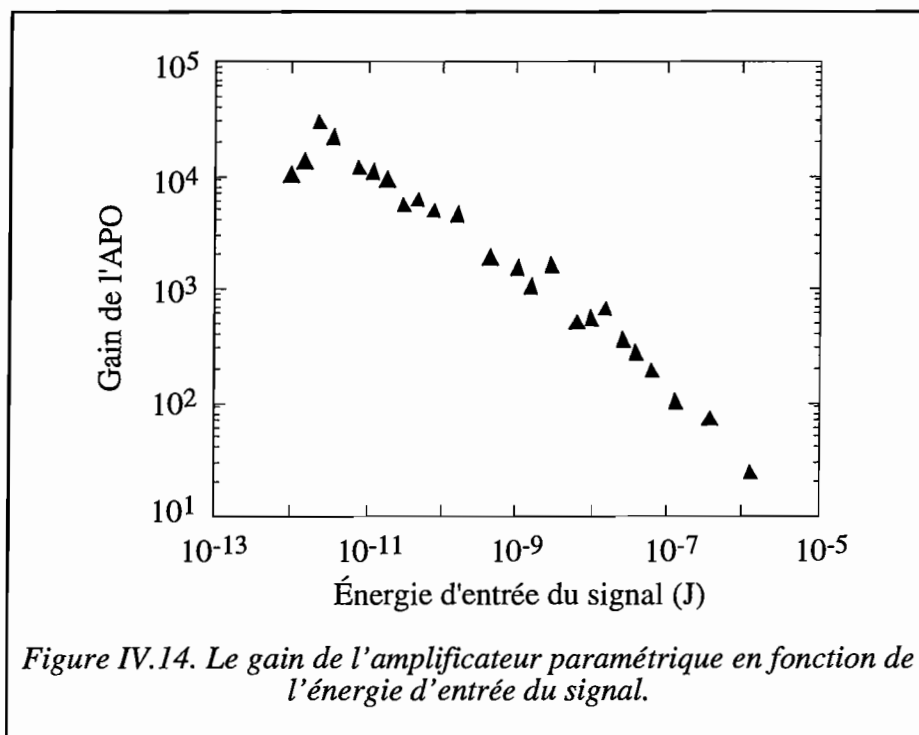
### IV.6.3. Résultats

Nous avons d'abord testé les limites du système d'APO à la dégénérescence en utilisant des filtres de densité neutre à la place du milieu diffusant. Puisque nous avons ouvert le diaphragme avant l'afocal, l'énergie des impulsions était de 1 mJ pour cette expérience. Nous avons pu détecter, avec un rapport signal à bruit de 1,3, un signal ayant traversé une densité optique de 9. En calibrant le détecteur, nous avons trouvé que ceci était équivalent à l'injection d'une impulsion de 1 pJ dans l'APO avec un gain résultant de plus de  $10^4$ . La figure IV.14 donne le gain de l'APO en fonction de l'énergie d'entrée du signal. On voit que le gain est petit pour de grands signaux mais devient rapidement important pour de petits signaux. Empiriquement, cette dépendance prend la forme :

$$Gain \propto \frac{1}{\sqrt{I_s}}, \quad (IV.12)$$

où  $I_s$  est l'intensité d'entrée du signal. On comprend cette dépendance en se rappelant que l'amplification paramétrique est un processus de mélange à trois ondes: il y a un transfert

d'énergie qui a lieu entre trois ondes, et non pas uniquement d'une onde vers une autre. Dans notre cas, cela veut dire qu'en même temps que la génération de différences de fréquence, où un photon à 390 nm se "coupe" en deux pour créer deux photons à 780 nm, on observe également la génération du second harmonique, où deux photons à 780 nm se combinent pour créer un photon à 390 nm. La dominance d'un processus sur l'autre dépend des intensités relatives des ondes. Ainsi, à fort signal, le gain de l'APO est limité par la génération du second harmonique à 780 nm. Cette génération du second harmonique étant très faible à faible signal, le gain de l'APO peut alors devenir très important.

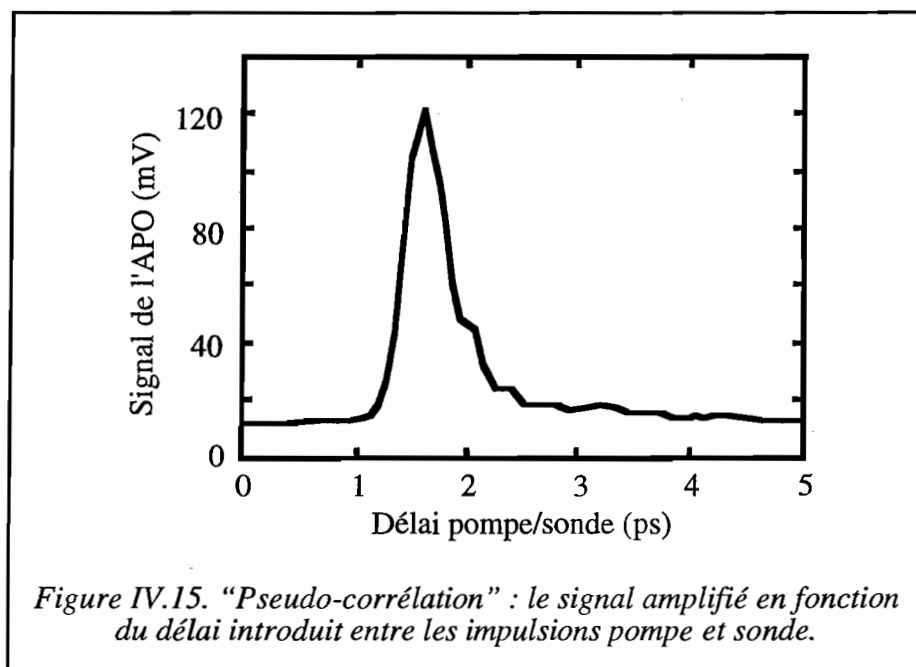


Le gain de l'APO était également limité par des effets de dispersion de vitesse de groupe et d'écart des vitesses de groupe. La dispersion de vitesse de groupe a comme conséquence l'allongement temporel des impulsions, ce qui diminue leur puissance crête et, par suite, l'efficacité de l'amplification paramétrique. Son influence néfaste a été minimisée en ajustant la séparation entre les réseaux du compresseur dans la chaîne laser (voir la section I.5.2.2). De cette manière, nous avons pu précompenser la dispersion de vitesse de groupe qui a lieu dans les cristaux de BBO.

L'écart des vitesses de groupe d'un signal à 780 nm et d'une pompe à 390 nm dans un cristal de BBO pour un accord de phase de type I est de l'ordre de 200 fs/mm (voir la figure III.29). Cet écart important a comme effet de séparer temporellement les impulsions, limitant le transfert d'énergie de la pompe au signal. La ligne à retard sur la voie pompe (voir la figure IV.13) aide à optimiser le recouvrement temporel des impulsions compte tenu de cet

écart. Nous précisons que cet écart important est un résultat direct du choix d'une pompe à 390 nm et d'un signal à 780 nm. D'autres choix de longueurs d'onde auraient pu mener à un écart beaucoup moins important. Ceci dit, le choix de la longueur d'onde de la pompe est idéal pour l'imagerie en milieu biologique puisqu'elle se trouve dans "la fenêtre thérapeutique".

Nous avons par la suite cherché à détecter un signal à travers la solution de latex décrite dans la section IV.6.2. Nous rappelons que cette solution est équivalente à 20 livres parcours moyens de diffusion pour un signal à 780 nm et représente les limites actuelles de détection de notre APO. Nous avons mesuré le signal en fonction du délai introduit entre les impulsions pompe et sonde. Cette "pseudo-corrélation" se trouve sur la figure IV.15. Il est important de noter qu'elle ne ressemble pas au signal prévu, qui comporte des photons directs suivi d'une grande bosse de photons quasi-directs et diffus (voir la figure IV.2). En fait, elle a une largeur à mi-hauteur de seulement 450 fs. On conclut alors que les photons détectés étaient en très grande partie des photons directs. Les photons diffusés qui devaient être toujours plus nombreux que les photons directs amplifiés (voir la section IV.6.1) ont été éliminés en grande partie par un filtrage spatial passif: le chemin optique important entre le milieu diffusant et l'APO fait en sorte que tout rayon qui sort du milieu sous un angle même légèrement hors de l'axe n'arrive ensuite pas dans le cristal et est perdu pour le système de détection.



