



**HAL**  
open science

**Etude de realisation d'un laser a colorant femtoseconde  
fonctionnant a differentes longueurs d'onde.  
Compression et amplification d'impulsions ultrabreves .**

Patrick Georges

► **To cite this version:**

Patrick Georges. Etude de realisation d'un laser a colorant femtoseconde fonctionnant a differentes longueurs d'onde. Compression et amplification d'impulsions ultrabreves .. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1989. Français. NNT: . pastel-00713747

**HAL Id: pastel-00713747**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00713747>**

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.

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

# THESE

présentée pour obtenir

**LE TITRE DE DOCTEUR  
EN SCIENCES PHYSIQUES**

PAR

**Patrick GEORGES**



**ETUDE ET REALISATION D'UN LASER A COLORANT  
FEMTOSECONDE FONCTIONNANT A DIFFERENTES LONGUEURS  
D'ONDE. COMPRESSION ET AMPLIFICATION D'IMPULSIONS  
ULTRABREVES.**

**Soutenue le 21 décembre 1989 devant la commission d'examen.**

**MM. C. IMBERT  
H. ARDITTY  
A. BRUN  
J.P. CHRISTY  
A. DUCASSE  
C. FROEHLY**

**PRESIDENT**

**EXAMINATEURS**



**À mes parents**  
**À mon frère**



## ABSTRACT

We present the study and the realization of a passively mode-locked dye laser producing pulses shorter than 100 femtoseconds ( $10^{-13}$  s). In a ring cavity with an amplifier medium (Rhodamine 6G) and a saturable absorber (DODCI), a sequence of four prisms controls the group velocity dispersion and allows the generation of very short pulses.

Then we have studied the production of femtosecond pulses at other wavelengths directly from the femtosecond dye laser. For the first time, 60 fs pulses at 685 nm and pulses shorter than 50 fs between 775 nm and 800 nm have been produced by passive mode locking. These near infrared pulses have been used to study the absorption saturation kinetics in semiconductors multiple quantum wells GaAs/GaAlAs.

We have observed a singular behavior of the laser operating at 685 nm and analyzed the produced pulses in terms of optical solitons.

To perform time resolved spectroscopy with shortest pulses, we have studied a pulse compressor and a multipass amplifier to increase the pulses energy. Pulses of 20 fs and 10 microjoules (peak power : 0.5 GW) have been obtained at low repetition rate (10 Hz) and pulses of 16 fs and 0.6 microjoules pulses have been generated at high repetition rate (11kHz) using a copper vapor laser. These pulses have been used to study the absorption saturation kinetics of an organic dye (the Malachite Green).



*Le travail présenté dans ce mémoire est le résultat d'une collaboration fructueuse entre l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée et la Société Photonetics. Je remercie donc Monsieur Hervé Arditty de m'avoir permis de réaliser ce travail et Monsieur Christian Imbert de m'avoir accueilli dans son laboratoire.*

*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 le Professeur Christian Imbert, Directeur de l'Institut d'Optique, qui a bien voulu présider ce jury, Monsieur le Professeur Alain Brun, Chef du Groupe d'Optique non linéaire, qui a été mon Directeur de Thèse, Monsieur Hervé Arditty, Président de la Société Photonetics, Monsieur Jean-Paul Christy, Chef du Groupe IV de la DRET, Monsieur le Professeur André Ducasse de l'Université de Bordeaux et Monsieur le Professeur Claude Froehly, Directeur de l'Institut de Recherche en Optique et Microonde de l'Université de Limoges.*

*Je remercie tout particulièrement, Monsieur le Professeur Alain Brun qui a dirigé ces travaux. Son enthousiasme et sa rigueur ont rendu fructueuses nos nombreuses discussions scientifiques. J'ai apprécié sa confiance et la liberté que j'ai eues sous sa direction, qu'il trouve ici le témoignage sincère d'une profonde reconnaissance et amitié.*

*Au moment d'achever la rédaction de cette thèse, je tiens à remercier très sincèrement ceux qui, depuis le début de ces travaux, aussi bien à l'Institut d'Optique que chez Photonetics, m'ont fait partager leur connaissance et leur expérience. Ils ont tous contribué au bon déroulement de ce travail.*

*Parmi eux, François Salin tient une place privilégiée. Dès mon arrivée, il a su me transmettre son enthousiasme pour la recherche. Sa grande disponibilité, et sa remarquable compétence aussi bien théorique qu'expérimentale ont constitué pour moi un incomparable soutien, cette thèse lui doit beaucoup.*

*Je tiens à remercier Gérard Roger pour tous les conseils qu'il m'a donnés sur la conception du laser m'évitant ainsi bien des soucis. Sa grande expérience et son enthousiasme devant les problèmes technologiques tiennent une grande part dans le succès de toutes les expériences présentées.*

*Je tiens également à remercier toute l'équipe du Laboratoire d'Optique Appliquée de Palaiseau, et plus précisément Monsieur André Antonetti, Directeur du Laboratoire, pour m'avoir permis de réaliser les expériences d'amplification d'impulsions ultracourtes à haute cadence. Je remercie donc Jean Paul Chambaret, Michel Franco et Gilbert Boyer pour l'aide et les conseils qu'ils m'ont apportés lors de ces travaux.*

*Je souhaite remercier l'ANVAR et plus particulièrement Monsieur Jacques Simon d'avoir soutenu ce projet.*

*Je remercie tout autant Philippe Grangier et Gilles Le Saux pour leur disponibilité, et je n'oublie pas l'importance des nombreuses discussions que nous avons eues ensemble.*

*J'ai également apprécié de travailler avec Michel Allain, il m'a souvent sorti de situations périlleuses alors que je m'aventurai dans les méandres de logiciels informatiques.*

*Arnaud Quelquejay m'a fait découvrir lors de nos nombreux voyages un aspect du métier d'ingénieur totalement inconnu et nouveau pour moi : le marketing. Qu'il sache que j'ai toujours apprécié sa compétence professionnelle ainsi que ses grandes qualités humaines.*

*Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Mademoiselle Nelly Bonavent qui, avec dévouement et application, s'est chargée de la frappe du manuscrit. Merci également à Madame Delmotte qui s'est occupée du tirage.*

# TABLE DES MATIERES



<b>INTRODUCTION</b>	10
<b>CHAPITRE I - PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES LASERS A VERROUILLAGE DE MODES PASSIF</b>	13
<b>I.1. INTRODUCTION</b>	14
<b>I.2. RAPPEL THEORIQUE SUR LE BLOCAGE DES MODES D'UNE CAVITE LASER - DISTRIBUTION TEMPORELLE DE L'INTENSITE DE SORTIE D'UN LASER</b>	14
I.2.1. Verrouillage de modes	14
I.2.2. Verrouillage de modes actif	20
I.2.3. Verrouillage de modes passif : application aux lasers femtosecondes	21
<b>I.3. ETUDE DES EFFETS D'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE DISPERSION DANS LES LASERS FEMTOSECONDES</b>	26
I.3.1. Verrouillage de modes passif en présence d'une constante de propagation complexe non linéaire (Automodulation de phase)	28
I.3.2. Influence de la dispersion de vitesse de groupe	33
I.3.3. Compensation de la dispersion de vitesse de groupe	45
<i>I.3.3.1. Compensation à l'aide des miroirs</i>	45
<i>I.3.3.2. Compensation par miroirs interférométriques</i>	45
<i>I.3.3.3. Compensation à l'aide d'un système de prismes</i>	46
I.3.4. Mesure des impulsions	51
<b>CHAPITRE II - REALISATION D'UN LASER A COLORANT FEMTO- SECONDE A VERROUILLAGE DE MODES PASSIF</b>	58
<b>II.1. INTRODUCTION. ETUDE DU COMPORTEMENT DE LA CAVITE LINEAIRE</b>	59

<b>II.2.</b>	<b>TRANSFORMATION DE LA CAVITE EN ANNEAU</b>	62
<b>II.3.</b>	<b>AMELIORATION DES PERFORMANCES GRACE A L'UTILISATION DE MIROIRS MULTIDIÉLECTRIQUES DU TYPE "MONO-EMPILEMENT"</b>	70
<b>II.4.</b>	<b>STRUCTURE FINALE DE LA CAVITE. REGLAGES ET PERFORMANCES DU LASER</b>	71
 <b>CHAPITRE III - GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A D'AUTRES LONGUEURS D'ONDE PAR VERROUILLAGE DE MODES PASSIF</b>		79
<b>III.1.</b>	<b>INTRODUCTION</b>	80
<b>III.2.</b>	<b>GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A 685 nm. ETUDE D'UN REGIME DE FONCTIONNEMENT PARTICULIER DU TYPE SOLITON</b>	81
III.2.1.	Génération d'impulsions femtosecondes à 685 nm	81
III.2.2.	Etude d'un régime de fonctionnement particulier du laser femtoseconde à 685 nm	88
	<i>III.2.2.1. Observations expérimentales</i>	88
	<i>III.2.2.2. Modélisation de l'évolution des impulsions</i>	91
<b>III.3.</b>	<b>VERROUILLAGE DE MODES PASSIF DANS LE PROCHE INFRA-ROUGE</b>	98
III.3.1.	Génération d'impulsions courtes à 775 nm	98
III.3.2.	Verrouillage de modes passif vers 800 nm	107

<b>III.4. SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE RESOLUE EN TEMPS DANS LES STRUCTURES A PUTTS QUANTIQUES GaAs/GaAlAs</b>	113
III.4.1. Introduction	113
III.4.2. Structures étudiées	113
III.4.3. Rappels sur les origines de non linéarités optiques	115
<b>CHAPITRE IV - AMPLIFICATION ET COMPRESSION D'IMPULSIONS COURTES</b>	120
<b>IV.1. INTRODUCTION</b>	121
<b>IV.2. PROPAGATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES EN REGIME D'AUTOMODULATION DE PHASE DANS DES FIBRES OPTIQUES MONOMODES - APPLICATION A LA COMPRESSION D'IMPULSIONS</b>	122
IV.2.1. Equation non linéaire de Schrödinger (ENLS)	122
IV.2.2. Etude de l'influence des termes d'ordres supérieurs	125
IV.2.3. Influence du profil temporel initial de l'impulsion	129
<b>IV.3. AMPLIFICATION D'IMPULSIONS COURTES</b>	134
IV.3.1. Choix des colorants	134
IV.3.2. Amplification et compression d'impulsions courtes à 10 Hz	139
IV.3.3. Réalisation d'un autocorrélateur monocoup	142
IV.3.4. Amplification d'impulsions femtosecondes à la cadence de 11 kHz	147
<b>IV.4. ETUDE DE LA CINETIQUE DE LA SATURATION D'ABSORPTION DU VERT DE MALACHITE</b>	151
<b>CONCLUSION</b>	156
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	159



# INTRODUCTION



L'invention du laser a bouleversé depuis ces trente dernières années de nombreux secteurs de la recherche et de l'industrie. En particulier, les techniques de production d'impulsions ultracourtes sont en pleine expansion car elles ouvrent de nouveaux domaines de recherche en physique, en chimie et en biologie. En 1981, les chercheurs des laboratoires ATT (Etats-Unis) ont produit pour la première fois des impulsions de 100 fs par verrouillage de modes passif. Mais ce n'est qu'en 1985, grâce à la compensation de la dispersion intracavité qu'une amélioration des performances et qu'un grand pas vers la simplicité d'utilisation ont été réalisés. En particulier la combinaison des effets d'automodulation de phase et de dispersion conduit à une propagation de type soliton et donc à une très bonne stabilité des impulsions produites.

Partant de ces considérations, la société Photonetics et l'Institut d'Optique ont décidé de réaliser un laser produisant des impulsions inférieures à 100 fs par une technique jusqu'alors inexploitée commercialement : le verrouillage de modes passif. Jusqu'en 1986, début du travail présenté ici, les seuls lasers commerciaux produisant des impulsions subpicosecondes utilisaient la technique du verrouillage de modes actif. De tels systèmes sont très coûteux et ne permettent d'obtenir au mieux que des impulsions de 300 fs. Pour gagner du temps et réduire le coût il a été décidé d'utiliser, comme base de départ du futur laser femtoseconde, un laser comportant deux jets de colorants commercialisé par la société américaine Cohérent.

Dans le premier chapitre, nous rappelons le principe du verrouillage de modes passif dans un laser à colorants. Nous insistons ensuite sur les effets non linéaires présents dans le laser lorsque les impulsions produites sont inférieures à 100 fs, à savoir : l'automodulation de phase et la dispersion chromatique. Nous décrivons enfin un système de quatre prismes qui permet d'ajuster la dispersion dans la cavité.

Le chapitre II présente les différentes étapes qui ont permis d'aboutir à la réalisation d'un laser à colorant à verrouillage de modes passif produisant des impulsions inférieures à 80 fs.

Le troisième chapitre est consacré à l'extension des performances de ce laser dans le proche infrarouge. En effet, jusqu'à maintenant seul un couple de colorants organiques avait été étudié, imposant ainsi la longueur d'onde des impulsions vers 620 nm.

Divers couples de colorants nous ont permis de produire pour la première fois par verrouillage de modes passif des impulsions femtosecondes dans le proche infrarouge (à 685, 775 et 800 nm). Les impulsions produites à 800 nm ont été utilisées pour l'étude de la saturation de l'absorption dans des semiconducteurs à multipuits quantiques GaAs/GaAlAs.

Le quatrième chapitre concerne la production d'impulsions ultracourtes ( $< 30$  fs) et suffisamment puissantes pour permettre de réaliser des expériences de spectroscopie résolue dans le temps avec une résolution temporelle accrue. La technique utilisée consiste à élargir le spectre des impulsions par automodulation de phase dans une fibre optique puis à remettre en phase toutes les nouvelles fréquences à l'aide d'une ligne à retard à dispersion négative. Après une analyse théorique de l'évolution d'une impulsion très puissante dans une fibre optique, nous avons développé un amplificateur permettant d'augmenter l'énergie des impulsions issues de la fibre. En particulier, nous avons résolu le problème de l'amplification d'un spectre large. Ces impulsions ont été utilisées dans une expérience de saturation d'absorption dans un colorant organique : le vert de malachite.

# CHAPITRE I

## **PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES LASERS A VERROUILLAGE DE MODES PASSIF**



## I.1. INTRODUCTION

Ce chapitre est consacré à l'analyse théorique du laser à verrouillage de modes passif à l'aide d'un absorbant saturable. On présentera un modèle très simplifié de l'évolution d'une impulsion dans une cavité contenant un absorbant saturable et un milieu amplificateur. Nous soulignerons ensuite les limites d'un tel modèle en analysant l'importance des effets non linéaires tels que l'automodulation de phase et la dispersion, sur le bon fonctionnement de ce type de laser. Bien qu'il n'existe pas actuellement de modèle théorique décrivant parfaitement l'évolution d'impulsions aussi courtes dans le laser, ces principes nous aideront à mieux comprendre le fonctionnement de tels lasers. Pour combattre les effets de dispersion, nous présenterons un système de prismes qui permet d'ajuster précisément la dispersion dans la cavité.

## I.2. RAPPEL THEORIQUE SUR LE BLOCAGE DES MODES D'UNE CAVITE LASER - DISTRIBUTION TEMPORELLE DE L'INTENSITE DE SORTIE D'UN LASER

### I.2.1. Verrouillage de modes

La distribution en fréquence de l'émission d'un laser est généralement constituée d'un certain nombre de fréquences discrètes. Chacune de ces fréquences correspond à un mode de résonance de la cavité laser. Ces modes sont séparés en fréquence de  $\Delta\nu$  donné par :

$$(1.1) \quad \Delta\nu = \nu_k - \nu_{k-1} = \frac{c}{2L}$$

où  $L$  est la longueur de la cavité laser et  $c$  la vitesse de la lumière.

Ces modes sont appelés modes longitudinaux du laser. Plusieurs paramètres régissent les caractéristiques du spectre de fréquences émis par une cavité laser. L'enveloppe de l'intensité du spectre est déterminée par le profil d'émission du milieu amplificateur de la cavité et par les caractéristiques spectrales des différents éléments dans la cavité. Le spectre d'émission du laser est constitué des modes qui ont un gain suffisant pour compenser les pertes de la cavité et ainsi être au-dessus du seuil de l'effet laser (figure 1). La distribution dans le temps de l'émission laser résulte de la superposition des champs électriques  $E_k$  de ces différents modes longitudinaux de fréquence  $\nu_k$ . Elle dépend de leurs amplitudes, de leurs phases relatives et de leurs polarisations.

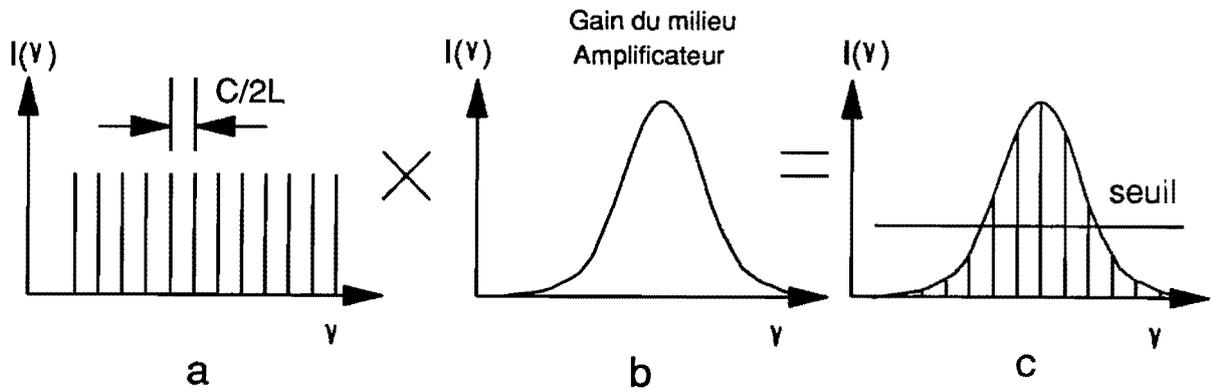


Figure 1 : Modes longitudinaux d'un laser . a) Modes d'une cavité, b) Courbe de gain du laser.

Considérons, pour schématiser, le cas où il existe seulement deux modes voisins de fréquences  $\nu_k$  et  $\nu_{k+1}$ , ayant la même polarisation et la même amplitude  $A$ , mais de phases  $\phi_k$  et  $\phi_{k+1}$  quelconques. Les champs électriques correspondant s'expriment par :

$$(1.2) \quad \begin{aligned} E_k &= A \cos(2\pi \nu_k t + \phi_k) \\ E_{k+1} &= A \cos(2\pi \nu_{k+1} t + \phi_{k+1}) \end{aligned}$$

La superposition  $E$  de ces deux champs s'écrit :

$$(1.3) \quad E = E_k + E_{k+1} = A [\cos(2\pi \nu_k t + \phi_k) + \cos(2\pi \nu_{k+1} t + \phi_{k+1})]$$

Les détecteurs utilisés en optique ayant un temps de réponse  $\theta$  bien plus grand qu'une période du signal optique  $1/\nu_k$  (2fs à 620nm), on définit alors une intensité moyenne  $I(t)$  qui est la moyenne sur une période du carré du champ total  $E$  :

$$(1.4) \quad I(t) = A^2 [1 + \cos(2\pi(\nu_{k+1} - \nu_k)t + \phi_{k+1} - \phi_k)]$$

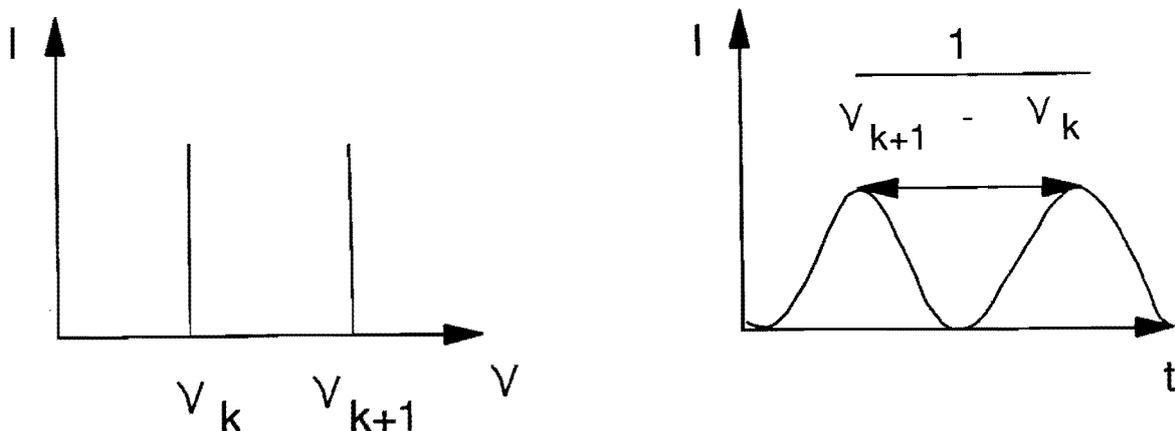


Figure 2 : Battement temporel entre deux ondes monochromatiques de fréquences voisines.

On voit donc [figure 2] qu'au spectre comportant les deux fréquences  $\nu_k$  et  $\nu_{k+1}$ , correspond une distribution temporelle  $I(t)$  modulée sinusoidalement à la période:

$$\frac{1}{\nu_{k+1} - \nu_k} = \frac{c}{2L} .$$

Toutefois, nous avons fait précédemment l'hypothèse que la fréquence  $\nu_k$  et la phase  $\phi_k$  étaient indépendantes du temps. Cette hypothèse n'est valable que sur des intervalles de temps relativement longs par rapport aux temps de réponse des détecteurs. Or, ceci est faux en optique. En général, on considère que la fréquence reste fixe et que c'est la phase qui est variable. Ces fluctuations ont des temps caractéristiques de l'ordre de 100 ns [1]. Donc si les phases  $\phi_k$  et  $\phi_{k+1}$  varient indépendamment l'une de l'autre, le terme d'interférence :

$$\cos[2\pi (\nu_{k+1} - \nu_k) t + \phi_{k+1} - \phi_k]$$

se trouve moyenné par 0, et l'on enregistre une intensité constante.

On peut généraliser le raisonnement précédent au cas de lasers fonctionnant sur  $N$  modes longitudinaux. Considérons le champ électrique  $E(t)$  résultant de la superposition de  $N$  modes longitudinaux à un endroit arbitraire de la cavité. Le champ électrique  $E(t)$  est donné par :

$$(1.5) \quad E(t) = \sum_{k=1}^N E_k \exp[i (\omega_0 + 2\pi k \Delta\nu) t + \phi_k]$$

avec  $E_k$  correspondant à l'amplitude dans l'espace des fréquences du mode d'indice  $k$ .

Si les phases  $\phi_k$  des modes varient aléatoirement et indépendamment les uns des autres, les termes d'interférences entre modes donnent une valeur moyenne nulle sur le temps de réponse  $\theta$  du détecteur. L'intensité en sortie est la somme des intensités de tous les modes. C'est le cas des lasers dits "libres", c'est à dire sans dispositif placé dans la cavité pour verrouiller les modes en phase. La figure 3 montre une simulation numérique correspondant à l'émission d'un laser sans aucun système verrouillant les modes. Le spectre en fréquence présente une distribution gaussienne et la phase de chacun des modes varie de  $-\pi$  à  $+\pi$ . Le rayonnement émis se présente donc sous l'aspect d'un bruit périodique.

Supposons maintenant, que les phases des différents modes soient égales (et nulles par exemple), la relation (1.5) devient :

$$(1.6) \quad E(t) = \sum_{k=1}^N E_k \exp[i (\omega_0 + 2\pi k \Delta\nu) t] .$$

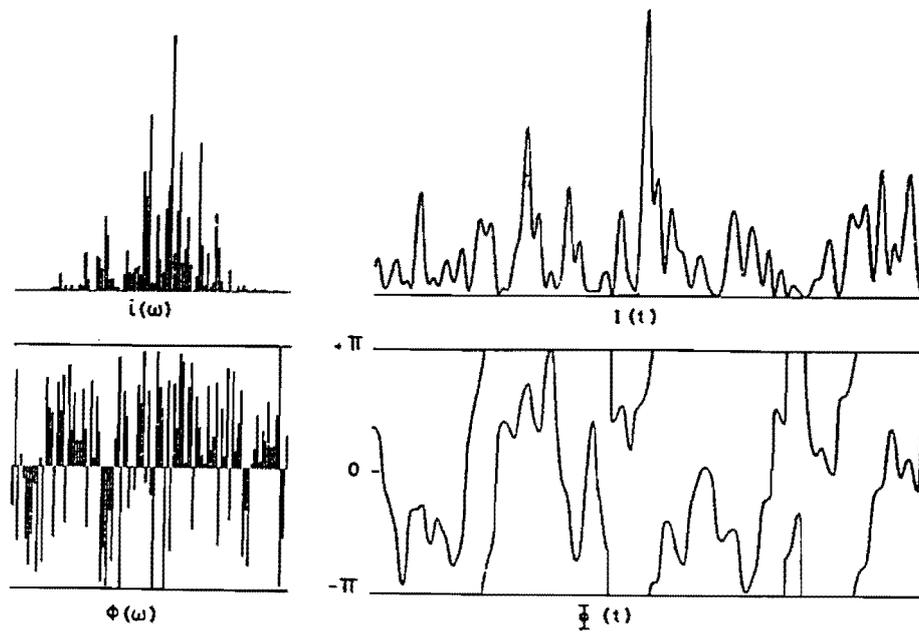


Figure 3 : Evolution temporelle (b) de l'amplitude d'un laser dont les modes sont aléatoirement répartis en amplitude et en phase (a).

On peut représenter le champ émis  $E(t)$  comme une série de Fourier dont les coefficients sont les valeurs  $E_k$  de l'amplitude du spectre à la fréquence  $\nu_k$ . On peut donc écrire  $E(t)$  comme la transformée de Fourier (TF) de l'amplitude  $S(\omega)$  du spectre d'émission du laser :

$$(1.7) \quad E(t) = \int_0^{\infty} S(\omega) e^{i\omega t} d\omega$$

et donc :

$$(1.8) \quad S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt .$$

Lorsque les phases des différents modes sont toutes égales, on peut obtenir des relations équivalentes de transformée de Fourier entre les amplitudes temporelles  $A(t)$  et spectrales  $B(\omega)$ .

$$(1.9) \quad A(t) = \int_0^{\infty} B(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad \text{avec} \quad A(t) = |E(t)|$$

$$(1.10) \quad B(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} A(t) e^{-i\omega t} dt \quad \text{avec} \quad B(\omega) = |S(\omega)|$$

Pour obtenir une impulsion lumineuse, on est donc conduit à trouver une méthode permettant de fixer toutes les phases entre elles : on cherche donc à verrouiller les modes en phase. Dans ce cas, l'énergie est concentrée et l'intensité de sortie est constituée d'une suite d'impulsions séparées du temps mis pour faire un aller-retour dans la cavité.

La structure d'une impulsion est parfaitement définie par sa phase et son intensité. Si les phases des différents modes ne sont pas identiques, il faut en tenir compte et remonter aux équations (1.7) et (1.8). Dans ce cas, la seule relation valable est l'équivalent en optique du principe d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta\nu \Delta t \geq \kappa$$

où  $\Delta t$  et  $\Delta\nu$  sont les largeurs à mi-hauteur respectivement de l'impulsion et de son spectre et  $\kappa$  une constante dépendant du profil exact de l'impulsion. Le tableau 1 présente différentes valeurs de  $\kappa$  pour des impulsions caractérisées par différents profils en amplitude [2].

E(t)	$\kappa$
$\exp\left(-\frac{1}{2}(t/t_0)^2\right)$	0,441
$\exp\left(-\frac{1}{2}(t/t_0)\right)$	0,142
$1/\text{ch}(t/t_0)$	0,315
$\text{rect}(t/t_0)$	0,892
$\sin^2(t/t_0)/(t/t_0)^2$	0,366
$[1 + (t/t_0)^2]^{-1}$	0,142

Tableau 1 : Valeurs de  $\kappa$  calculées pour différents profils en amplitude E(t).

La figure 4 représente une simulation numérique du signal émis par un laser dont le spectre est gaussien et dont les modes sont parfaitement verrouillés. L'émission consiste en un train d'impulsions de période  $2L/c$ . On constate donc qu'en verrouillant les modes d'un laser on est capable de concentrer son énergie dans des impulsions d'autant plus brèves que la bande spectrale occupée est plus large. Etant donné qu'on connaît les bandes spectrales de gain pour les différents types de matériaux lasers, on peut prévoir leurs possibilités théoriques de production d'impulsions courtes.

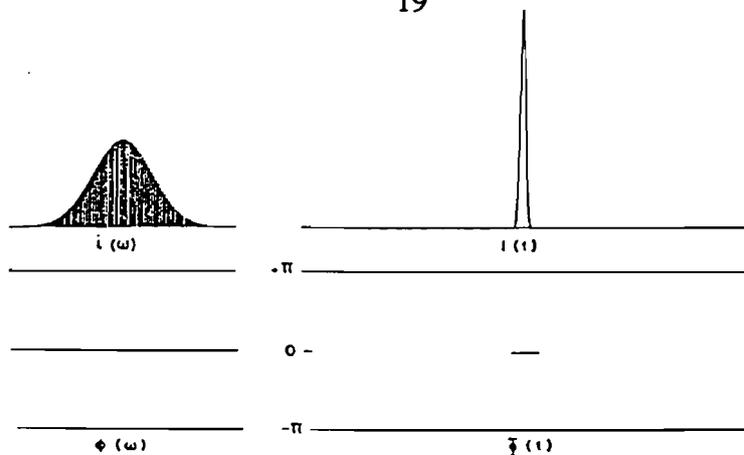


Figure 4 : Evolution temporelle d'un laser dont tous les modes sont bloqués en phase.

Pour un laser à gaz (Argon ou Krypton), c'est l'élargissement de la raie laser par effet Doppler qui détermine la bande  $\Delta\nu$  disponible : elle est de l'ordre de  $10^{10}$  Hz (0,01 nm) et conduit à des impulsions théoriques de 100 ps. Pour les lasers solides, la maille cristalline dans laquelle se trouve l'ion influe fortement sur la largeur de la bande spectrale. Par exemple l'ion  $\text{Nd}^{3+}$  dans une matrice de verre conduit à une largeur de raie de l'ordre de 1 nm (impulsions de 1 ps théoriques) alors que le même ion dans une matrice de YAG voit sa raie diminuer à environ 0,2 nm (impulsions de 50 ps théoriques). Pour les lasers à colorant les valeurs sont  $\Delta\nu \approx 4 \cdot 10^{14}$  Hz (40 nm),  $\Delta\tau \approx 10$  fs. Jusqu'à maintenant les lasers à colorant étaient donc a priori les seuls candidats possibles pour l'obtention d'impulsions femtosecondes. Récemment l'apparition de nouveaux matériaux solides accordables du type alexandrite ou saphir dopé au titane ( $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ ) présentant des bandes de fluorescence extrêmement larges (supérieures à 300 nm pour  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ ) semble remettre en cause cet état de fait. Ces matériaux présentent de plus, de nombreux avantages : énergie de saturation élevée, stabilité accrue, facilité d'emploi, ....

Nous avons vu que pour concentrer l'énergie lumineuse dans le temps, il est nécessaire de favoriser le couplage entre les modes longitudinaux en verrouillant leurs phases. Deux méthodes sont principalement utilisées pour produire des impulsions lumineuses : le verrouillage de modes actif et le verrouillage de modes passif. Après avoir rapidement présenté la première méthode, nous insisterons davantage sur le verrouillage de modes passif (avec un absorbant saturable), technique que nous utiliserons par la suite pour engendrer des impulsions femtosecondes.

Avant de présenter les méthodes conduisant au blocage des modes en phase, il est nécessaire de montrer comment les modes peuvent se coupler. Ce couplage intervient dans un milieu matériel et fait donc appel à des notions d'interaction onde-matière. Lorsqu'une onde électromagnétique monochromatique (un seul mode) interagit avec un milieu, elle agit sur l'absorption ou l'amplification de celui-ci. Cette onde tend à égaliser les populations des niveaux inférieurs et supérieurs de la transition en la saturant. Cette saturation est d'autant plus grande que l'intensité du mode est grande. De plus, si on injecte dans le milieu saturé par un premier mode, un deuxième mode de fréquence très voisine (à l'intérieur de la largeur spectrale homogène de la transition), ce dernier voit un milieu perturbé. Les deux modes coexistants dans le même milieu, leur

comportement ne sera pas le même que s'ils y existaient séparément. Toute variation de l'amplitude ou de la phase d'un des modes va influencer sur le deuxième. Il y a donc couplage entre ces deux modes par interaction onde-milieu. Ce couplage peut être obtenu de façon active ou passive.

### I.2.2. Verrouillage de modes actif

Le principe du verrouillage de modes actif est le suivant : on module de façon externe, soit le gain, soit les pertes d'une cavité. Considérons un mode du laser à la fréquence  $\nu_k$  dont l'amplitude est modulée à la fréquence  $f$ . Son spectre présente deux bandes latérales à  $\nu_k \pm f$  (figure 5). Le couplage avec le mode voisin de fréquence  $\nu_k + c/2L$  devient d'autant plus fort que la fréquence  $\nu_k + f$  est voisine de  $\nu_{k+1}$  donc que  $c/2L$  est voisin de  $f$ . Les deux modes tendent à osciller ensemble.

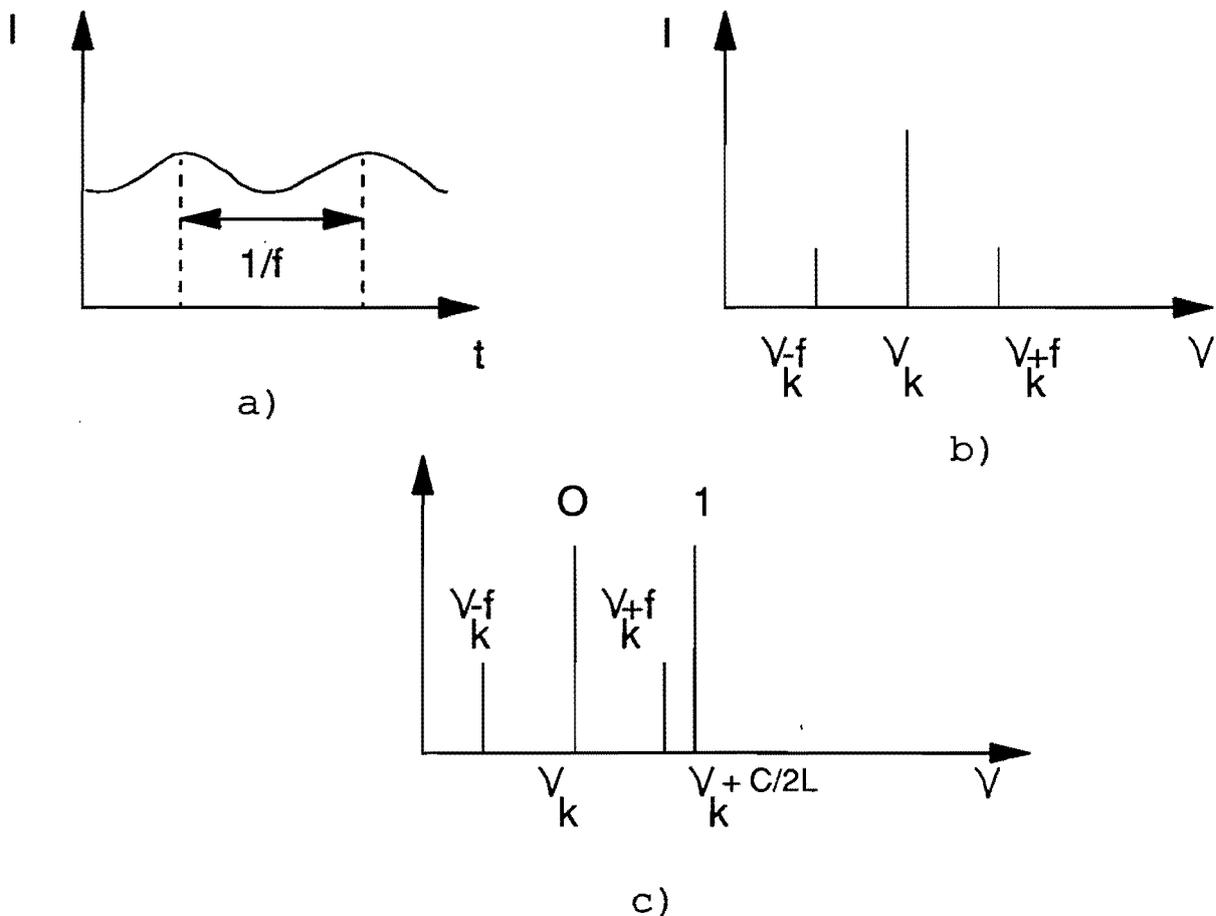


Figure 5 : Production de bandes latérales par modulation de l'amplitude d'un mode. a) Modulation de l'amplitude d'un mode du laser. b) Spectre de cette émission stimulée. c) Superposition de ce spectre et de celui du mode voisin.

Si l'on module l'ensemble des modes, chacun se trouve verrouillé en phase et en fréquence par une bande latérale de son voisin. Les phases de tous ces modes qui oscillaient librement se fixent les unes par rapport aux autres et l'on tend vers une distribution d'intensité correspondant, dans la cavité, à une impulsion dont la durée est de l'ordre de  $1/\Delta\nu$  avec  $\Delta\nu$  largeur de bande de gain (figure 6).

Dans le cas du verrouillage de modes actif, il faut que la longueur de la cavité corresponde à la fréquence  $f$  de modulation ou à la longueur de cavité du laser de pompe (pour un laser à colorant). Pour obtenir des impulsions stables et courtes, il faut pouvoir ajuster la longueur des cavités à  $1 \mu\text{m}$  près, ce qui oblige à utiliser des dispositifs d'asservissement. Dans le cas du verrouillage de modes passif, les impulsions sont créées dans la cavité elle-même, sans dispositif extérieur. Celle-ci détermine uniquement le taux de répétition des impulsions et n'influe pas sur les performances du laser.

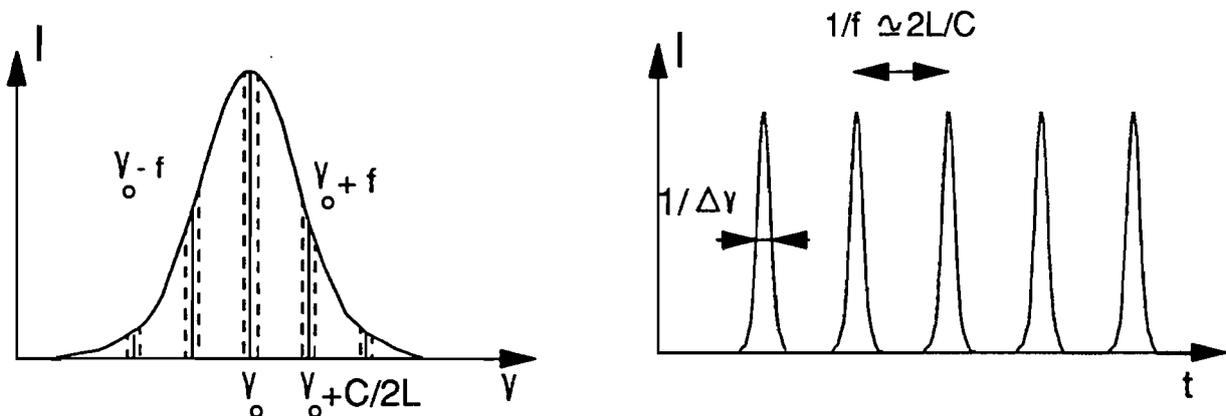


Figure 6 : Verrouillage de la phase des modes par modulation à la fréquence  $c/2L$  de leurs amplitudes.

### 1.2.3. Verrouillage de modes passif : application aux lasers femtosecondes

Pour obtenir un verrouillage efficace des modes d'un laser sans modulation extérieure, on peut ajouter dans la cavité un absorbant saturable pour introduire des pertes à la fréquence  $c/2L$ .

Dans un premier temps, il est nécessaire de définir ce qu'est un absorbant saturable. C'est un milieu dont le coefficient d'absorption décroît fortement lorsque l'intensité lumineuse qui le traverse augmente. La figure 7 représente la transmission d'un absorbant saturable en fonction de l'intensité incidente. Lorsque l'intensité incidente est faible, le coefficient d'absorption est grand et l'absorbant saturable ne transmet qu'une faible partie de l'énergie lumineuse. Lorsque l'intensité augmente, le coefficient d'absorption diminue jusqu'à une valeur proche de zéro pour une intensité lumineuse  $I_A$  appelée intensité de saturation.