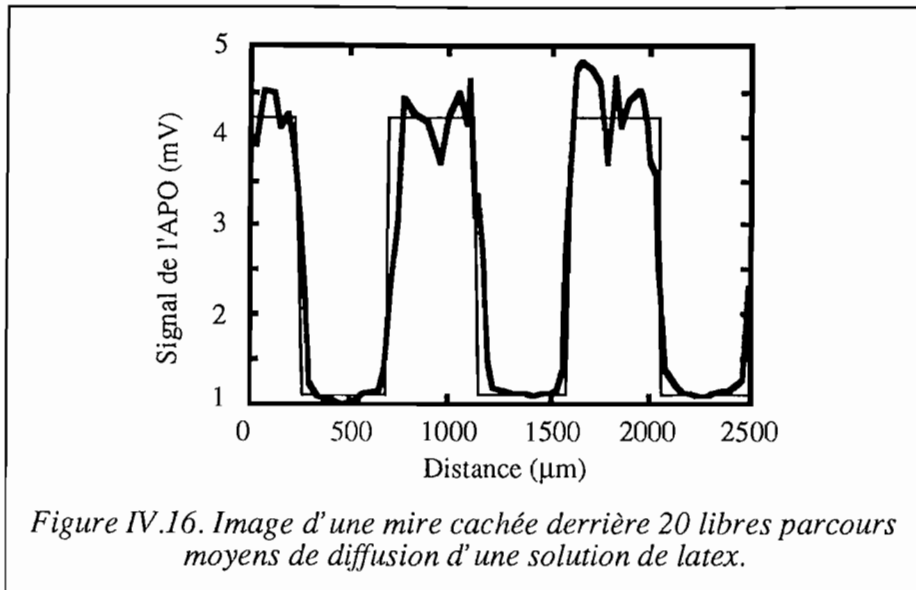


Le fait que l'APO ne détecte que les photons directs explique le fait qu'on soit limité à 20 libres parcours moyens de solution de latex. Considérons une impulsion incidente dans le milieu diffusant avec une énergie de 100  $\mu\text{J}$ . Sa partie non-diffusée subit une atténuation équivalente à une densité optique de 8,7; elle a donc une énergie de sortie de l'ordre de 0,2 pJ. On remarque que ces limites de l'APO pour la détection de photons directs à travers la solution de latex correspondent bien aux limites déterminées en utilisant les densités optiques.

Le fait que notre APO ne détecte pas les photons fortement diffusés par la solution de latex est un grand avantage puisque ces photons ne contribuent pas au bruit de détection du système. En fait, le bruit est presque entièrement dû à la fluorescence paramétrique qui est produite dans le cristal de BBO même sans signal incident. Le bruit des photons fortement diffusés a été largement éliminé par le filtrage spatial passif du long chemin optique entre le milieu diffusant et l'APO.

Malheureusement, la sélectivité angulaire de notre APO semble être si importante que même les photons quasi-directs, qui devraient pourtant pouvoir arriver dans le cristal, ne sont pas amplifiés. Cette sélectivité d'amplification se comprend en considérant la sélectivité angulaire de l'APO: la probabilité est petite pour qu'un rayon diffusé puisse arriver dans le cristal de BBO avec exactement le bon angle pour obtenir l'accord de phase colinéaire. Même si la détection de photons purement directs est idéale pour avoir une bonne résolution spatiale, elle n'est pas très utile pour l'imagerie des milieux biologiques. En fait, 20 libres parcours moyens de diffusion correspond à seulement 2 mm de tissu au maximum. On est donc obligé de chercher à détecter les photons quasi-directs en sacrifiant la résolution spatiale. Pour ceci, il sera alors nécessaire de réduire la sélectivité angulaire de notre APO.

Nous avons construit point-par-point une image uni-dimensionnelle d'une mire cachée derrière la solution de latex. Cette image se trouve sur la figure IV.16. On voit que la mire a été détectée avec un rapport signal à bruit de 4 et une résolution spatiale de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Puisque la détection était limitée aux seuls photons directs qui ont une trajectoire directe, cette résolution spatiale devrait être déterminée uniquement par les dimensions du faisceau sonde sur la mire, qui est de l'ordre de 80  $\mu\text{m}$ , comme précédemment contrôlé.



## IV.7. Conclusions et perspectives

Nous avons démontré qu'un APO fonctionnant à la dégénérescence peut se comporter comme une porte optique ultrarapide amplificatrice. Une telle porte peut servir à extraire un faible signal noyé dans un bruit et peut être utilisée pour faire de l'imagerie en milieu diffusant. Actuellement, nous avons su faire une image à travers 20 livres parcours moyens de milieu diffusant, l'équivalent de quelques millimètres de tissu biologique, avec une résolution spatiale de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ .

Nous avons vu que seuls les photons directs ont été détectés, ce qui explique le fait que la technique soit limitée en ce moment à seulement 20 livres parcours moyens de diffusion. En fait, on peut s'attendre à ce que seulement 1 photon sur 500 millions incidents sur un milieu diffusant reste direct après un tel parcours. En même temps, il faut se rappeler qu'une distance de 20 livres parcours moyens de diffusion correspond à moins de deux millimètres de tissu mou pour un signal de longueur d'onde située dans la fenêtre thérapeutique.

Pour améliorer cette méthode, il y a deux paramètres à optimiser. D'une part, il faudra chercher à détecter les photons qui ont été légèrement diffusés en traversant le milieu, ceux que l'on appelle les photons quasi-directs. D'autre part, il faudra essayer de minimiser le bruit de fluorescence paramétrique qui gêne la détection.

Pour atteindre le premier objectif, il faudra diminuer la sélectivité angulaire du système. Quelques possibilités pourraient être: diminuer le chemin optique entre le milieu diffusant et l'APO; améliorer la collimation des rayons à l'entrée de l'APO; et remplacer le BBO dans l'APO par un cristal non linéaire présentant une plus grande acceptance angulaire. Néanmoins, il ne faut pas trop augmenter l'acceptance angulaire du système pour ne pas être gêné par les photons fortement diffusés qui sont en très grand nombre et peuvent noyer le signal. Nous avons fait un essai avec un objectif de microscope à la sortie du milieu diffusant au lieu de la deuxième lentille de l'afocal, l'idée étant justement d'augmenter l'acceptance angulaire. Malheureusement, l'objectif de microscope recueillait tous les rayons, directs, quasi-direcets et fortement diffusés. Même sans être amplifié dans l'APO, le signal correspondant aux rayons fortement diffusés était tellement important qu'il noyait le signal intéressant des rayons directs et quasi-direcets. Le filtrage passif du long chemin optique que l'on a trouvé avantageux auparavant ne fonctionnait donc plus. Il y a donc un compromis à trouver pour augmenter le signal sans trop augmenter le bruit.

Pour atteindre le deuxième objectif qui vise à diminuer le bruit de fluorescence paramétrique, on pourrait faire un filtrage spectral plus étroit après l'APO. Un tel filtrage éliminerait toute la fluorescence paramétrique sauf la partie engendrée exactement sur l'axe et donc répondant à l'accord de phase colinéaire. L'importance d'un tel filtrage est accentuée par le fait qu'actuellement la fluorescence paramétrique représente la limitation fondamentale à la détection. Nous pouvons néanmoins noter que le montage actuel utilisant un prisme et une distance importante entre le cristal et le détecteur introduit l'équivalent d'un filtrage spectral.

Lorsque l'on réussira à détecter les photons quasi-direcets avec l'APO, il sera nécessaire de prendre soin au placement de la mire par rapport au milieu diffusant. Dans nos expériences, nous l'avons placée derrière la cuve de solution de latex par simple facilité. Ceci n'est pas conforme à une situation réaliste pour la construction d'une image avec les rayons quasi-direcets. En fait, pour ce cas, les diffusions qu'ont subies les rayons gênent peu la détection de la mire puisqu'elles se sont produites avant d'avoir traversé la mire. Même des rayons fortement diffusés pourraient servir à faire un genre d'ombre de la mire. Il faudra donc placer la mire dans la cuve, à peu près à mi-chemin. Ceci dit, la disposition de la mire avant ou après ou dans la cuve ne change en rien la détection des rayons directs, ce qui est le cas des expériences que nous avons faites.

À l'avenir, l'automatisation et l'informatisation du système seront désirables afin de permettre la construction d'une image en deux dimensions. Actuellement, cette construction doit se faire manuellement point-par-point, ce qui n'est pas pratique. Ceci dit, il est théoriquement possible de faire une image à deux dimensions sans échantillonnage point-par-

point. Pour ce faire, il faudrait éclairer tout le milieu diffusant et en faire l'image dans un cristal non linéaire de taille suffisante. Ensuite, il serait nécessaire de faire l'image du cristal non linéaire sur une caméra CCD. Un tel système serait actuellement difficile à mettre en oeuvre, compte tenu de l'état de l'art de la méthode, mais présente une étape importante à franchir afin de faire de cette technique un système d'imagerie en milieu biologique intéressant.

L'étape ultime suivant l'imagerie en deux dimensions est celle de l'imagerie en trois dimensions, autrement dit la détection de la profondeur d'un objet dans un milieu diffusant. La façon la plus simple à concevoir pour ce faire serait de faire deux balayages de l'objet avec le faisceau incident légèrement incliné au deuxième balayage. L'informatisation du cumul de données permettrait ensuite de corréliser les résultats des deux balayages et en tirer la profondeur des objets présents dans le milieu diffusant. Une deuxième façon, mais beaucoup plus difficile à réaliser, serait la détection en réflexion au lieu d'en transmission. Un objet plus réfléchissant que le milieu diffusant qui l'entoure pourrait être détecté et sa profondeur serait déterminée par le temps de vol des photons dans le milieu diffusant. Les deux grands désavantages de la détection en réflexion sont la faible probabilité qu'un rayon soit réfléchi parfaitement sur l'axe et la nécessité que les rayons traversent deux fois le milieu diffusant. Par contre, la diffusion vers l'arrière est plus faible d'où moins de bruit.

Actuellement, la méthode de l'amplification paramétrique pour faire de l'imagerie en milieu diffusant n'a pas atteint les performances des autres méthodes (voir le tableau IV.2). Tout de même, l'idée est nouvelle et il reste encore beaucoup de travail à faire afin de la pousser à ses limites. C'est une méthode qui présente de forts avantages : il y a une importante amplification intrinsèque du signal; la résolution temporelle est seulement limitée par la durée de l'impulsion de pompe; et il y a une bonne sélection angulaire qui élimine les photons fortement diffusés du système de détection.

# Conclusion



L'essentiel du travail présenté dans ce mémoire a été consacré à l'étude de l'amplification paramétrique en régime femtoseconde et à son application au développement de sources femtosecondes accordables dans le visible. Nous avons également débuté des travaux sur l'utilisation d'effets paramétriques pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant.

Pour ce faire, nous avons construit une chaîne laser femtoseconde utilisant comme milieu à gain un cristal de saphir dopé au titane. Les modes de l'oscillateur ont été verrouillés en phase par la méthode passive de blocage de modes par la lentille de Kerr. Nous avons produit des impulsions de 1 nJ et de durée inférieure à 100 fs autour de 780 nm. Un système d'amplification d'impulsions à dérive de fréquence a permis par la suite d'amplifier ces impulsions ultrabrèves à des énergies de plus de 1 mJ à un taux de répétition de 20 Hz. Les puissances crêtes importantes, de plus de 10 GW, nous ont permis d'envisager des études sur l'amplification paramétrique en régime femtoseconde et vont permettre à d'autres chercheurs du laboratoire d'utiliser cette source pour mener à bien leurs expériences en optique non linéaire femtoseconde.

Dans le cadre des études de sources cohérentes femtosecondes largement accordables, nous nous sommes arrêtés un moment sur la génération d'un continuum de lumière blanche. Nous nous sommes concentrés, en particulier, sur l'émission conique qui l'accompagne. Cette émission conique se manifeste comme "un arc-en-ciel circulaire" où les hautes fréquences entourent les basses fréquences. Nous avons analysé nos observations dans le contexte de théories présentées par d'autres chercheurs s'appuyant sur l'effet Raman, le mélange à quatre ondes ou l'effet Cerenkov. Aucune théorie n'a permis de décrire complètement l'émission conique observée.

Nous avons ensuite cherché à réaliser une source cohérente femtoseconde largement accordable en longueur d'onde sans utiliser le continuum spectral. Nous avons donc réalisé un amplificateur paramétrique optique (APO) à deux étages basé sur le cristal non linéaire de BBO délivrant des impulsions subpicosecondes de plus de 4  $\mu$ J et accordables de 470 nm à 700 nm. Nous avons vu que des impulsions plus énergétiques pourraient être produites au détriment de leur durée. Nous avons constaté que les problèmes de dispersion de vitesse de groupe et d'écart des vitesses de groupe deviennent extrêmement critiques en régime femtoseconde. La dispersion de vitesse de groupe est responsable d'un étirement temporel des impulsions mais a pu être, en partie, précompensée en ajoutant une dispersion négative aux impulsions émises par la chaîne laser. L'écart des vitesses de groupe limite le gain que peut fournir la pompe en traversant un cristal non linéaire en décalant la pompe par rapport au signal. Il est donc préférable d'utiliser plusieurs cristaux courts séparés de lignes à retard pour

compenser cet écart des vitesses de groupe. Notre APO à deux étages, dont le premier étage comprend deux passages, répond à ce besoin. Nous avons par la suite comparé les performances de cet APO à deux étages à celles d'un montage d'amplification paramétrique d'un continuum de lumière blanche. Cette deuxième source nous a permis de réaliser plus facilement des impulsions plus courtes (de l'ordre de 200 fs) mais avec des énergies plus faibles (environ 1  $\mu$ J). La stabilité de ces impulsions est également moins bonne et leurs profils spatiaux sont moins beaux.

Enfin, nous avons construit un APO basé sur le cristal non linéaire de BBO et utilisé à la dégénérescence dans le but de son application à l'imagerie en milieu diffusant. Nous avons profité de ses propriétés de porte ultrarapide amplificatrice afin de sélectionner et amplifier préférentiellement un signal noyé dans un bruit de fond. Cet APO nous a permis de réaliser une amplification à faible signal supérieure à  $10^4$ . Nous avons réalisé de premiers essais de détection d'objets dans un milieu diffusant et avons réussi à construire l'image d'une mire dans 20 lignes parcoures moyens d'une solution aqueuse de microsphères de latex avec une résolution de l'ordre de 100  $\mu$ m. L'utilisation d'un APO à la dégénérescence est donc une méthode prometteuse pour faire de l'imagerie en milieu diffusant. Il reste tout de même un certain nombre d'étapes à franchir avant de pouvoir l'utiliser comme méthode sensible et fiable d'imagerie médicale. Parmi ces étapes nous pourrions citer la détection d'objets à travers des épaisseurs importantes de tissu et la détection de la profondeur de l'objet, autrement dit la localisation exacte de l'objet dans le milieu diffusant.



# **Annexe A**

## **L'effet Kerr optique**



On a vu dans la section 3.3.2 qu'il existe une polarisation du troisième ordre:

$$\tilde{P}_{(3)i}(t) = \sum_{mnp} \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} \tilde{E}_j(\omega_m, t) \tilde{E}_k(\omega_n, t) \tilde{E}_l(\omega_p, t).$$

De façon générale,  $\chi^{(3)}$  est beaucoup plus petit que  $\chi^{(2)}$ . Donc, les processus du deuxième ordre vont dominer ceux du troisième ordre et on n'observera ces derniers que si les champs incidents ont des intensités très élevées.

Il existe par contre un cas important où  $\chi^{(2)}$  doit être nul et les processus non-linéaires du troisième ordre vont apparaître, celui où le milieu est centrosymétrique (voir sec 4.4.2). On appelle un tel milieu où les processus du troisième ordre sont importants un *milieu de Kerr*.