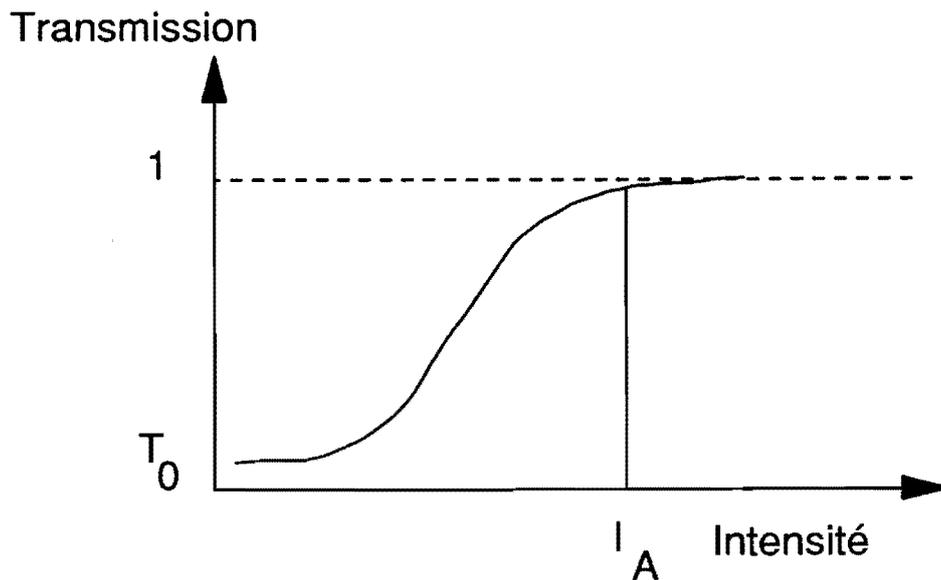


Figure 7 : Variation de la transmission d'un absorbant saturable.

Dans une cavité laser, un absorbant saturable favorise l'émission d'un rayonnement dont l'intensité est grande et tend ainsi à concentrer l'énergie. L'intensité dans le laser est maximale lorsque les différents modes de la cavité ont une phase identique car, dans ce cas, il y a somme cohérente de tous les champs électriques. Pour illustrer ce phénomène, prenons le cas de deux modes : lorsque les phases des deux modes sont différentes, l'intensité est égale à :

$$I(t) = a^2 [1 + \cos (2\pi (\nu_1 - \nu_2) t + \phi_1 - \phi_2)] .$$

En prenant comme origine des temps ( $t = 0$ ) l'instant où l'impulsion passe dans l'absorbant saturable, l'intensité lumineuse est égale à :

$$I(t) = a^2 [1 + \cos (\phi_1 - \phi_2)] .$$

Lorsque les phases sont identiques,  $I = 2 a^2$ . Comme  $\cos (\phi_1 - \phi_2) < 1$ , on voit que la mise en phase des deux modes augmente l'intensité dans l'absorbant saturable et augmente donc son coefficient de transmission. On peut étendre ce raisonnement à un grand nombre de modes et conclure que seuls les modes en phase pourront rester au dessus du seuil de l'effet laser.

Malgré de nombreuses recherches effectuées dans ce domaine [3-5], il n'existe pas actuellement de théories complètes et satisfaisantes permettant d'expliquer correctement la formation des impulsions ultracourtes dans un laser à verrouillage de modes passif. Toutefois, nous allons présenter une analyse très simplifiée du fonctionnement d'un laser femtoseconde constitué d'une cavité contenant un absorbant saturable et un milieu amplificateur. Cette approche a l'avantage de bien cerner les phénomènes présents dans ce type de laser.

Analysons comment une impulsion peut naître dans ce type de cavité. L'absorbant saturable présente initialement une transmission suffisamment faible pour empêcher tout effet laser. En raison des couplages existant obligatoirement dans la cavité entre les différents modes, il y a toujours des fluctuations d'intensité [voir figure 3]. Lorsqu'un pic de bruit est suffisamment intense pour saturer l'absorbant, un paquet de photons peut se propager dans la cavité. Cette impulsion longue est alors amplifiée dans le milieu à gain et va donc de nouveau saturer l'absorbant saturable.

Lorsque l'impulsion arrive dans l'absorbant, celui-ci absorbe une partie de l'intensité incidente du front avant de l'impulsion et se sature. Une fois saturé, il met un certain temps  $T_A$  pour retrouver son état d'équilibre. Si  $T_A$  est supérieur à la durée de l'impulsion, la partie non absorbée de celle-ci traverse l'absorbant sans déformation [figure 8]. On constate que la traversée de l'absorbant saturable a raccourci le temps de montée de l'impulsion.

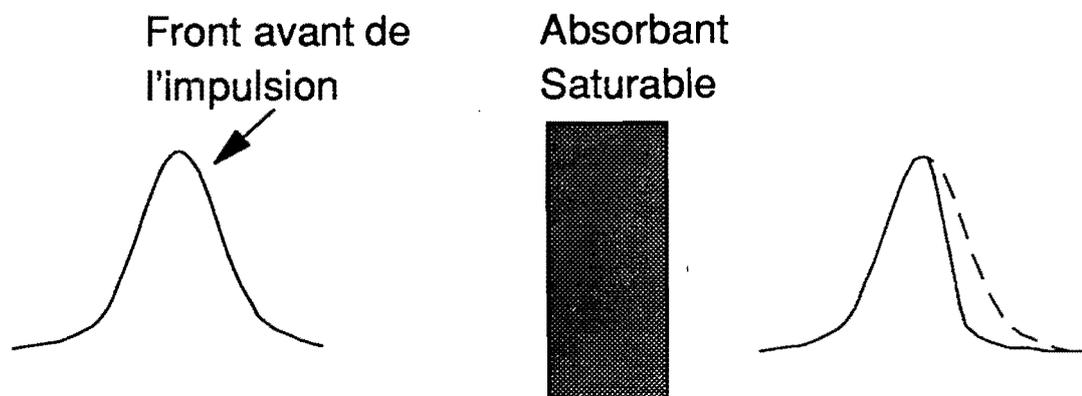


Figure 8 : Réduction du temps de montée de l'impulsion par traversée de l'absorbant saturable.

Le pompage s'effectuant en continu, le milieu amplificateur va également se saturer [figure 9]. En traversant le milieu amplificateur, le front avant de l'impulsion est amplifié. Le milieu amplificateur se sature progressivement et complètement si l'intensité de l'impulsion est suffisante. Comme il met un temps  $T_G$  pour retrouver son gain initial, la queue de l'impulsion traverse le milieu amplificateur sans être amplifiée. Le temps de descente de l'impulsion est donc raccourci [figure 10].

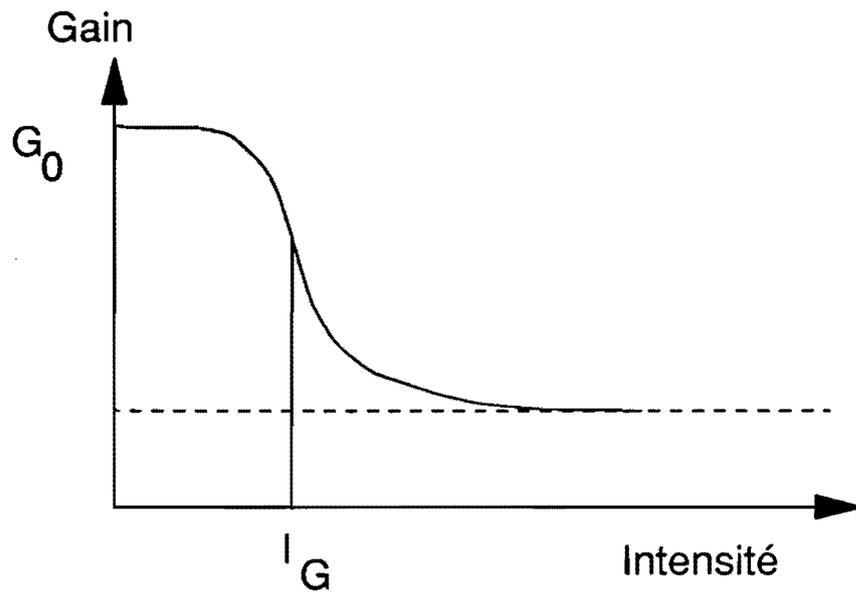


Figure 9 : Saturation du gain du milieu amplificateur.

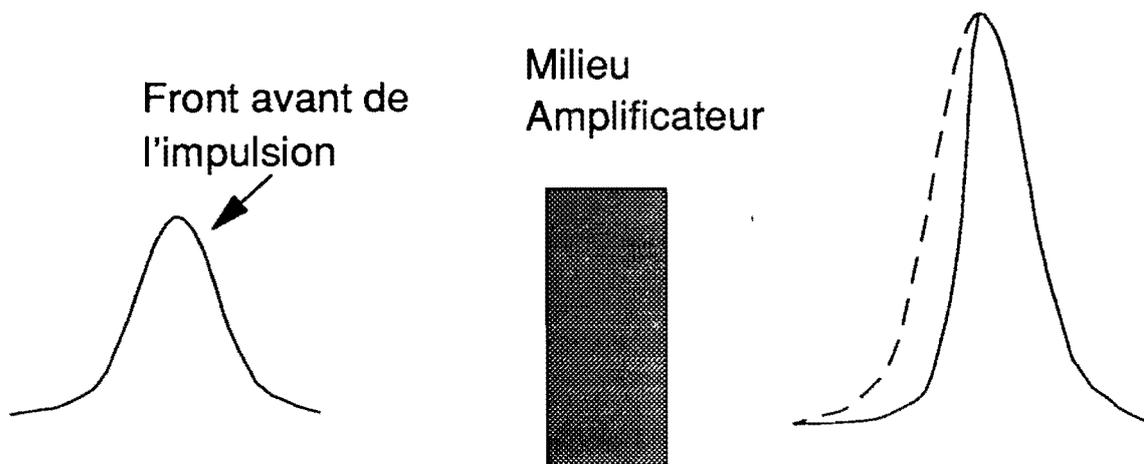


Figure 10 : Amplification du centre de l'impulsion par le milieu amplificateur.

Le bilan global de la traversée des deux milieux est une amplification et un raccourcissement de l'impulsion.

Toutefois, ce raisonnement dépend de la façon dont se réalisent les saturations respectives de l'absorbant saturable et du milieu amplificateur. Pour amplifier le centre de l'impulsion, il faut que celui-ci traverse l'absorbant après qu'il se soit saturé et le milieu amplificateur avant la saturation. Ceci impose que le milieu absorbant se sature pour une énergie  $I_A$  plus faible que l'énergie de saturation du gain  $I_G$  du milieu amplificateur.

De plus, il est nécessaire que le gain de la cavité soit inférieur à 1 en dehors d'un créneau temporel contenant l'impulsion. Ces considérations fixent les paramètres physiques de la cavité. G.H.C. New [3] a résumé l'ensemble de ces conditions en définissant un paramètre  $S$  tenant compte des densités de puissance dans le milieu amplificateur et dans l'absorbant saturable ainsi que des sections efficaces d'émission  $\sigma_e$  du milieu amplificateur et d'absorption  $\sigma_a$  de l'absorbant saturable :

$$(1.12) \quad S = \frac{\sigma_a A_e}{\sigma_e A_a}$$

$A_e$  : Surface du faisceau dans l'amplificateur.

$A_a$  : Surface du faisceau dans l'absorbant.

Plus  $S$  est grand, plus la saturation dans l'absorbant est grande par rapport à celle de l'amplificateur. G.H.C. New a montré que  $S$  devait être supérieur à 2 pour remplir les conditions précédentes. Il faut noter que le laser est d'autant moins sensible aux variations de gain dans la cavité que la saturation dans l'absorbant saturable est grande.

Dans ce paragraphe, nous avons vu comment se forment les impulsions dans la cavité et quels sont les processus permettant de réduire temporellement les impulsions.

Toutefois, suivant l'analyse précédente, l'impulsion devrait continuer à se raccourcir de plus en plus sans atteindre un régime stationnaire. Nous allons montrer que d'autres phénomènes tels que l'automodulation de phase et la dispersion de vitesse de groupe doivent être pris en considération lorsque la durée des impulsions est de l'ordre de 200 à 300 fs.

### I.3. ETUDE DES EFFETS D'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE DISPERSION DANS LES LASERS FEMTOSECONDES

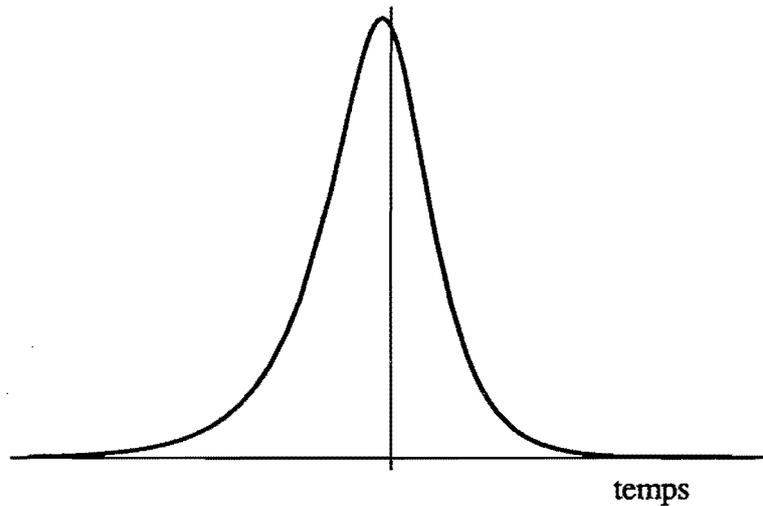
Plusieurs auteurs [3-6] ont proposé des modèles mathématiques permettant de simuler la formation et l'évolution d'impulsions très courtes dans un laser à colorant à verrouillage de modes passif. Ces théories, bien que très complexes, n'arrivent pas encore à simuler parfaitement tous les comportements observés expérimentalement. Néanmoins elles ont le mérite de donner des informations sur les paramètres importants qui régissent le fonctionnement du laser.

En particulier, Yoshisawa et coll. [6] ont proposé un calcul permettant de définir le profil temporel à l'état stationnaire de l'impulsion se propageant dans la cavité. Le principe du calcul consiste à attribuer à chaque élément de la cavité une fonction représentant son effet sur l'impulsion. L'évolution de l'impulsion dans la cavité est décrite par une fonction qui est le produit des fonctions élémentaires de chaque élément rencontré (saturation du gain dans le milieu amplificateur, dans l'absorbant saturable, saturation des pertes, pertes non linéaires et filtrage spectral des autres éléments de la cavité). On cherche ensuite les solutions stables du système qui correspondent à des profils temporels restant inchangés après un aller-retour dans la cavité. Les profils temporels obtenus peuvent être approximés par un profil dissymétrique dont l'amplitude temporelle  $A(t)$  est :

$$(1.13) \quad A(t) = A(0) \left[ \exp\left(\frac{-t}{T_1}\right) + \exp\left(\frac{+t}{T_2}\right) \right]^{-1} .$$

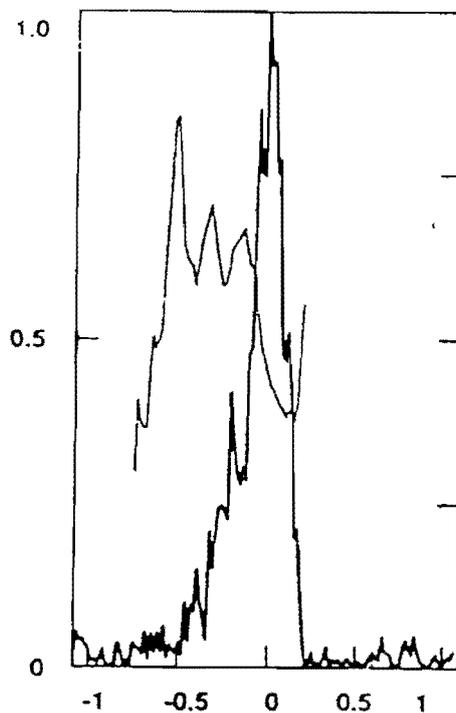
La figure 11 représente ce type de profil avec  $T_1/T_2 = 1,5$ . Le profil dissymétrique peut s'expliquer par le mécanisme de raccourcissement des impulsions par saturation de l'absorbant saturable et du milieu amplificateur décrit précédemment.

Toutefois, il est très difficile de vérifier cela expérimentalement. En effet, pour mesurer les impulsions on utilise habituellement un autocorrélateur (voir § I.3.4) qui donne par définition une fonction d'autocorrélation symétrique. Pour avoir plus de renseignements sur le profil temporel il est nécessaire d'enregistrer l'autocorrélation d'ordre 3 [7]. Malheureusement, actuellement l'énergie nécessaire pour réaliser cette autocorrélation est bien supérieure à l'énergie délivrée par un oscillateur femtoseconde. Cette méthode s'applique donc aux impulsions qui ont été amplifiées et dont le profil a pu subir des modifications au cours du processus d'amplification.



*Figure 11: Profil temporel d'une impulsion dissymétrique.*

Récemment, différentes méthodes ont été développées pour déterminer le profil temporel exact des impulsions [8, 9]. En particulier Nagamuna et coll. [9] ont montré qu'avec l'autocorrélation d'ordre 2, l'interférogramme du spectre et l'autocorrélation interférométrique d'ordre 2, ils pouvaient remonter au profil temporel de l'impulsion. Celui-ci a été trouvé dissymétrique comme on le soupçonnait [figure 12]. Toutefois, il subsiste le problème de l'unicité de la solution. En effet pour faire converger ces programmes de reconstruction du profil temporel, il est nécessaire d'injecter un profil temporel de départ voisin du profil réel.



*Figure 12 : Impulsion et sa fréquence instantanée reconstruite par la méthode développée par Nagamuna et coll. [9].*

Bien que les théories développées permettent de prédire l'importance de certains paramètres comme la saturation des pertes dans l'absorbant saturable, elles ne parviennent pas à prédire totalement le comportement du laser lorsque les impulsions produites sont inférieures à 100 fs environ. Il faut alors tenir compte de nouveaux phénomènes tels que la dispersion de vitesse de groupe (variation de l'indice de réfraction avec la longueur d'onde) et l'automodulation de phase (variation de l'indice de réfraction avec l'intensité lumineuse). Il me paraît donc indispensable de présenter ces différents effets. C'est grâce à une bonne compréhension de ces phénomènes que des progrès ont été réalisés sur les oscillateurs et ont permis d'obtenir les impulsions lumineuses les plus courtes jamais produites directement dans un laser : 27 fs [10].

### **I.3.1. Verrouillage de modes passif en présence d'une constante de propagation complexe non linéaire (automodulation de phase)**

Pour une durée de l'ordre de 100 fs, la puissance crête des impulsions dans la cavité est de l'ordre de 100 kW. Dans le jet d'absorbant saturable, la densité de puissance crête est de l'ordre de 100 GW/cm<sup>2</sup>. Il est alors nécessaire de tenir compte des variations de l'indice de réfraction avec l'intensité lumineuse. Ce phénomène s'appelle l'automodulation de phase et se modélise en développant au premier ordre l'indice de réfraction du milieu de propagation en fonction de l'intensité  $I(t)$  de l'impulsion :

$$(1.14) \quad n(t) = n_0 + n_2 \cdot I(t)$$

avec  $n_2$  indice non linéaire du milieu considéré et  $n_0$  l'indice linéaire.

Soit une impulsion arrivant dans un milieu avec un profil temporel du champ électrique  $A(t)$  gaussien :

$$(1.15) \quad A(t) = A_0 [\exp(-a^2 t^2)] \cdot \exp(2i\pi \nu_0 t)$$

avec  $a = \ln 2/\tau_0$  et  $\tau_0$  largeur à mi-hauteur de l'impulsion.

La traversée du milieu se traduit par une modulation de la phase de l'impulsion et le déphasage introduit suit son profil temporel :

$$(1.17) \quad \varphi(t) = \frac{2\pi \nu_0 d}{c} (n_0 + n_2 I(t))$$

avec  $d$  : épaisseur du milieu, et :

$$(1.18) \quad I(t) = |A(t)|^2 = A_0^2 \exp(-2 a^2 t^2) \quad .$$

Après passage dans le milieu, le champ électrique vaut :

$$(1.19) \quad A(t) = A_0 \exp(-a^2 t^2) \exp(2i\pi \nu_0 t) \exp(i \varphi(t)) \quad .$$

Les variations  $\Delta\varphi(t)$  de la phase instantanée  $\varphi(t)$  de l'impulsion sont :

$$(1.20) \quad \Delta\varphi(t) = \Delta[n(t)] \cdot \frac{2\pi d}{\lambda_0}$$

avec :

$$\lambda_0 = \frac{c}{\nu_0}$$

donc :

$$(1.21) \quad \Delta\varphi(t) = \frac{2\pi d}{\lambda_0} n_2 A_0^2 \exp(-2 a^2 t^2) \quad .$$

Cette modulation de phase  $\Delta\varphi(t)$  crée une modulation de la fréquence  $\Delta\omega(t)$  le long de l'impulsion :

$$(1.22) \quad \Delta\omega(t) = \frac{d}{dt} (\Delta\varphi(t))$$

$$(1.23) \quad \Delta\omega(t) = \frac{2\pi d}{\lambda_0} n_2 A_0^2 \frac{d}{dt} [\exp(-2 a^2 t^2)]$$

donc :

$$\Delta\omega(t) = \frac{2\pi d}{\lambda_0} n_2 A_0^2 (-4a^2 t \exp(-2 a^2 t^2))$$

ou bien :

$$(1.24) \quad \Delta\omega(t) = \frac{8\pi d n_2 A_0^2 a}{\lambda_0} \cdot (-at) \exp[-2 (at)^2] \quad .$$

La figure 13 montre la variation de la fréquence instantanée associée au profil temporel de l'impulsion. On voit que la variation de fréquence (souvent appelée "chirp") des impulsions est

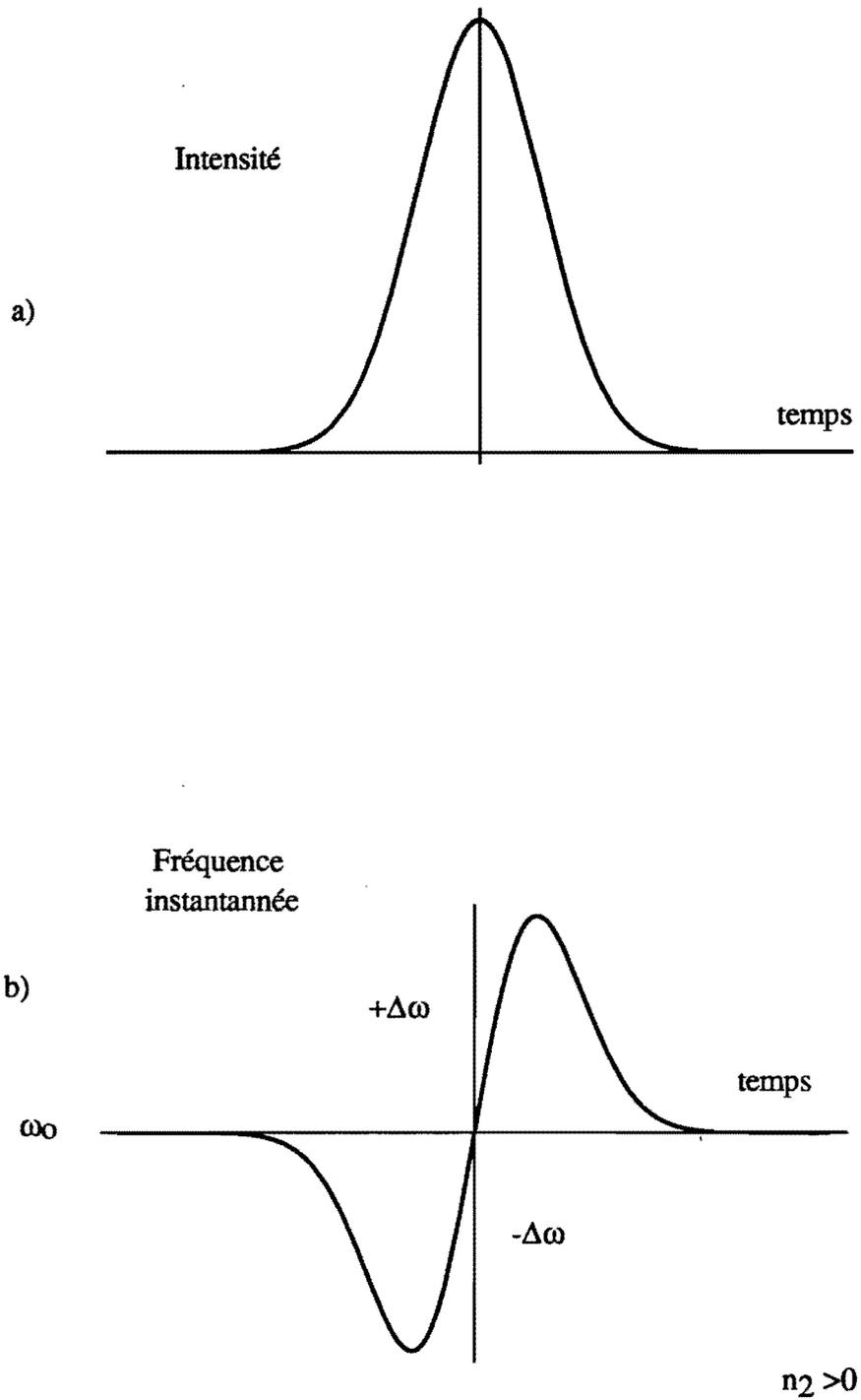
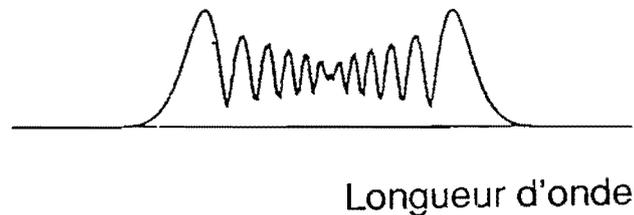


Figure 13 : Profil en intensité de l'impulsion (a) et décalage en fréquence correspondant à l'automodulation de phase (b). L'indice non linéaire du milieu est positif.

approximativement linéaire dans la partie centrale de l'impulsion. La figure 14 représente le spectre  $B(\nu)$  automodulé en phase et le spectre initial de référence (profil gaussien). On voit que l'automodulation de phase provoque un élargissement du spectre. Dans le cas où l'indice non linéaire  $n_2$  est positif (ce qui est vrai pour la plupart des matériaux dans le domaine visible), il y a un glissement vers les grandes longueurs d'onde des fréquences présentes dans le front arrière de l'impulsion (figure 13). L'effet est bien entendu inversé pour des milieux présentant des  $n_2$  négatifs.



*Figure 14 : Simulation du spectre d'une impulsion automodulée en phase.*

Cet élargissement spectral est très intéressant car il permet d'envisager la production d'impulsions courtes. Par contre, il s'accompagne d'une modulation de la fréquence instantanée qu'il est nécessaire de combattre afin de diminuer la largeur temporelle des impulsions. En effet, si le spectre s'est élargi par automodulation de phase, la largeur temporelle des impulsions n'a pas diminué pour autant d'un facteur correspondant car la phase des différentes fréquences n'est pas identique. Pour obtenir des impulsions plus courtes, il faudra mettre les différentes fréquences en phase. On présentera dans le paragraphe I.3.3 un système qui introduit une modulation de signe opposé à celle provenant de l'automodulation de phase et qui permet de produire ainsi des impulsions très courtes.

En général, dans les lasers femtosecondes, le milieu amplificateur et l'absorbant saturable sont des jets de colorants organiques dissous dans des solvants visqueux (souvent de l'éthylène glycol) permettant d'obtenir des jets de bonne qualité optique et bien stables .

L'automodulation de phase dans le laser peut avoir plusieurs origines. Considérons, dans un premier temps, les effets non linéaires dus au solvant. L'éthylène glycol a un indice non linéaire assez faible [11] :

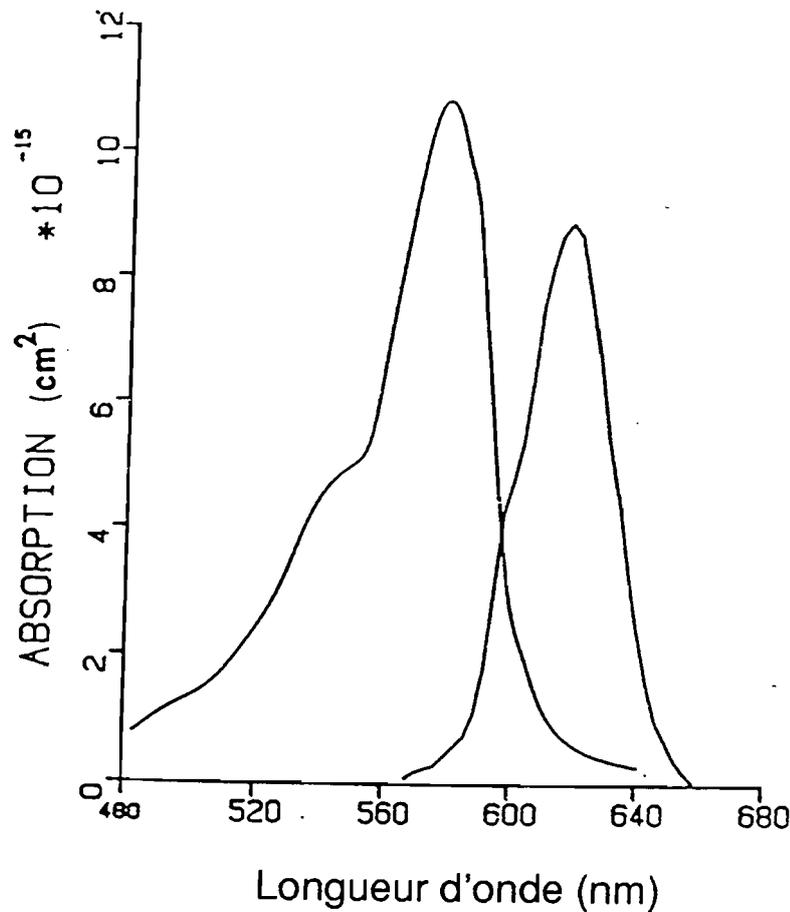
$$n_2 = 3 \cdot 10^{-16} \text{W}^{-1} \text{cm}^2 .$$

Compte-tenu des diamètres des faisceaux laser dans le jet du milieu amplificateur ( $\sim 25 \mu\text{m}$ ) et dans le jet d'absorbant saturable ( $\sim 8 \mu\text{m}$ ) (satisfaisant à la condition de stabilité de G.H.C. New présentée au § I.2.3.), nous pouvons affirmer que les effets non linéaires liés au solvant ne sont importants que dans le jet d'absorbant saturable. C'est en effet l'endroit où la densité de puissance crête est la plus importante.

L'automodulation de phase provient également de la saturation du gain du milieu amplificateur et de l'absorption dans l'absorbant saturable. En effet, l'indice de réfraction d'un milieu est lié à son absorption (ou à son gain) par les relations de Kramers-Kroenig (figure 15). Toute variation de l'absorption (ou du gain) se traduit par une variation de l'indice de réfraction et donc par un  $n_2$  équivalent qui est positif ou négatif [10, 12]. On voit donc que suivant la longueur d'onde à laquelle on travaille, le  $n_2$  équivalent peut changer de signe. Les absorbants saturables présentent généralement un photoisomère [13] et introduisent un  $n_2$  de signe opposé si la longueur d'onde du laser se situe entre les maxima d'absorption de l'absorbant saturable et de son photoisomère. On voit donc qu'en fonction de la longueur d'onde d'émission du laser et des saturations relatives du gain et de l'absorption le  $n_2$  équivalent de la cavité peut être négatif ou positif. Il est donc très difficile de la déterminer expérimentalement et cela a conduit à de nombreuses publications contradictoires [10, 14-17].

Certains auteurs [12,18] ont tenté de modéliser ces phénomènes en introduisant dans leurs modèles l'indice non linéaire. Toutefois les résultats obtenus ne le sont qu'au prix d'importantes approximations. En particulier Martinez et coll. [12] imposent le profil temporel de l'impulsion en sécante hyperbolique ( $1/\text{ch}^2(t/t_0)$ ) et ne vérifient pas l'unicité de la solution obtenue.

Toutefois, toutes les études théoriques ont souligné l'importance d'un autre paramètre important : la dispersion de vitesse de groupe présente dans la cavité du laser. Elles ont montré que les performances du laser dépendaient fortement de la valeur de la dispersion de vitesse de groupe intracavité.



*Figure 15 : Profil d'absorption de la DODCI (maximum à 590 nm) et de son photoisomère (maximum à 620 nm), tiré de la référence [12].*

### **I.3.2. Influence de la dispersion de vitesse de groupe**

Lorsque les impulsions deviennent très courtes ( $< 300$  fs), leur spectre s'élargit et l'on ne peut plus négliger la variation de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde. Les différentes fréquences ne voyant pas le même indice de réfraction, donc pas le même chemin optique, elles voyagent à des vitesses différentes dans la cavité : c'est la dispersion de vitesse de groupe. Ce phénomène se traduit par un allongement de l'impulsion résultant de l'étalement des fréquences le long de son profil temporel.

Nous allons dans un premier temps présenter l'influence d'un élément dispersif sur le profil temporel d'une impulsion. Considérons un élément dont la transmission est caractérisée par une amplitude égale à 1 et un déphasage  $\phi(\omega)$  dépendant de la fréquence de l'onde électromagnétique. Cet élément pourra par la suite être un des miroirs de la cavité, le gain non saturé du milieu amplificateur, les pertes non saturées de l'absorbant saturable ou un matériau transparent placé dans la cavité (jet de colorant, bloc de verre...).

En considérant que le déphasage  $\phi(\omega)$  varie lentement avec  $\omega$ , on peut développer au second ordre  $\phi(\omega)$  par rapport à  $\omega_L$  la fréquence du laser. On a donc :

$$(1.25) \quad \phi(\omega) = \phi(\omega_L) + \left( \frac{d\phi}{d\omega} \right)_{\omega = \omega_L} (\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} \left( \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \right)_{\omega = \omega_L} (\omega - \omega_L)^2 .$$

Considérons une impulsion ultracourte de fréquence centrale  $\omega_L$ . Si l'on suppose que son profil temporel est gaussien, non modulé en fréquence et dont la largeur à mi-hauteur est  $\tau_E$ , le champ électrique de cette impulsion  $E_E$  avant l'élément dispersif vaut :

$$(1.26) \quad E_E(t) = E_0 \exp \left[ - (2 \ln 2) \frac{t^2}{\tau_E^2} \right] \exp (i \omega_L t) .$$

Par transformée de Fourier on obtient la répartition spectrale du champ :

$$(1.27) \quad B_E(\omega) = \text{TF} [E_E(t)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_0 \exp \left( - 2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_E^2} \right) \exp (i \omega_L t) e^{-i\omega t} dt .$$

En posant :  $a = 2\ln 2/\tau_E^2$  et  $\Delta\omega = \omega - \omega_L$ , il vient :

$$(1.28) \quad B_E(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_0 e^{-at^2} e^{-i\Delta\omega t} dt .$$

Or :

$$(1.29) \quad -at^2 - i\Delta\omega t = - \left( \sqrt{a} t + \frac{i\Delta\omega}{2\sqrt{a}} \right)^2 - \frac{(\Delta\omega)^2}{4a} .$$

Avec :

$$u = \sqrt{a} t + \frac{i \Delta \omega}{2\sqrt{a}} \quad \text{et} \quad du = \sqrt{a} dt,$$

on obtient :

$$(1.30) \quad B_E(\omega) = \frac{1}{2\pi\sqrt{a}} E_o e^{-\frac{(\Delta\omega)^2}{4a}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-u^2} du$$

ou :

$$(1.31) \quad B_E(\omega) = \frac{E_o}{2\sqrt{\pi a}} E_o e^{-\frac{(\Delta\omega)^2}{4a}}$$

ou encore :

$$(1.32) \quad B_E(\omega) = \frac{E_o}{2\sqrt{\frac{2\pi \ln 2}{\tau_E}}} \exp\left(-\frac{(\Delta\omega)^2 \tau_E^2}{8 \ln 2}\right)$$

On pose :

$$(1.33) \quad E'_o = \frac{E_o}{2\left(\frac{2\pi \ln 2}{\tau_E}\right)^{1/2}}$$

d'où finalement :

$$(1.34) \quad B_E(\omega) = E'_o \exp\left(-\frac{\Delta\omega^2 \tau_E^2}{8 \ln 2}\right)$$

Après la traversée de l'élément dispersif, les différentes fréquences sont déphasées. Le spectre du champ électrique  $B_S(\omega)$  s'écrit alors :

$$(1.35) \quad B_S(\omega) = B_E(\omega) e^{i\phi(\omega)},$$

soit :

$$(1.36) \quad B_S(\omega) = E'_0 \exp\left(\frac{-\Delta\omega^2 \tau_E^2}{8 \ln 2}\right) \exp\left[i(\phi(\omega_L) + \phi' \Delta\omega + \frac{1}{2} \phi'' \Delta\omega^2)\right]$$

avec :

$$\phi' = \left(\frac{d\phi}{d\omega}\right)_{\omega=\omega_L} \quad \text{et} \quad \phi'' = \left(\frac{d^2\phi}{d\omega^2}\right)_{\omega=\omega_L}.$$

Pour connaître le profil temporel du champ électrique  $E_S(t)$  à la sortie de l'élément dispersif, on applique une transformée de Fourier inverse à  $B_S(\omega)$  :

$$(1.37) \quad E_S(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} B_S(\omega) e^{+i\omega t} d\omega,$$

soit :

$$(1.38) \quad E_S(t) = E'_0 \exp[i(\omega_L t + \phi(\omega_L))] \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left[\frac{-\Delta\omega^2}{4a} + i\frac{1}{2} \phi'' \Delta\omega^2 + i\phi' \Delta\omega + it \Delta\omega\right] d\omega.$$

On pose alors :

$$A = \frac{1}{4a} - i \cdot \frac{\phi''}{2} \quad \text{et} \quad t' = \phi' + t$$

d'où :

$$(1.39) \quad E_S(t) = E'_0 \exp[i(\omega_L t + \phi(\omega_L))] \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp[-A \Delta\omega^2 + it' \Delta\omega] d\omega.$$

En notant que :

$$A \Delta\omega^2 - it' \Delta\omega = \left[ \sqrt{A} \Delta\omega - i \frac{t'}{2\sqrt{A}} \right]^2 + \frac{t'^2}{4A}$$

$$(1.40) \quad E_S(t') = E'_o \exp \left[ i (\omega_L t' + \phi(\omega_L)) - \frac{t'^2}{4A} \right] \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp \left[ - \left( \sqrt{A} \Delta\omega - i \frac{t'}{2\sqrt{A}} \right)^2 \right] d\omega .$$

A étant complexe, on a :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp \left[ - \left( \sqrt{A} \Delta\omega - i \frac{t'}{2\sqrt{A}} \right)^2 \right] d\omega = \frac{1}{\sqrt{|\sqrt{A}|}} \cdot \sqrt{\pi}$$

et le champ  $E_S(t')$  a alors l'expression suivante :

$$(1.41) \quad E_S(t') = \frac{E'_o \sqrt{\pi}}{\sqrt{\frac{1 - 2ia \phi''}{4a}}} \cdot \exp \left[ i (\omega_L t' + \phi(\omega_L)) - \frac{t'^2}{4A} \right] .$$

Or :

$$\frac{t'^2}{4A} = \frac{at'^2}{1 - 2ia \phi''} = \frac{at'^2}{1 + 4a^2 \phi''^2} + \frac{2ia t'^2 \phi''}{1 + 4a^2 \phi''^2}$$

d'où finalement :

$$(1.42) \quad E_S(t') = \frac{2 E'_o \sqrt{\pi A}}{|\sqrt{1 - 2ia \phi''}|} \cdot \exp \left[ i (\omega_L t' + \phi(\omega_L)) \right] \cdot \exp \left( - \frac{at'^2}{1 + 4a^2 \phi''^2} \right) \cdot \exp \left( -i \frac{2a^2 t'^2 \phi''}{1 + 4a^2 \phi''^2} \right) .$$

L'expression (1.42) montre qu'il y a un déphasage constant  $\phi(\omega_L)$  de la porteuse qui correspond à la traversée du milieu. Les termes en  $t'$  indiquent qu'il y a un décalage du maximum

de l'enveloppe temporelle d'une valeur égale à  $\phi'$  et que la largeur à mi-hauteur de l'impulsion en sortie est :

$$(1.43) \quad \tau_S = \sqrt{\frac{1 + 4 a^2 \phi'^2}{a}} \cdot 2 \ln 2 \quad .$$

La dispersion de vitesse de groupe introduit donc un élargissement du profil temporel de l'impulsion donné par :

$$(1.44) \quad \frac{\tau_S}{\tau_E} = \sqrt{\frac{1 + 4 \frac{(2 \ln 2)^2}{4} \phi'^2}{\frac{2 \ln 2}{2} \times \tau_E}} \times 2 \ln 2$$

ou :

$$(1.45) \quad \frac{\tau_S}{\tau_E} = \left( 1 + 4 \frac{(2 \ln 2)^2 \phi'^2}{4 \tau_E} \right)^{1/2} .$$

L'expression (1.42) montre de plus que les différentes fréquences composant l'impulsion ne sont plus en phase mais réparties le long de son profil temporel. On peut exprimer la phase de l'impulsion par :

$$(1.46) \quad \phi(t') = \omega_L t' + \phi(\omega_L) - \frac{2 a^2 t'^2 \phi''}{1 + 4 a^2 \phi'^2} .$$

Sa fréquence instantanée vaut :

$$\omega(t') = \frac{d(\phi(t'))}{dt'}$$

d'où :

$$(1.47) \quad \omega(t') = \omega_L - \frac{4 a^2 t' \phi''}{1 + 4 a^2 \phi'^2} .$$

Donc, la traversée d'un élément dispersif quelconque par une impulsion courte allonge son profil temporel et déphase ses différentes composantes spectrales. C'est le terme  $\phi''$  qui est responsable de ces effets.