De façon semblable au mélange à trois ondes, il existe des processus du troisième ordre tels que le triplage de fréquence et la génération de sommes et de différences de fréquences des trois ondes incidentes (différentes ou dégénérées). Le processus du troisième ordre qui nous intéresse plus particulièrement est celui de l'effet Kerr optique parce qu'il est responsable de l'automodulation de phase et de l'autofocalisation. C'est un processus dégénéré où l'on produit la différence de fréquence de deux des ondes et où l'on fait la somme avec la troisième, donc

$$\begin{aligned} \omega_{Kerr} &= \omega - \omega + \omega \\ &= \omega. \end{aligned}$$

L'onde produite a la même fréquence que l'onde incidente. La polarisation du troisième ordre s'écrit alors, pour un milieu isotrope,

$$\tilde{P}_3(\omega, t) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)} |\tilde{E}(\omega, t)|^2 \tilde{E}(\omega, t)$$

et la polarisation totale

$$\tilde{P}(\omega, t) = \epsilon_0 \left( \chi^{(1)} + 6\chi^{(3)} |\tilde{E}(\omega, t)|^2 \right) \tilde{E}(\omega, t).$$

L'effet Kerr se manifeste alors comme un changement incrémental de la susceptibilité linéaire:

$$\begin{aligned}\Delta\chi^{(1)} &= 6\chi^{(3)}|\vec{E}|^2 \\ &= 12\eta\chi^{(3)}I,\end{aligned}$$

où  $I = |\vec{E}|^2 / 2\eta$  est l'intensité du laser et  $\eta = \sqrt{\mu_0 / \epsilon_0 n^2}$  est l'impédance du milieu. Puisque  $n^2 = 1 + \chi$ , le changement correspondant dans l'indice de réfraction  $n$  est  $\Delta n = \Delta\chi / 2n$ . Donc,

$$\begin{aligned}\Delta n &= \frac{6\eta}{n}\chi^{(3)}I \\ &= n_2 I,\end{aligned}$$

où  $n_2 = \frac{6\eta}{n}\chi^{(3)}$  est l'indice de réfraction non-linéaire du milieu. On retrouve ainsi la formule connue de l'effet Kerr optique où l'indice de réfraction du milieu est une fonction de l'intensité de la lumière:

$$n(I) = n + n_2 I.$$

# **Annexe B**

## **La théorie de Mie**



Pour le développement de cette théorie, on peut se référer à *Principles of Optics* de Born et Wolf. Dans la suite, on ne présente que les équations qui mènent au calcul de la section efficace de diffusion de microsphères de latex en solution.

L'équation de la section efficace de diffusion  $\sigma_s$  est une somme infinie qui converge rapidement et peut donc être tronquée après quelques termes. Notre logiciel fait une itération de 1 à 10. Ainsi,

$$\begin{aligned}\sigma_s &= \frac{\lambda_l^2}{2\pi} \Re \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} l(l+1) [{}^e B_l + {}^m B_l] \\ &\cong \frac{\lambda_l^2}{2\pi} \Re \sum_{l=1}^{10} (-i)^{l+1} l(l+1) [{}^e B_l + {}^m B_l],\end{aligned}$$

où  $\lambda_l = \lambda_0/n_{eau}$  est la longueur d'onde dans la solution aqueuse avec  $n_{eau}$  l'indice de réfraction de l'eau;  $\Re$  désigne la partie réelle; et  ${}^e B_l$  et  ${}^m B_l$  sont des coefficients définis par:

$$\begin{aligned}{}^e B_l &= i^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \frac{\hat{n} \psi_l'(q) \psi_l(\hat{n}q) - \psi_l(q) \psi_l'(\hat{n}q)}{\hat{n} \zeta_l^{(1)}(q) \psi_l(\hat{n}q) - \zeta_l^{(1)}(q) \psi_l(\hat{n}q)}, \\ {}^m B_l &= i^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \frac{\hat{n} \psi_l(q) \psi_l'(\hat{n}q) - \psi_l'(q) \psi_l(\hat{n}q)}{\hat{n} \zeta_l^{(1)}(q) \psi_l(\hat{n}q) - \zeta_l^{(1)}(q) \psi_l'(\hat{n}q)}.\end{aligned}$$

On définit deux quantités sans dimension:  $\hat{n} = n_{latex}/n_{eau}$  le rapport de l'indice de réfraction du latex et l'indice de réfraction de l'eau, et  $q = 2\pi a/\lambda_l$  où  $a$  est le rayon de la sphère. Le prime signifie la dérivée. Les fonctions  $\psi_l$  et  $\zeta_l^{(1)}$  sont définies:

$$\psi_l(x) = \sqrt{\frac{\pi x}{2}} J_{l+\frac{1}{2}}(x)$$

et :

$$\begin{aligned}\zeta_l^{(1)}(x) &= \sqrt{\frac{\pi x}{2}} H_{l+\frac{1}{2}}^{(1)}(x) \\ &= \psi_l(x) - i \chi_l(x),\end{aligned}$$

où :

$$\chi_l(x) = -\sqrt{\frac{\pi x}{2}} N_{l+\frac{1}{2}}(x)$$

et  $J_{l+\frac{1}{2}}(x)$ ,  $N_{l+\frac{1}{2}}(x)$  et  $H_{l+\frac{1}{2}}^{(1)}(x)$  sont des fonctions *Bessel*, *Neumann* et *Hankel* d'ordre  $l$  respectivement.





# Références



## CHAPITRE I

1. P. Georges, P. Thomas, J. Watson, G. Roger et A. Brun, *Paquets d'électrons produits dans un canon HF à photoémission déclenché par un laser à impulsion courte*, Congrès de la Société Française de Physique, Toulouse, France, juillet 1993.
2. R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker et C. V. Shank, *Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation*, Opt. Lett. **12**, 483 (1987).
3. W. H. Lowdermilk, *Technology of bandwidth-limited ultrashort pulse generation*, in Laser Handbook vol. **3**, ed. M. L. Stitch, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, p364-366 (1979).
4. C. LeBlanc, *Principes et réalisation d'une source laser térawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>*, Thèse de doctorat en physique des lasers, École Polytechnique (1993).
5. B. E. A. Saleh et M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics*, John Wiley & Sons, Inc., New York (1991).
6. Documentation Coherent Inc., *The Antares Solid State Laser System*.
7. T. Lépine, *Étude et réalisation de lasers solides à modes couplés (YAG dopé néodyme et saphir dopé titane). Compression d'impulsions*, Thèse de doctorat en sciences physiques, Université de Paris-Sud (1991).
8. F. Salin, *Étude et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde. Rôle des phénomènes solitons dans les lasers femtosecondes à dispersion contrôlée*, Thèse de doctorat en sciences, Université de Paris-Sud (1987).
9. J. D. Simon, *Ultrashort light pulses*, Rev. Sci. Instrum. **60**, 3597 (1989).
10. R. L. Fork, B. I. Greene et C. V. Shank, *Generation of optical pulses shorter than 0.1 ps by colliding pulse mode locking*, Appl. Phys. Lett. **38**, 671 (1981).
11. H. H. Haus, J. G. Fujimoto et E. P. Ippen, *Analytic Theory of Additive Pulse and Kerr Lens Mode Locking*, IEEE J. Quant. Electr. **28**, 2086 (1992).
12. J. Goodberlet, J. Wang, J. G. Fujimoto et P. A. Schulz, *Femtosecond passively mode-locked Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser with a nonlinear external cavity*, Opt. Lett. **14**, 1125 (1989).
13. D. E. Spence, P. N. Kean et W. Sibbett, *Sub-100fs Pulse Generation from a Self-Modelocked Titanium-Sapphire Laser*, Conference on Lasers and Electro-Optics "CLEO 1990", Anaheim, California, 21-25 mai 1990, papier CPDP10-1.