Nous allons maintenant évaluer la dispersion de vitesse de groupe introduite par les éléments d'une cavité femtoseconde : colorants, solvants des colorants et miroirs multidiélectriques. L'influence des colorants en tant que milieu amplificateur ou absorbant saturable est séparée de celle du solvant.

Soit un matériau transparent de longueur  $L$  (morceau de verre ou jet de solvant). Le déphasage introduit par la traversée de celui-ci vaut :

$$(1.48) \quad \phi(\omega) = \frac{L \cdot n(\omega) \cdot \omega}{c}$$

avec  $n(\omega)$  l'indice de réfraction du matériau considéré et  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide.

Pour calculer les termes  $\phi' = d\phi/d\omega$  et  $\phi'' = d^2\phi/d\omega^2$ , il est commode de calculer dans un premier temps  $d\phi/d\lambda$  et  $d^2\phi/d\lambda^2$  car on connaît généralement mieux les variations de la phase par rapport à  $\lambda$  plutôt que par rapport à  $\omega$ . Or,  $\phi = 2\pi\rho/\lambda$  avec  $\rho$  le chemin optique traversé. Alors :

$$(1.49) \quad \frac{d\phi}{d\omega} = \frac{d\phi}{d\lambda} \cdot \frac{d\lambda}{d\omega} = \frac{2\pi d \left( \frac{\rho}{\lambda} \right)}{d\lambda} \cdot \frac{d\lambda}{d\omega}$$

donc :

$$(1.50) \quad \frac{d\phi}{d\omega} = 2\pi \left[ \frac{1}{\lambda} \left( \frac{d\rho}{d\lambda} \right) - \frac{\rho}{\lambda^2} \right] \cdot \left( \frac{-\lambda^2}{2\pi c} \right)$$

d'où :

$$(1.51) \quad \frac{d\phi}{d\omega} = \left[ \frac{\rho}{c} - \frac{\lambda}{c} \left( \frac{d\rho}{d\lambda} \right) \right]$$

de même, on calcule que :

$$(1.52) \quad \frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \left( \frac{d^2\rho}{d\lambda^2} \right) .$$

Or, pour le matériau considéré :

$$(1.53) \quad \rho = nL$$

d'où :

$$(1.54) \quad \frac{d^2\rho}{d\omega^2} = \frac{d^2n}{d\lambda^2} \cdot L$$

et donc :

$$(1.55) \quad \frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3 L}{2\pi c^2} \cdot \frac{d^2n}{d\lambda^2} .$$

A partir de l'expression (1.55) il est maintenant facile de déterminer la dispersion introduite par tout élément en verre ou par un jet placé dans la cavité.

Considérons par exemple un jet d'éthylène glycol d'épaisseur  $E = 200 \mu\text{m}$  (cas du jet du milieu amplificateur) incliné à l'angle de Brewster  $\theta_B$  ( $55^\circ$ ) pour diminuer les pertes par réflexion de Fresnel dans la cavité. La largeur effective  $L$  traversée par l'impulsion est  $L = E/\cos\theta_B$ . Des valeurs de l'indice de réfraction de l'éthylène glycol [19] on peut déduire :

$$\left( \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right)_{\lambda=620\text{nm}} = 1,8 \cdot 10^{11} \text{m}^{-2}$$

et donc :

$$\left( \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \right) = 8,4 \cdot 10^{-30} \text{s}^2 = 8,4 \text{fs}^2 .$$

Considérons maintenant la dispersion anormale provenant des pertes ou du gain non saturé dans le milieu amplificateur ou l'absorbant saturable. Soit une transition entre deux niveaux centrée autour de la fréquence  $\omega_0$  caractérisée par un profil Lorentzien. L'indice de réfraction du milieu concerné  $n(\omega)$  est donné par :

$$(1.56) \quad n(\omega) = n_0 + \frac{\pi}{2} (\omega_0 - \omega) \cdot (c/\omega_0) \cdot g(\omega_0 - \omega) \alpha$$

avec :

$n_0$  : indice de réfraction linéaire du solvant,

$\alpha$  : coefficient d'absorption (positif) ou de gain (négatif) au maximum de la transition, et :

$$g(\omega - \omega_0) = \frac{2}{\pi \Delta \omega_0} \left[ 1 + \left[ \frac{2(\omega_0 - \omega)}{\Delta \omega_0} \right]^2 \right]$$

fonction lorentzienne et  $\Delta \omega_0$  la largeur de la transition.

Pour calculer le terme  $\phi''$  de la dispersion, on reprend la formule (1.48) et on dérive deux fois par rapport à  $\omega$ . On obtient :

$$(1.57) \quad \frac{d^2 \phi}{d\omega^2} = \frac{Le}{\omega} \left( 2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2 n}{d\omega^2} \right)$$

et on y insère la valeur de  $n$  de l'expression (1.56).

La figure 16 montre les résultats obtenus pour la Rhodamine 6G, le DODCI (3,3'-diéthyl-oxadicyanine iodide), et son photoisomère, qui sont les colorants amplificateur et absorbant saturable utilisés dans le laser. Pour les longueurs d'onde d'émission du laser comprises entre 610 et 630 nm seuls le DODCI et son photoisomère apportent une contribution de signe opposé à la dispersion et semblent s'annuler. Toutefois, comme il est difficile de connaître la proportion de DODCI convertie en photoisomère (son existence dans l'éthylène glycol est même parfois remise en cause [20]), il est donc très difficile d'évaluer la valeur de la dispersion de vitesse de groupe équivalente.

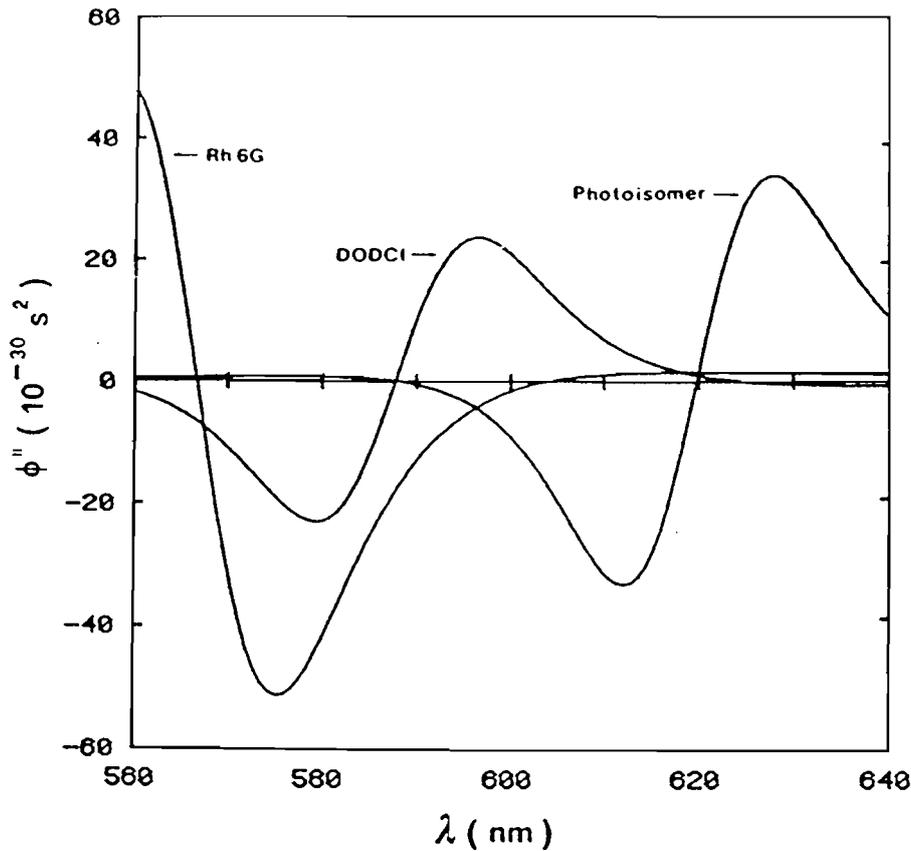


Figure 16 : Dispersion d'ordre 2 ( $\phi''$ ) de la Rhodamine 6G, de DODCI et de son photoisomère tiré de la référence [21].

Les miroirs multidiélectriques utilisés dans la cavité introduisent également de la dispersion de vitesse de groupe. L'onde réfléchi sur le miroir résulte des interférences constructives entre les multiples réflexions sur chaque couche formant celui-ci. L'onde se propage donc à travers les matériaux constituant les différentes couches. La réflexion introduit un déphasage  $\phi(\omega)$  et donc une dispersion  $\phi''(\omega)$  dépendant du spectre du laser. Un miroir multidiélectrique est composé d'un certain nombre de couches, d'indice de réfraction successivement haut (H) et bas (B) et d'épaisseur optique  $\lambda_m/4$  avec  $\lambda_m$  longueur d'onde résonnante du miroir (correspondant au centre de la bande de réflexion du miroir). On utilise en général pour décrire l'empilement la représentation suivante [air] [HB]<sup>N</sup> [H] [substrat] avec [HB]<sup>N</sup> représentant N paires de couches haut et bas indice.

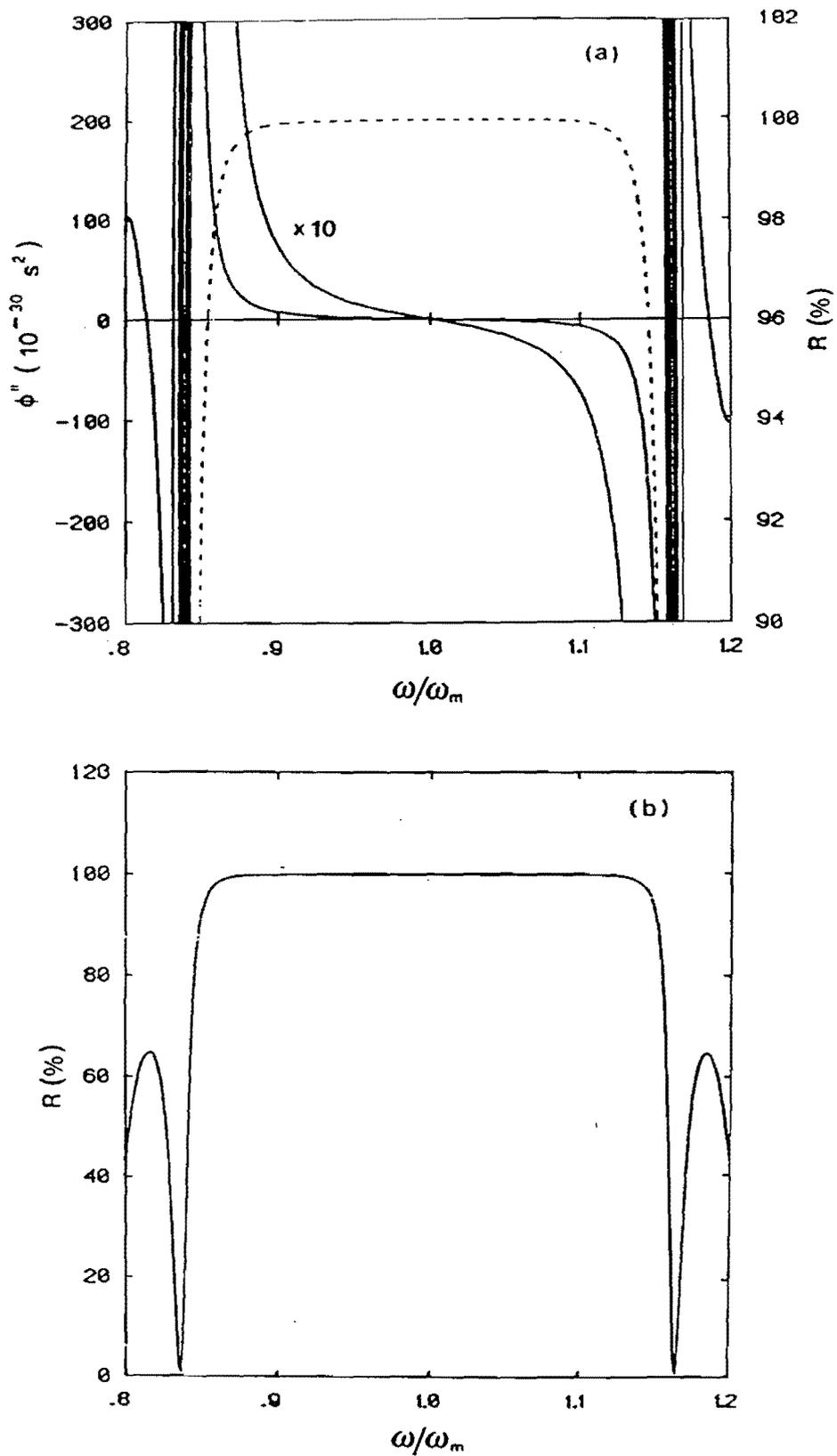


Figure 17 : Coefficient de réflexion (b) et dispersion de groupe ( $\phi''$ ) en fonction de  $\omega/\omega_m$ . Le miroir est constitué de 23 couches de haut ( $n_H = 2,28$ ) et bas ( $n_B = 1,45$ ) indice de réfraction d'après [21].

Le calcul de la valeur du coefficient de réflexion est basé sur l'utilisation des conditions aux limites à l'interface des couches et est dérivé des équations de Maxwell [22]. La phase  $\phi(\omega)$  et la dispersion  $d^2\phi/d(\omega/\omega_m)^2$  sont évaluées numériquement en fonction de  $\omega/\omega_m$  avec  $\omega_m$  fréquence centrale du miroir. La figure 17 représente le coefficient de réflexion et la dispersion en fonction de  $\omega/\omega_m$  pour un empilement de  $2N + 1 = 23$  couches de  $\text{SiO}_2$  ( $n_B = 1,45$ ) et  $\text{TiO}_2$  ( $n_H = 2,28$ ). La dispersion est nulle pour  $\omega/\omega_m$  et augmente rapidement en valeur positive ou négative suivant que l'on s'éloigne vers les basses ou les hautes fréquences.

On en déduit qu'il faut utiliser des miroirs ayant leur résonance centrée sur la longueur d'onde du laser pour introduire le moins de dispersion possible. Toutefois, il serait illusoire de penser qu'on n'introduira aucune dispersion pour  $\omega_{\text{Laser}} = \omega_m$  car le spectre des impulsions femtosecondes est très large (plusieurs nanomètres). Lorsque le miroir est utilisé sur l'un des deux bords de sa bande de réflectivité, la dispersion introduite à la réflexion est importante et peut modifier fortement le profil temporel de l'impulsion.

La figure 18 montre l'autocorrélation d'une impulsion de 60 fs après réflexion sur un miroir présentant une dispersion positive importante. On voit que l'autocorrélation possède des pieds car la réflexion introduit une modulation de la phase spectrale de l'impulsion.

Nous venons de voir que tous les éléments présents dans la cavité laser introduisent de la dispersion (positive ou négative). Pour espérer produire des impulsions très courtes, nous allons présenter dans le paragraphe suivant une méthode permettant de compenser la dispersion de vitesse de groupe positive à l'aide de miroirs ou d'un système de quatre prismes.

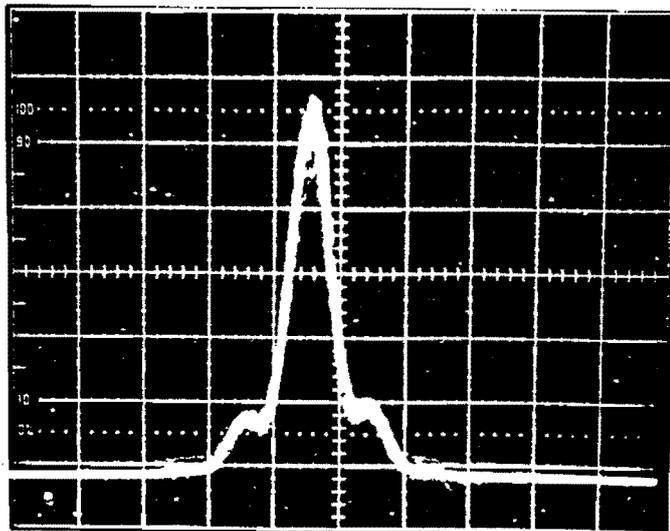


Figure 18 : Autocorrélation d'une impulsion de 60 fs après réflexion sur un miroir présentant de la dispersion de vitesse de groupe importante.

### **I.3.3. Compensation de la dispersion de vitesse de groupe**

#### ***I.3.3.1. Compensation à l'aide des miroirs de la cavité***

On a vu au paragraphe précédent que l'utilisation de miroirs dont la longueur d'onde de résonance est plus faible que la longueur d'onde du laser introduisait de la dispersion de vitesse de groupe négative. On peut donc imaginer qu'en utilisant plusieurs de ces miroirs, on peut parvenir à ajuster la dispersion intracavité et produire des impulsions très courtes. Yamashita et coll. [23] ont développé un laser femtoseconde dans lequel la dispersion est ajustée à l'aide de miroirs. En faisant varier l'angle d'incidence des faisceaux sur un des miroirs ils obtiennent un réglage suffisamment fin pour produire des impulsions de durée inférieure à 60 fs. Toutefois, ce type d'ajustement est assez délicat à maîtriser à long terme car la dispersion dépend de la saturation de l'absorbant saturable donc de sa concentration. Il faut alors souvent réajuster la position du miroir car les paramètres du laser évoluent constamment. Si une telle procédure peut se concevoir en laboratoire avec des expérimentateurs connaissant parfaitement leur système elle n'est pas envisageable si l'on raisonne en terme de produit commercial.

#### ***I.3.3.2. Compensation par miroirs interférométriques***

F. Gires et P. Tournois [24] ont introduit en 1964 une ligne à retard à dispersion négative basée sur l'utilisation de miroirs multidiélectriques. La dispersion des déphasages rencontrés par les différentes composantes spectrales permet d'obtenir une dispersion négative dans certaines conditions d'incidence sur les miroirs. Un tel dispositif a été utilisé dans un laser produisant des impulsions femtosecondes par J. Heppner et J. Kuhl [25]. Si ce dispositif présente l'avantage d'être compact et de n'introduire pratiquement aucune perte, il a l'inconvénient d'être complexe à réaliser car il nécessite de bien maîtriser la technique de dépôt de couches diélectriques. De plus, il ne permet pas facilement de régler finement la dispersion, c'est la raison pour laquelle nous n'avons pas envisagé d'utiliser un tel système pour le laser.

### 1.3.3.3. Compensation à l'aide d'un système de prismes

Pour introduire une dispersion de vitesse de groupe ajustable Fork et coll. [26], en 1984, ont utilisé une idée de Treacy [27] basée sur l'utilisation de réseaux. Ils ont remplacé les réseaux par des prismes plus simples à réaliser et présentant beaucoup moins de pertes, ce qui est essentiel si on veut introduire un tel système dans une cavité laser.

L'arrangement des prismes est présenté sur la figure 19. Son principe est le suivant : les différentes longueurs d'onde du spectre de l'impulsion sont déviées différemment par le premier prisme et ne traversent pas dans le deuxième prisme la même quantité de verre. Les basses fréquences traversent plus de verre que les hautes fréquences et parcourent donc un trajet optique plus grand. Elles sont donc retardées par rapport aux hautes fréquences. Le passage des impulsions dans un tel système permet de compenser la dispersion de vitesse de groupe positive due à l'automodulation de phase et aux éléments constituant la cavité. Pour éviter que les différentes fréquences soient étalées spatialement (chromatisme spatial), une deuxième paire de prismes, analogue à la première, est utilisée pour recollimater le faisceau. De plus, ce système de quatre prismes ne dévie pas la direction du faisceau incident et ne modifie pas la géométrie de la cavité.

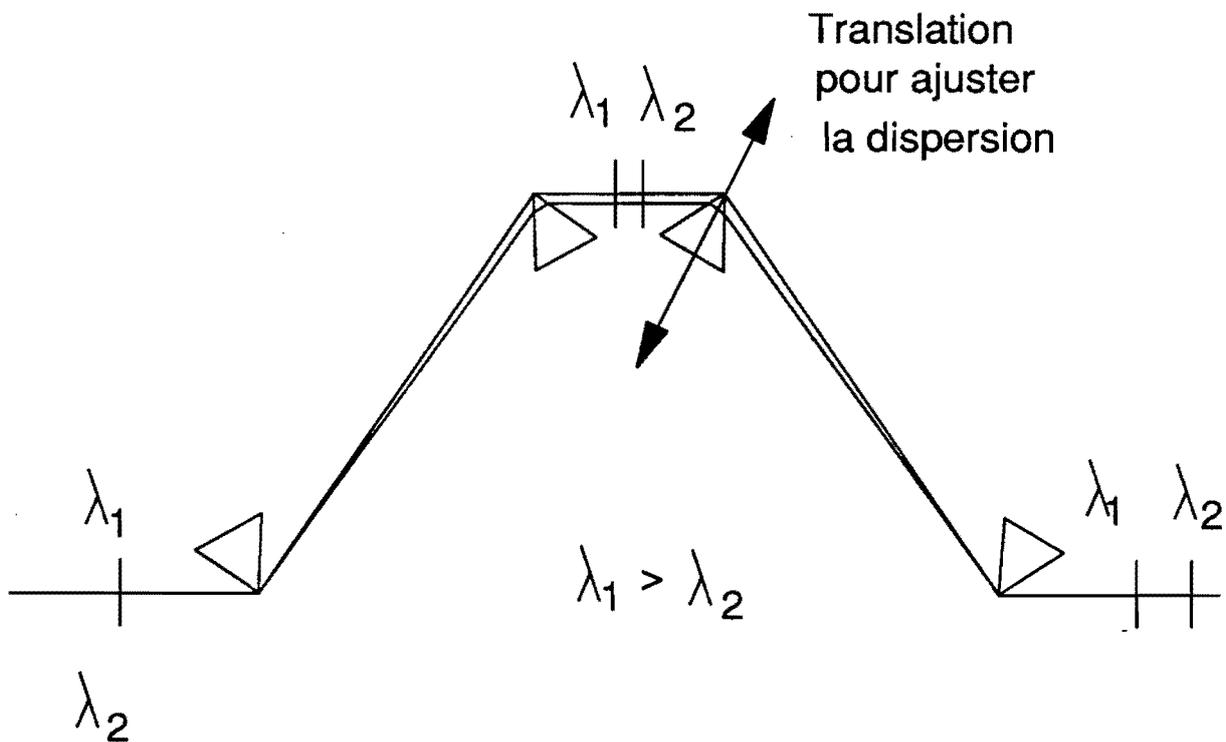


Figure 19 : Principe de la ligne à retard dispersive utilisant quatre prismes.

Après avoir décrit le principe de fonctionnement d'un système de quatre prismes à dispersion négative, nous allons présenter le calcul de la dispersion introduite par un tel système. Nos calculs sont basés sur ceux de Fork et coll. [26] mais ne comportent aucune approximation autre qu'un développement à l'ordre 2 de la phase.

Nous avons vu au paragraphe I.3.2. que pour calculer la dispersion  $d^2\phi/d\omega^2$  introduite par un système optique, il faut calculer le chemin optique  $\rho(\lambda)$  et  $d^2\rho/d\lambda^2$ . On a montré (formule 1.52) que :

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2\rho}{d\lambda^2} .$$

Pour exprimer la valeur du chemin optique  $\rho$ , pour une paire de prismes, on se base sur les notations de la figure 20. On a :

$$(1.58) \quad P(\lambda) = \frac{\lambda}{2\pi} (\vec{k}_1 \cdot \vec{AB} + \vec{k}_2 \cdot \vec{BC} + \vec{k}_1 \cdot \vec{CD})$$

avec  $k_1$  et  $k_2$  les vecteurs d'onde respectivement dans le verre et dans l'air :

$$(1.59) \quad \|\vec{k}_1\| = \frac{2\pi n(\lambda)}{\lambda} \quad \text{et} \quad \|\vec{k}_2\| = \frac{2\pi n_a(\lambda)}{\lambda} .$$

On suppose que l'indice de l'air  $n_a(\lambda) = 1$ .

Avec les notations de la figure 20, on obtient :

$$(1.60) \quad P(\lambda) = h \cdot n(\lambda) \cos r + d \cos i'$$

avec :

$$(1.61) \quad h = AB + CD .$$

On se place dans la situation réalisée expérimentalement où les prismes sont utilisés à la fois au minimum de déviation et à l'incidence de Brewster d'où :

$$(1.62) \quad n(\lambda_0) = n_0 = \frac{1}{\operatorname{tg}(\alpha/2)}$$

avec  $\lambda_0 = 620 \text{ nm}$ .

$$(1.63) \quad h = (L + e) \sin \alpha \cos \frac{\alpha}{2}$$

$$(1.64) \quad e = EF + HG \quad .$$

$$(1.65) \quad d = (L - e) \sin \frac{\alpha}{2}$$

$$(1.66) \quad i' = \frac{\pi}{2} - \alpha/2$$

$$(1.67) \quad r = \alpha/2$$

$$(1.68) \quad \sin i' = n \sin r \quad .$$

Si l'on pose :

$$(1.69) \quad n'_0 = \left( \frac{dn}{d\lambda} \right)_{\lambda=\lambda_0} \quad \text{et} \quad n''_0 = \left( \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right)_{\lambda=\lambda_0}$$

on obtient :

$$(1.70) \quad \frac{d^2\rho}{d\lambda^2} = \frac{n''_0}{n'_0} \frac{d\rho}{d\lambda} + 4 n_0^2 \left[ -L + e \left( 1 - \frac{1}{n_0^2(1+n_0^2)} \right) \right]$$

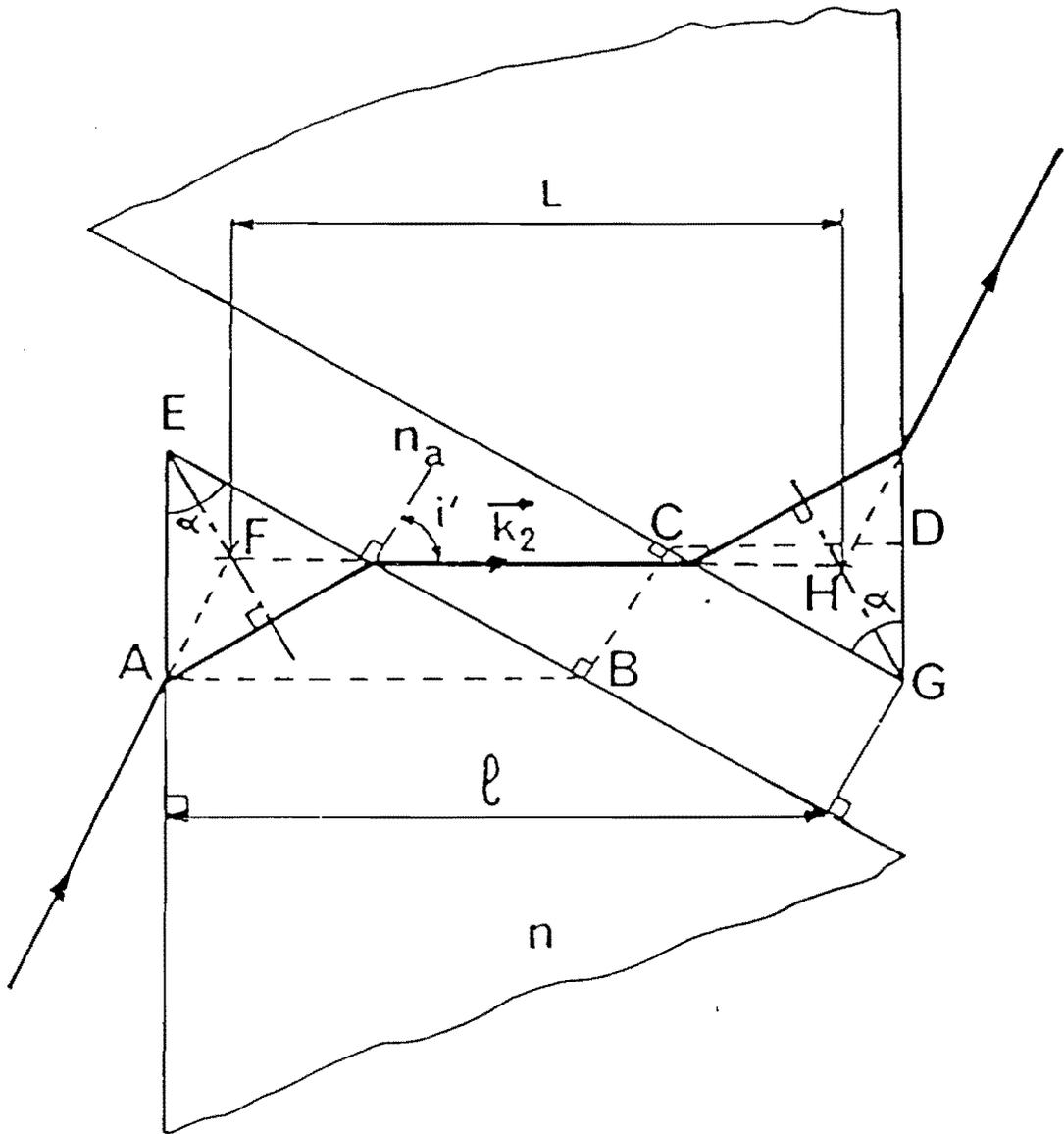


Figure 20 : Construction géométrique permettant d'accéder à  $\rho(\lambda)$ .

avec :

$$(1.71) \quad \frac{d\rho}{d\lambda} = \frac{4e n n'_o}{(n_o^2 + 1)}$$

Pour quatre prismes, il suffit de doubler cette quantité. En utilisant la formule (1.52) on trouve finalement :

$$(1.72) \quad \phi'' = \left( \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \right)_{4 \text{ prismes}} = \frac{4\lambda_o^3}{\pi c^2} \left[ -L n_o'^2 + e \left[ \frac{n_o n''_o}{1 + n_o^2} + n_o'^2 \left( 1 - \frac{1}{n_o^2(1 + n_o^2)} \right) \right] \right] .$$

$\phi''$  est du type A.e-B.L avec A et B constantes positives dépendant du matériau utilisé et de la longueur d'onde. La formule (1.72) montre que la valeur de la dispersion introduite par le système de quatre prismes dépend de L, la distance entre les deux prismes, et de e l'épaisseur de verre traversée dans deux prismes. Les valeurs  $n_o$ ,  $n'_o$  et  $n''_o$  sont calculées à partir des coefficients d'Abbe fournis par les fabricants de verre (Sovirel ou Schott). Pour la silice, à 620 nm, on obtient  $n_o = 1,4634$ ,  $n'_o = -31685 \text{ m}^{-1}$  et  $n''_o = 1,358 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-2}$ , d'où :

$$(1.73) \quad \phi'' = 2,161 \cdot 10^{-25} e - 3,385 \cdot 10^{-27} L$$

avec e et L en m et  $\phi''$  en  $s^2$ .

Le système de quatre prismes permet donc de compenser parfaitement au second ordre toute dispersion en jouant sur les paramètres L et e. En particulier, la dispersion est ajustée finement en tradant un prisme perpendiculairement à sa base (voir figure 19). Dans ce cas, le réglage géométrique du laser est conservé. La formule (1.72) indique également que la dispersion d'un système à prismes dépend de la nature du milieu du matériau utilisé pour les prismes .

La figure 21 montre la distance L entre les prismes nécessaire pour compenser une même dispersion ( $\phi'' = 2000 \text{ fs}^2$ ) en fonction de l'indice  $n_o$  du verre utilisé. L'épaisseur de verre traversé est la même (4mm) pour tous les types de verre. On s'aperçoit qu'entre la silice (indice 1,45) et un verre d'indice 1,73, la distance est diminuée d'un facteur 2 environ. Le système de prismes est alors plus compact ce qui est très intéressant dans le cadre d'un ensemble commercialisé. Toutefois, il est nécessaire de vérifier la qualité optique de ces verres d'indices plus élevés (diffusion, transmission). De plus, lorsque l'indice est élevé, la variation de  $\phi''$  avec e est plus rapide et le système risque d'être plus critique à régler. Par exemple dans le cas du verre FED D 4028 de Sovirel, d'indice 1,736 à 620 nm, la dispersion vaut :  $\phi'' = 7,52 \cdot 10^{-25} e - 3,861 \cdot 10^{-26} L$ . Il y a un facteur 3,6 entre les coefficients de e pour la silice et ce verre. Il y aura donc un compromis à déterminer entre l'encombrement du système et la finesse des réglages.

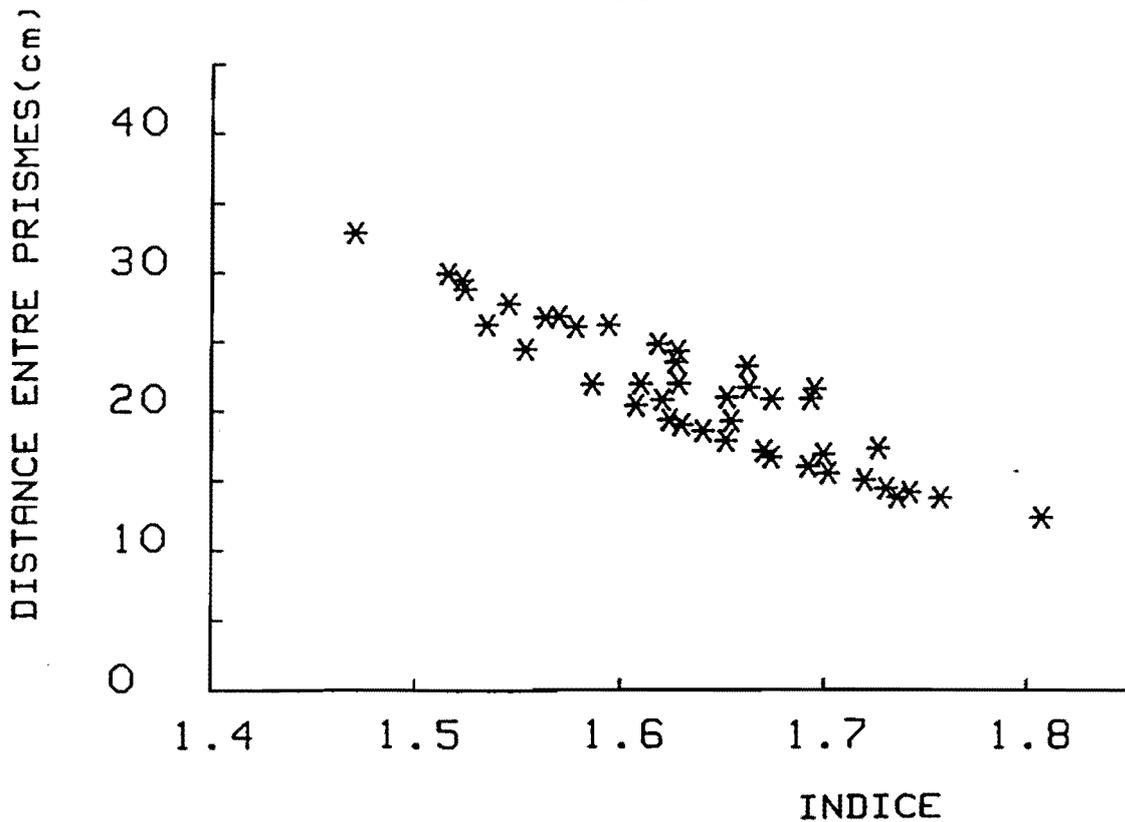


Figure 21 : Variation de la distance  $L$  entre les prismes nécessaire à compenser une même valeur de dispersion de vitesse de groupe en fonction de l'indice de réfraction du matériau utilisé. La valeur de l'épaisseur de verre traversée ( $e$ ) est maintenue constante et égale à 4 mm pour deux prismes.

#### 1.3.4. Mesure des impulsions

Avant de présenter les étapes qui ont mené à la réalisation du laser femtoseconde, il faut d'abord décrire la technique utilisée pour mesurer des largeurs temporelles d'impulsions de l'ordre de 100 fs. A cette échelle de temps, aucun système électronique ne peut résoudre temporellement de telles impulsions. Les oscilloscopes à échantillonnage associés aux photodiodes rapides sont limités à 30 ps et la résolution temporelle des caméras à balayage de fente est de 500 fs pour la plus performante (Hamamatsu). Il est donc nécessaire de faire des mesures indirectes.

Le principe consiste à transformer l'information temporelle (impulsion de 100 fs) en une information spatiale (paquet de lumière de 30  $\mu\text{m}$ ) qui sera relativement plus facile à mesurer. De nombreuses méthodes ont été proposées théoriquement pour caractériser les impulsions courtes [28-31] et quelques unes ont été réalisées expérimentalement [32-34]. En particulier, la fluorescence à deux photons [35] et le doublage de fréquence [36-38] sont les plus utilisées.

La fluorescence à deux photons consiste à diviser une impulsion en deux répliques identiques. Les deux faisceaux ainsi formés se croisent dans un milieu présentant de la fluorescence à deux photons [figure 22]. Le signal de fluorescence est émis à l'endroit où les deux impulsions se

croisent. La largeur spatiale de la fluorescence est directement liée à la largeur temporelle des impulsions. Cette méthode présente l'avantage qu'une seule impulsion soit nécessaire pour obtenir tout le signal. Malheureusement, elle est assez difficile à mettre en oeuvre pour des impulsions très courtes ( $< 1$  ps) et surtout présente un rapport signal à bruit relativement faible.

L'autre technique, appelée autocorrelation optique qui a été développée dans tous les laboratoires est basée sur la génération de second harmonique. Cette méthode, bien que présentant des inconvénients assez importants, a l'avantage d'être assez simple à mettre en oeuvre et de permettre de mesurer des impulsions extrêmement courtes ( $< 10$  fs). De plus, utilisée par tous les laboratoires au monde, elle permet aux chercheurs de comparer directement leurs résultats.

Le principe de l'autocorrélateur optique est le suivant. Une impulsion est divisée en deux parties égales par une lame semi-réfléchissante [figure 23]. Les deux faisceaux décalés spatialement mais parallèles entre eux, se croisent au foyer d'une lentille en faisant un angle  $\theta$ . Dans le plan focal de la lentille on place un cristal non linéaire de KDP (phosphate dihydrogéné de potassium) qui est orienté de telle façon que le doublage de fréquence soit maximum dans la direction de la bissectrice des deux faisceaux incidents. L'un des deux faisceaux se réfléchit sur un coin de cube monté sur un pot vibrant à 30 Hz. Le déplacement du coin de cube introduit donc un retard  $\tau$  sur la voie 2.