14. F. Salin, J. Squier, G. Mourou, M. Piché et N. McCarthy, *Mode-locking of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Lasers Using Self-Focusing*, dans OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers **10**, ed. G. Dubé et L. Chase, Hilton Head, SC, USA, 18-20 mars 1991, p. 125.
15. F. Salin, J. Squier et M. Piché, *Mode locking of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lasers and self-focusing: a Gaussian approximation*, Opt. Lett. **16**, 1674 (1991).
16. D. K. Negus, L. Spinelli, N. Goldblatt et G. Feugnet, *Sub-100 Femtosecond Pulse Generation by Kerr Lens Mode-locking in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, dans OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers **10**, ed. G. Dubé et L. Chase, Hilton Head, SC, USA, 18-20 mars 1991, p. 120.
17. J. Squier, F. Salin, G. Mourou et D. Harter, *Generation and Amplification of High-Peak-Power Femtosecond Pulses in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Alexandrite and Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nd:Glass Systems*, dans OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers **10**, ed. G. Dubé et L. Chase, Hilton Head, SC, USA, 18-20 mars 1991, p. 96.
18. J. P. Likforman, G. Grillon, M. Joffre, C. Le Blanc, A. Migus et A. Antonetti, *Generation of 27-fs Pulses of 70-kW Peak Power at 80-MHz Repetition Rate Using a cw Self-Locked Ti:Sapphire Laser*, dans OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers **10**, ed. G. Dubé et L. Chase, Hilton Head, SC, USA, 18-20 mars 1991, p. 100.
19. J. Comly, E. Garmire, J. P. Laussade et A. Yariv, *Observation of mode locking and ultrashort optical pulses induced by anisotropic molecular liquids*, Appl. Phys. Lett. **13**, 176 (1968).
20. J. C. Comly, A. Yariv et E. M. Garmire, *Stable, chirped, ultrashort pulses in lasers using the optical Kerr effect*, Appl. Phys. Lett. **15**, 148 (1969).
21. M. Piché, *Beam reshaping and self-mode-locking in nonlinear laser resonators*, Opt. Commun. **86**, 156 (1991).
22. O. E. Martinez et J. L. A. Chilla, *Self-mode-locking of Ti:sapphire lasers: a matrix formalism*, Opt. Lett. **17**, 1210 (1992).
23. A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, New York (1986).
24. Y. M. Liu, K. W. Sun, P. R. Prucnal et S. A. Lyon, *Simple method to start and maintain self-mode-locking of a Ti:sapphire laser*, Opt. Lett. **17**, 1219 (1992).
25. J. Janszky, G. Corradi et R. N. Gyuzalian, *On a possibility of analysing the temporal characteristics of short light pulses*, Opt. Commun. **23**, 293 (1977).
26. A. Kalpaxis, A. G. Doukas, Y. Budansky, D. L. Rosen, A. Katz et R. R. Alfano, *Description of an electronic controller used with an autocorrelator to measure a femtosecond pulse duration in real time*, Rev. Sci. Instrum. **53**, 960 (1982).
27. R. N. Gyuzalian, S. B. Sogomonian et Z. Gy. Horvath, *Background-free measurement of time behaviour of an individual picosecond laser pulse*, Opt. Commun. **29**, 239 (1979).
28. F. Salin, P. Georges, G. Roger et A. Brun, *Single-shot measurement of a 52-fs pulse*, Appl. Opt. **26**, 4528 (1987).

29. P. F. Moulton, *Spectroscopic and laser characteristics of  $Ti^{3+}:Al_2O_3$* , J. Opt. Soc. Am. B **3**, 125 (1986).
30. C. E. Byvik et A. M. Buoncristiani, *Analysis of Vibronic Transitions in Titanium Doped Sapphire Using the Temperature of the Fluorescence Spectra*, IEEE J. Quant. Electron. QE-21, 1619 (1985).
31. A. Migus, C. V. Shank, E. P. Ippen et R. L. Fork, *Amplification of subpicosecond optical pulses: theory and experiment*, IEEE J. Quant. Electron. **18**, 101 (1982).
32. M. Piché, J.-F. Cormier et F. Salin, *Temporal reshaping in mode-locked solid-state lasers*, dans Proc. SPIE on Mode-locked and Solid State Lasers, Amplifiers, and Applications **2041**, Québec, Canada, 17-19 août 1993, p. 29.
33. J.-F. Cormier, M. Piché, F. Salin, P. Georges et J. Watson, *Power limiting and temporal break-up in self-mode-locked lasers*, Conference on Lasers and Electro-Optics "CLEO Europe 1994", Amsterdam, Pays Bas, août 1994, papier CTuK13.
34. J.-F. Cormier, M. Piché et F. Salin, *Correction of beam break up in self-mode-locked Ti:sapphire lasers*, dans Proc. SPIE on Mode-locked and Solid State Lasers, Amplifiers, and Applications **2041**, Québec, Canada, 17-19 août 1993, p. 17.
35. J.-F. Cormier, M. Piché et F. Salin, *Suppression of beam breakup in self-mode-locked Ti:sapphire lasers*, Opt. Lett. **19**, 1225 (1994).
36. J. Squier, G. Korn, G. Mourou, G. Vaillancourt et M. Bouvier, *Amplification of femtosecond pulses at 10-kHz repetition rates in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, Opt. Lett. **18**, 625 (1993).
37. W. H. Knox, *Femtosecond Optical Pulse Amplification*, IEEE J. Quant. Electron. **24**, 388 (1988).
38. J. Squier et G. Mourou, *Tunable solid-state lasers create ultrashort pulses*, Laser Focus World p.51 (June 1992).
39. E. Brookner, *Phased-Array Radars*, Sci. Am. **252**, 94 (1985).
40. D. Strickland et G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Opt. Commun. **56**, 219 (1985).
41. P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot et G. Mourou, *Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification*, IEEE J. Quant. Electron. **24**, 398 (1988).
42. J. V. Rudd, G. Korn, S. Kane, J. Squier, G. Mourou et P. Bado, *Chirped-pulse amplification of 55-fs pulses at a 1-kHz repetition rate in a Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> regenerative amplifier*, Opt. Lett. **18**, 2044 (1993).
43. C. Le Blanc, G. Grillon, J. P. Chambaret, A. Migus et A. Antonetti, *Compact and efficient multipass Ti:sapphire system for femtosecond chirped-pulse amplification at the terawatt level*, Opt. Lett. **18**, 140 (1993).
44. T. B. Norris, *Femtosecond pulse amplification at 250 kHz with a Ti:sapphire regenerative amplifier and application to continuum generation*, Opt. Lett. **17**, 1009 (1992).

45. M. Pessot, J. Squier, G. Mourou et D. J. Harter, *Chirped-pulse amplification of 100-fsec pulses*, Opt. Lett. **14**, 797 (1989).
46. J. Squier, F. Salin, G. Mourou et D. Harter, *100-fs pulse generation and amplification in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, Opt. Lett. **16**, 324 (1991).
47. F. Salin, J. Squier et G. Mourou, *Large temporal stretching of ultrashort pulses*, Appl. Opt. **31**, 1225 (1992).
48. O. E. Martinez, *3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region*, IEEE J. Quant. Electron. **QE-23**, 59 (1987).
49. F. Estable, *Amplification régénérative et multipassage d'impulsions lumineuses dans des milieux solides (YAG dopé néodyme, alexandrite, saphir dopé titane)*, Thèse de doctorat en sciences physiques, Université de Paris-Sud (1992).
50. F. Salin et J. Squier, *Gain guiding in solid-state lasers*, Opt. Lett. **17**, 1352 (1992).
51. F. Estable, E. Mottay et F. Salin, *High-energy gain-guided Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> oscillator*, Opt. Lett. **18**, 711 (1993).

## CHAPITRE II

1. R. R. Alfano et S. L. Shapiro, *Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass*, Phys. Rev. Lett. **24**, 584 (1970).
2. R. R. Alfano et S. L. Shapiro, *Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses*, Phys. Rev. Lett. **24**, 592 (1970).
3. A. Penzkofer et W. Kaiser, *Generation of picosecond light continua by parametric four-photon interactions in liquids and solids*, Opt. Quant. Electron. **9**, 315 (1977).
4. W. Lee Smith, P. Liu et N. Bloembergen, *Superbroadening in H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O by self-focused picosecond pulses from a YAlG:Nd laser*, Phys. Rev. A **15**, 2396 (1977).
5. P. B. Corkum, C. Rolland et T. Srinivasan-Rao, *Supercontinuum Generation in Gases*, Phys. Rev. Lett. **57**, 2268 (1986).
6. P. B. Corkum et C. Rolland, *Femtosecond Continua Produced in Gases*, IEEE J. Quantum Electron. **25**, 2634 (1989).
7. V. François, F. A. Ilkov et S. L. Chin, *Supercontinuum generation in CO<sub>2</sub> gas accompanied by optical breakdown*, J. Phys.: At. Mol. Opt. Phys. **25**, 2709 (1992).
8. V. François, F. A. Ilkov et S. L. Chin, *Experimental study of the supercontinuum spectral width evolution in CO<sub>2</sub> gas*, Opt. Commun. **99**, 241 (1993).
9. R. L. Fork, C. V. Shank, C. Hirlimann, R. Yen et W. J. Tomlinson, *Femtosecond white-light continuum pulses*, Opt. Lett. **8**, 1 (1983).