Le faisceau U.V. (310 nm) est proportionnel au produit des intensités lumineuses à 620 nm qui se croisent dans le cristal. La quantité d'UV produite sera alors proportionnelle à  $I_1(t) I_2(t - \tau)$  (avec  $\tau$  le décalage temporel existant entre les deux impulsions). Le détecteur utilisé (photomultiplicateur) ne permet d'accéder qu'au signal intégré :

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t) I_2(t - \tau) dt$$

$S(\tau)$  est proportionnel à l'autocorrélation d'ordre deux  $G_2(\tau)$  du profil temporel de l'impulsion incidente, avec :

$$(1.74) \quad G_2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I(t) I(t - \tau) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t) dt} .$$

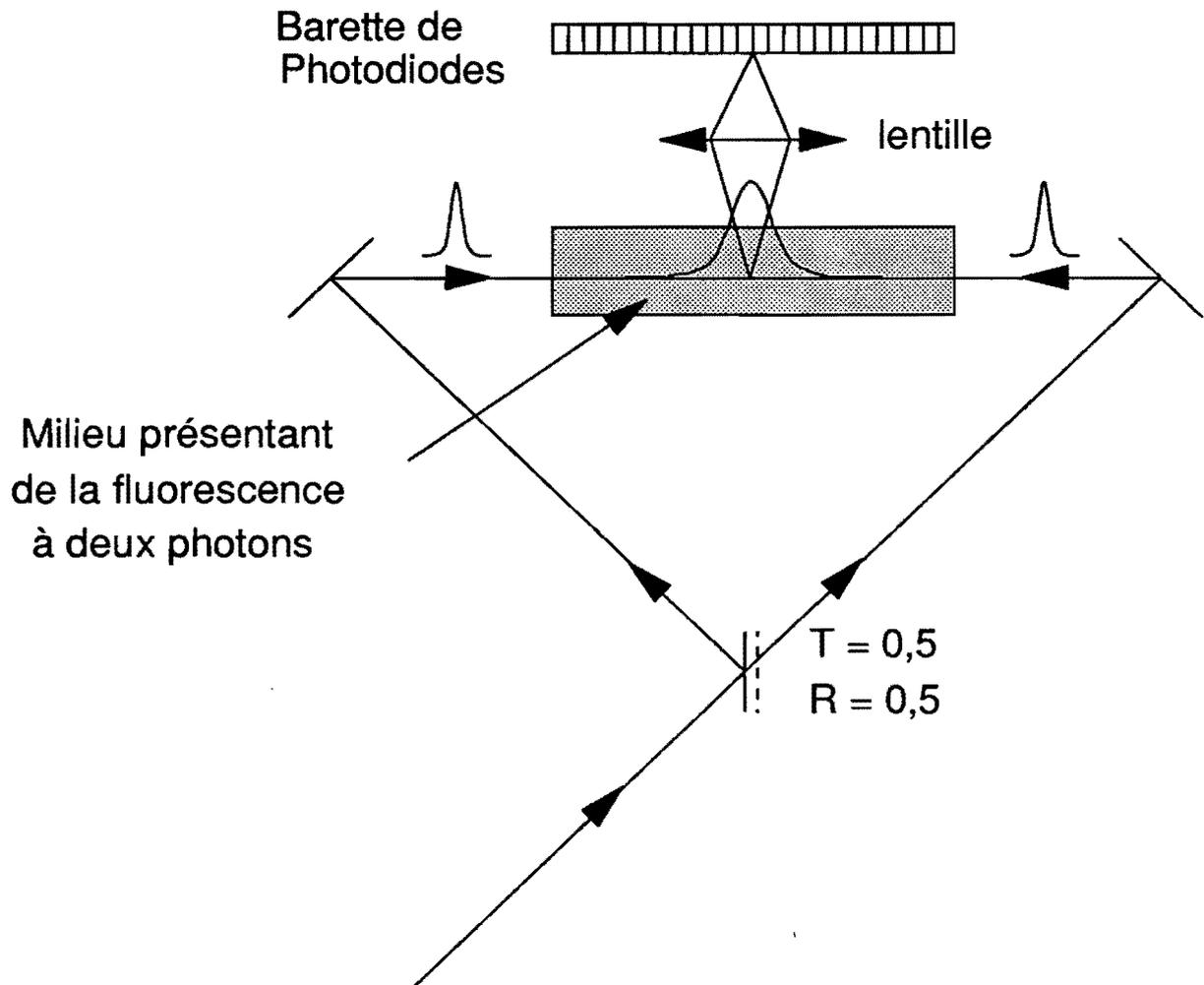


Figure 22 : Principe de la mesure d'une impulsion par la méthode de la fluorescence à deux photons.

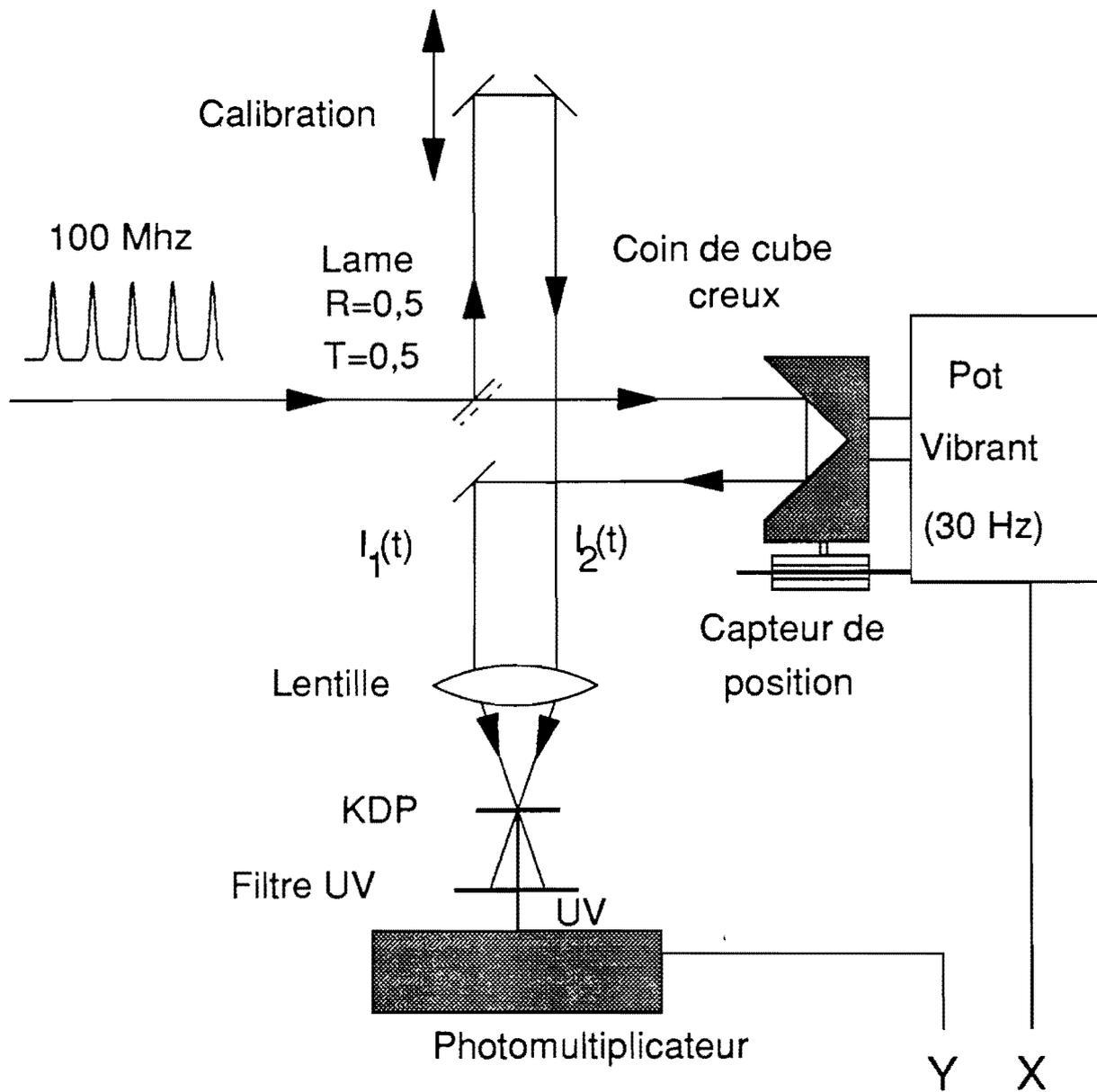


Figure 23 : Schéma de principe d'un autocorrélateur optique.

Les lasers subpicosecondes délivrent en général un train d'impulsions très courtes ( $< 1$  ps) séparées de quelques nanosecondes. Pour obtenir la fonction d'autocorrélation, on fait varier très lentement la longueur d'un des bras de l'autocorrélateur. On obtient pour chaque impulsion initiale arrivant dans l'autocorrélateur un signal proportionnel à la surface commune des deux impulsions incidentes sur le cristal. On a donc un échantillonnage de la fonction d'autocorrélation. Si le photomultiplicateur a une bande passante inférieure à la fréquence de répétition des impulsions on obtient sur un oscilloscope la fonction d'autocorrélation d'ordre deux.

Le signal issu du photomultiplicateur est appliqué sur la voie Y d'un oscilloscope et la position du coin de cube monté sur un pot vibrant à 30 Hz, donnée par un capteur de position selfique, sur la voie X. La calibration s'effectue en déplaçant d'une quantité connue le bras fixe de l'autocorrélateur et en mesurant le déplacement de la fonction d'autocorrélation sur l'écran de l'oscilloscope. En se rappelant que la lumière parcourt  $30 \mu\text{m}$  en 100 fs on obtient facilement une calibration de la fonction d'autocorrélation.

Toutefois, il faut noter que cette méthode présente quelques inconvénients. En effet, l'autocorrélation d'ordre 2 ne donne pas toutes les informations sur la forme de l'impulsion : elle est, par définition, toujours symétrique, même dans le cas d'une impulsion dissymétrique. Nous ne pourrions donc pas obtenir d'informations sur les éventuelles dissymétries du profil temporel des impulsions.

De plus, la largeur temporelle de l'autocorrélation  $\Delta\tau$  dépend du profil temporel exact de l'impulsion à mesurer. Donc une fois la largeur temporelle de l'autocorrélation mesurée, il est nécessaire de faire une hypothèse sur le profil temporel de l'impulsion pour remonter à sa largeur  $\Delta t$ . Le tableau 2 présente le rapport  $\Delta\tau/\Delta t$  pour différents profils temporels. Pour comparer les résultats entre les différents laboratoires, la communauté scientifique a l'habitude de supposer le profil temporel de l'impulsion en  $1/\text{ch}^2(1,76t/\Delta t)$  ce qui donne un rapport  $\Delta\tau/\Delta t$  égal à 1,55. On doit remarquer que parmi les profils envisageables, ce choix débouche sur les durées d'impulsions les plus courtes.

Il faut noter également que les profils expérimentaux des fonctions d'autocorrélations ne nous permettent pas de déduire le profil temporel de l'impulsion. Les différences entre la fonction d'autocorrélation d'une impulsion gaussienne ou d'une impulsion en sécante hyperbolique sont très faibles. Enfin, la fonction d'autocorrélation étant construite à partir d'un nombre élevé d'impulsions, le résultat obtenu n'est qu'une valeur statistique moyenne de la largeur des impulsions. Toute variation rapide du profil temporel (comme dans le cas du fonctionnement en régime soliton par exemple [38]) est difficile à analyser.

I(t)	$\Delta\tau/\Delta t$
1 $(-\Delta t/2 \leq t \leq \Delta t/2)$	1
$\exp\left(\frac{-(4\ln 2) t^2}{\Delta t^2}\right)$	$\sqrt{2}$
$\text{sech}^2\left[\frac{1,76t}{\Delta t}\right]$	1,55
$\exp\left[\frac{-(\ln 2)t}{\Delta t}\right]$ $(t > 0)$	2

Tableau 2 : Comparaison entre la largeur de l'autocorrélation ( $\Delta\tau$ ) et la durée des impulsions ( $\Delta t$ ) pour différents profils temporels.

On a vu au paragraphe I.3.2. que la traversée d'un élément dispersif introduisait une modulation de fréquence de l'impulsion et élargissait l'impulsion. Afin de réduire au maximum la dispersion dans l'autocorrélateur et ne pas perturber la mesure, nous utilisons un coin de cube creux et une lame semi-réfléchissante mince.

Un autre problème rencontré provient de la largeur des spectres à doubler (quelques nanomètres). Il faut que l'accord de phase, dans le cristal soit effectif pour tout le spectre. Dans notre cas, le doublage est du type I [39], c'est-à-dire qu'on oriente le cristal de KDP de telle façon que l'indice ordinaire à 620 nm soit égal à l'indice extraordinaire à 310 nm. Les vitesses de propagation dans le cristal à  $\omega$  et à  $2\omega$  ne sont pas identiques pour toutes les longueurs d'onde du spectre. Il faut donc limiter la longueur d'interaction pour ne pas introduire une modification de la fonction d'autocorrélation [40]. Toutefois Weiner et coll. [41] ont montré que la fonction d'autocorrélation d'impulsions de 20 fs est sensiblement identique lorsqu'on utilise des cristaux de KDP d'épaisseurs variant de 1 mm à 100  $\mu\text{m}$ .

Nous avons tenu à vérifier expérimentalement ces observations. Nous avons donc mesuré des impulsions de 50 fs à 800 nm (voir chapitre 3) dont le spectre avait une largeur d'environ 14 nm avec successivement un cristal de KDP de 300  $\mu\text{m}$  et un de 50  $\mu\text{m}$ . Les largeurs à mi-hauteur des autocorrélations sont sensiblement égales [figure 24]. Nous avons seulement observé un peu plus de pieds dans le profil de l'autocorrélation obtenue avec le cristal épais. Il faut remarquer que même avec le cristal mince, il subsiste des pieds dans l'autocorrélation qui correspondent d'une part à la dispersion de l'autocorrélateur (lame semi transparente, lentille) et d'autre part à des fréquences mal

verrouillées en phase du spectre. Donc l'épaisseur du KDP ne constitue pas dans notre cas une limitation pour la mesure d'impulsions courtes.

Après avoir analysé les différents effets présents dans le laser femtoseconde et présenté les techniques de mesure des impulsions, nous allons aborder la réalisation proprement dite du laser.

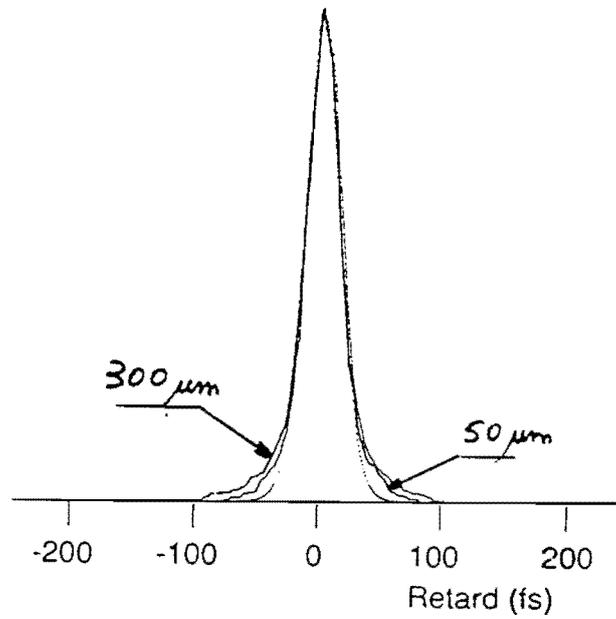


Figure 24 : Autocorrélation d'une impulsion de 50 fs enregistrée avec deux cristaux de KDP d'épaisseurs différentes (300  $\mu\text{m}$  et 50  $\mu\text{m}$ ). Le profil théorique de l'autocorrélation d'une impulsion en sécante hyperbolique de 50 fs est donné pour comparaison.

## CHAPITRE II

# **REALISATION D'UN LASER A COLORANT FEMTOSECONDE A VERROUILLAGE DE MODES PASSIF**



## II.1. INTRODUCTION

### ETUDE DU COMPORTEMENT DE LA CAVITE LINEAIRE

Dans ce chapitre, nous présentons les différentes étapes qui ont permis d'aboutir à la réalisation d'un laser à colorant produisant des impulsions inférieures à 80 fs. Rappelons que le but final était de mettre au point une source d'impulsions femtosecondes commercialisable à un prix relativement faible comparé aux systèmes existants sur le marché (système de pompage synchrone). Pour diminuer les coûts, la cavité du laser femtoseconde a été réalisée à partir d'un laser à colorant commercialisé par la Société COHERENT (U.S.A.) : modèle 702 [figure 25]. La cavité linéaire comporte deux jets de colorants ( un milieu amplificateur et un absorbant saturable) et un repli afin d'égaliser les longueurs des cavités du laser de pompe et du laser à colorant (paramètre important dans le cas du verrouillage de modes actif).

Toutes les montures des éléments de la cavité (miroirs, jets) sont assemblées sur un barreau d'Invar de 50,8 mm de diamètre assurant à l'ensemble une excellente rigidité mécanique. Ce principe permet également de rendre le laser facilement transportable ce qui est essentiel dans le cas d'un produit commercialisé. Nous conserverons donc cette structure et adapterons sur le barreau les différentes modifications nécessaires.

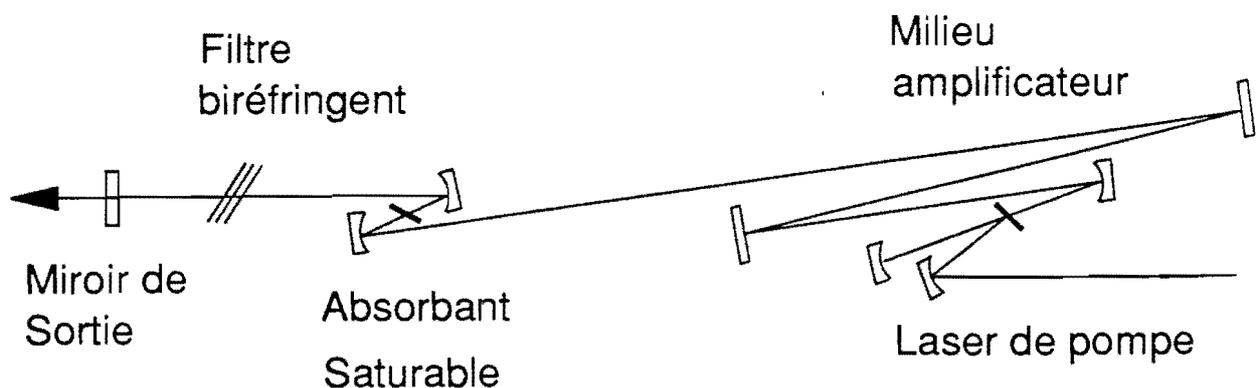
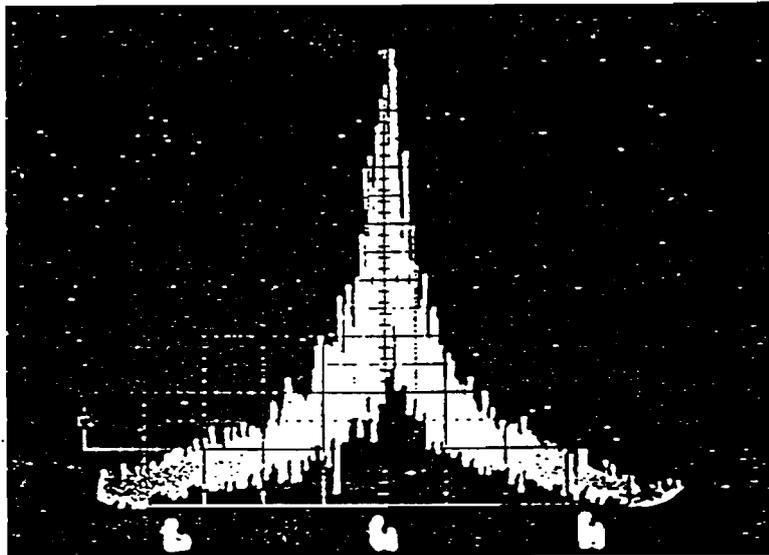


Figure 25 : Schéma de la cavité du laser à colorant modèle 702 commercialisé par la Société COHERENT.

Des cavités linéaires, semblables à celles du modèle 702, ont déjà été étudiées en verrouillage de modes passif et ont permis, grâce à une sélection empirique des miroirs formant le résonateur, de produire des impulsions subpicosecondes [42-43]. Une première étude nous a permis de montrer que lorsqu'on pompe en continu la cavité laser type 702 celle-ci délivre des impulsions de l'ordre de quelques picosecondes très instables en durée et en énergie [figure 26]. Ce comportement est caractéristique d'un mauvais verrouillage des modes d'un laser. Il rappelle les travaux menés à l'Institut d'Optique sur un autre laser femtoseconde (en anneau) alors qu'aucun système contrôlant la dispersion dans la cavité n'était utilisé. Or, nous avons vu que le contrôle de la dispersion de vitesse de groupe dans la cavité était très important pour la production d'impulsions courtes.



*Figure 26 : Autocorrélation des impulsions produites par le laser à colorant 702 pompé en continu. (Largeur des impulsions : quelques picosecondes).*

Nous avons donc décidé de placer un système de prismes dans la cavité linéaire [figure 27]. En se basant sur les calculs du paragraphe I.3.3.3., il nous a semblé préférable d'utiliser des prismes d'indice élevé. Ce choix permet de diminuer la distance  $L$  entre les prismes et de réduire ainsi l'encombrement du système. Les prismes utilisés sont taillés dans un verre du type FED D 4028 de Sovirel (indice 1,73 pour  $\lambda = 620$  nm). Alors qu'avec des prismes en silice, la distance entre les prismes pour un oscillateur femtoseconde est de 310 mm environ, les prismes FED D 4028 permettent de réduire la distance  $L$  à 100 mm. Afin de diminuer au maximum les pertes intracavité, les prismes sont taillés pour l'incidence de Brewster et l'angle des prismes ( $\alpha = 60^\circ$ ) est choisi pour correspondre également au minimum de déviation. Les deux jets de colorants étant horizontaux, le faisceau est polarisé verticalement (polarisation  $p$ ), il faut donc placer les prismes dans un plan vertical. Le milieu amplificateur est la Rhodamine 6G et l'absorbant saturable le DODCI, couple de colorants organiques ayant donné jusqu'alors les meilleurs résultats.

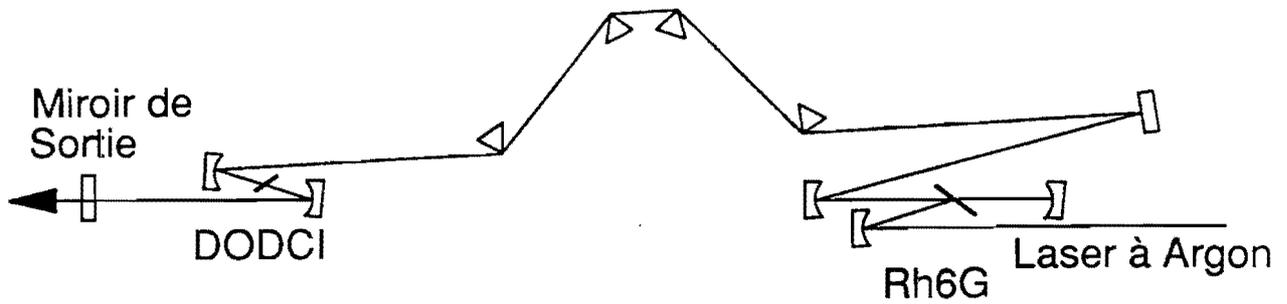


Figure 27 : Schéma de la cavité linéaire avec la ligne à retard à dispersion négative.

Malheureusement, les essais effectués dans cette configuration n'ont pas été concluants. En effet quelles que soient la position respective du milieu amplificateur et de l'absorbant saturable et la valeur de la dispersion intracavité nous n'avons pas pu réduire la durée des impulsions à moins de 1 ps, ni stabiliser les variations en intensité.

On sait par ailleurs que plus la saturation de l'absorbant saturable est importante, plus le laser est stable [3-5]. Plusieurs expériences [44] ont montré qu'en plaçant l'absorbant saturable à une extrémité de la cavité [figure 28], il était possible de produire des impulsions plus courtes. L'explication est la suivante : l'impulsion interfère avec sa propre réflexion dans l'absorbant saturable, y augmente le champ électrique, et donc le sature davantage. Pour optimiser cet effet, Fork et coll. [45] ont fermé une cavité linéaire pour la transformer en cavité en anneau [Figure 29]. Dans ce cas, il y a deux impulsions qui naissent sur un pic de bruit dans l'absorbant saturable et se propagent en sens inverse dans la cavité. Elles interfèrent dans l'absorbant saturable et y créent une onde stationnaire. Aux ventres de l'onde, l'intensité est maximale, sature totalement l'absorbant et minimise les pertes. Aux noeuds de l'onde, l'absorbant n'est pas saturé, mais le champ électrique étant minimum, les pertes le sont également.

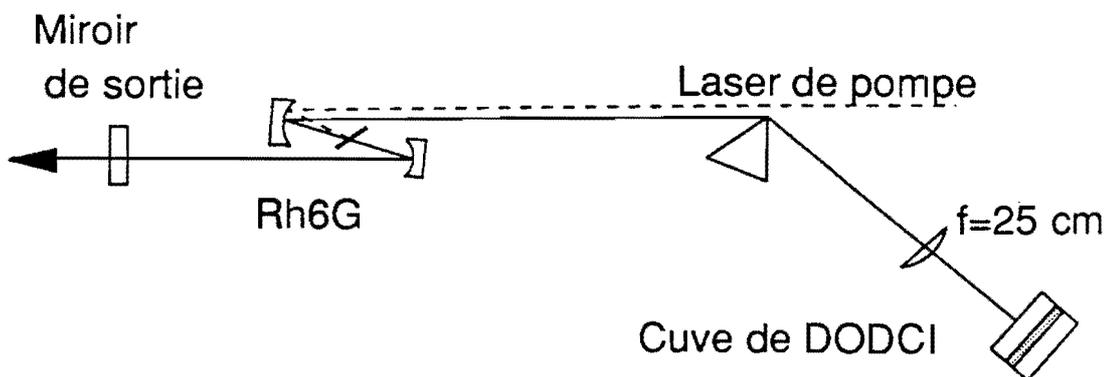


Figure 28 : Schéma de principe d'un laser à verrouillage de modes passif ayant l'absorbant saturable à une extrémité de la cavité.

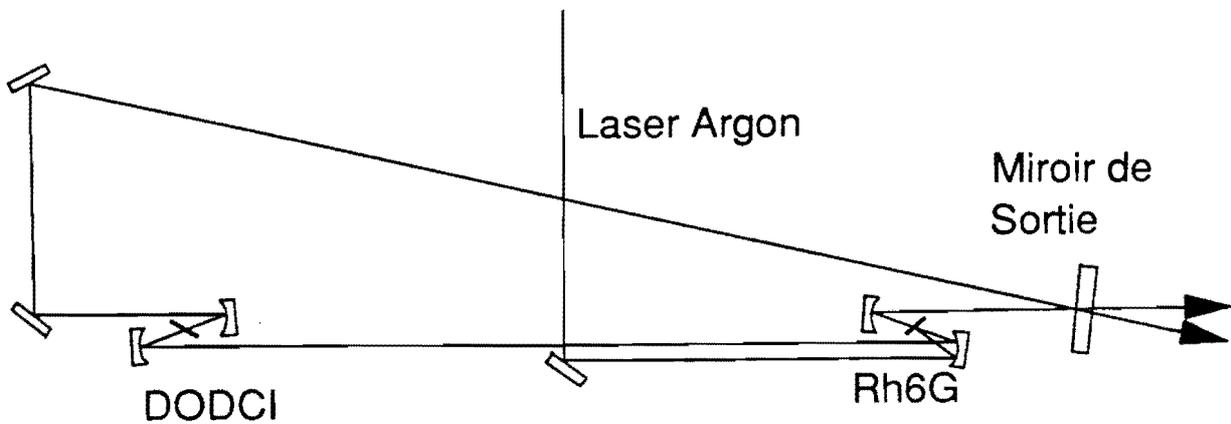


Figure 29 : Première cavité en anneau réalisée par Fork et coll. [45] produisant des impulsions femtosecondes.

Le fait de créer une onde stationnaire, plutôt que deux impulsions séparées (comme dans le cas d'une cavité linéaire) diminue l'énergie requise pour saturer l'absorbant saturable [46]. Dans une telle cavité, et grâce à une sélection empirique des miroirs afin d'introduire de la dispersion négative, des impulsions de 100 fs ont été produites pour la première fois [45].

Compte-tenu de nos résultats sur la cavité linéaire, il est rapidement devenu évident que la meilleure solution pour produire des impulsions très courtes et stables était d'utiliser une cavité en anneau et d'y introduire un système compensant la dispersion de vitesse de groupe.

## II.2. TRANSFORMATION DE LA CAVITE EN ANNEAU

La figure 30 montre le schéma de la cavité en anneau réalisée sur la base du laser modèle 702. Le rayon de courbure des miroirs formant la cavité amplificatrice en  $\gamma$  est de 150 mm et celui des miroirs formant la cavité de l'absorbant saturable en  $z$  est de 50 mm. La transmission du miroir de sortie est de 2 % entre 590 et 700 nm. Elle est plus élevée avant 590 nm pour forcer le laser à fonctionner du bon côté de la bande d'absorption du DODCI (figure 15) . On oblige donc le laser à osciller autour de 620 nm où les meilleures performances sont obtenues. Une autre solution pour éviter que le laser n'oscille vers les plus basses longueurs d'onde est de ne sélectionner que la partie rouge du spectre de fluorescence de la Rh6G à l'endroit où celui-ci est étalé spatialement, c'est-à-dire, entre les deux séries de prismes [47]. Il faut dans ce cas placer un filtrage spatial dont le réglage est délicat. Nous avons donc préféré utiliser la première solution.

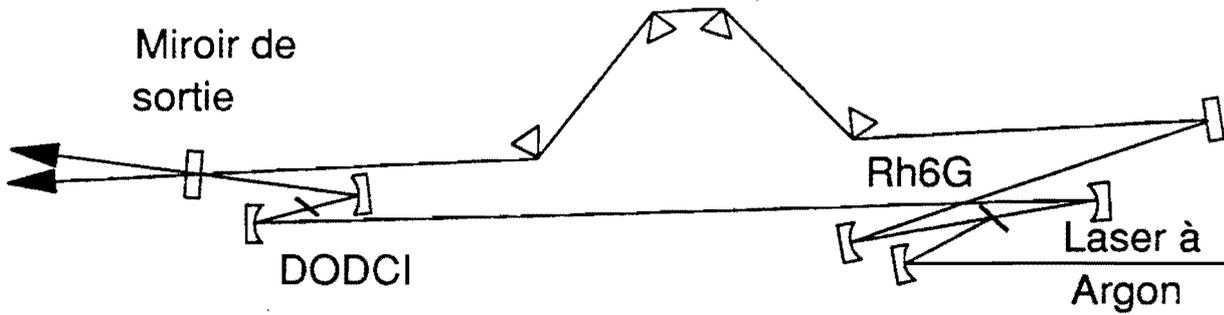


Figure 30 : Schéma de la cavité en anneau réalisée sur la structure du laser à colorant modèle 702 avec le système de prisme.

En ajustant la position de l'absorbant saturable et la dispersion introduite par les prismes, nous avons produit des impulsions de 300 fs (figure 31). L'amélioration par rapport à la cavité linéaire est importante mais il subsiste encore deux problèmes :

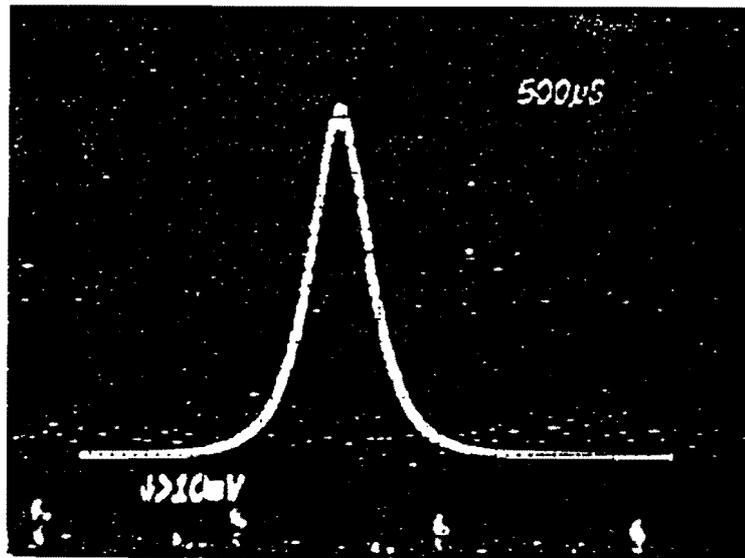


Figure 31 : Autocorrélation d'impulsions de 300 fs (profil en sécante hyperbolique) produites par le laser en anneau contenant les prismes d'indice 1,73.

1) le laser n'est pas stable en énergie. En effet, une des deux voies s'arrête de façon intermittente alors que sur l'autre, on observe des impulsions qui sont devenues plus instables;

2) la durée des impulsions est beaucoup trop longue par rapport au cahier des charges initial (100 fs). Lorsqu'on essaie de réduire la durée des impulsions en jouant sur la dispersion, le laser saute brutalement dans un autre régime de fonctionnement instable : le spectre des impulsions se décale dans le rouge et devient plus symétrique (alors qu'auparavant le front de montée pour les basses longueurs d'onde était plus lent que pour les grandes longueurs d'onde), les impulsions

sont plus longues ( $\sim 1$  ps) et l'autocorrélation est très bruiteuse.

L'instabilité en énergie semble provenir d'un problème de gain dans le milieu amplificateur. Celui-ci ne semble pas identique pour les deux impulsions qui circulent dans la cavité. Pour un bon fonctionnement il faudrait qu'elles soient amplifiées de la même manière afin qu'il n'y ait pas une impulsion prépondérante dans la cavité. Etant pompé en continu, il faut environ 4 ns à la Rh 6G pour que le gain se rétablisse à sa valeur initiale après le passage de l'impulsion. Etant donné qu'il y a deux impulsions dans la cavité, elles doivent donc arriver dans le milieu amplificateur séparées temporellement par plus de 4 ns. Le temps de parcours  $T_0$  dans la cavité de longueur  $L$  doit alors être supérieur à 8 ns [48]. S'il est inférieur à 8 ns, la distance milieu amplificateur-absorbant saturable doit être égale à  $L/4$ . Les deux impulsions arrivent alors dans le milieu amplificateur espacées de  $T_0/2$  et voient donc un même état du milieu amplificateur [figure 32]. Dans notre laser, la longueur de la cavité vaut 2 m ce qui correspond à un temps de parcours  $T_0 = 6,5$  ns.

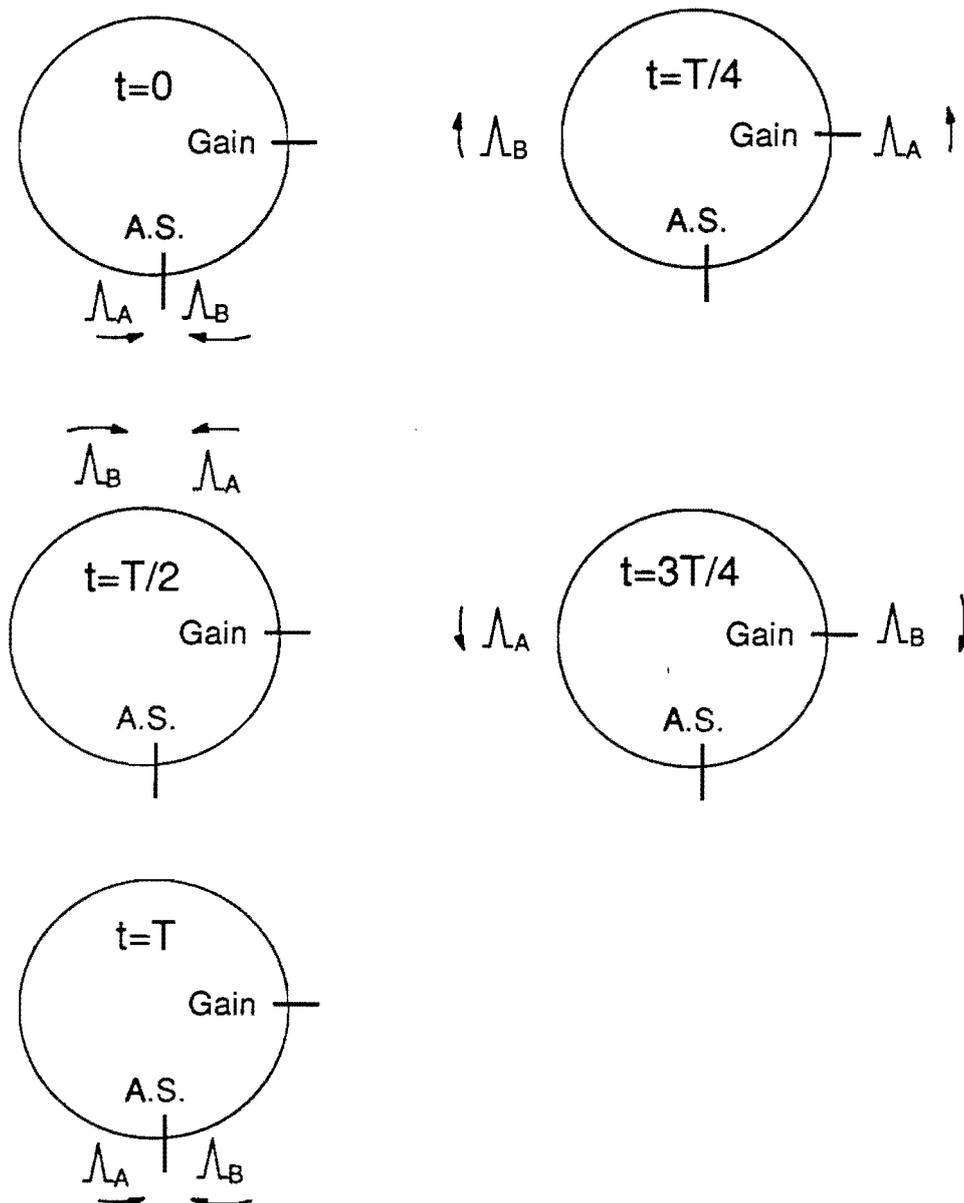


Figure 32 : Evolution de deux impulsions contrepropageantes dans une cavité en anneau (les deux impulsions naissent dans l'absorbant saturable).



dispersion de vitesse de groupe qu'à l'ordre deux. La dispersion de vitesse de groupe d'ordre supérieur étant une des limitations à l'obtention d'impulsions très courtes [50], on a donc intérêt à réduire le nombre de miroirs.

Le problème de la stabilité ayant été résolu, il reste à analyser pourquoi le laser produit des impulsions aussi longues. Tout d'abord, précisons que la largeur  $\Delta\nu$  du spectre des impulsions de durée  $\Delta t = 300$  fs obtenues vaut environ 2 nm. Ceci conduit à un produit  $\Delta t \cdot \Delta\nu = 0,4$  proche de la valeur théorique 0,315 pour une impulsion dont le profil temporel est en sécante hyperbolique. Les impulsions sont donc proches de la limite imposée par Fourier. Il n'y a pas de modulation importante et pas d'espoir d'obtenir des impulsions beaucoup plus courtes en ajustant la phase des impulsions à l'extérieur de la cavité (avec un deuxième système de prismes par exemple). Il apparaît donc que les impulsions obtenues ont un spectre trop étroit. La question est donc de savoir si dans la cavité, il existe un (ou plusieurs) élément(s) responsable(s) de cette limitation. Nous nous sommes intéressés au système de prismes de haut indice de réfraction car c'est le principal élément qui agit sur la phase des impulsions.

Dans un premier temps, nous avons placé ces prismes haut indice dans un autre laser femtoseconde qui, avec des prismes en silice, produit régulièrement des impulsions inférieures à 100 fs. Il a été impossible de descendre en dessous de 300 fs, comme pour notre laser. Il semble donc bien que les prismes d'indice élevé soient la cause de cette limitation. Nous allons analyser les raisons d'un tel comportement.

Dans le paragraphe I.3.3.3., nous avons vu que le système de prismes permettait de compenser la dispersion de vitesse de groupe à l'ordre 2. On fait une approximation quadratique de la phase des impulsions qui est déterminée par plusieurs effets tels que : la saturation du gain et de l'absorption, l'automodulation de phase, la traversée des jets de colorant et la réflexion sur les miroirs. L'approximation quadratique de la phase des impulsions dans le laser n'est donc certainement pas optimale. De plus, les prismes introduisent eux-mêmes de la dispersion d'ordre 3 ( $\phi''' = d^3\phi/d\omega^3$ ).