10. J. T. Manassah et M. A. Mustafa, *Interference pattern of the supercontinuum generated by self-phase modulation*, Opt. Lett. **13**, 752 (1988).
11. Q. Xing, K. M. Yoo et R. R. Alfano, *Conical emission by four-photon parametric generation by using femtosecond laser pulses*, Appl. Opt. **32**, 2087 (1993).
12. I. Golub, *Optical characteristics of supercontinuum generation*, Opt. Lett. **15**, 305 (1990).
13. D. Strickland et P. B. Corkum, *Short pulse self-focusing*, dans Proc. SPIE **1413** "Short-Pulse High-Intensity Lasers and Applications", 54 (1991).
14. I. Golub, R. Shuker et G. Erez, *On the optical characteristics of the conical emission*, Opt. Commun. **57**, 143 (1986).
15. F. Salin, J. Watson, J.-F. Cormier, P. Georges et A. Brun, *Physical origins of the spectral continuum: self-focusing, self-trapping and Cerenkov radiation*, Ultrafast Phenomena VIII (Springer-Verlag, eds. J.-L. Martin, A. Migus, G. A. Mourou, A. H. Zewail, Paris), p.306 (1993).
16. J. Watson, F. Salin, P. Georges et A. Brun, *Conical emission accompanying spectral continuum generation: a Cerenkov-based effect*, dans Proc. SPIE Optics Québec '93, Québec, Canada, p120-126 (août 1993).
17. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, New York, p. 312 (1984).
18. J. H. Marburger et E. Dawes, *Dynamical formation of a small-scale filament*, Phys. Rev. Lett. **21**, 556 (1968).
19. K. Shimoda, *Angular Distribution of Stimulated Raman Radiation*, Japan. J. Appl. Phys. **5**, 86 (1966).
20. C. H. Skinner et P. D. Kleiber, *Observation of anomalous conical emission from laser-excited barium vapor*, Phys. Rev. A **21**, 151 (1980).
21. I. Golub, G. Erez et R. Shuker, *Cherenkov emission due to laser-induced moving polarisation in sodium*, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **19**, L115 (1986).
22. D. Blanc, *Détecteurs de particules (compteurs et scintillateurs): mécanisme et réalisation*, Masson et Cie., Paris, p.170 (1959).
23. G. A. Askar'yan, *Cerenkov radiation and transition radiation from electromagnetic waves*, J. Exptl. Theoret. Phys. (U.S.S.R.) **15**, 943 (1962).
24. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, New York, p314-319 (1984).
25. M. M. T. Loy et Y. R. Shen, *Correlation between backward stimulated Raman pulse and moving focus in liquids*, Appl. Phys. Lett. **19**, 285 (1971).

### CHAPITRE III

1. D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, I. Ledoux, J. Badan, J. L. Oudar et J. Zyss, *Parametric amplification sampling spectroscopy of luminescence at the subpicosecond time scale in the 1-1.6  $\mu\text{m}$  spectral range*, Appl. Phys. Lett. **49**, 761 (1986).
2. I. Ledoux, J. Badan, J. Zyss, A. Migus, D. Hulin, J. Etchepare, G. Grillon et A. Antonetti, *Generation of high-peak-power tunable infrared femtosecond pulses in an organic crystal: application to time resolution of weak infrared signals*, J. Opt. Soc. B **4**, 987 (1987).
3. E. S. Wachman, W. S. Pelouch et C. L. Tang, *cw femtosecond pulses tunable in the near- and midinfrared*, J. Appl. Phys. **70**, 1893 (1991).
4. J. A. Moon, *Characterization and Modeling of a Femtosecond Optical Parametric Oscillator Suitable for Tunable Pump-Probe Spectroscopy*, IEEE J. Quant. Electr. **29**, 265 (1993).
5. T. M. Jedju et L. Rothberg, *Tunable femtosecond radiation in the mid-infrared for time-resolved absorption in semiconductors*, Appl. Opt. **27**, 615 (1988).
6. J. A. Giordmaine et R. C. Miller, *Tunable coherent parametric oscillation in  $\text{LiNbO}_3$  at optical frequencies*, Phys. Rev. Lett. **14**, 973 (1965).
7. J. A. Giordmaine et R. C. Miller, *Optical Parametric Oscillation in the Visible Spectrum*, Appl. Phys. Lett. **9**, 298 (1966).
8. Q. Fu, G. Mak et H. M. van Driel, *High-power, 62-fs infrared optical parametric oscillator synchronously pumped by a 76-MHz Ti: sapphire laser*, Opt. Lett. **17**, 1006 (1992).
9. R. J. Ellingson et C. L. Tang, *High-power, high-repetition-rate femtosecond pulses tunable in the visible*, Opt. Lett. **18**, 438 (1993).
10. R. H. Kingston, Proc. IRE **50**, 472 (1962).
11. N. M. Kroll, *Parametric Amplification in Spatially Extended Media and Application to the Design of Tunable Oscillators at Optical Frequencies*, Phys. Rev. **127**, 1207 (1962).
12. S. A. Akhmanov et R. V. Khokhlov, *Concerning one possibility of amplification of light waves*, Sov. Phys. JETP **16**, 252 (1963).
13. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P. S. Pershan, *Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric*, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
14. C. C. Wang et G. W. Racette, *Measurement of Parametric Gain Accompanying Optical Difference Frequency Generation*, Appl. Phys. Lett. **6**, 169 (1965).
15. H. M. van Driel et G. Mak, *Femtosecond pulses from the ultraviolet to the infrared: Optical parametric processes in a new light*, Can. J. Phys. **71**, 47 (1993).



16. A. Fendt, W. Kranitzky, A. Laubereau et W. Kaiser, *Efficient generation of tunable subpicosecond pulses in the infrared*, Opt. Commun. **28**, 142 (1979).
17. R. L. Fork, B. I. Greene et C. V. Shank, *Generation of optical pulses shorter than 0.1 ps by colliding pulse modelocking*, Appl. Phys. Lett. **38**, 671 (1981).
18. D. C. Edelstein, E. S. Wachman et C. L. Tang, *Broadly tunable high repetition rate femtosecond optical parametric oscillator*, Appl. Phys. Lett. **54**, 1728 (1989).
19. I. Ledoux, J. Zyss, A. Migus, J. Etchepare, G. Grillon et A. Antonetti, *Generation of high peak power subpicosecond pulses in the 1.0-1.6  $\mu\text{m}$  range by parametric amplification in an organic crystal*, Appl. Phys. Lett. **48**, 1564 (1986).
20. I. Ledoux, J. Zyss, A. Migus, D. Hulin et A. Antonetti, *Two-stage parametric amplification in N-(4-nitrophenyl)-L-prolinol crystals: Application to subpicosecond time resolution of parametric emission*, J. Appl. Phys. **64**, 3309 (1988).
21. W. Joosen, H. J. Bakker, L. D. Noordam, H. G. Muller et H. B. van Linden van den Heuvell, *Parametric generation in  $\beta$ -barium borate of intense femtosecond pulses near 800 nm*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 2087 (1991).
22. W. Joosen, P. Agostini, G. Petite, J. P. Chambaret et A. Antonetti, *Broadband femtosecond infrared parametric amplification in  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>*, Opt. Lett. **17**, 133 (1992).
23. R. Danielius, A. Piskarskas, D. Podenas, P. Di Trapani et A. Varanavicius, *High power, subpicosecond, 750-1770 nm tunable pulses from travelling wave parametric generator*, Opt. Commun. **87**, 23 (1992).
24. R. Danielius, A. Piskarskas, A. Stabinis, G. P. Banfi, P. Di Trapani et R. Righini, *Traveling-wave parametric generation of widely tunable, highly coherent femtosecond light pulses*, J. Opt. Soc. Am. B **10**, 2222 (1993).
25. G. P. Banfi, P. Di Trapani, R. Danielius, A. Piskarskas, R. Righini et I. Sa'nta, *Tunable femtosecond pulses close to the transform limit from traveling-wave parametric conversion*, Opt. Lett. **18**, 1547 (1993).
26. G. P. Banfi, R. Danielius, A. Piskarskas, P. Di Trapani, P. Foggi et R. Righini, *Femtosecond traveling-wave parametric generation with lithium triborate*, Opt. Lett. **18**, 1633 (1993).
27. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters et G. Weinreich, *Generation of Optical Harmonics*, Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
28. B. E. A. Saleh et M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1991, p.739.
29. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Inc., London, p.32-38 (1992).
30. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Inc., London, p.38-40 (1992).
31. J. F. Nye, *The Physical Properties of Crystals*, Clarendon Press, Oxford (1985).
32. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Inc., London, p.46-47 (1992).