Nous allons évaluer cette dispersion  $\phi'''$  et étudier l'influence de la nature du verre utilisé sur sa valeur. Pour cela nous allons calculer  $\phi''' \cdot (\Delta\omega/3)$  pour comparer cette valeur à la dispersion d'ordre deux  $\phi''$ .

En reprenant les notations précédentes, on peut développer au troisième ordre la phase par rapport à la fréquence du laser  $\omega_L$ .

$$(2.1) \quad \phi(\omega) = \phi(\omega_L) + \left( \frac{d\phi}{d\omega} \right)_{\omega=\omega_L} (\omega - \omega_L) + \left( \frac{\partial^2 \phi}{d\omega^2} \right)_{\omega=\omega_L} \frac{(\omega - \omega_L)^2}{2} + \left( \frac{\partial^3 \phi}{d\omega^3} \right)_{\omega=\omega_L} \frac{(\omega - \omega_L)^3}{6}$$

Si  $\rho$  est le chemin optique dans les prismes :

$$(2.2) \quad \left( \frac{\partial^3 \phi}{d\omega^3} \right)_{\omega=\omega_L} = \frac{-\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \left[ \frac{3 d^2 \rho}{d\lambda^2} + \lambda \frac{d^3 \rho}{d\lambda^3} \right].$$

Pour le système de prismes, la dispersion d'ordre 3 vaut :

$$(2.3) \quad \left( \frac{\partial^3 \phi}{d\omega^3} \right)_{\omega=\omega_L} = \frac{2\lambda_o^4}{\pi^2 c^3} 3L \left( n_o'^2 + \lambda_o \left[ n_o' n_o'' + n_o^3 \left[ 2 n_o - \frac{1}{n_o^3} \right] \right] \right) \\ - e \left[ \frac{n_o}{1 + n_o^2} (3n_o'' + \lambda_o n_o'') + 3 \left( 1 - \frac{1}{n_o^2 + n_o^4} \right) (n_o'^2 + \lambda_o n_o' n_o'') + 3 \lambda_o n_o^3 \left( 2 n_o - \frac{1}{n_o^4} + \frac{1}{n_o^5} \right) \right].$$

La figure 34 présente l'évolution de  $(\partial^3 \phi / \partial \omega^3) \cdot \Delta \omega / 3$  en fonction du type de verre utilisé pour un système de prismes introduisant une même valeur de  $\phi''$  constante. Nous avons considéré une impulsion de 100 fs qui a un spectre de 5 nm correspondant à  $\Delta \omega = 8,1 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ . On voit que plus l'indice augmente, plus l'effet de l'ordre 3 augmente. Il y a par exemple un facteur 9 entre la valeur de  $\phi''$  pour les prismes d'indice élevé ( $n=1.73$ ) utilisés dans notre laser et pour des prismes en silice.

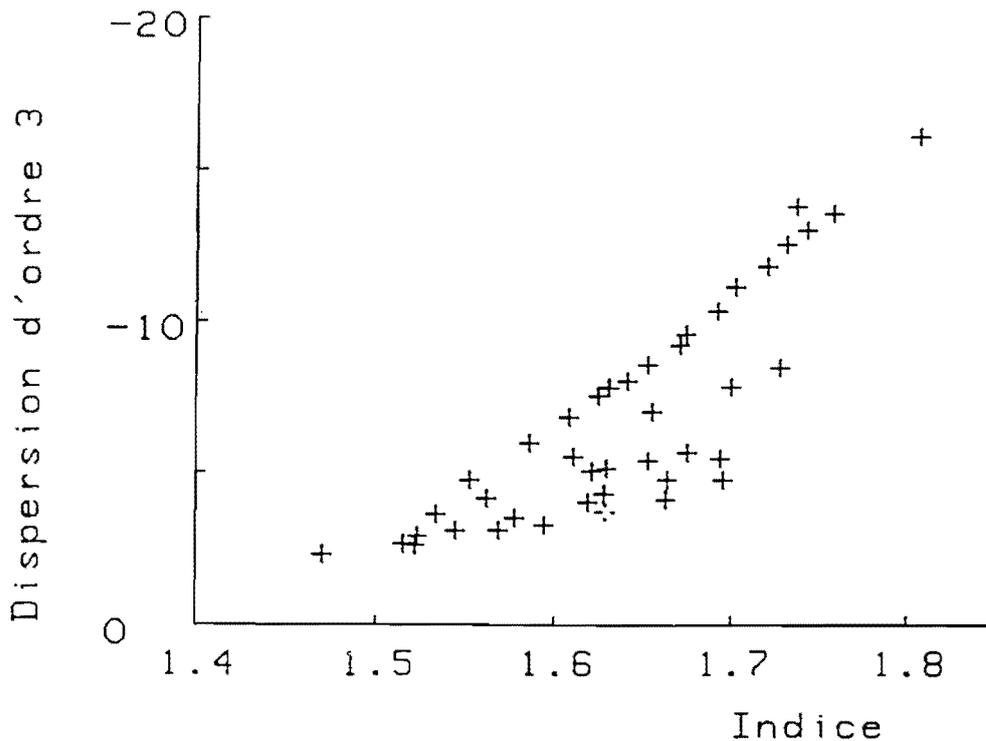


Figure 34 : Valeur de  $(\partial^3 \phi / \partial \omega^3) \cdot \Delta\omega/3$  (en  $\text{fs}^2$ ) en fonction de l'indice du verre utilisé  
( $\partial^2 \phi / \partial \omega^2$  est constant).

D'autre part, pour une même valeur de l'indice,  $\phi'''$  dépend de la nature du verre utilisé. Cela signifie donc que pour un même encombrement donné et pour une même valeur de dispersion d'ordre 2, il est possible de choisir le type de verre pour diminuer la valeur de  $\phi'''$ .

Il est très difficile d'évaluer l'influence de l'ordre 3 sur le fonctionnement du laser et en particulier sur la durée des impulsions. Toutefois, on peut montrer qu'en présence d'ordre 3 les impulsions s'élargissaient temporellement et présentaient des rebonds [figure 35] néfastes à la production d'impulsions courtes. D'autre part nous avons récemment pu déterminer que les impulsions les plus courtes sont produites lorsque la dispersion d'ordre deux de la cavité est nulle (à  $5 \text{ fs}^2$  près) [50]. Il ne faut donc pas utiliser des prismes qui introduisent de la dispersion d'ordre 3 trop importante. Les considérations précédentes relatives à l'influence de l'ordre 3 nous ont amené à tester dans le laser plusieurs types de prismes d'indices différents afin de rechercher un compromis encombrement-durée des impulsions.

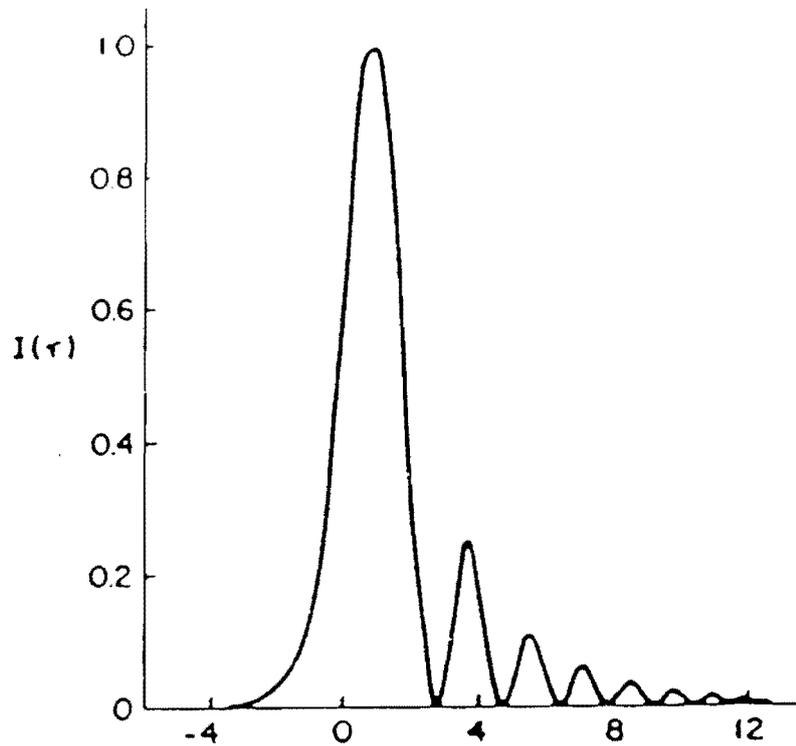


Figure 35 : Simulation théorique d'une impulsion après réflexion sur un matériau présentant de la dispersion d'ordre 3.

Le tableau 3 ci-dessous résume les caractéristiques des prismes que nous avons testés.

type de verre Sovirel	indice	Distance entre prisme (cm)	$\phi''' \cdot \Delta\omega^3$ en fs <sup>2</sup>
FED D 4028	1,73	10	12,2
FED C 9930	1,69	12	10,4
FD C 2036	1,61	15	6,8
FC A 6365 (silice)	1,46	31	1,5

Tableau 3 : Valeur de la dispersion d'ordre 3 introduite par différents types de verres. La dispersion d'ordre 2 est la même.

Pour chaque type de verre, nous avons ajusté la distance entre les deux premiers prismes afin d'introduire une dispersion d'ordre 2 constante. Malheureusement, les prismes d'indice élevé donnent tous le même résultat expérimental. Il est impossible d'obtenir des impulsions stables de durée inférieure à 300 fs. En ajustant finement les paramètres de la cavité, on a réussi à diminuer la durée des impulsions jusqu'à 200-300 fs, mais celles-ci n'étaient pas stables. Nous étions à

l'extrême limite du changement de régime de fonctionnement instable décrit plus haut. Il faut remarquer que c'était la première fois, à notre connaissance, qu'une équipe tentait d'utiliser des prismes d'indice élevé dans une cavité laser pour compenser la dispersion et produire des impulsions courtes. Ces tests n'ont malheureusement pas eut le succès escompté et nous avons donc été obligé d'utiliser des prismes en silice comme dans tous les autres lasers femtosecondes. Avec ceux-ci le laser a produit des impulsions de 100 fs stables sans problème particulier.

Le cahier des charges initial visant la production d'impulsions de 100 fs en utilisant une base de laser existante est atteint. Il faut maintenant optimiser tous les éléments afin de pouvoir garantir la production d'impulsions inférieures à 100 fs stables et de façon reproductible.

### **II.3. AMELIORATION DES PERFORMANCES GRACE A L'UTILISATION DE MIROIRS MULTIDIELECTRIQUES DU TYPE "MONO-EMPILEMENT"**

Bien que nous ayons obtenu des impulsions de 100 fs il est très difficile de réduire encore leur durée car alors la stabilité du laser en est fortement affectée. Cette limitation provient principalement des miroirs utilisés dans la cavité. En effet, nous avons utilisé jusqu'à présent les miroirs COHERENT fournis avec le laser et initialement destinés à la production d'impulsions de 500 fs au mieux, pour lesquelles les problèmes de dispersion sont négligeables. La société COHERENT utilise des miroirs ayant une bande de réflectivité la plus large possible pour accorder le laser en longueur d'onde sans changer trop souvent les miroirs.

Les miroirs diélectriques sont de type [air] [HB]<sup>25</sup> [H] [substrat] avec un maximum de réflectivité à 580 nm. Or notre laser femtoseconde fonctionne autour de 620 nm. La réflectivité des miroirs est donc décalée par rapport au spectre des impulsions, ce qui introduit de la dispersion (voir paragraphe I.3.3.1.). Nous avons donc développé en collaboration avec la Société MATRA (Division Couches Minces) des miroirs multidiélectriques spécifiquement adaptés au laser femtoseconde [51]. Leur réflectivité est centrée sur 620 nm avec une largeur de 100 nm environ et le nombre de couches [HB] des miroirs est réduit à 14 pour diminuer ainsi sensiblement la dispersion introduite à la réflexion. Ce type de revêtement multidiélectrique est appelé "single-stack" par les anglo-saxons que l'on peut traduire en français par "mono-empilement".

En remplaçant tous les miroirs initiaux de la cavité par les miroirs "mono-empilement" de MATRA, à l'exception du miroir de sortie, il a été possible de produire systématiquement des impulsions stables de l'ordre de 50-60 fs. L'amélioration des performances est importante, l'utilisation de ces miroirs permettra donc de garantir des impulsions inférieures à 80 fs pour le produit commercial.

#### II.4. STRUCTURE FINALE DE LA CAVITE. REGLAGES ET PERFORMANCES DU LASER

La structure finale de la cavité qui a été choisie est une cavité en anneau à 6 miroirs [figure 36]. L'ensemble des montures de miroirs est fixé sur un barreau d'INVAR de 130 cm environ. Les miroirs sphériques de la cavité amplificatrice ( $M_1$ ,  $M_2$ ) ont un rayon de courbure de 150 mm et ceux de la cavité de l'absorbant saturable ( $M_4$ ,  $M_5$ ) ont un rayon de courbure de 50 mm. Les miroirs  $M_3$  et  $M_6$  sont plans. A l'exception du miroir de sortie  $M_6$ , tous les miroirs de la cavité ( $M_1$ - $M_5$ ) sont revêtus d'un traitement multidiélectrique "mono-empilement". Leur réflexion à l'incidence normale est centrée sur 620 nm. Le miroir de sortie a une transmission de 2 % entre 590 et 700 nm (ce miroir est un miroir de sortie d'un laser à colorant continu de COHERENT).

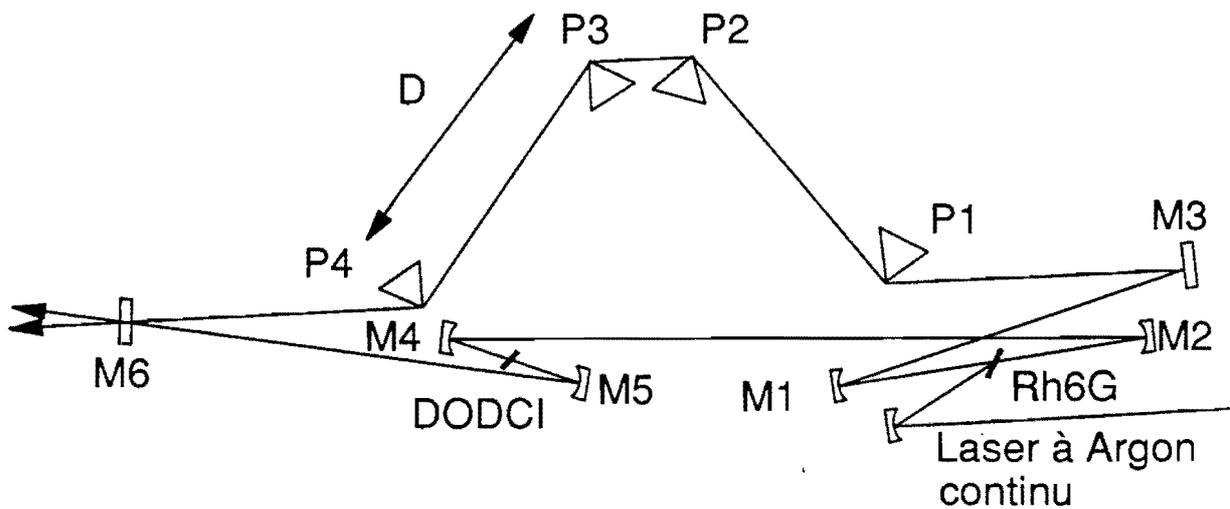


Figure 36 : Structure finale de la cavité du laser à colorant femtoseconde.

Le milieu amplificateur est un jet de Rhodamine 6G dissout dans de l'éthylène glycol (concentration  $2 \cdot 10^{-3}$  Mole/litre). L'absorbant saturable est un jet de DODCI dissout également dans de l'éthylène glycol. L'épaisseur du jet de Rhodamine 6G est de 200  $\mu\text{m}$  environ (buse standard COHERENT) alors que celle du jet de DODCI est de 80  $\mu\text{m}$  (buse standard légèrement écrasée). Le jet de DODCI est monté sur une double translation XY permettant de le positionner

exactement à l'endroit voulu. Ce réglage est très important car, contrairement à ce que l'on pourrait penser, ce n'est pas au point focal qu'on obtient les impulsions les plus courtes mais pour une position décalée de quelques dizaines de microns. Dans ce cas on force le laser à émettre plus dans le rouge car la densité de puissance étant moins forte dans le jet de DODCI, l'absorption augmente et oblige donc la longueur d'onde du laser à se translater vers les grandes longueurs d'onde, où les performances du laser sont les meilleures.

L'angle des prismes en silice est de  $68^{\circ}40'$  correspondant pour 620 nm, à la fois au minimum de déviation et à l'incidence de Brewster. Les jets de colorant étant horizontaux, les prismes sont placés dans un plan vertical, la distance  $D$  entre les prismes étant de 310 mm. Chaque prisme est monté sur un support permettant un positionnement fin dans le plan du laser ainsi qu'un ajustement précis de l'angle de Brewster. La quantité de verre traversée dans les prismes est contrôlée grâce à une translation perpendiculaire à la base du prisme afin de ne pas modifier l'alignement géométrique de la cavité. Le prisme  $P_3$  est monté sur une double translation  $XY$  permettant d'égaliser finement la distance  $P_1 - P_2$  avec la distance  $P_3 - P_4$  et d'avoir ainsi un système parfaitement achromatique. La longueur totale de la cavité est de 3 mètres environ correspondant à un taux de répétition des impulsions de 100 MHz. Le laser à Argon de pompe est focalisé dans le jet de Rhodamine 6G à l'aide d'un miroir de 100 mm de rayon de courbure dont la réflexion est maximale pour les deux principales raies d'émission de l'argon (488 et 514 nm).

L'alignement d'un tel laser est assez complexe. Il faut dans un premier temps régler la cavité en anneau sans le système de prismes et sans l'absorbant saturable (c'est donc un laser à colorant continu). Le système des prismes doit ensuite être inséré sans modifier les autres réglages du laser. Nous devons donc obtenir l'effet laser en modifiant uniquement les positions des prismes (rotations et translations). Il suffit alors de brancher le jet d'absorbant saturable pour obtenir des impulsions. En régime impulsionnel, nous ajustons la position des prismes (épaisseur de verre) et la position du jet pour optimiser la durée des impulsions. La figure 37 montre l'autocorrélation et le spectre d'impulsions de 55 fs produites par le laser. Le spectre est dissymétrique avec un front raide dans le rouge, caractéristique qu'on retrouve dans tous les lasers femtosecondes à verrouillage de modes passif. Pour une puissance du laser de pompe de 4 W (toutes raies), on obtient deux faisceaux de puissance moyenne égale à 20 mW correspondant à une énergie par impulsion de 0,2 nJ et une puissance crête de l'ordre de 3 kW.

Lors des réglages il apparaît que les paramètres importants qui déterminent la qualité spatiale du faisceau et la stabilité des impulsions sont : la distance séparant les miroirs  $M_1 - M_2$  autour du jet de Rhodamine 6G et plus encore la distance  $M_4 - M_5$  autour du jet de DODCI.

Nous allons donc calculer, en utilisant le formalisme des faisceaux gaussiens, les caractéristiques géométriques du faisceau en fonction des paramètres du laser.

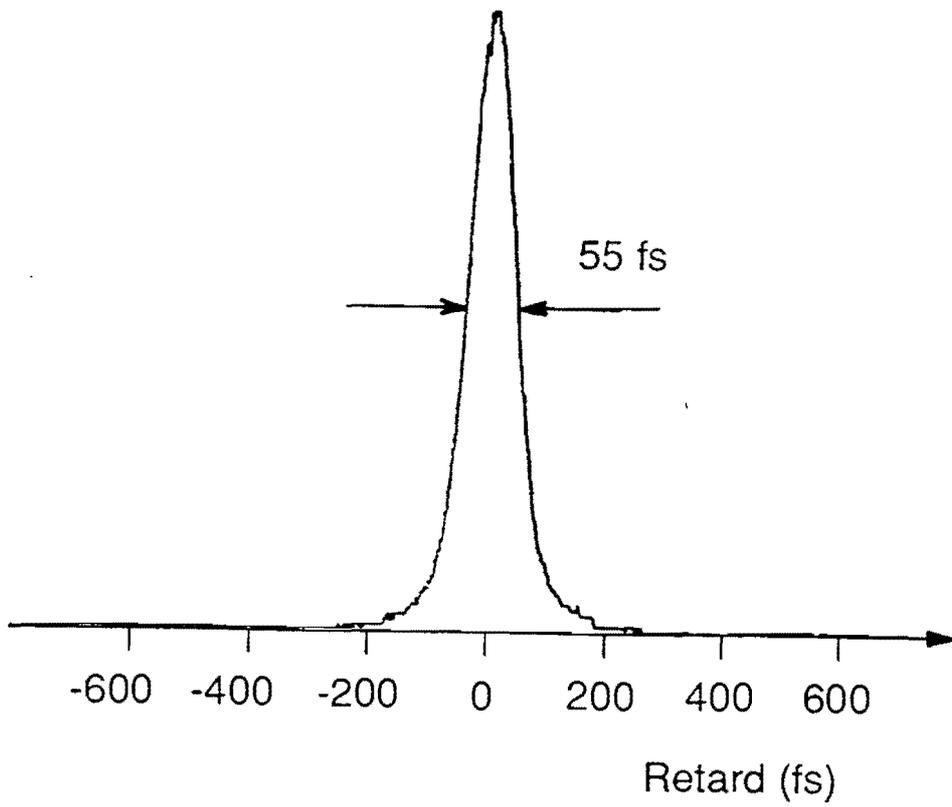
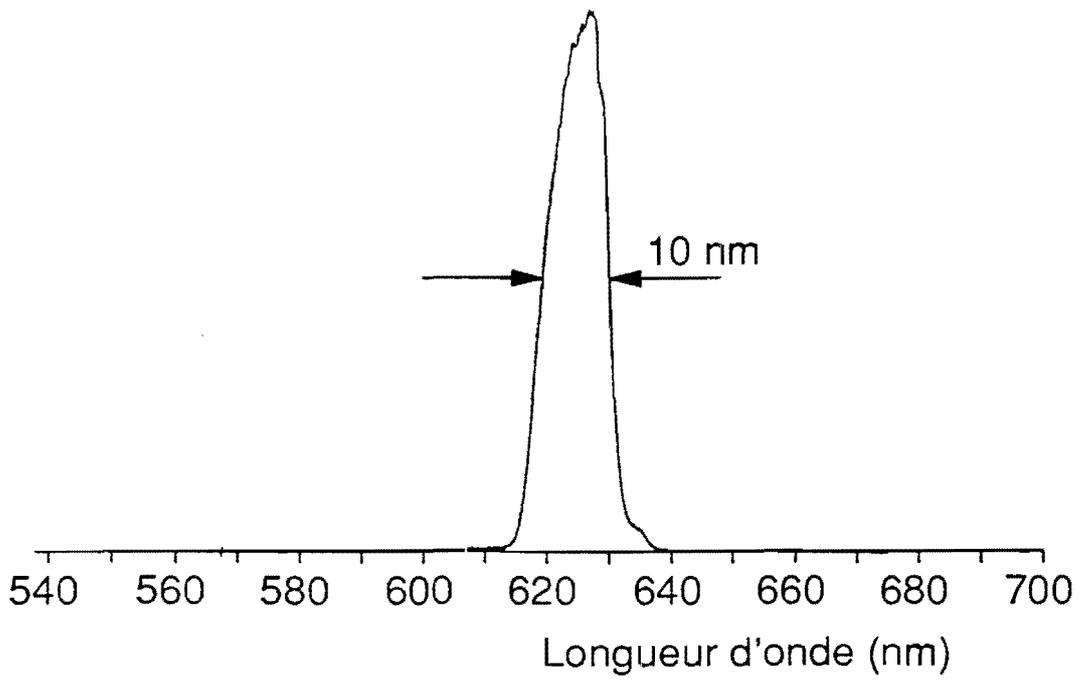


Figure 37 : Spectre et autocorrélation d'impulsions de 55 fs produites par le laser.

Soit un faisceau laser oscillant sur un mode transverse fondamental (TEM<sub>00</sub>) caractérisé par une répartition spatiale gaussienne de l'énergie et défini à partir du diamètre minimal  $W_0$  (appelé waist) en fonction de la distance  $z$  du waist par :

$$(2.4) \quad W^2(z) = W_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi W_0^2} \right)^2 \right].$$

La divergence  $\theta$  du faisceau est définie par :

$$(2.5) \quad \theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}.$$

Le rayon de courbure des fronts d'onde est égal à :

$$(2.6) \quad R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi W_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right].$$

Il est généralement utile de définir un paramètre complexe  $q$  qui détermine totalement le faisceau laser :

$$(2.7) \quad \frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)}.$$

Dans le vide, les paramètres  $q_1$  et  $q_2$  correspondant à deux fronts d'onde séparés d'une distance  $D$  sont reliés par :

$$(2.8) \quad q_2 = q_1 + D.$$

Pour tout système optique, on peut définir une matrice de transfert :

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$$

qui permet de calculer l'image d'un rayon caractérisé par sa position  $X_1$  et son angle d'incidence  $\theta_1$  par rapport à l'axe du système optique grâce à la relation :

$$(2.9) \quad \begin{pmatrix} X_2 \\ \theta_2 \end{pmatrix}_{\text{IMAGE}} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_1 \\ \theta_1 \end{pmatrix}_{\text{OBJET}} \quad \text{avec } AD - BC = 1 \quad .$$

Dans ce cas, le paramètre  $q_2$  à la sortie du système optique est relié à  $q_1$  par la relation :

$$(2.10) \quad q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D} \quad .$$

Cette loi est appelée "loi ABCD" et a été introduite par Kogelnik en 1966 [52]. La figure 38 présente la matrice de transfert pour plusieurs éléments. Par exemple, pour un miroir de rayon de courbure  $R$  la matrice est :

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -2 & 1 \\ R & 1 \end{pmatrix}$$

pour une lame à face planes et parallèles d'indice  $n$  et de longueur  $L$ , la matrice est :

$$\begin{pmatrix} 1 & L/n \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad .$$

Pour obtenir les caractéristiques d'un faisceau à la sortie d'un système contenant  $N$  éléments élémentaires, il suffit alors d'effectuer le produit des  $N$  matrices et d'appliquer le résultat au paramètre  $q$  du faisceau d'entrée.

Dans le cas du laser il faut qu'après un tour dans la cavité le faisceau conserve les mêmes propriétés géométriques pour assurer l'oscillation laser. En décomposant tous les éléments du laser et en calculant la matrice équivalente à un tour de cavité on obtient une condition de stabilité du type :

$$(2.11) \quad q = \frac{Aq + B}{Cq + D}$$

soit :

$$(2.12) \quad \frac{1}{q} = \frac{D - A}{2B} + i \frac{\sqrt{1 - \left(\frac{D+A}{2}\right)^2}}{B} \quad .$$

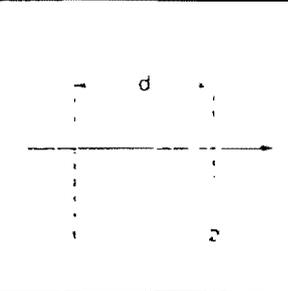
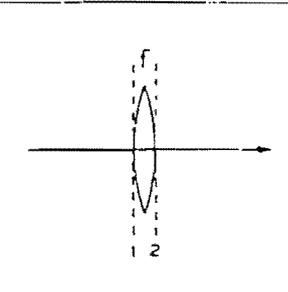
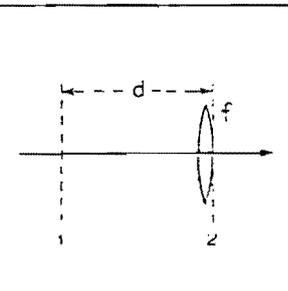
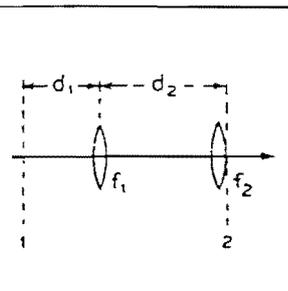
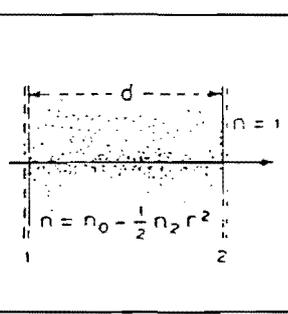
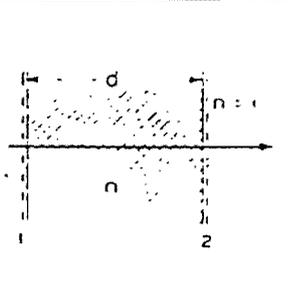
NO	OPTICAL SYSTEM	RAY TRANSFER MATRIX
1		$\begin{vmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{vmatrix}$
2		$\begin{vmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{vmatrix}$
3		$\begin{vmatrix} 1 & d \\ -\frac{1}{f} & 1 - \frac{d}{f} \end{vmatrix}$
4		$\begin{vmatrix} 1 - \frac{d_2}{f_1} & d_1 + d_2 - \frac{d_1 d_2}{f_1} \\ -\frac{1}{f_1} + \frac{1}{f_2} + \frac{d_2}{f_1 f_2} & 1 - \frac{d_1}{f_2} - \frac{d_1}{f_2} + \frac{d_1 d_2}{f_1 f_2} \end{vmatrix}$
5		$\begin{vmatrix} \cos d \sqrt{\frac{n_2}{n_0}} & \frac{1}{\sqrt{n_0 n_2}} \sin d \sqrt{\frac{n_2}{n_0}} \\ -\sqrt{n_0 n_2} \sin d \sqrt{\frac{n_2}{n_0}} & \cos d \sqrt{\frac{n_2}{n_0}} \end{vmatrix}$
6		$\begin{vmatrix} 1 & d/r \\ 0 & 1 \end{vmatrix}$

Figure 38 : Matrice de transfert de quelques systèmes optiques d'après [52].

A l'aide de cette relation nous pouvons déterminer les caractéristiques des faisceaux dans la cavité en fonction de ses paramètres. En particulier, il est très important de connaître les tailles des faisceaux dans les deux jets de colorants. Nous avons donc déterminé ces deux grandeurs en fonction des deux paramètres importants de la cavité à savoir: la distance M1-M2 ( $L_1$ ) et la distance M4-M5 ( $L_2$ ). Nous avons adopté plusieurs hypothèses pour simplifier les calculs. Les miroirs sphériques, travaillant hors de l'axe, introduisent de l'astigmatisme sur le faisceau. Cette aberration a été négligée car l'angle d'incidence est faible. De même, si l'on ne considère pas les problèmes de chromatisme, le système de prismes est équivalent à une lame à faces planes et parallèles.

Les figures 39 et 40 présentent les variations du diamètre du waist sur le jet de Rh6G et sur le jet de DODCI en fonction de  $L_1$  et  $L_2$ . On voit que les zones de stabilité sont très étroites ( $\sim 0.7$  mm pour  $L_2$ ) comme nous l'avons remarqué lors des réglages. Pour diminuer au maximum le diamètre sur le jet de DODCI et avoir une densité de puissance importante, donc une forte saturation, il faut que la distance  $L_1$  soit égale à 154 mm et  $L_2$  voisine de 50 mm. On peut remarquer que c'est en fonction de la distance  $L_2$  que les variations des diamètres sont les plus rapides. Cette étude permet donc d'accéder à un bon réglage du laser car la position des miroirs sphériques  $M_1$  et  $M_2$  par rapport au jet de Rh6G est déterminée en calculant la position de l'image du point de fluorescence dans le jet par  $M_1$  (ou  $M_2$ ) en optique classique pour  $L_2 = 154$  mm.

L'étude effectuée a permis de réaliser un laser à colorant à verrouillage de modes passif produisant des impulsions inférieures à 100 fs à 620 nm. Toutefois, si le verrouillage de modes passif est la technique permettant de produire les impulsions lumineuses les plus courtes, elle a le grand inconvénient de n'avoir été étudiée qu'avec le couple Rh 6G/DODCI. Le spectre des impulsions est donc limité vers 620 nm. Or, les applications d'un tel laser sont nombreuses en spectroscopie résolue dans le temps à d'autres longueurs d'onde que 620 nm. Pour éviter d'utiliser des systèmes complexes d'amplificateurs pour engendrer un continuum spectral et obtenir des impulsions femtosecondes sur une large bande spectrale, il est utile de pouvoir disposer d'impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'onde. Donc, à la fois pour des raisons commerciales et pour les besoins internes du Groupe d'Optique Non Linéaire de l'Institut d'Optique, nous avons étudié d'autres couples de colorants milieu amplificateur/absorbant saturable. Les résultats de ces études sont présentés dans le chapitre suivant.

Diametre du waist sur le jet de Rh.6G

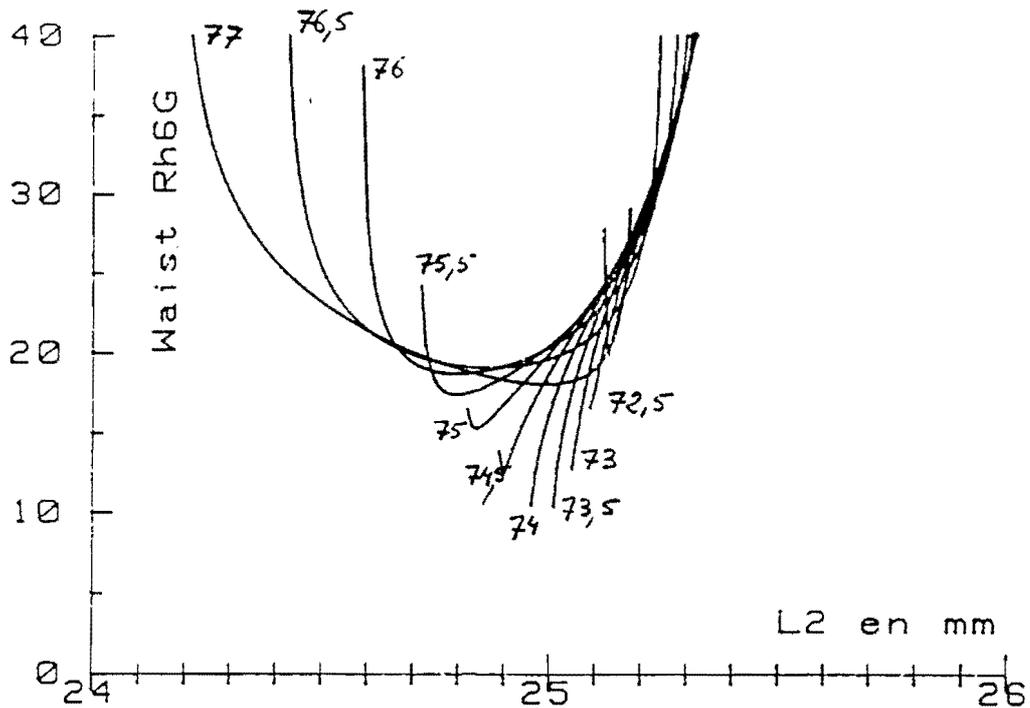


Figure 39 : Evolution du diametre du waist sur le jet de Rh 6G ( $L_1$  varie de 77 à 72,5 mm).

Diametre du waist sur le jet de DODCI

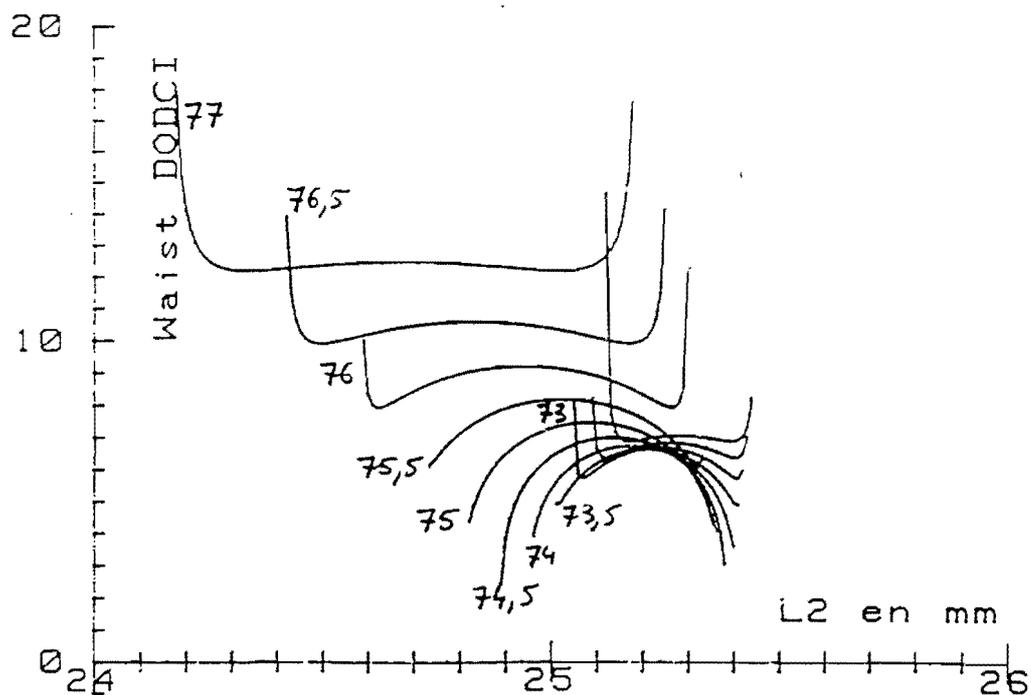


Figure 40: Evolution du diametre du waist sur le jet de DODCI ( $L_1$  varie de 77 à 72,5 mm).

## CHAPITRE III

# **GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A D'AUTRES LONGUEURS D'ONDE PAR VERROUILLAGE DE MODES PASSIF**



### III.1. INTRODUCTION

Le fonctionnement des lasers à verrouillage de modes passif est lié au couple de colorants milieu amplificateur-absorbant saturable. Le milieu amplificateur étant pompé en continu, l'énergie stockée dans la cavité est assez faible. L'efficacité du milieu amplificateur est donc très importante car si l'énergie dans la cavité est faible, il faut diminuer la concentration de l'absorbant saturable pour diminuer son absorption. Mais, dans ce cas, le verrouillage de modes se fait mal et le laser produit des impulsions longues et instables. Or, la Rhodamine 6G est le colorant le plus efficace dans le visible. Ceci explique pourquoi, jusqu'à maintenant, seul le couple Rh6G/DODCI a été étudié en verrouillage de modes passif, limitant la longueur d'onde des impulsions produites vers 620 nm.

Il est néanmoins possible d'obtenir des impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'onde en utilisant la technique du verrouillage de modes actif. Le milieu amplificateur étant pompé avec des impulsions très puissantes, l'énergie dans la cavité est beaucoup plus élevée. On peut donc se permettre d'utiliser des colorants moins efficaces que la Rh6G. Mais, pour obtenir des performances comparables à celle des lasers à verrouillage de modes passif, il faut utiliser des systèmes d'asservissement de la longueur de la cavité du laser à colorant sur celle du laser de pompe [53].

Une autre méthode développée pour produire des impulsions de 100 fs dans une large gamme de longueur d'onde consiste à amplifier des impulsions produites à 620 nm en utilisant comme lasers de pompe des lasers Nd-Yag déclenchés [54] ou à vapeur de cuivre [55]. L'énergie des impulsions obtenues est telle qu'en focalisant ces dernières dans une cuve d'eau (ou un jet d'éthylène glycol) on obtient un continuum spectral [56].

Pour obtenir des impulsions de 100 fs à d'autres longueurs d'onde, il suffit alors de sélectionner, avec un filtre interférentiel suffisamment large (10 nm), une partie du continuum à la longueur d'onde voulue. Cette technique est largement utilisée dans des expériences du type pompe et sonde en spectroscopie résolue dans le temps [57]. Mais cette méthode est très complexe à mettre en oeuvre, coûteuse et la stabilité des impulsions obtenues dans le continuum est toute relative.

Nous avons étudié la possibilité de produire directement des impulsions femtosecondes par verrouillage de modes passif à des longueurs d'ondes différentes de 620 nm. Nous avons surtout centré nos efforts dans le proche infrarouge pour des besoins internes au groupe d'Optique Non Linéaire de l'Institut d'Optique. Ces impulsions pourront être utilisées directement après l'oscillateur [58] ou amplifiées.



## III.2. GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A 685 nm. ETUDE D'UN REGIME DE FONCTIONNEMENT PARTICULIER DU TYPE SOLITON

### III.2.1. Génération d'impulsions femtosecondes à 685 nm

Afin de mieux cerner les problèmes liés à la génération d'impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'ondes, nous avons commencé par étudier la possibilité de produire des impulsions vers 700 nm. Cette étude avait également pour but d'élargir la gamme du produit commercialisé. Il existe plusieurs colorants ayant une assez bonne efficacité entre 640 et 700 nm : le DCM (4-dicyanométhylène-2-méthyl-6p-diméthylaminostyryl-4H-pyran), la Rhodamine 640 (Rh 640) et la Sulforhodamine 640 (SR 640). Ces deux derniers colorants organiques appartiennent à la même famille et possèdent des propriétés d'absorption et d'émission très proches. Toutefois leur maximum d'absorption situé vers 578 nm [figure 41], est loin des raies d'émission du laser à Argon de pompe (514 et 488 nm). Le DCM semble donc plus adapté, car son absorption est centrée sur ces deux raies laser [figure 42].

Le rendement d'émission du DCM est assez bon. Si l'on compare ses performances avec celles de la Rhodamine 6G, on peut dire que le DCM permet d'avoir une plus grande plage d'accord en longueurs d'onde mais qu'au maximum de cette bande d'émission (650 nm) la puissance obtenue est plus faible. Compte-tenu du spectre de fluorescence du DCM, nous avons testé le DQTCI (1,3'-diéthyl-4-2'-quinolythiacarbocyanine iodide) comme absorbant saturable car [figure 43] il présente un maximum d'absorption vers 635 nm.

Malheureusement, dans une cavité similaire à celle utilisée pour le couple Rh6G/DODCI, nous n'avons jamais obtenu d'impulsions. Le spectre du laser est resté toujours très étroit et se décalait vers les grandes longueurs d'onde (675 nm) au fur et à mesure que nous augmentions la concentration de l'absorbant saturable, le plaçant en dehors de la bande d'absorption de DQTCI.

Nous avons donc remplacé le DQTCI par le DOTCI (3,3 diéthyl-2-2' oxatricarbocyanine iodide) dont le spectre d'absorption est décalé vers les plus grandes longueurs d'onde (maximum à 685 nm dans l'éthylène glycol). Les résultats n'ont pas été plus concluants car dans ce cas, le spectre du laser se situait vers 620 nm sur le mauvais côté de la bande d'absorption.

Il semblerait que la bande de fluorescence du DCM soit trop large pour qu'il existe des absorbants saturables bien adaptés. Pour forcer le laser à émettre aux bonnes longueurs d'onde, nous avons inséré un filtre de Lyot dans la cavité mais cela n'a rien changé. Il faut néanmoins signaler que French et coll. [59] ont reporté la génération d'impulsions dans une cavité linéaire avec le couple DCM/DQTCI, sans toutefois préciser la durée des impulsions obtenues.

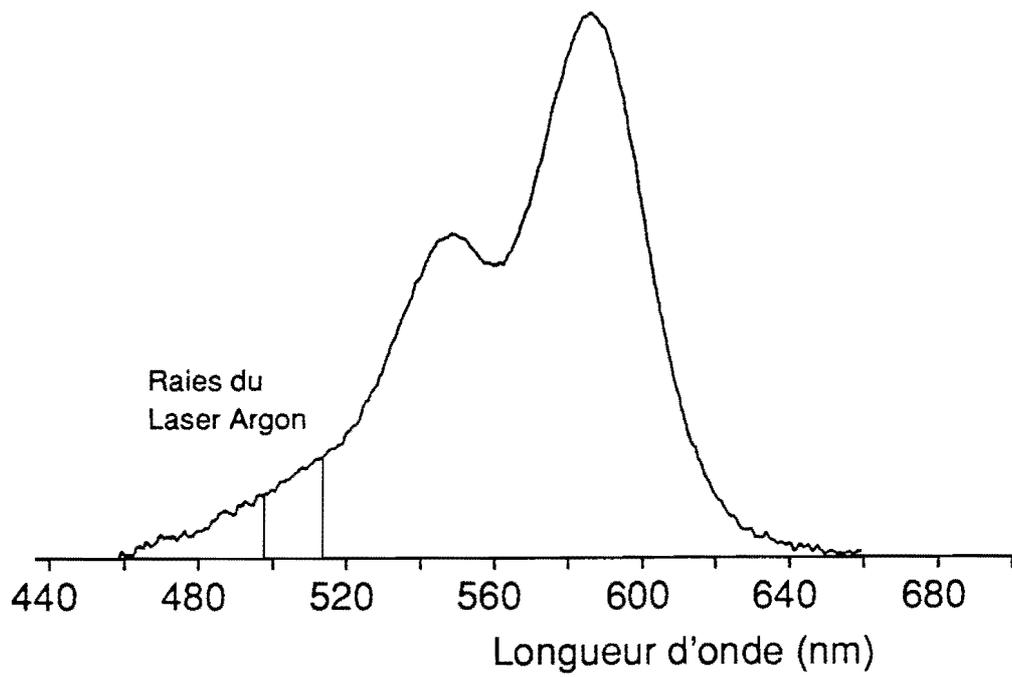


Figure 41 : Spectre d'absorption de la Sulforhodamine 640 dans l'éthylène glycol.

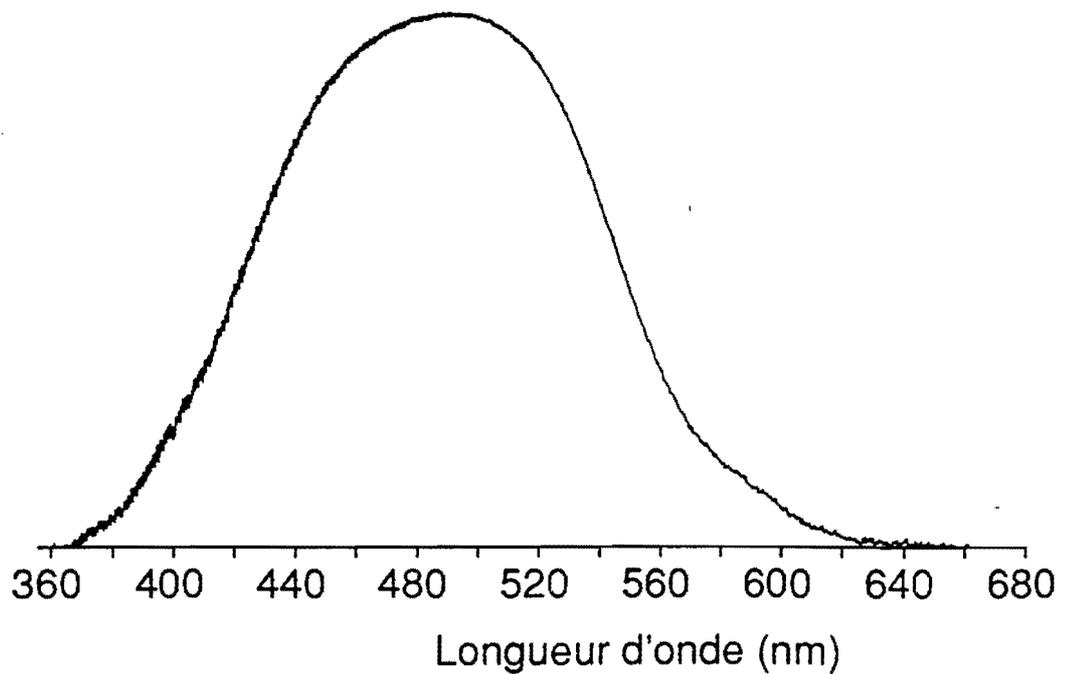
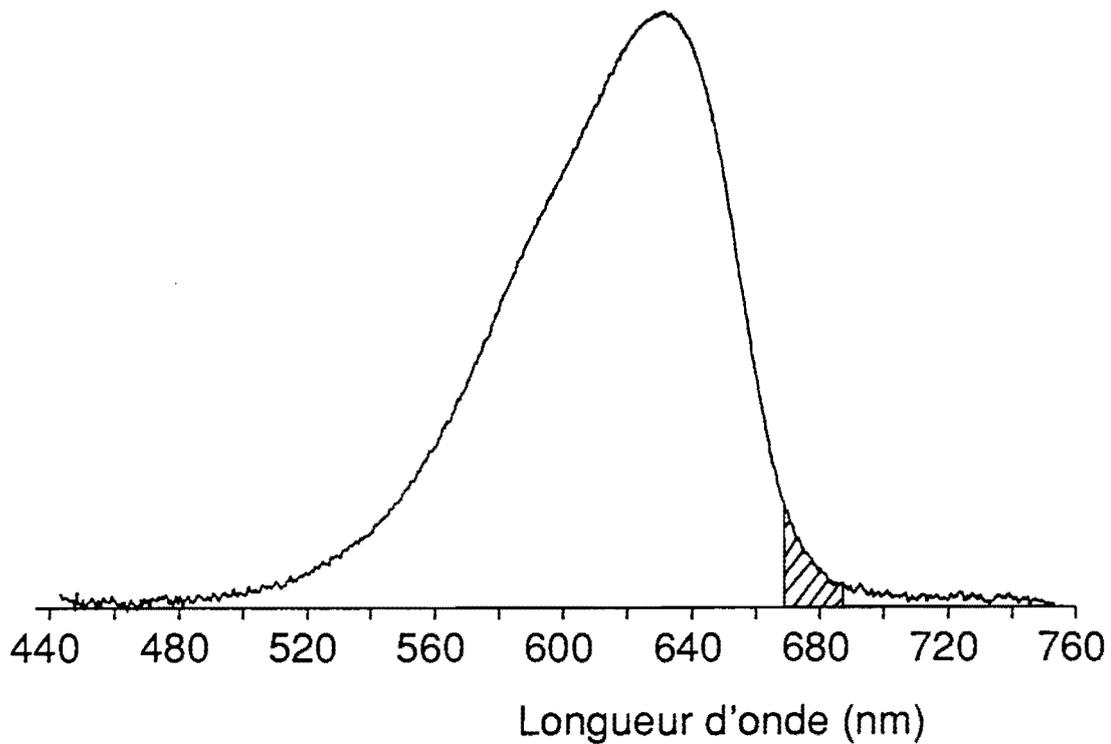


Figure 42 : Spectre d'absorption du DCM dans l'éthylène glycol.



*Figure 43 : Spectre d'absorption de DQTCI dans l'éthanol.*

Nous avons donc décidé d'utiliser un des deux autres colorants : Rh640 ou SR640. La méthode généralement utilisée pour exciter un colorant avec un laser opérant en dehors de sa bande d'absorption est le transfert d'énergie [60].

Il faut pour cela disposer d'un autre colorant ayant un spectre de fluorescence qui recouvre bien le profil d'absorption du premier colorant. Ce deuxième colorant (colorant "donneur") est choisi de telle façon que son absorption soit centrée sur les raies d'émission du laser d'excitation. La fluorescence du colorant "donneur" est donc absorbée par le colorant "accepteur" qui réémet dans sa bande de fluorescence [figure 44]. L'efficacité d'un tel processus dépend du bon recouvrement du profil d'émission du colorant "donneur" avec le profil d'absorption du colorant "accepteur" [61]. Nous avons donc utilisé le principe du transfert d'énergie entre la Rh6G ("donneur") et la SR640 ("accepteur") en mélangeant  $10^{-3}$  Mole de SR640 avec  $10^{-3}$  Mole de Rh6G. Nous avons obtenu dans le laser une bonne efficacité autour de 650 nm.

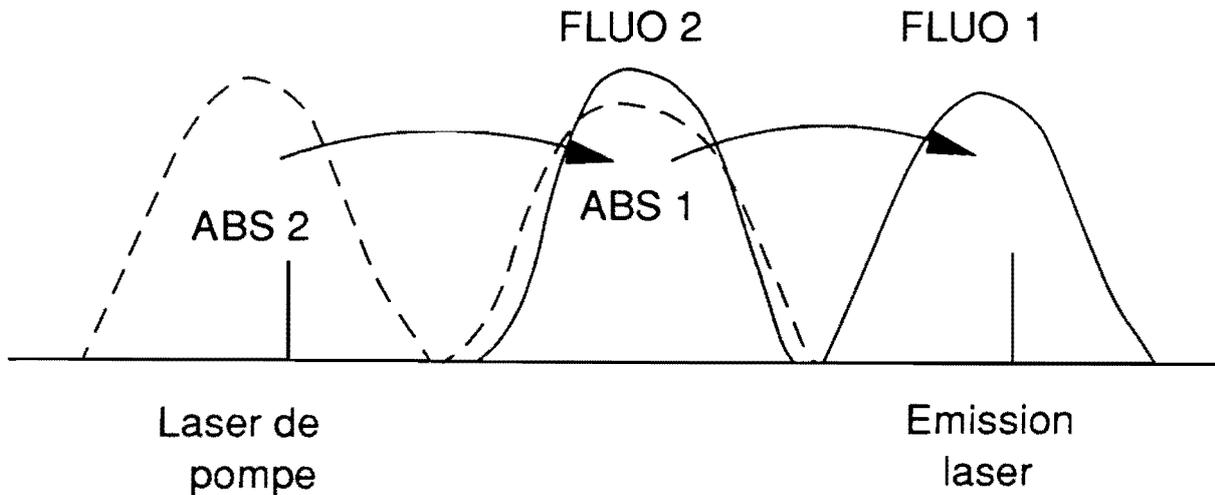


Figure 44 : Principe du transfert d'énergie entre deux colorants.

La cavité laser est similaire en tout point à celle présentée au Chapitre II, à l'exception des miroirs. En effet, suite à nos travaux à 620 nm, nous nous sommes aperçus que les miroirs influent fortement sur les performances du laser. Les miroirs "mono empilement" présentés dans le chapitre II nous ont permis d'obtenir de bons résultats. Ils ont néanmoins l'inconvénient de présenter une bande de réflectivité maximale sensiblement plus étroite que des miroirs classiques de laser à colorant. La raison est liée à la diminution du nombre de couches multidiélectriques formant l'empilement. Nous avons donc étudié avec la Société MATRA (Division Couches Minces) la possibilité de réaliser des miroirs présentant très peu de dispersion de vitesse de groupe avec un maximum de réflectivité sur la plus grande bande de longueur d'onde possible. Cette dernière caractéristique était très importante car nous ne savions pas exactement à quelles longueurs d'onde allait se situer le spectre des impulsions produites par le nouveau couple de colorants.

La solution retenue a été la suivante : une couche d'Argent est recouverte par quatre couches diélectriques permettant d'avoir une réflectivité supérieure à 99,5% de 520 à 700 nm. Ce traitement est appelé Argent protégé ou Argent amélioré. A partir de la modélisation d'un tel traitement, MATRA a calculé le déphasage introduit à la réflexion. Ces calculs nous ont permis de déterminer la dispersion de vitesse de groupe introduite par la réflexion sur un tel miroir [figure 45]. Pour les fréquences situées entre  $1,1 \omega_0$  (558 nm) et  $0,9 \omega_0$  (680 nm), avec  $\omega_0$  fréquence centrale du miroir (612 nm), la dispersion de vitesse de groupe est équivalente à celle d'un miroir classique (voir figure 17 du Chapitre I pour comparaison). Par contre, on n'observe pas une brutale augmentation de la dispersion lorsqu'on s'éloigne davantage de la fréquence centrale. Cela signifie que la dispersion d'ordre 3 de tels miroirs n'augmente pas violemment lorsqu'on se rapproche du bord de réflectivité. Ce comportement est simplement le fait de la couche d'Argent qui ne présente pas de chute brutale de sa réflectivité. Signalons toutefois que ce traitement présente l'inconvénient d'être plus fragile qu'un revêtement classique multidiélectrique.

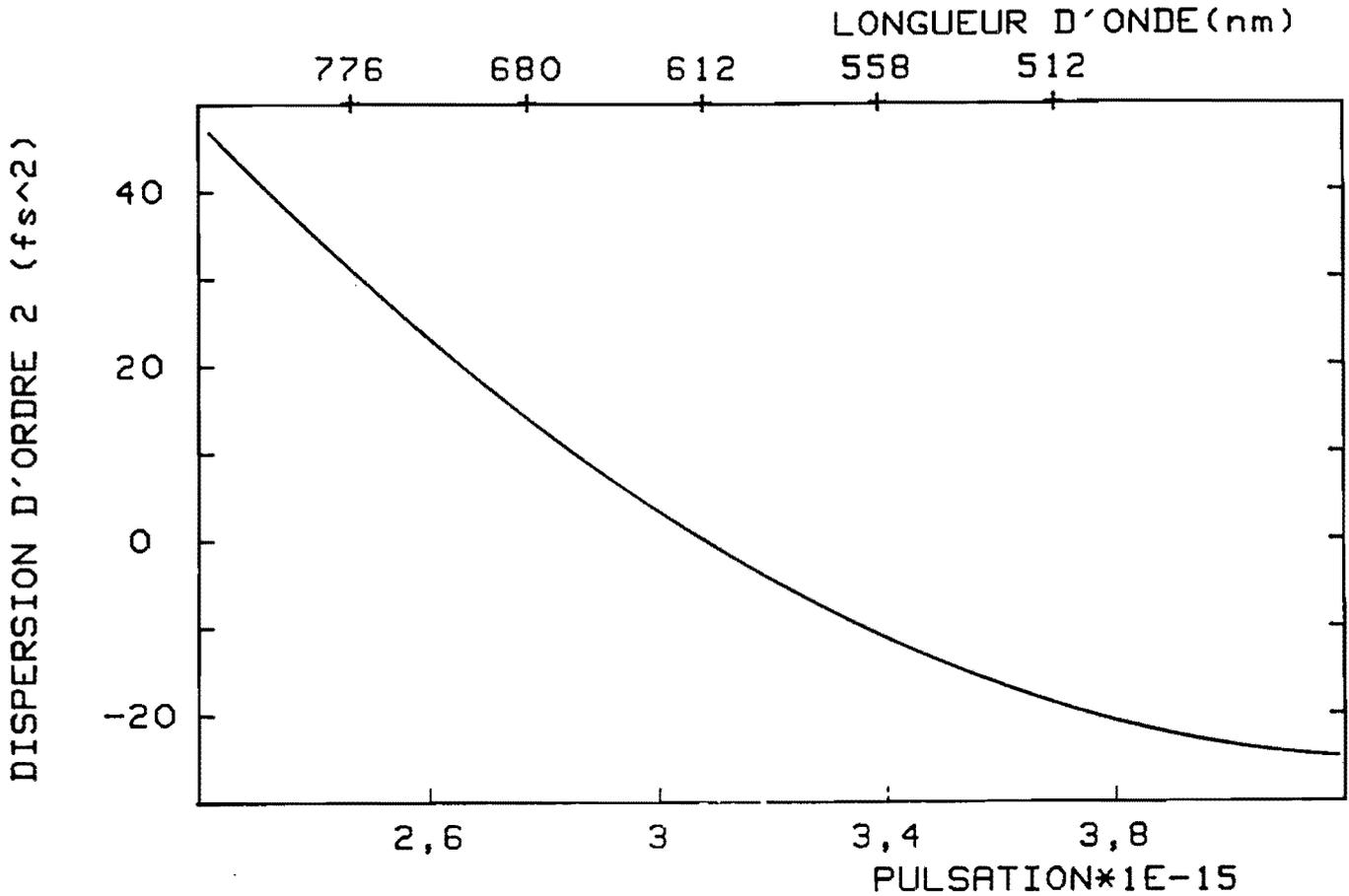


Figure 45 : Dispersion d'ordre 2 ( $\phi''$ ) introduit à la réflexion d'un miroir du type "Argent amélioré".

Avec ces miroirs, la longueur d'onde d'émission du laser en continu est à 640 nm. En ajoutant un filtre de Lyot dans la cavité, on peut accorder la longueur d'onde de 620 nm à 690 nm. Le seuil de l'effet laser est de 1,3 W avec un miroir de sortie qui transmet 1 % entre 620 et 750 nm. L'efficacité de ce mélange de colorants n'étant pas aussi efficace que la Rh6G seule, il faut en effet diminuer la transmission de miroir de sortie pour conserver une concentration en absorbant saturable suffisamment élevée. Cette condition est nécessaire pour obtenir un bon blocage des modes.

L'absorbant saturable utilisé est le DQTCI. Son coefficient d'extinction est de  $11.10^4 \text{M}^{-1} \text{cm}^{-1}$  à 628 nm dans une solution 3-1 d'éthylène glycol-éthanol. Pour des concentrations entre  $10^{-5}$  et  $3.10^{-4}$  Mole/l, le laser produit des impulsions inférieures à 100 fs. La stabilité des impulsions obtenues est bonne et augmente au fur et à mesure qu'on augmente la concentration en absorbant saturable. Les impulsions les plus courtes produites ont une durée temporelle  $\Delta t = 58$  fs (en supposant un profil temporel en  $1/\text{ch}^2$ ). Leur spectre est centré à 685 nm et a une largeur  $\Delta\lambda = 12,2$  nm [figure 46]. Ces impulsions ne sont pas limitées par la transformée de Fourier car le produit  $\Delta t \cdot \Delta\nu$  est égal à 0,455 (avec  $\Delta\nu = c\Delta\lambda/\lambda^2$ ). Le profil du spectre est dissymétrique avec un front raide vers les grandes longueurs d'onde. L'autocorrélation présente des pieds indiquant que toutes les fréquences composant le spectre n'ont pas la même phase.

Les meilleures performances du laser (largeur temporelle des impulsions, stabilité) sont obtenues pour des concentrations en absorbant saturable élevées (de l'ordre de  $3.10^{-4}$  Mole/l) correspondant à des seuils de l'effet laser de l'ordre de 4 W. La puissance du laser de pompe en régime normal est de 300 à 400 mW au-dessus du seuil. La puissance moyenne de chaque faisceau de sortie du laser à colorant est de 10 mW environ, correspondant à une puissance crête par impulsion de 2 KW.

Les résultats obtenus [62] sont sensiblement meilleurs que ceux de French et coll. [63] qui les premiers ont utilisé le verrouillage de modes passif pour produire des impulsions avec le mélange Rh6G/SR 640. Mais comme leur cavité était linéaire et ne comportait pas de système de contrôle de la dispersion de vitesse de groupe, ils ont obtenu des impulsions de 120 fs avec une stabilité moyenne. Il faut toutefois signaler que Dawson et coll. [64] ont produit des impulsions de 60 fs à 685 nm par verrouillage de modes actif de la SR640 avec également DQTCI comme absorbant saturable.

Le comportement de notre laser à 685 nm est globalement similaire à celui observé à 620 nm. En particulier, il faut également défocaliser légèrement le jet d'absorbant saturable pour obtenir les meilleures performances. Toutefois, il existe quelques différences de comportement entre ces deux versions.

En particulier, il est possible d'obtenir des impulsions assez courtes (100 fs) en introduisant un excès de dispersion positive dans la cavité alors que cela était rigoureusement impossible à 620 nm. Le laser opérait alors dans un autre régime de fonctionnement qui a été étudié par F. Salin et coll. [65] et analysé en terme de solitons d'ordre supérieur. Après une présentation de nos observations expérimentales à 685 nm, nous étudierons ce comportement en utilisant également la théorie soliton.

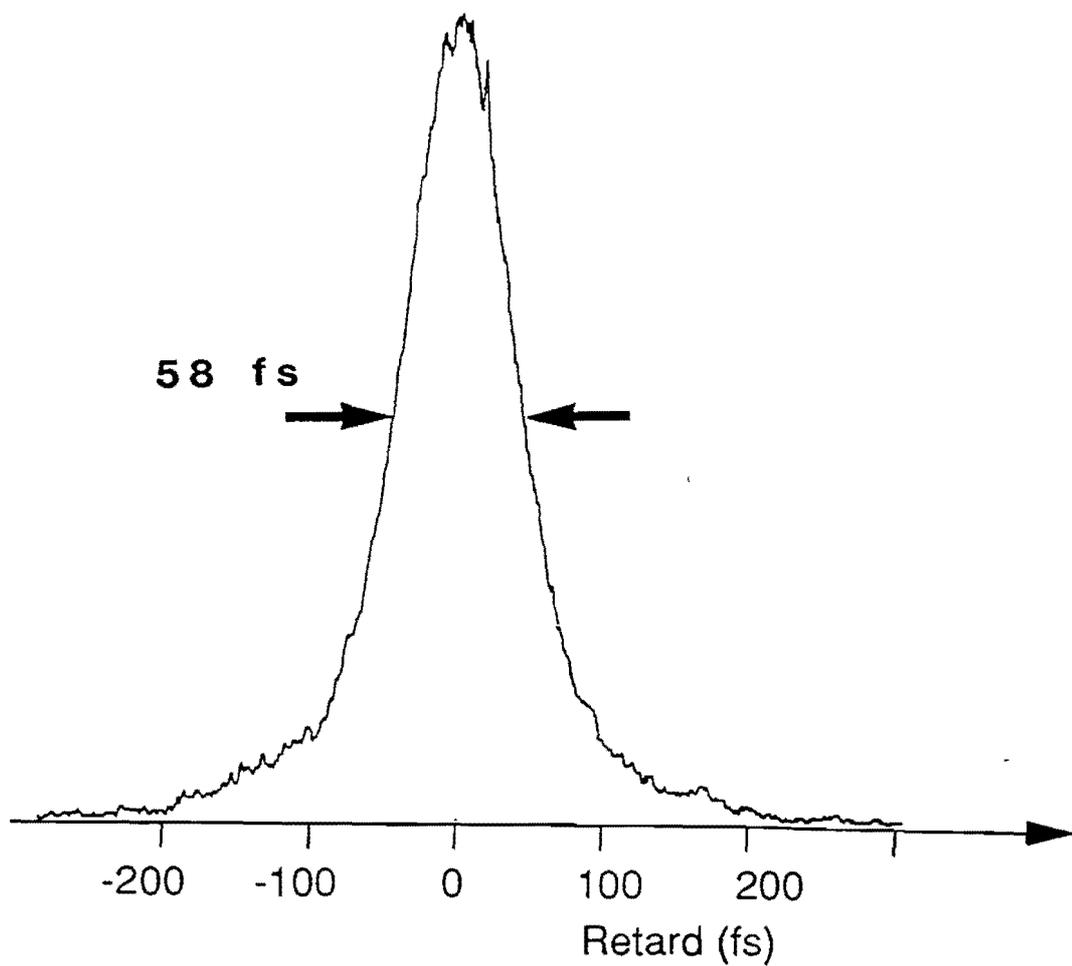
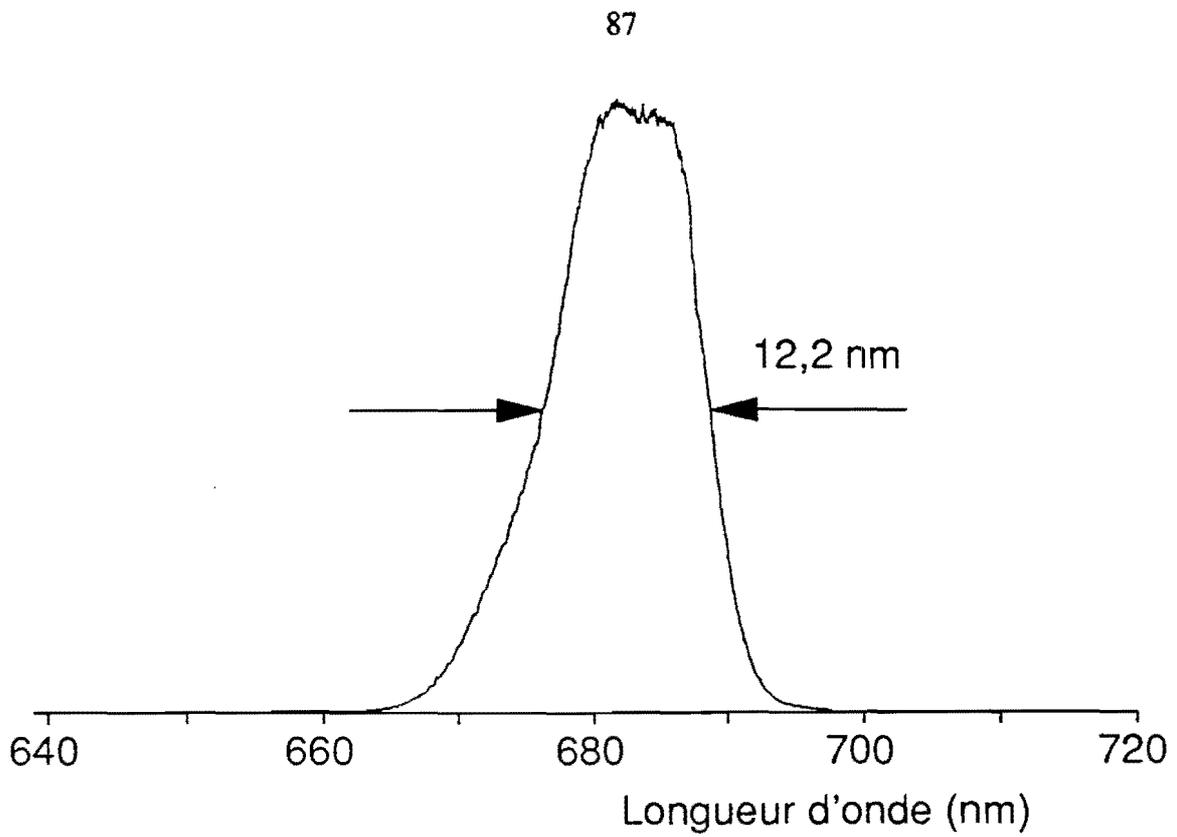


Figure 46 : Autocorrélation et spectre des impulsions les plus courtes produites avec le couple de colorants Rh 6G/SR 640 et DQTCI

### III.2.2. Etude d'un régime de fonctionnement particulier du laser femto-seconde à 685 nm

#### III.2.2.1. Observations expérimentales

Les performances des lasers à verrouillage de modes passif dépendent essentiellement de la compensation de la dispersion de vitesse de groupe. En modifiant celle-ci, on change la forme et la durée des impulsions produites. La figure 47 présente l'évolution de la trace d'autocorrélation et du spectre des impulsions en fonction de la dispersion dans la cavité fonctionnant à 685 nm. Les variations de dispersion sont déterminées à partir de la position d'un des prismes qu'on translate plus ou moins. L'expérience est réalisée pour une position du jet d'absorbant saturable correspondant aux meilleures performances obtenues dans le laser. Pour un excès de dispersion négative, le comportement du laser est similaire à celui observé à 620 nm. En translatant un prisme pour ajouter du verre dans la cavité (la dispersion totale de la cavité augmente) les impulsions sont peu à peu compressées jusqu'à leur durée minimale: 60 fs. Parallèlement, le spectre initialement dissymétrique s'élargit et devient plus symétrique [Figures 47a,b]. A partir de la position optimale [figure 47 b], le laser saute brutalement dans un autre régime de fonctionnement si on introduit davantage de verre. La trace d'autocorrélation devient bruiteuse puis présente une structure à trois bosses [Figures 47 c,d,e]. Le train des impulsions est modulé périodiquement à une fréquence de quelques dizaines de kHz [figure 48]. Cette modulation est responsable du bruit observé sur les traces d'autocorrélation car l'autocorrélateur fonctionne à une fréquence de balayage de quelques dizaines de Hz seulement. En introduisant plus de verre, on observe dans un premier temps l'apparition d'ailes dans l'autocorrélation qui se rapprochent vers le pic central [Fig. 47 b, c]. Ensuite, les ailes de l'autocorrélation s'éloignent du pic central. On observe simultanément que la fréquence de la modulation reste constante, mais son amplitude diminue. La trace d'autocorrélation devient alors de moins en moins bruiteuse [Figures 47 d,e,f]. Puis, la position des ailes de l'autocorrélation se stabilise tandis que leur énergie diminue progressivement [Figures 47 f,g,h]. Parallèlement à cette évolution temporelle, la fréquence de la modulation diminue. Nous avons enfin observé que l'énergie totale des impulsions diminuait progressivement lorsqu'on introduisait du verre à partir de la position de stabilisation des ailes de l'autocorrélation par rapport au pic central.

La figure 49 montre l'évolution de la largeur du pic central de l'autocorrélation et de la période de modulation du train des impulsions en fonction de la dispersion intracavité. On peut y distinguer trois parties. Dans la première (a et b) le fonctionnement est classique : la durée des impulsions diminue quand on augmente la dispersion. Ensuite, l'évolution est plus complexe. La période de modulation du train des impulsions et la largeur du pic central de l'autocorrélation restent constantes. Mais la largeur du spectre des impulsions [Figures 47 c à g] diminue, ce qui tendrait à prouver que les impulsions initialement sont modulées en phase.

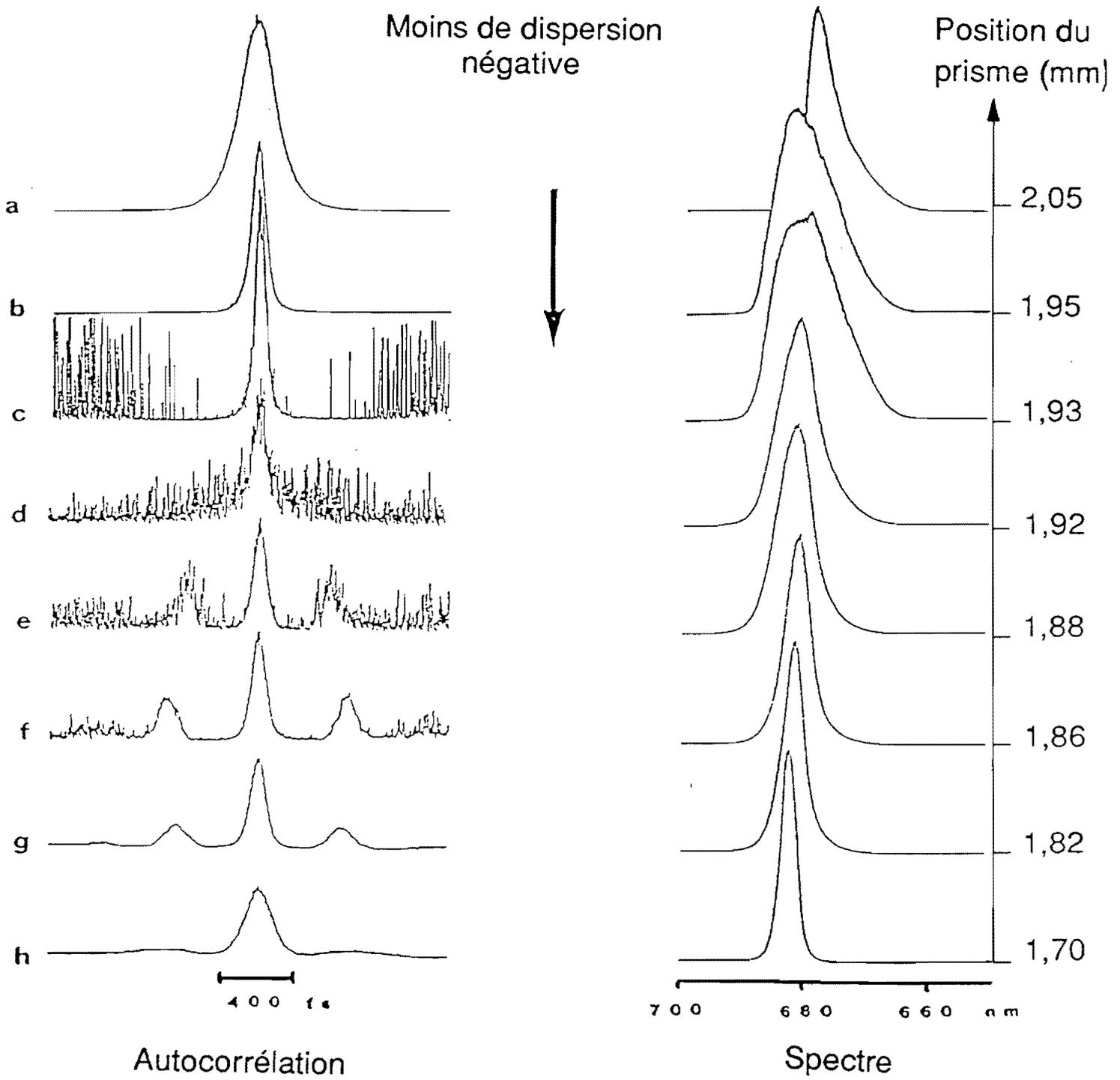


Figure 47 : Traces d'autocorrélation et spectres des impulsions obtenues en fonction de la dispersion intracavité.

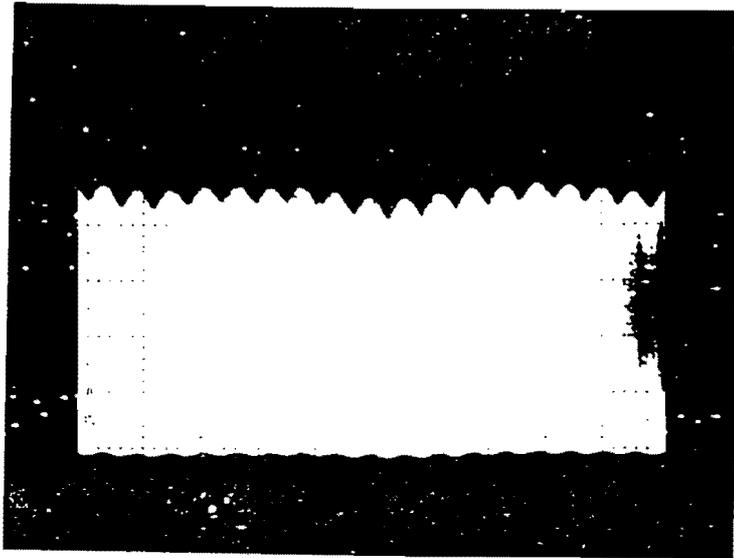


Figure 48 : Modulation du train des impulsions.

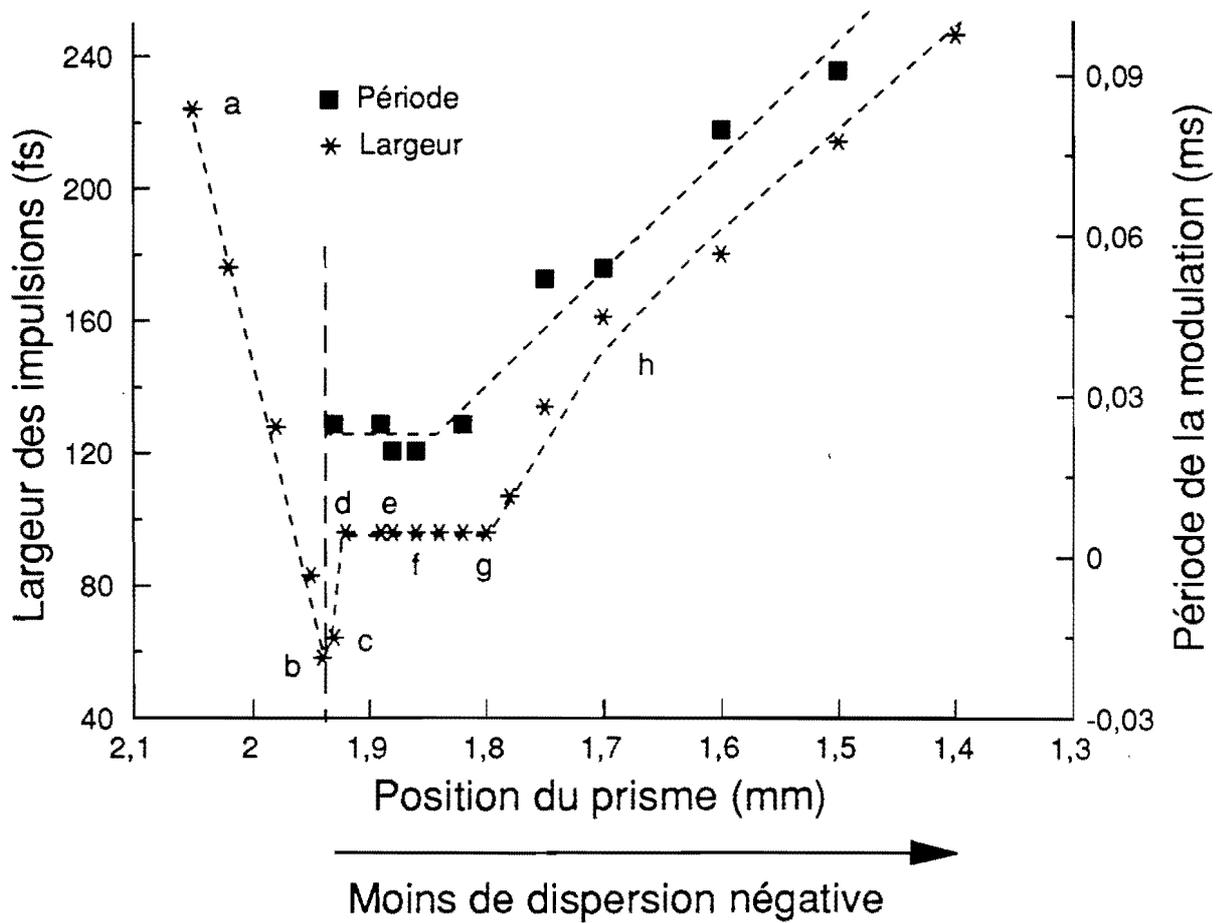


Figure 49 : Evolution de la durée des impulsions et de la période du train des impulsions en fonction de la dispersion intracavité

Nous allons tenter d'expliquer ces divers comportements en utilisant le concept d'impulsion soliton.