33. D. A. Roberts, *Simplified Characterization of Uniaxial and Biaxial Nonlinear Optical Crystals: A Plea for Standardization of Nomenclature and Conventions*, IEEE J. Quant. Electron. **28**, 2057 (1992).
34. S. Lin, Z. Sun, B. Wu et C. Chen, *The nonlinear optical characteristics of a LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> crystal*, J. Appl. Phys. **67**, 634 (1990).
35. Z. Kotler, R. Hierle, D. Josse, J. Zyss et R. Masse, *Quadratic nonlinear-optical properties of a new transparent and highly efficient organic-inorganic crystal: 2-amino-5-nitropyridinium-dihydrogen phosphate (2A5NPDP)*, J. Opt. Soc. Am. B **9**, 534 (1992).
36. F. Hanson et D. Dick, *Blue parametric generation from temperature-tuned LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>*, Opt. Lett. **16**, 205 (1991).
37. V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan et D. N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, Springer Series in Optical Sciences **64**, A. E. Siegman, ed., Springer-Verlag, Paris, p.78 (1991).
38. Documentation sur le titanyl phosphate de potassium (KTP), Castech.
39. K. Kato, *Second-Harmonic and Sum-Frequency Generation to 4950 and 4589 Å in KTP*, IEEE J. Quant. Electron. **QE-24**, 3 (1988).
40. T. Y. Fan, C. E. Huang, B. Q. Hu, R. C. Eckardt, Y. X. Fan, R. L. Byer et R. S. Feigelson, *Second harmonic generation and accurate index of refraction measurements in flux-grown KTiOPO<sub>4</sub>*, Appl. Opt. **26**, 2390 (1987).
41. A. Yariv et P. Yeh, *Optical Waves in Crystals: Propagation and Control of Laser Radiation*, John Wiley & Sons, New York, p. 82 (1984).
42. V. G. Dmitriev et D. N. Nikogosyan, *Effective nonlinearity coefficients for three-wave interactions in biaxial crystals of mm<sub>2</sub> point group symmetry*, Opt. Commun. **95**, 173 (1993).
43. I. Biaggio, P. Kerkoc, L.-S. Wu, P. Günter et B. Zysset, *Refractive indices of orthorhombic KNbO<sub>3</sub>. II. Phase-matching configurations for nonlinear-optical interactions*, J. Opt. Soc. Am. B **9**, 507 (1992).
44. J. D. Bierlein et H. Vanherzeele, *Potassium titanyl phosphate: properties and new applications*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 622 (1989).
45. Documentation sur le KTP, CSK Co., Ltd., 5753 Uplander Way, Culver City, Ca. 90230, USA.
46. Documentaion BBO Castech.
47. J. P. Fève, B. Boulanger et G. Marnier, *Calculation and classification of the direction loci for collinear types I, II and III phase-matching of three-wave nonlinear optical parametric interactions in uniaxial and biaxial acentric crystals*, Opt. Commun. **99**, 284 (1993).
48. A. Yariv et P. Yeh, *Optical Waves in Crystals: Propagation and Control of Laser Radiation*, John Wiley & Sons, New York, p.74 (1984).

49. A. Yariv et P. Yeh, *Optical Waves in Crystals: Propagation and Control of Laser Radiation*, John Wiley & Sons, New York, p.77 (1984).
50. J. T. Lin, *Non-linear crystals for tunable coherent sources*, *Opt. & Quant. Electr.* **22**, S283 (1990).
51. J. T. Lin, *Analysis of Frequency Conversion and Applications of New Nonlinear Crystals*, Proc. Int. Conf. on Lasers, STS Press, VA (1986).
52. H. Y. Shen, Y. P. Zhou, W. X. Lin, Z. D. Zeng, R. R. Zeng, G. F. Yu, C. H. Huang, A. D. Jiang, S. Q. Jia et D. Z. Shen, *Second Harmonic Generation and Sum Frequency Mixing of Dual Wavelength Nd: YALO<sub>3</sub> Laser in Flux Grown KTiOPO<sub>4</sub> Crystal*, *IEEE J. Quant. Electr.* **28**, 48 (1992).
53. W. R. Donaldson et C. L. Tang, *Urea optical parametric oscillator*, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 25 (1984).
54. G. Robertson, A. Henderson et M. Dunn, *Attainment of high efficiencies in optical parametric oscillators*, *Opt. Lett.* **16**, 1584 (1991).
55. Documentation Castech-Phoenix, Inc. (CASIX), P.O. Box 1103, Fuzhou, Fujian 350014, P.R. China.
56. D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham et A. Zalkin, *Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate*, *J. Appl. Phys.* **62**, 1968 (1987).
57. J. Watson, T. Lépine, P. Georges et A. Brun, *Femtosecond parametric generation and amplification in the visible spectrum*, Congrès Advanced Solid-State Lasers, Salt Lake City, USA, février 1994.
58. J. Watson, T. Lépine, P. Georges et A. Brun, *Tunable femtosecond pulses in the visible by optical parametric amplification*, Congrès Ultrafast Phenomena IX, Dana Point, USA, mai 1994.
59. J. Watson, T. Lépine, P. Georges et A. Brun, *Tunable visible ultrashort pulses by parametric generation and amplification*, Congrès CLEO Europe 1994, Amsterdam, Pays Bas, août 1994, papier CME5.
60. R. L. Fork, C. V. Shank, R. T. Yen, C. Hirlimann et W. J. Tomlinson, *Femtosecond Continuum Generation*, in *Picosecond Phenomena III*, K. B. Eisenthal, R. M. Hochstrasser, W. Kaiser and A. Laubereau, eds. (Springer-Verlag, Berlin, 1982), p. 10.
61. J. Zyss, I. Ledoux, J. Badan, J. L. Oudar, J. Etchepare, D. Hulin, A. Migus et A. Antonetti, *Amplification et émission paramétriques à l'échelle subpicoseconde dans un cristal organique: application à la spectroscopie infra-rouge*, *Revue Phys. Appl.* **22**, 1229 (1987).
62. P. C. M. Planken, E. Snoeks, L. D. Noordam, H. G. Muller et H. B. van Linden van den Heuvell, *Generation of intense sub-picosecond pulses in the mid-infrared*, *Opt. Commun.* **85**, 31 (1991).
63. M. K. Reed, M. Steiner-Shepard et D. K. Negus, *250 kHz Optical Parametric Amplification of the White-Light-Continuum from a Ti:Sapphire Regenerative Amplifier*, Proceedings (postdeadline) Advanced Solid State Laser Conference, Salt Lake City, Utah, Feb. 7-10, 1994.

## CHAPITRE IV

1. B. C. Wilson et S. L. Jacques, *Optical Reflectance and Transmittance of Tissues: Principles and Applications*, IEEE J. Quant. Electron. **26**, 2186 (1990).
2. H. Key, P. C. Jackson et P. N. T. Wells, *New approaches to transillumination imaging*, J. Biomed. Eng. **10**, 113 (1988).
3. M. Cutler, *Transillumination as an aid in the diagnosis of breast lesions*, Surg. Gynecol. Obstet **48**, 721 (1929).
4. C. Gros, Y. Quenneville et Y. Hummel, *Diaphanologie mammaire*, J. Radiol. Électrol. **53**, 20 (1972).
5. W. -F. Cheong, S. A. PrahI et A. J. Welch, *A Review of the Optical Properties of Biological Tissues*, IEEE J. Quant. Electron. **26**, 2166 (1990).
6. A. E. Profio, *Light transport in tissue*, Appl. Opt. **28**, 2216 (1989).
7. L. Wang, P. P. Ho, C. Liu, G. Zhang et R. R. Alfano, *Ballistic 2-D Imaging Through Scattering Walls Using an Ultrafast Optical Kerr Gate*, Science **253**, 769 (1991).
8. M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, Pergamon Press, Paris, p.633-664 (1970).
9. J. C. Hebden, R. A. Kruger et K. S. Wong, *Time resolved imaging through a highly scattering medium*, Appl. Opt. **30**, 788 (1991).
10. J. C. Hebden et K. S. Wong, *Time-resolved optical tomography*, Appl. Opt. **32**, 372 (1993).
11. J. C. Hebden, *Time-resolved imaging of opaque and transparent spheres embedded in a highly scattering medium*, Appl. Opt. **32**, 3837 (1993).
12. K. M. Yoo, B. B. Das et R. R. Alfano, *Imaging of a translucent object hidden in a highly scattering medium from the early portion of the diffuse component of a transmitted ultrafast laser pulse*, Opt. Lett. **17**, 958 (1992).
13. B. B. Das, K. M. Yoo et R. R. Alfano, *Ultrafast time-gated imaging in thick tissues: a step toward optical mammography*, Opt. Lett. **18**, 1092 (1993).
14. M. Toida, M. Kondo, T. Ichimura et H. Inaba, *Two-Dimensional Coherent Detection Imaging in Multiple Scattering Media Based on the Directional Resolution Capability of the Optical Heterodyne Method*, Appl. Phys. B **52**, 391 (1991).
15. M. R. Hee, J. A. Izatt, J. M. Jacobson, J. G. Fujimoto et E. A. Swanson, *Femtosecond transillumination optical coherence tomography*, Opt. Lett. **18**, 950 (1993).
16. M. R. Hee, J. A. Izatt, E. A. Swanson et J. G. Fujimoto, *Femtosecond transillumination tomography in thick tissues*, Opt. Lett. **18**, 1107 (1993).