### ***III.2.2.2. Modélisation de l'évolution des impulsions***

L'évolution d'impulsions courtes dans les fibres optiques, en présence d'automodulation de phase et de dispersion de vitesse de groupe, a été analysée en terme de solitons optiques en 1980 par Mollenauer et coll. [66].

Le caractère soliton des impulsions produites directement par un laser à verrouillage de modes passif a été évoqué il y a quelques années déjà par Diels et coll. [67, 68] et Valdmanis et coll [51]. Il a été observé expérimentalement pour la première fois à l'Institut d'Optique en 1986 par F. Salin et coll. [38]. Depuis, d'autres expériences ont confirmé le caractère soliton de ces impulsions [69-71]. L'équation non linéaire de Schrödinger permettant de décrire l'évolution d'impulsions solitons dans un milieu non linéaire tel que les fibres optiques est a priori trop simple pour être appliquée à l'étude du laser (car elle ne tient pas compte des phénomènes de saturation du gain et des pertes) mais permet néanmoins de décrire assez fidèlement les observations expérimentales obtenues avec des lasers à 620 nm.

Nous allons donc utiliser ce formalisme pour analyser le comportement nouveau de notre laser fonctionnant à 685 nm.

L'évolution d'une impulsion lumineuse dans un milieu non linéaire en présence d'automodulation de phase et de dispersion de vitesse de groupe peut être représentée, dans le cas de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, par l'équation de Schrödinger non linéaire (ENLS) [72]. L'amplitude du champ électrique de l'impulsion  $u(z,t)$  vérifie l'équation :

$$(3.1) \quad i \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u = 0$$

avec  $t$  : temps écoulé dans un repère lié à l'impulsion  
et  $z$  : distance de propagation dans le milieu.

Le terme  $\partial^2 u / \partial t^2$  correspond à la dispersion de vitesse de groupe (positive ou négative) et le terme  $|u|^2 u$  à l'automodulation de phase.

Cette équation non linéaire a été résolue analytiquement par Zakharov et Shabat en utilisant la méthode de diffusion inverse [73]. L'équation (3.1) a une infinité de solutions parmi lesquelles les solutions stables sont appelées états solitons. La solution la plus connue est le soliton fondamental

ou soliton d'ordre 1 dont l'expression est :

$$(3.2) \quad u(z,t) = 2\eta_1 \frac{e^{i2\eta_1^2 z}}{\text{ch}(2\eta_1 t)}$$

où  $\eta_1$  est une constante . Le soliton d'ordre 1 est une impulsion symétrique qui se propage sans déformation dans le milieu non linéaire. Pour obtenir d'autres solutions avec un profil temporel symétrique il suffit d'augmenter l'énergie  $E_0$  du soliton fondamental. Le soliton d'ordre  $N$  symétrique possède une énergie  $N^2 E_0$  et se déforme périodiquement au cours de sa propagation.

Les solitons peuvent également présenter un profil temporel dissymétrique. Zakharov et al. [73] ont montré que la résolution de l' ENLS était équivalente à la recherche des valeurs propres complexes  $\Delta_j$  d'un système d'équations différentielles couplées. Les valeurs propres obtenues sont appelées "pôles" du soliton et sont notées  $\Delta_j = \xi_j + i\eta_j$  où  $\xi_j$  correspond à la vitesse de groupe du soliton et  $\eta_j$  à son énergie. La connaissance des  $N$  pôles  $\Delta_j$  et de leurs  $N$  résidus  $\xi_j$  suffit à déterminer entièrement la solution appelée soliton d'ordre  $N$ . Nous nous intéresserons ici uniquement aux solutions stables par propagation. Dans ce cas tous les  $\xi_j$  sont situés sur une ligne parallèle à l'axe des imaginaires. On peut donc considérer que tous les pôles sont sur l'axe des imaginaires en choisissant un axe se déplaçant avec le soliton ; donc  $\Delta_j = i\eta_j$ . De même, Haus et Islam [74] ont montré que la partie imaginaire du résidu introduit uniquement un décalage global de la phase du soliton que l'on peut annuler en réalisant un changement de l'origine des temps. L'étude revient donc à déterminer  $N$  couples de réels  $(\eta_j, C_j)$  qu'on appellera également pôles et résidus dans la suite. Zakharov et Shabat ont montré que la recherche des  $N$  solutions était équivalente à la résolution de  $N$  équations linéaires :

$$(3.3) \quad \lambda_j^* \sum_{k=1}^N \frac{\lambda_k^2}{(\xi_j^* - \xi_k) (\xi_k - \xi_1^*)} \lambda_1 \psi_1 + \lambda_j^* \psi_j = \lambda_j^{*2}$$

avec :

$$(3.4) \quad \lambda_j = \sqrt{C_j} e^{i\xi_j t} e^{i4\xi_j^2 z}$$

et :

$$(3.5) \quad u(z,t) = -2 \sum_{\kappa=1}^N \lambda_{\kappa}^* \varphi_{\kappa}^* .$$

Nous nous limiterons aux solitons d'ordre 2. Dans ce cas, l'expression de  $u(z,t)$  en fonction de ses deux pôles  $\eta_1$  et  $\eta_2$  et des deux résidus  $C_1$  et  $C_2$  est [70] :

$$(3.6) \quad u(z,t) = 2N(z,t)/D(z,t)$$

avec :

$$(3.7) \quad N(z,t) = C_1(1 + A_2) \exp(-2\eta_1 t + 4i\eta_1^2 Z) + C_2(1 + A_1) \exp(-2\eta_2 t + 4i\eta_2^2 Z)$$

$$(3.8) \quad D(z,t) = 1 + (C_1^2/4\eta_1^2) \exp(-4\eta_1 t) + (C_2^2/4\eta_2^2) \exp(-4\eta_2 t) + A_1 A_2 + 2 [C_1 C_2 / (\eta_1 + \eta_2)^2] \exp(-2(\eta_1 + \eta_2) t) + \cos(4(\eta_1^2 - \eta_2^2) z)$$

et :

$$(3.9) \quad A_j = C_j^2 [(\eta_1 - \eta_2) / (\eta_1 - \eta_2)]^2 / 4\eta_j^2 \exp(-4\eta_j t) \quad j = 1, 2 .$$

Les fonctions  $u(z,t)$  sont périodiques en  $z$  avec une période donnée par :

$$(3.10) \quad T_p = \frac{\pi}{\left( \begin{array}{c} 2 \quad 2 \\ \eta_2 - \eta_1 \end{array} \right)} .$$

La période dépend donc uniquement des pôles. En général, un soliton d'ordre deux est formé de deux impulsions. Le rapport en énergie entre les deux impulsions et le temps séparant celles-ci, dépendent des valeurs des pôles et des résidus. On peut toutefois séparer leurs rôles en observant que le temps séparant les deux impulsions dépend de la valeur des résidus et que la valeur des pôles détermine la répartition d'énergie entre les deux impulsions. Le temps entre les impulsions augmente lorsque la valeur d'un des deux résidus augmente. D'autre part, l'énergie totale du soliton est proportionnelle à  $\eta_1 + \eta_2$ .

Utilisons ces résultats pour expliquer le comportement de notre laser. La première partie de l'évolution [Figures 47 a, b] correspond à un soliton d'ordre 1 qui se comprime quand on augmente la dispersion. Dans ce cas, les effets dus à l'automodulation de phase et à la dispersion de vitesse de groupe se compensent mutuellement. L'évolution de l'impulsion dans la cavité s'effectue sans déformation et l'intensité moyenne du faisceau de sortie est constante. L'enveloppe du train d'impulsions n'est pas modulée. On peut ensuite, interpréter le changement de comportement du laser par un régime de fonctionnement du type soliton dissymétrique d'ordre 2. L'autocorrélation présente trois pics [figure 47] et le train des impulsions est modulé. Les impulsions sont donc formées d'une impulsion principale suivie d'une plus petite. La distance les séparant dépend de la dispersion intracavité.

Nous avons modélisé [figure 50] ce comportement en utilisant comme impulsion un soliton d'ordre 2 dissymétrique caractérisé par des pôles valant :  $\eta_1 = 0,7$  et  $\eta_2 = 1,3$ . Pour simuler le déplacement de la petite impulsion par rapport à l'impulsion principale, nous avons maintenu constante, la valeur de  $C_1$  à 1 nous avons fait varier  $C_2$  d'une valeur très grande ( $e^{+10}$ ) à une valeur nulle (figure 50 a). L'énergie des impulsions est constante car  $\eta_1$  et  $\eta_2$  sont constants. Ensuite les valeurs des deux résidus sont maintenues constantes ainsi que la valeur du pôle  $\eta_1$ . Pour traduire une diminution de l'énergie contenue dans le pic secondaire (et donc de l'énergie totale du soliton) nous avons fait tendre  $\eta_2$  vers 0. La figure 50.b représente l'évolution théorique obtenue. Signalons toutefois que les évolutions théoriques présentent le profil temporel des impulsions et non pas de l'autocorrélation sur un grand nombre de période du soliton. L'évolution théorique modélise donc assez bien le comportement expérimental. Toutefois nous n'avons pas pu modéliser une évolution de la période de modulation du train des impulsions conforme à celle observée expérimentalement. D'autre part, il ne nous est pas possible de relier les variations de la valeur des pôles et des résidus à des paramètres physiques du laser.

Nous pensons que de tels comportements proviennent essentiellement des miroirs de la cavité qui jouent le rôle d'un filtre spectral. French et coll [75] ont présenté des observations similaires aux nôtres dans un laser à verrouillage de modes passif à 570 nm en utilisant le couple de colorants R 110/HICI. En augmentant la dispersion positive, ils ont également observé des autocorrélations à trois pics [figure 51].

Avramopoulos et coll. [76] ont ensuite développé un modèle théorique pour décrire l'évolution des impulsions femtosecondes dans leur cavité. Toutefois, pour simuler leurs observations expérimentales, ils ont été obligés d'introduire artificiellement un filtre spectral dans la modélisation de la cavité. Nous pensons que le rôle de filtre spectral dans leur cavité est joué par les miroirs utilisés sous un grand angle d'incidence, ce qui doit décaler leur bande de réflectivité maximale.

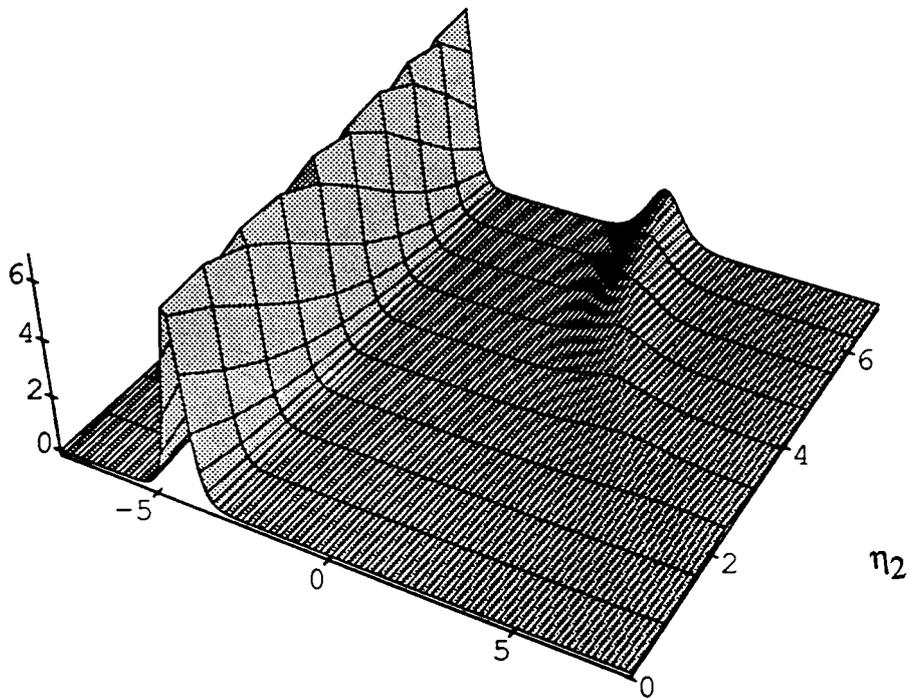
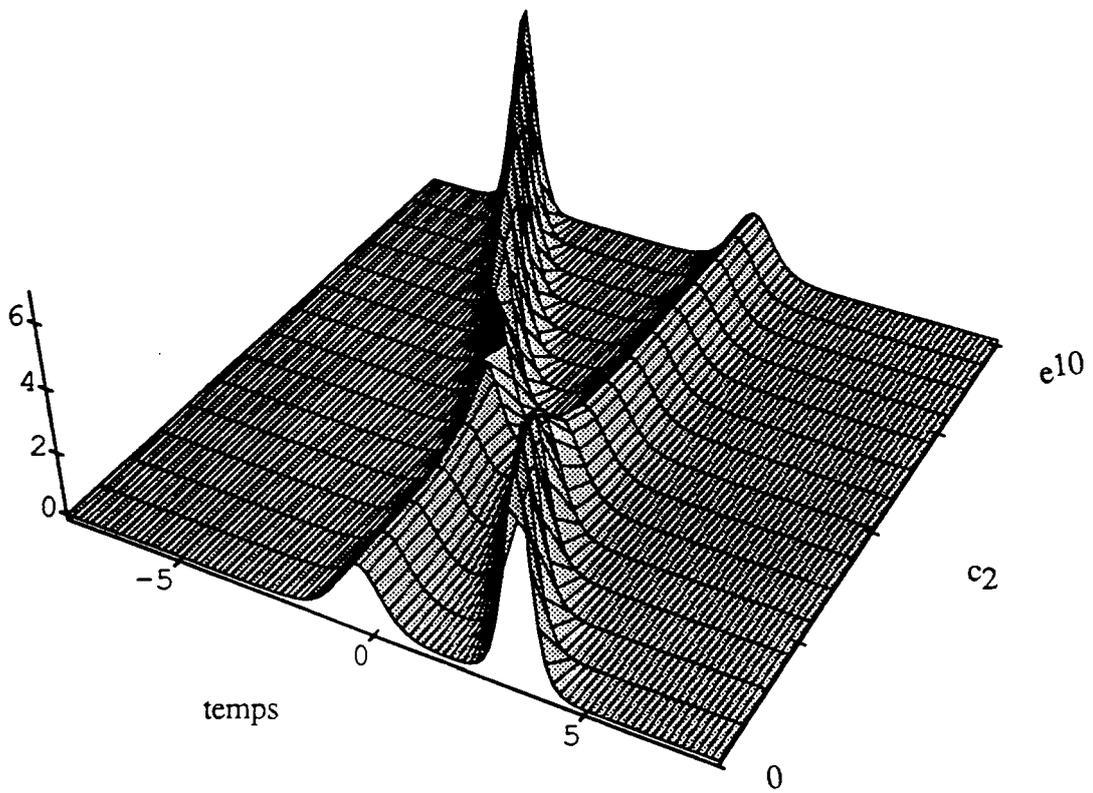
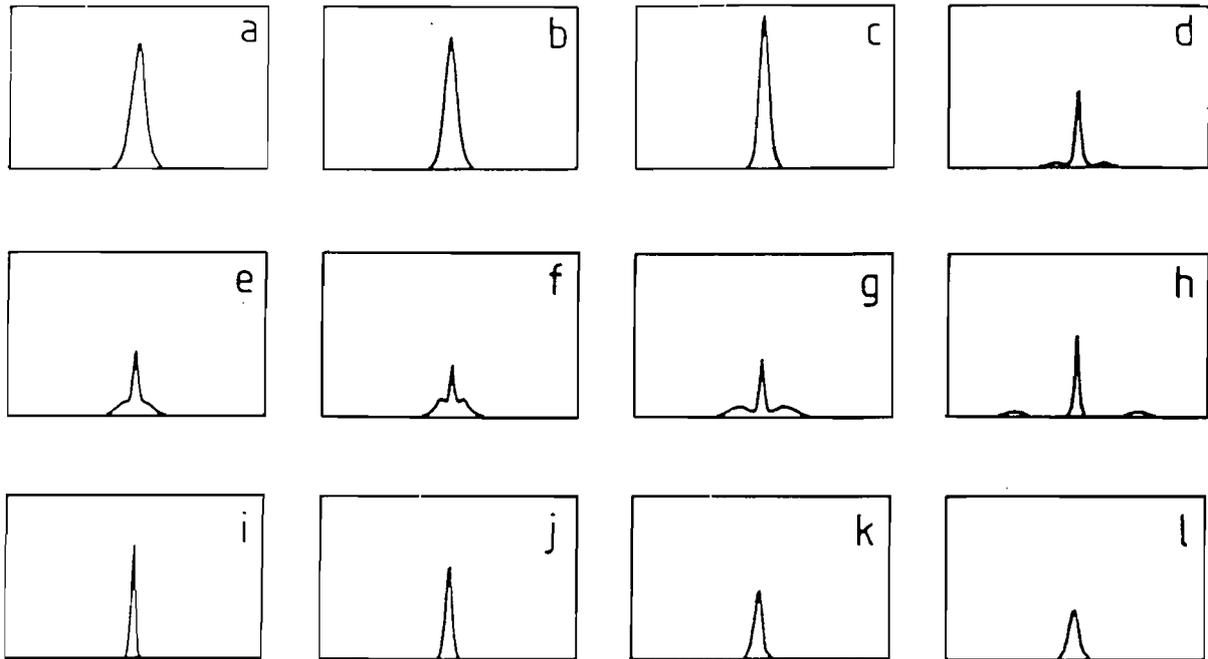


Figure 50 : Evolutions théoriques.



*Figure 51 : Profils des autocorrélations obtenues par Avramopoulos et coll. [76]. La dispersion intracavité change d'une valeur positive (a) à une valeur négative . Le zéro dispersion correspond à la courbe (d).*

Or, lorsque nous avons étudié notre laser à 620 nm, nous n'avons pas observé de telles évolutions car les miroirs étaient bien adaptés. Aucune sélection spectrale ne forçait donc le laser à émettre de telles impulsions singulières. Par contre, le comportement complexe du laser à 685 nm nous a amené à contrôler la réflectivité des miroirs "Argent protégé" utilisés. Nous nous sommes aperçu que la longueur d'onde de coupure haute (700 nm) était légèrement plus basse que celle prévue théoriquement, tendant à nous faire penser que nos miroirs pouvaient être responsables des comportements observés.

Afin de vérifier la validité de cette hypothèse, nous avons introduit un filtre de Lyot dans le laser femtoseconde opérant à 620 nm. Ce filtre avait une largeur spectrale suffisante (6 nm) pour obtenir des impulsions courtes (100 fs). Nous avons alors obtenu une évolution similaire aux observations de French et coll. [75].

La figure 52 présente la trace d'autocorrélation en fonction de la dispersion pour une position fixe du filtre de Lyot, évolution tout à fait semblable à celles observées par l'équipe de l'Imperial College. Ces observations semblent donc valider l'hypothèse du filtre spectral dans la cavité du laser opérant à 685 nm. Signalons également qu'une évolution tout à fait identique a été obtenue en laissant fixe la position des prismes et donc la dispersion, mais en changeant la longueur d'onde centrale transmise par le filtre de Lyot [77]. Il semble donc évident que lorsque l'on force le laser à

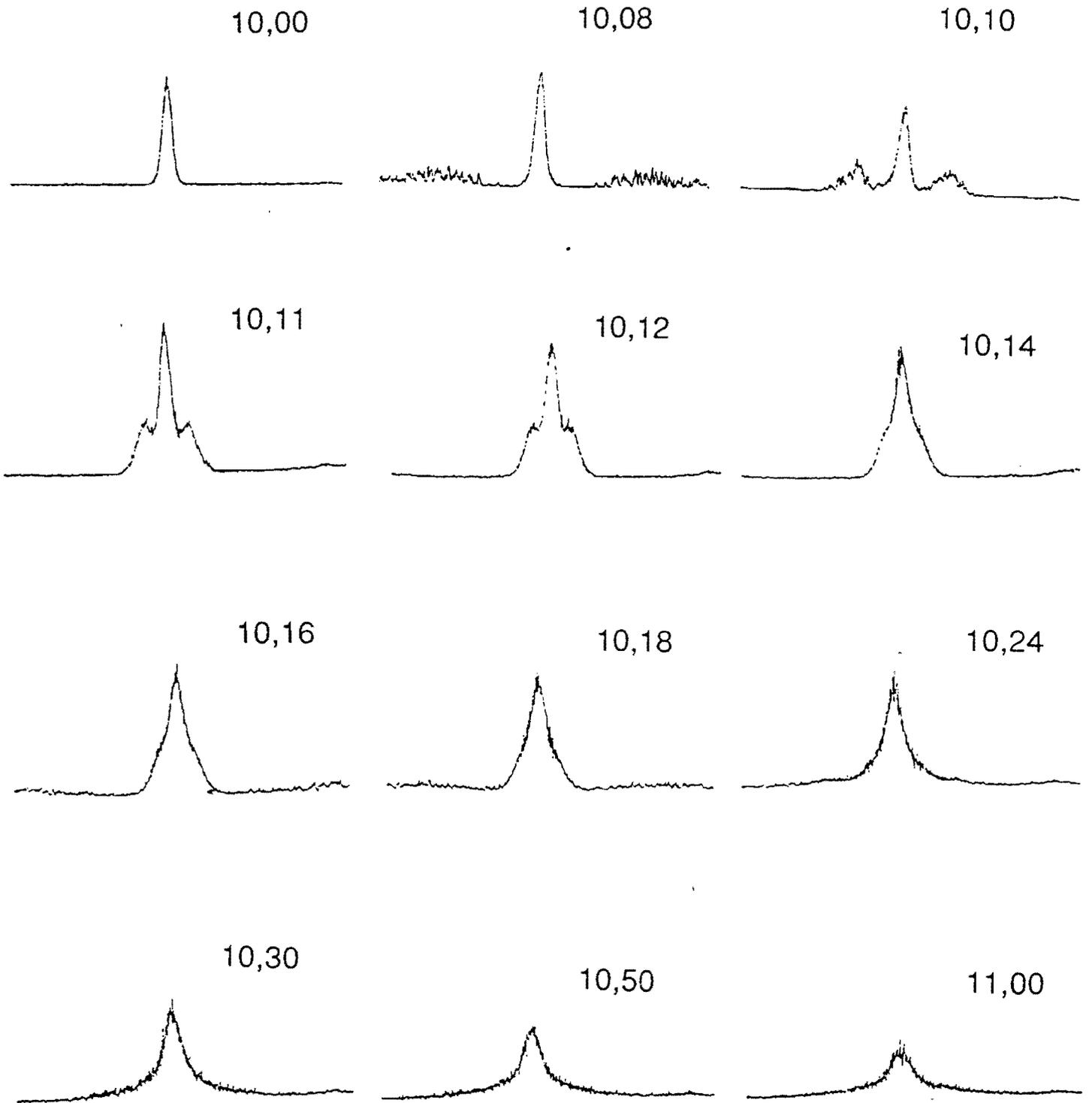


Figure 52 : Evolution de la fonction d'autocorrélation en fonction de la position d'un des prismes (donnée en mm) pour une position du filtre de Lyot Fixe .

émettre des impulsions dans une certaine plage de longueurs d'onde, celui-ci réagit et se comporte très différemment dans le cas où la longueur d'onde est déterminée uniquement par les deux colorants milieu amplificateur/absorbant saturable.

Compte tenu de la complexité et du nombre important des paramètres de la cavité régissant le fonctionnement de cette classe de lasers, il est très difficile de modéliser l'évolution des impulsions dans la cavité. Néanmoins, le formalisme soliton nous a permis de bien simuler les observations expérimentales et l'ensemble des résultats présentés montre l'extrême importance du choix des miroirs par rapport au spectre des impulsions.

### **III.3. VERROUILLAGE DE MODES PASSIF DANS LE PROCHE INFRAROUGE**

La génération d'impulsions femtosecondes dans le proche infrarouge est intéressante pour l'étude des propriétés spectroscopiques des semiconducteurs III-V massifs ou dans des structures du type multipuits quantiques [78]. Certaines expériences sont réalisées directement avec l'oscillateur [79] alors que d'autres nécessitent une puissance crête supérieure à celles obtenues à 800 nm à partir d'un filtrage spectral vers 800 nm dans le continuum produit par des impulsions à 620 nm amplifiées. W. Knox [80] a pour cela développé une chaîne femtoseconde amplifiée à 800nm. Son système est constitué d'un laser à colorant à verrouillage de modes actif suivi d'un amplificateur pompé par un laser à vapeur de cuivre. Des impulsions de 120 fs et 1  $\mu$ J sont obtenues à une cadence de 5 KHz.

En verrouillage de modes passif, seule l'équipe de l'Imperial College a produit des impulsions de 110 fs à 750 nm dans des cavités linéaires sans système contrôlant la dispersion de vitesse de groupe [81, 82].

Nous allons présenter les résultats que nous avons obtenus dans le proche infrarouge en utilisant la technique du verrouillage de modes passif dans notre cavité en anneau équipée d'un système de prismes.

#### **III.3.1. Génération d'impulsions courtes à 775 nm**

Pour produire des impulsions femtosecondes vers 770-800 nm par verrouillage de modes passif, il faut tout d'abord disposer d'un colorant efficace dans cette gamme de longueur d'onde. Le plus performant est un colorant de la famille des Rhodamines : la Rhodamine 700 (Rh700). Son efficacité est comparable à celle de la Rh6G, et son absorption est centrée à 650 nm [figure 53].

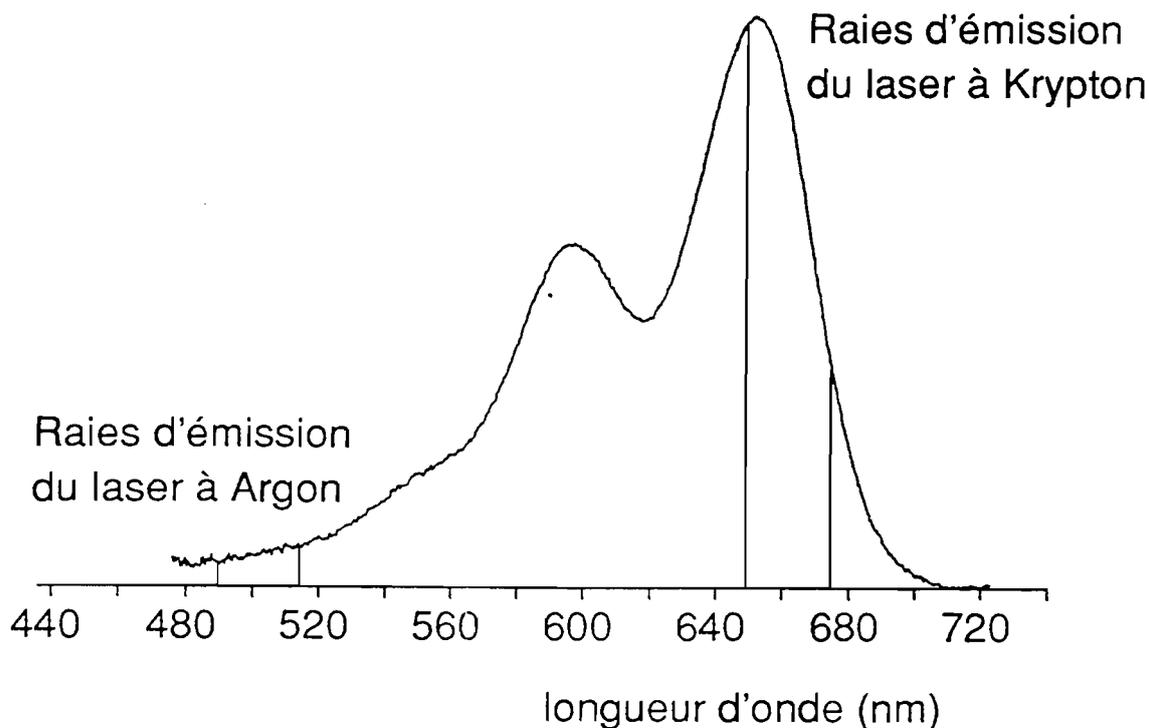


Figure 53 : Spectre d'absorption de la Rhodamine 700 dans l'éthylène glycol.

Pour exciter la Rh 700 avec un laser à Argon et non pas avec un laser à Krypton mieux adapté mais plus rare dans les laboratoires, Marason [83] a étudié le transfert d'énergie en continu entre le DCM et la Rh700 et a obtenu de très bons résultats. Nous avons donc utilisé ce mélange de colorants dans notre cavité. Les miroirs utilisés sont du type "mono-empilement" avec une réflexion maximale centrée à 760 nm. Le miroir de sortie transmet 1,5 % environ entre 760 et 800 nm. Malheureusement, nous n'avons pas du tout obtenu les mêmes résultats que Marason. L'efficacité du mélange de colorants s'est avérée trop faible. En additionnant la Rh 700 à la solution de DCM, nous avons bien observé un décalage de la longueur d'onde d'émission du laser de 650 à 750 nm prouvant qu'il y a bien un transfert d'énergie. Mais le seuil du laser est passé de 1 W avec le DCM à 4 W avec le mélange DCM/Rh700. Nous n'avons pas trouvé d'explications à cette mauvaise efficacité. Toutefois, nous avons récemment appris que des essais tout aussi infructueux avait été réalisés au CNET Lannion [84] dans une cavité linéaire différente de la nôtre prouvant que le problème semble se situer dans le mélange de colorants et non pas dans le type de cavité utilisée.

Une autre solution pour exciter directement la Rh 700 consiste à utiliser un laser à Krypton continu dont les deux principales raies d'émission dans le rouge se situent à 647 et 676 nm. Pour une puissance du laser Krypton de 3 W et pour une concentration en Rh 700 de  $10^{-3}$  Mole/l,

nous avons obtenu en continu 800 mW sur les deux faisceaux de sortie à 750 nm et une courbe d'accord en longueur d'onde allant de 690 à 805 nm représentée sur la figure 54.

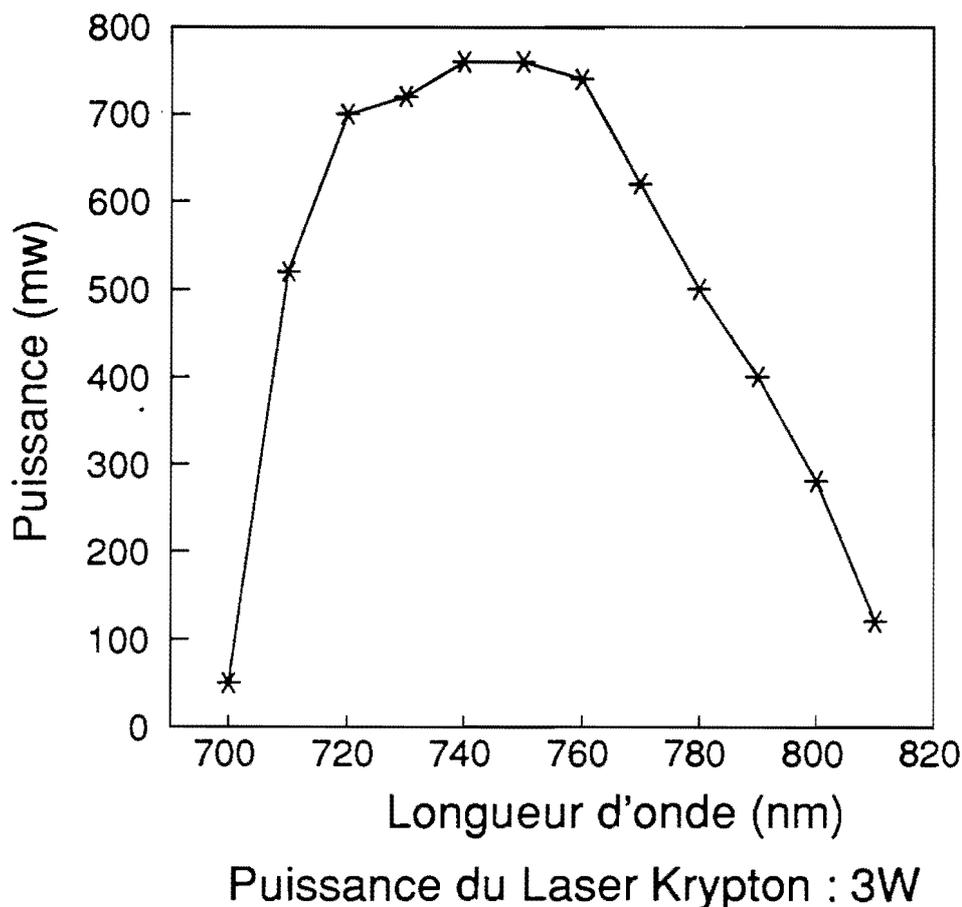


Figure 54 : Courbe d'accord en continu du laser avec la Rh 700 (puissance de pompe du laser Krypton : 3 W , toutes raies rouges )

L'efficacité de la Rh 700 pompée par un laser Krypton continu est donc comparable à celle de la Rh6G pompée par un laser à Argon continu. Signalons que la cavité n'étant pas destinée à produire de la puissance en continu, la transmission du miroir de sortie n'était pas optimisée. Il est donc certainement possible d'obtenir encore plus de puissance en adaptant la transmission du miroir de sortie.

Le premier absorbant saturable que nous avons testé est le DDI (1,1' diéthyl-2-2'-dicarbocyanine iodide). Son coefficient d'extinction est de  $20 \cdot 10^4 \text{ Mole}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  au maximum de son absorption située à 730 nm [figure 55]. L'absorbant saturable est dans un premier temps dissous dans du propylène carbonate pour former une solution mère concentrée qui est ensuite dissoute dans de l'éthylène glycol.

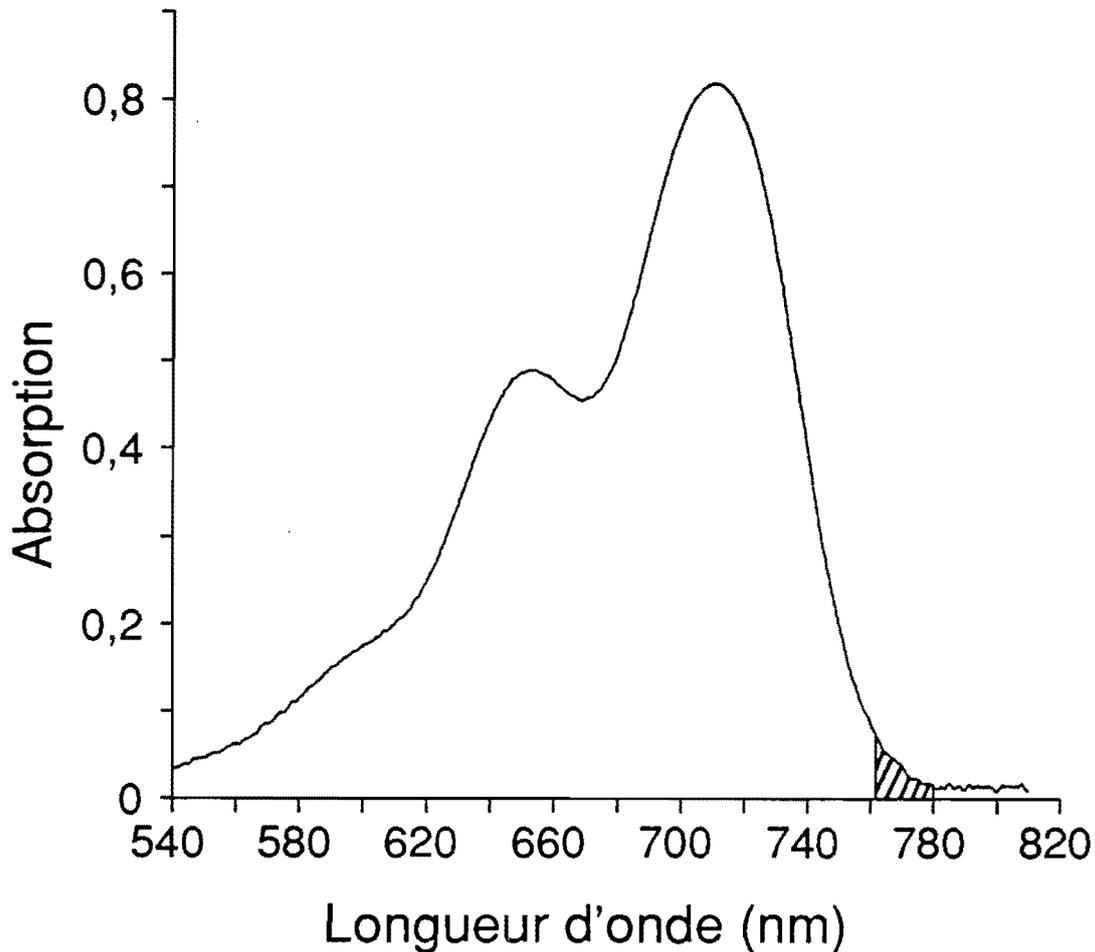


Figure 55 : Spectre d'absorption du DDI dans l'éthylène glycol . La partie hachurée représente la zone dans laquelle les impulsions de moins de 40 fs ont été obtenues.

Lorsque l'on opère en régime impulsionnel, la longueur d'onde d'émission du laser se déplace vers 775 nm même avec des concentrations en absorbant saturable assez faibles ( $10^{-5}$  Mole/l). Vers 775 nm, le gain de la Rh700 est encore très élevé alors que l'absorption du DDI est très faible car on se situe à la limite supérieure de sa courbe d'absorption. Nous avons donc utilisé des concentrations en DDI assez élevées, de l'ordre de  $10^{-3}$  Mole/l, pour obtenir des seuils de laser de pompe de 3W environ et un verrouillage de modes efficace.

La distance D entre les prismes de notre ligne dispersive qui était de 300 mm pour la configuration Rh6G/DODCI (voir Chapitre I) à été portée à 380 mm dans cette nouvelle configuration pour observer un régime de fonctionnement stable [85]. En effet lorsque la longueur

d'onde augmente, il faut compenser la diminution de la dispersion de vitesse de groupe  $\phi''$  introduite par les prismes en augmentant la distance  $D$ . La figure 56 représente  $\phi''$  en fonction de la longueur d'onde pour un système de quatre prismes en silice. Cette évolution de  $\phi''$  est directement reliée à la diminution de la dispersion de la silice utilisée quand on s'éloigne de sa bande d'absorption. La figure 56 montre également que la dispersion d'ordre trois  $\phi'''$  (dérivée de la courbe) diminue lorsque la longueur d'onde augmente. Ceci est intéressant car on sait que la dispersion d'ordre trois des prismes est une des limitations des performances des lasers femtosecondes.

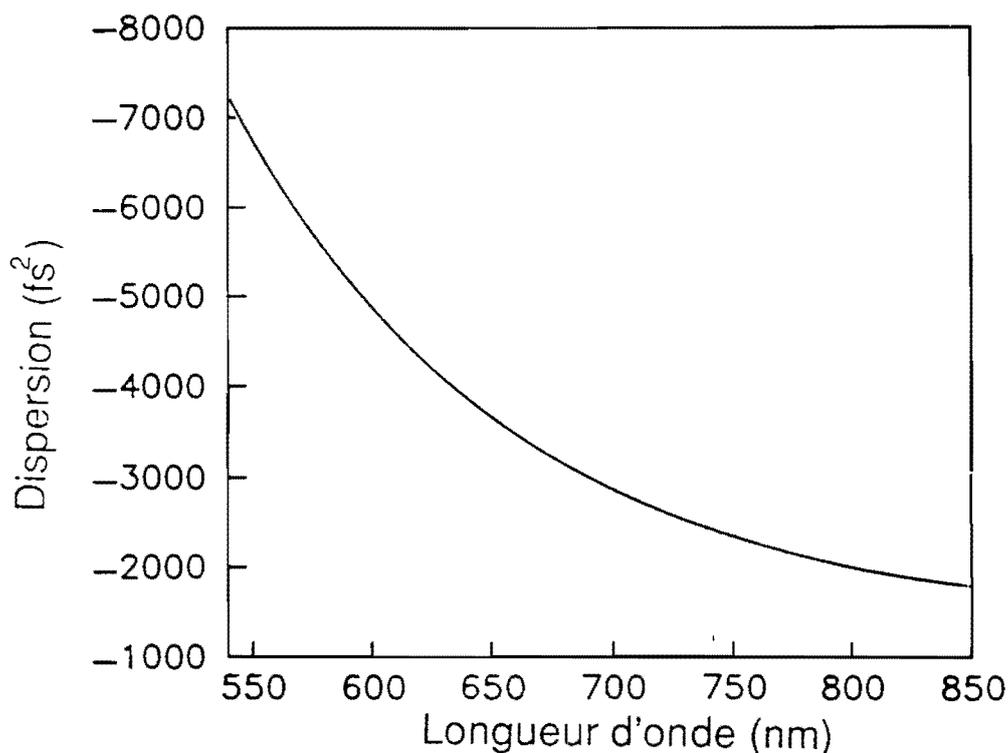


Figure 56 : Evolution de la dispersion d'ordre 2 introduite par un système de 4 prismes en silice en fonction de la longueur d'onde. La distance  $D$  entre les prismes est égale à 30 cm et l'épaisseur totale de verre traversée est de 10 mm.