17. H. Chen, Y. Chen, D. Dilworth, E. Leith, J. Lopez et J. Valdmanis, *Two-dimensional imaging through diffusing media using 150-fs gated electronic holography techniques*, Opt. Lett. **16**, 487 (1991).
18. E. Leith, H. Chen, Y. Chen, D. Dilworth, J. Lopez, R. Masri, J. Rudd et J. Valdmanis, *Electronic holography and speckle methods for imaging through tissue using femtosecond gated pulses*, Appl. Opt. **30**, 4204 (1991).
19. L. Wang, Y. Liu, P. P. Ho et R. R. Alfano, *Ballistic imaging of biomedical samples using picosecond optical Kerr gate*, Proc. SPIE **1431**, 97 (1991).
20. L. Wang, P. P. Ho, X. Liang, H. Dai et R. R. Alfano, *Kerr-Fourier imaging of hidden objects in thick turbid media*, Opt. Lett. **18**, 241 (1993).
21. M. D. Duncan, R. Mahon, L. L. Tankersley et J. Reintjes, *Time-gated imaging through scattering media using stimulated Raman amplification*, Opt. Lett. **16**, 1868 (1991).
22. M. Bashkansky et J. Reintjes, *Nonlinear-optical field cross-correlation techniques for medical imaging with lasers*, Appl. Opt. **32**, 3842 (1993).
23. R. Mahon, M. D. Duncan, L. L. Tankersley et J. Reintjes, *Time-gated imaging through dense scatterers with a Raman amplifier*, Appl. Opt. **32**, 7425 (1993).
24. K. M. Yoo, Q. Xing et R. R. Alfano, *Imaging objects hidden in highly scattering media using femtosecond second-harmonic-generation cross-correlation time gating*, Opt. Lett. **16**, 1019 (1991).
25. F. Liu, K. M. Yoo et R. R. Alfano, *Ultrafast laser-pulse transmission and imaging through biological tissues*, Appl. Opt. **32**, 554 (1993).
26. M. R. Hee, J. A. Izatt, J. M. Jacobson, J. G. Fujimoto et E. A. Swanson, *Femtosecond transillumination optical coherence tomography*, Opt. Lett. **18**, 950 (1993).
27. M. R. Hee, J. A. Izatt, E. A. Swanson et J. G. Fujimoto, *Femtosecond transillumination tomography in thick tissues*, Opt. Lett. **18**, 1107 (1993).
28. D. Huang, J. Wang, C. P. Lin, C. A. Puliafito et J. G. Fujimoto, *Micron-resolution ranging of cornea anterior chamber by optical reflectometry*, Lasers in Surgery and Medicine **11**, 419 (1991).
29. H. Chen, Y. Chen, D. Dilworth, E. Leith, J. Lopez et J. Valdmanis, *Two-dimensional imaging through diffusing media using 150-fs gated electronic holography techniques*, Opt. Lett. **16**, 487 (1991).
30. M. A. Duguay et J. W. Hansen, *An ultrafast light gate*, Appl. Phys. Lett. **15**, 192 (1969).
31. J. Watson, *Amplification paramétrique en régime femtoseconde et application à l'imagerie en milieux diffusants*, Séminaire École du Firtech Microélectronique du Grand Sud Ouest et Optique, Toulouse, janvier 1994.
32. J. Watson, T. Lépine, P. Georges et A. Brun, *Amplification de petits signaux dans un Amplificateur Paramétrique Optique utilisé comme porte ultrarapide*, Congrès OPTO 1994, ESI Publications, Paris, p. 97, avril 1994.

33. J. Watson, P. Georges, T. Lépine et A. Brun, *Gated amplification of small signals in a degenerate optical parametric amplifier*, Conference on Lasers and Electro-Optics "CLEO '94", Anaheim, USA, mai 1994, papier CTuA7.
34. J. Watson, T. Lépine, P. Georges et A. Brun, *Amplification paramétrique en régime femtoseconde. Application à l'imagerie médicale*, Journées des Phénomènes Ultra-rapides, Strasbourg, France, juillet 1994.
35. J. Watson, P. Georges, T. Lépine, B. Alonzi et A. Brun, *Imaging in diffuse media using ultrafast degenerate optical parametric amplification*, accepté dans Optics Letters.

## ANNEXE B

1. M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, Pergamon Press, Paris, p.633-664 (1970).

**Nom** : Watson

**Prénom** : Jennifer Mary

**Sujet** : Amplification paramétrique en régime femtoseconde. Application au développement de sources femtosecondes accordables dans le visible et à l'imagerie en milieu diffusant.

## Résumé

Les travaux présentés dans ce mémoire concernent l'étude de l'amplification paramétrique en régime femtoseconde. Ils visent surtout son application au développement de sources femtosecondes accordables dans le visible. Ils touchent également à l'utilisation d'un amplificateur paramétrique optique en tant que porte ultrarapide amplificatrice pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant.

Lors de cette étude, nous avons construit une chaîne laser femtoseconde basée sur des cristaux de saphir dopé au titane. Cette chaîne produisait des impulsions à 780 nm d'une centaine de femtosecondes de durée et de plus de 1 mJ d'énergie à un taux de répétition de 20 Hz. Les puissances crêtes ainsi engendrées, de l'ordre de 10 GW, étaient suffisantes pour créer des effets non linéaires importants.

Nous avons effectué des études sur l'émission conique qui accompagne la génération d'un continuum de lumière blanche lors de la focalisation d'impulsions femtosecondes dans un milieu solide. Une analyse de nos observations expérimentales dans le contexte de théories physiques connues telles la génération Raman, le mélange à quatre ondes et l'effet Cerenkov nous a amenés à conclure qu'aucune théorie ne permet actuellement de décrire ce phénomène.

Nous avons ensuite construit un amplificateur paramétrique optique afin de réaliser une source cohérente femtoseconde accordable dans le visible sans utiliser le continuum spectral. Cette source délivre des impulsions subpicosecondes de plus de 4  $\mu$ J, accordables de 470 nm à 700 nm. Nous avons comparé ses performances à celles d'un amplificateur paramétrique injecté par un continuum spectral. Cette deuxième source avait l'avantage de produire des impulsions plus courtes (200 fs). En revanche, l'énergie de ces impulsions était moins élevée (1  $\mu$ J) et moins stable et leurs profils spatiaux étaient moins beaux.

Enfin, en se servant d'un amplificateur fonctionnant à la dégénérescence, nous avons réussi à détecter une mire à travers 20 livres parcourus par une solution aqueuse de microsphères de latex avec une résolution spatiale de l'ordre de 100  $\mu$ m et avons ainsi démontré la possibilité d'utiliser l'amplification paramétrique pour réaliser de l'imagerie en milieu diffusant.

**Mots clés** : Phénomènes femtosecondes; Lasers (blocage de modes); Lasers (titane); Optique non linéaire; Génération d'un continuum spectral; Amplificateurs paramétriques; Autofocalisation; Imagerie résolue en temps.