Pour un excès de dispersion négative dans la cavité, le laser produit des impulsions stables, dont le spectre est dissymétrique. Ce comportement est similaire à celui du laser fonctionnant à 620 ou à 685 nm. Mais en ajustant la dispersion dans la cavité pour obtenir les impulsions les plus courtes possibles, on observe que leur spectre s'élargit et qu'il apparaît une bosse située du côté des basses longueurs d'ondes. Au fur et à mesure que la largeur temporelle des impulsions

diminue, cette bosse se translate vers les grandes longueurs d'onde et devient de plus en plus prépondérante [figure 57]. Parallèlement à cette évolution spectrale, la durée des impulsions passe par un minimum temporel puis augmente à nouveau. Cette évolution s'effectue sans changement brutal du régime de fonctionnement du laser et aucun comportement du type soliton d'ordre supérieur n'a été observé.

Les impulsions les plus courtes obtenues [86] ont une durée  $\Delta t$  égale à 36 fs en supposant un profil en sécante hyperbolique [figure 58]. Le spectre de ces impulsions est centré à 775 nm et présente un profil à deux bosses. La largeur du spectre à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  est égale à 18,5 nm ce qui conduit à un produit  $\Delta t \Delta\nu = 0,333$ . La puissance moyenne de chaque faisceau de sortie est de 10 mW environ pour une puissance du laser de pompe égale à 3,4 W (100 mW au dessus du seuil).

L'autocorrélation des impulsions présente des pieds importants si on la compare à une autocorrélation d'impulsions de 36 fs dont le profil est en sécante hyperbolique (courbe en pointillé sur la figure 58).

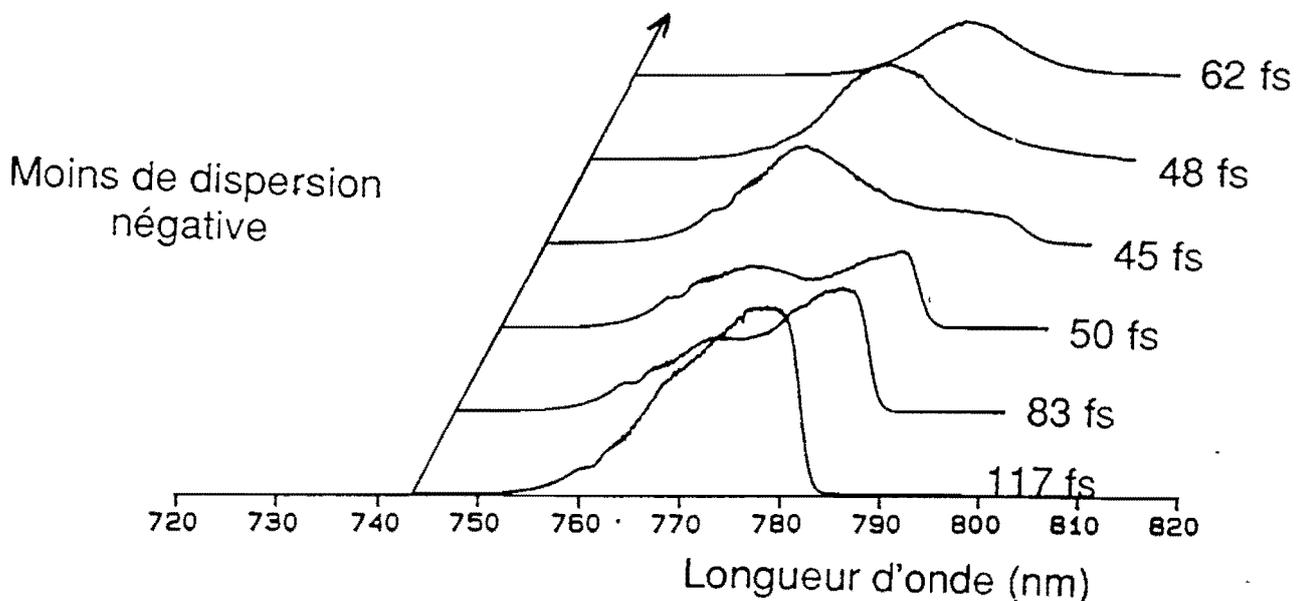


Figure 57 : Evolution du spectre des impulsions en fonction de la dispersion intracavité.

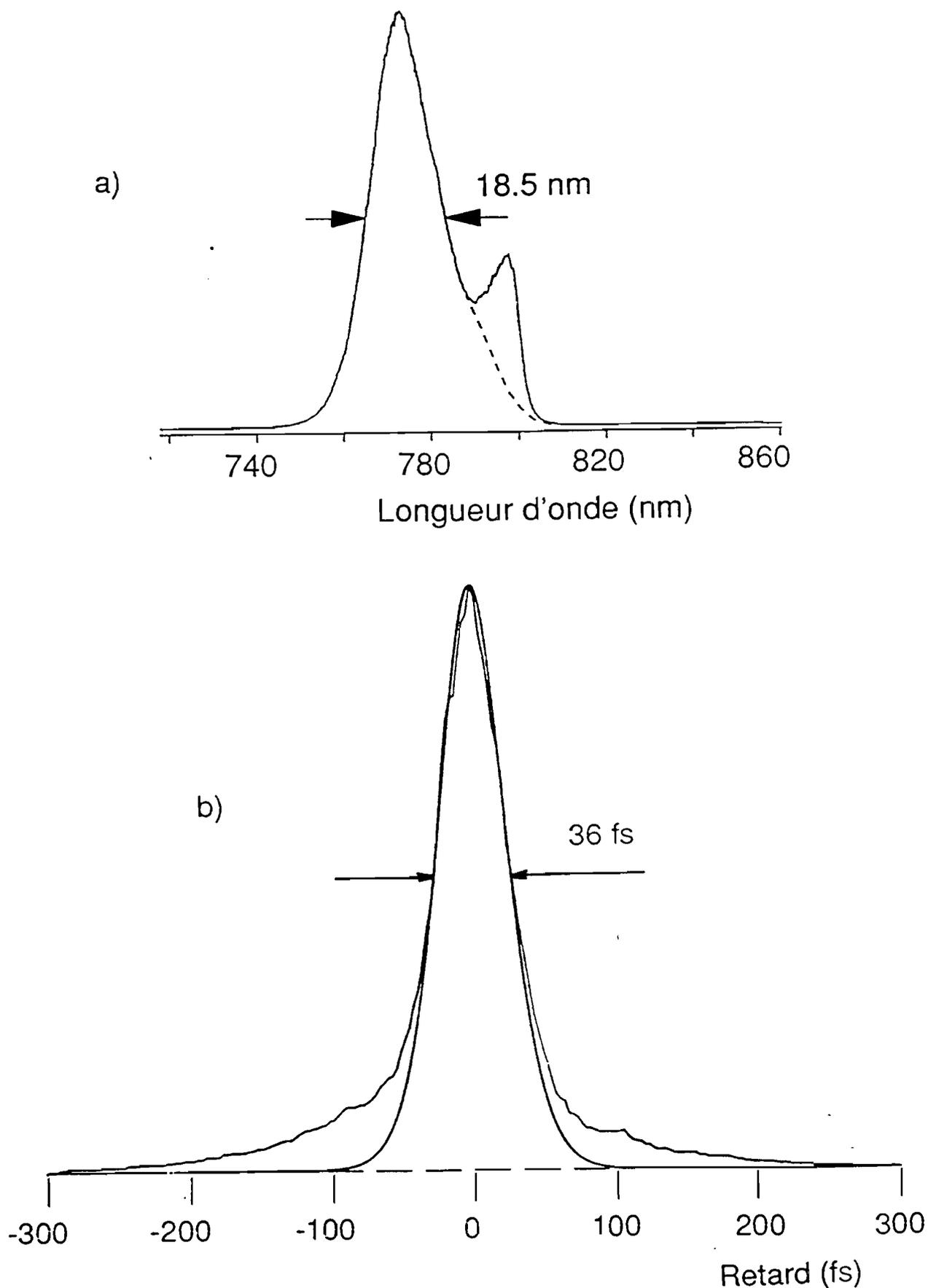


Figure 58 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions les plus courtes produites par le laser vers 775 nm. La courbe en pointillé correspond à la meilleure approximation de l'autocorrélation en supposant un profil en sécante hyperbolique.

Quand le laser fonctionne en régime impulsif et quelle que soit la largeur temporelle des impulsions, on observe quatre impulsions dans la cavité. Deux d'entre elles tournent dans un sens et les deux autres dans le sens inverse. Avec une photodiode rapide on s'aperçoit, que dans chaque faisceau de sortie, les deux impulsions ont la même énergie et sont séparées temporellement de 2,5 ns [figure 59]. Cet intervalle de temps correspond à une distance parcourue égale au quart de la longueur de la cavité et également à la distance séparant le milieu amplificateur de l'absorbant saturable. La figure 60 simule l'évolution de ces quatre impulsions dans la cavité. Toutes les paires d'impulsions naissent obligatoirement dans l'absorbant saturable et s'y rencontrent à chaque tour de cavité. Nous prendrons comme origine de temps  $T=0$ , l'instant où les impulsions  $A_2$  et  $B_2$  se croisent dans l'absorbant saturable. Après 2,5 ns, les deux impulsions  $A_1$  et  $B_1$  se croisent également dans l'absorbant saturable alors que  $A_2$  est amplifiée. Ensuite les impulsions  $A_1$  et  $B_2$  sont amplifiées avant que les impulsions  $A_2$  et  $B_2$  se croisent à nouveau dans l'absorbant saturable. On voit donc que les quatre impulsions arrivent dans le milieu amplificateur séparées de 2,5 ns. Le gain du milieu amplificateur est donc le même pour les quatre impulsions. De plus, le temps de recouvrement du gain dans la Rh700 étant inférieur à 2,5 ns, le gain est maximal. Quatre impulsions peuvent donc exister dans la cavité ce qui n'est pas le cas avec la Rh6G car son temps de recouvrement de gain est plus long.

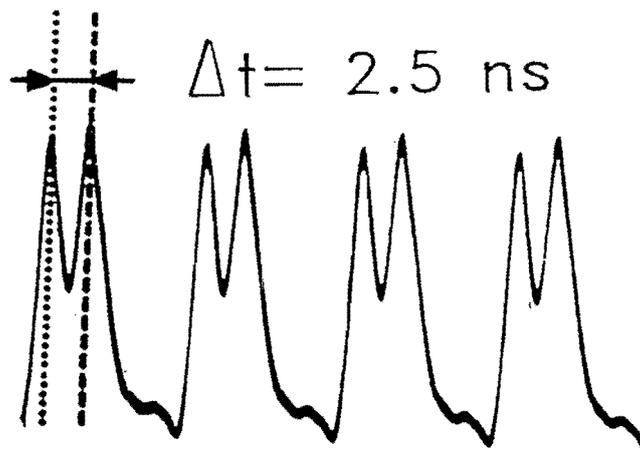


Figure 59 : Trace d'oscilloscope montrant le train des impulsions.

Les impulsions produites sont moins stables que celles obtenues précédemment à 620 et 685 nm. Le laser est en effet sensible aux fluctuations d'alignement de la cavité ou du laser Krypton car sa puissance doit être ajustée juste au dessus du seuil pour ne pas trop saturer l'absorbant saturable. Si l'on augmente la puissance du laser de pompe, le fonctionnement du laser devient chaotique. Nous allons donc étudier un autre absorbant saturable pour tenter d'améliorer la stabilité.

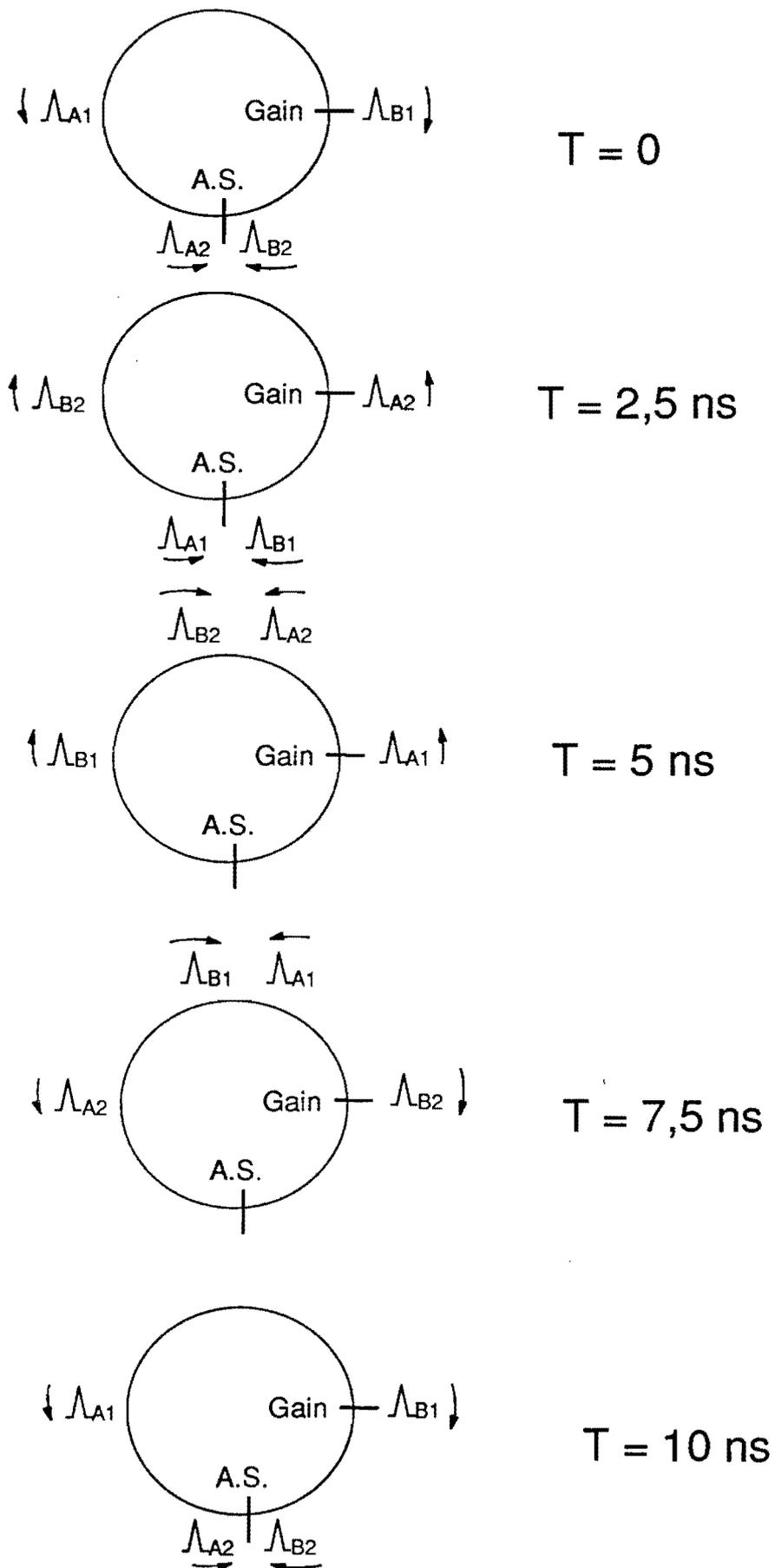


Figure 60 : Evolution des quatre impulsions dans la cavité.

### III.3.2. Verrouillage de modes passif vers 800 nm

Pour améliorer les performances du laser nous avons testé un deuxième absorbant saturable : HITCI (1,1', 3, 3', 3' hexaméthylindotricarboyanine iodide). Son absorption est décalée vers les grandes longueurs d'onde par rapport au DDI [figure 61] et devrait mieux convenir au spectre de fluorescence de la Rh700. Son coefficient d'extinction au maximum d'absorption est égal à  $21,5 \cdot 10^4 \text{L.Mole}^{-1}\text{cm}^{-1}$ . L'absorption de HITCI étant plus grande vers 780-800 nm, nous avons diminué la concentration en absorbant saturable ( $\sim 10^{-4} \text{Mole/l}$ ) pour obtenir l'émission d'impulsions pour des puissances du laser pompe de l'ordre de 4 W.

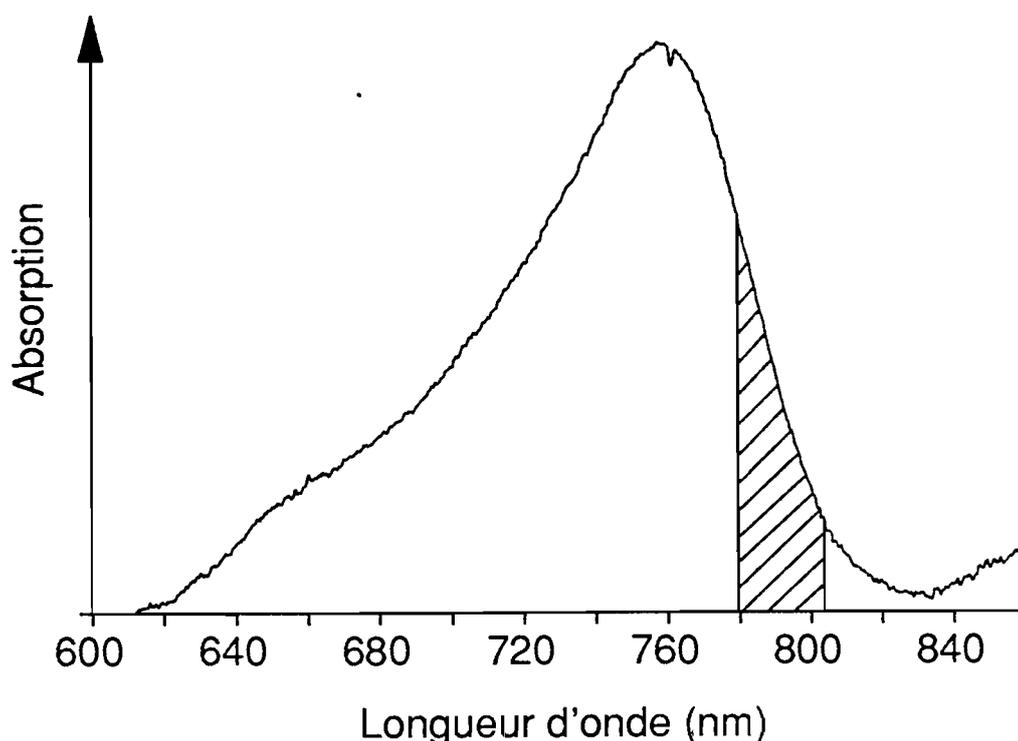


Figure 61 : Spectre d'absorption de HITCI dans l'éthylène glycol . La partie hachurée représente la zone dans laquelle les impulsions de 50 fs ont été obtenues.

Dans une cavité similaire à la précédente, nous avons également observé la présence de quatre impulsions. Pour tenter d'éliminer ce comportement, nous avons d'une part réduit la longueur totale de la cavité (de 3 m à 2,16 m) pour diminuer l'intervalle de temps séparant les impulsions et se rapprocher de la valeur du temps de recouvrement du gain, estimé être entre 1,5 et 2 ns. Il faut noter que nous n'avons pas pu réduire davantage la longueur de la cavité à cause de l'encombrement du système de prismes.

D'autre part, la distance séparant l'absorbant saturable du milieu amplificateur (400 mm) est inférieure au quart (540 mm) de la longueur totale de la cavité courte. De ce fait, quatre impulsions ne peuvent pas coexister dans la cavité car alors elles ne verraient pas toutes le même gain et les moins amplifiées seraient éliminées par l'absorbant saturable. La figure 62 représente la configuration du laser avec la cavité courte dissymétrisée. En utilisant le calcul sur les cavités résonnantes en faisceaux gaussiens, nous avons redéfini les zones de stabilité de la cavité courte. Par rapport à la version longue, il faut éloigner les deux miroirs de la sous-cavité amplificatrice de 3mm environ.

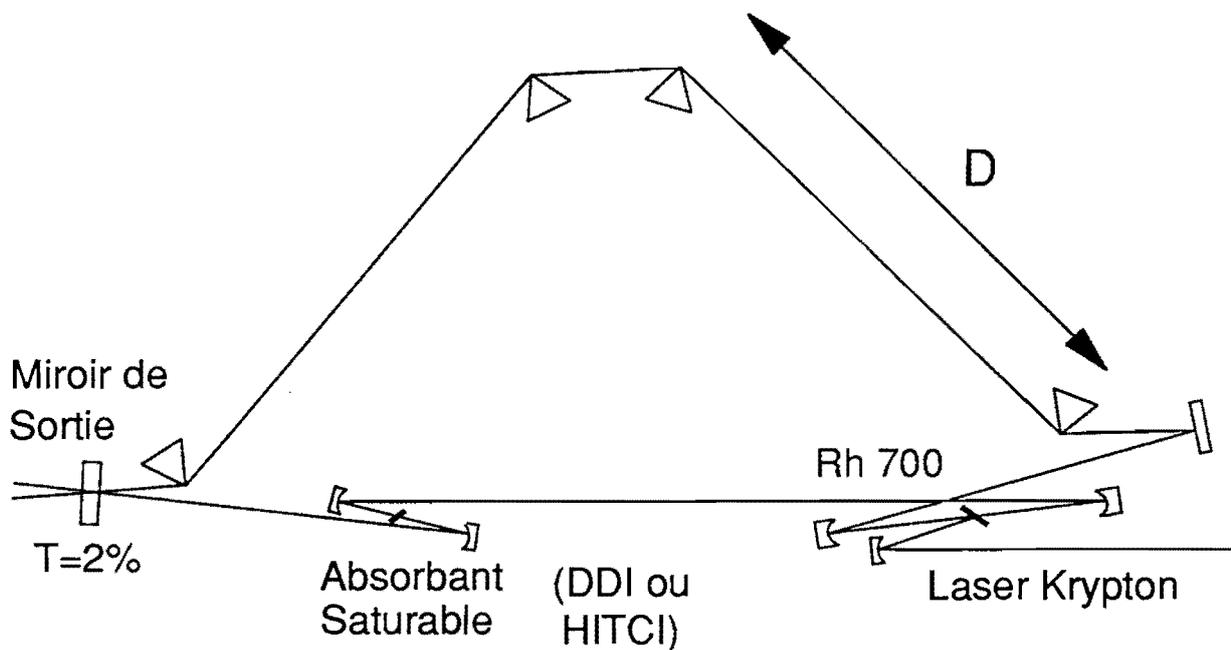


Figure 62 : Structure de la cavité courte dans la configuration infrarouge.

Dans ces conditions, la plage de puissance du laser de pompe pour laquelle le laser opère avec uniquement deux impulsions dans la cavité est de l'ordre de 300 mW au-dessus du seuil. En ajustant la dispersion de vitesse de groupe, le laser délivre régulièrement des impulsions inférieures à 100 fs.

Lorsque le jet d'absorbant saturable est dans le plan focal de la sous cavité  $M_4M_5$ , le spectre des impulsions est très dissymétrique avec un front très raide vers les grandes longueurs d'onde et un front de descente beaucoup plus lent vers les basses longueurs d'onde [figure 63a]. L'autocorrélation des impulsions produites présente des pieds importants et ne correspond pas à une autocorrélation d'impulsions dont le profil temporel est en sécante hyperbolique comme le montre la figure 63b. D'autre part, il est très difficile de produire des impulsions inférieures à 100fs car alors le laser devient instable.

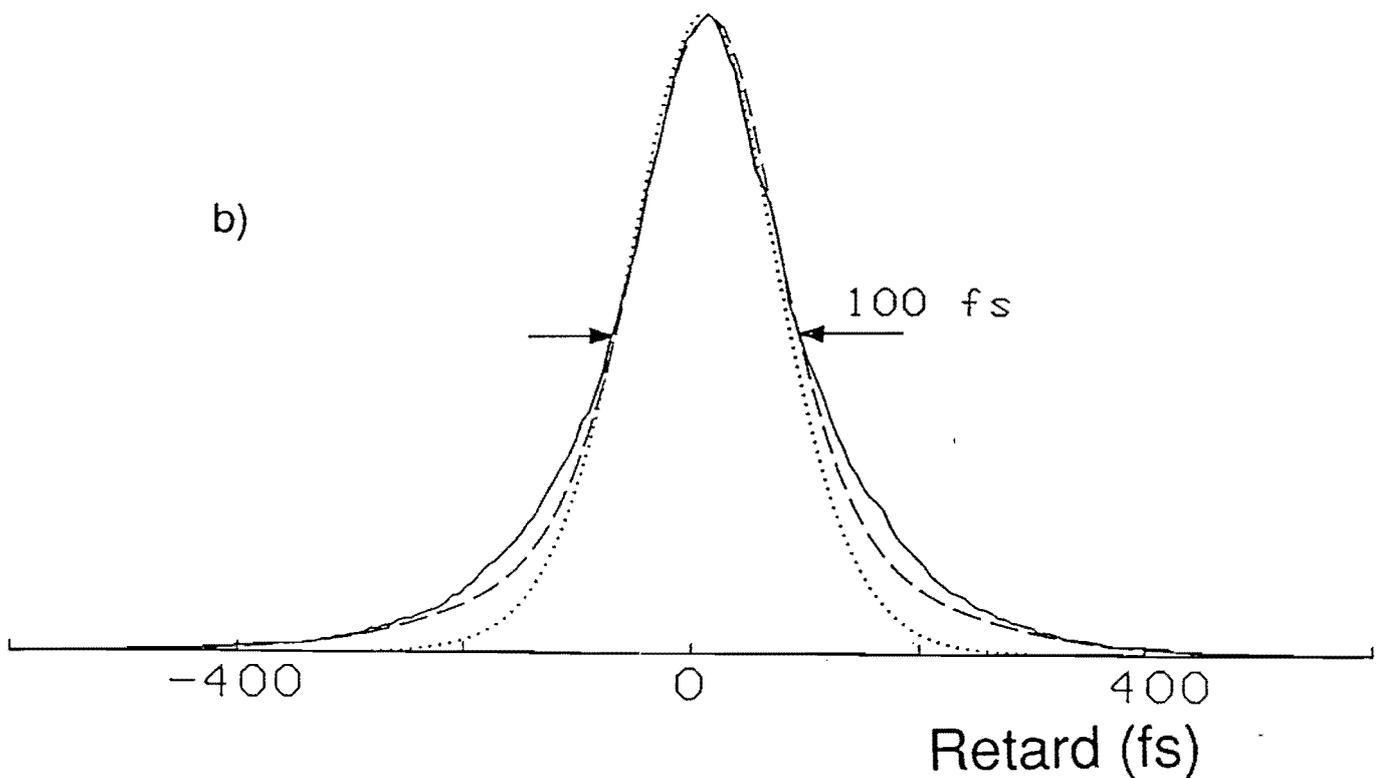
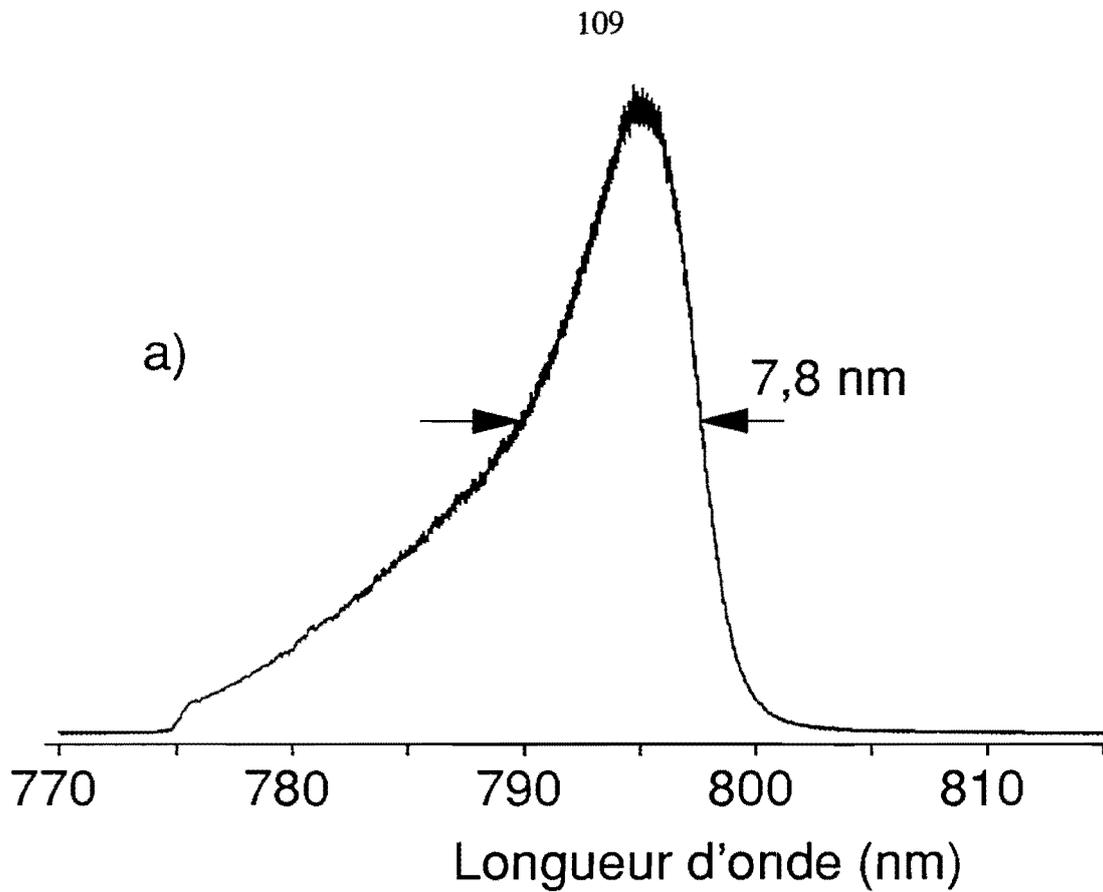
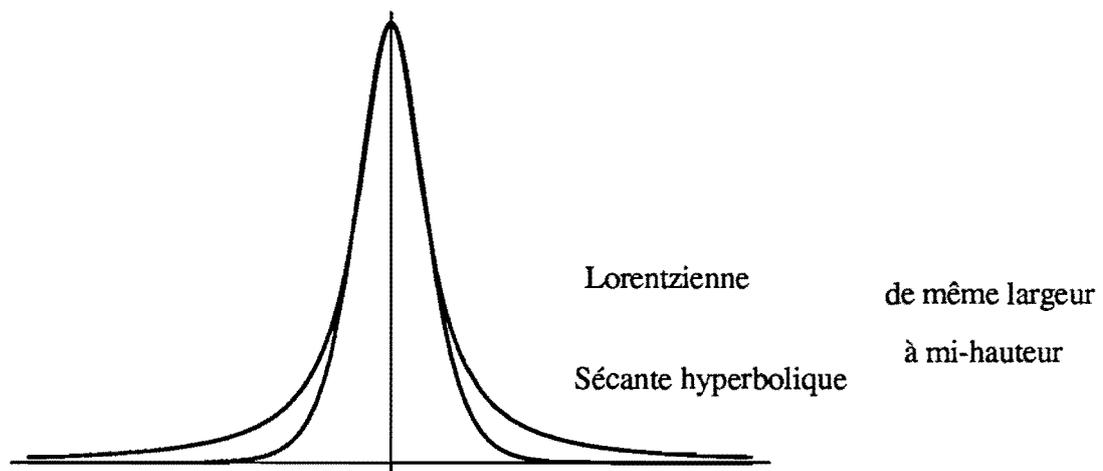


Figure 63 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions de 100 fs obtenues pour un jet d'absorbant saturable dans le plan focal de la sous cavité. La courbe en pointillé représente la meilleure approximation en supposant un profil temporel en secante hyperbolique, alors que la courbe en traits mixtes est obtenue en utilisant la transformée de fourier du spectre comme profil temporel.

En supposant que la phase des fréquences composant le spectre des impulsions est constante, nous avons appliqué une transformée de Fourier en spectre pour remonter au profil temporel des impulsions. Puis nous en avons déduit la fonction d'autocorrélation correspondante qui présente un bon accord avec l'autocorrélation expérimentale obtenue [figure 63 b]. En admettant que l'on puisse décrire le profil du spectre de l'impulsion par une exponentielle décroissante du type  $f(x)=\exp(-x/a)$  si  $x>0$  et  $f(x) = 0$  si  $x<0$  (ce qui n'est pas loin du spectre observé) le profil temporel de l'impulsion est alors une fonction Lorentzienne égale à :  $1/(1 + at^2)$ . C'est une fonction symétrique qui ressemble à une sécante hyperbolique mais qui décroît moins vite à l'infini [figure 64] ce qui explique le profil des autocorrélations obtenues expérimentalement.



*Figure 64 : Comparaison entre une lorentzienne et une secante hyperbolyque de même largeur à mi-hauteur.*

Pour obtenir des impulsions plus courtes, il faut défocaliser le jet d'absorbant saturable pour translater le spectre des impulsions plus vers l'infrarouge. Dans ce cas, les impulsions les plus courtes obtenues [figure 65a] ont une durée  $\Delta t$  égale à 50 fs en supposant un profil temporel en sécante hyperbolique [87]. Le spectre de ces impulsions est centré à 800 nm et a une largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  égale à 14 nm [figure 65b]. Le spectre est plus symétrique que ceux obtenus à 620 nm. Le produit largeur temporelle, largeur spectrale  $\Delta t \cdot \Delta\nu$  est égal à 0,328 et montre que le profil

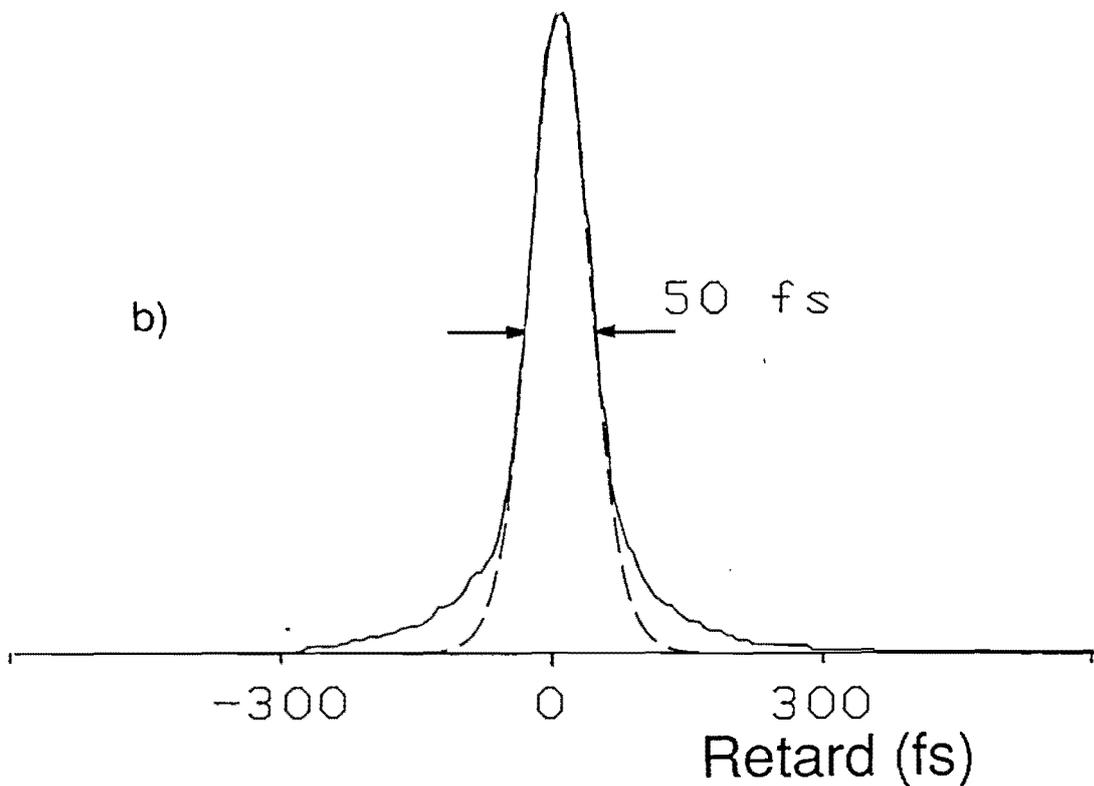
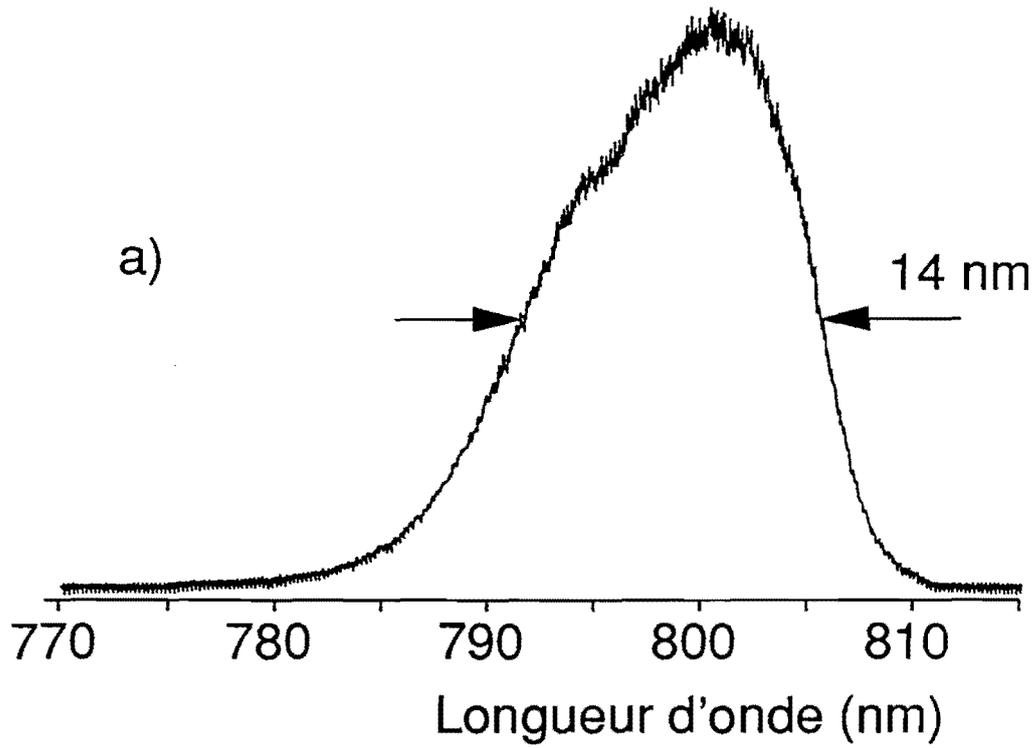


Figure 65 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions des impulsions les plus courtes produites par le laser vers 800 nm. La courbe en pointillé représente la meilleure approximation en supposant un profil temporel en secante hyperbolique.

temporel des impulsions est proche d'un profil en  $1/ch^2 (t/t_0)$ , comme le prouve également la comparaison avec l'autocorrélation d'une impulsion de 50 fs dont le profil est en sécante hyperbolique.

Les meilleures performances du laser ont donc été obtenues pour une position du jet d'absorbant saturable décalée par rapport au point focal, comme nous l'avions déjà observé aux autres longueurs d'onde étudiées. Il semble donc que ce comportement soit une caractéristique du verrouillage de modes passif et ne dépende pas des colorants utilisés. Dans ces conditions, la puissance de chaque faisceau de sortie est de 20 mW.

Nous avons donc montré qu'il était possible de produire des impulsions inférieures à 100 fs vers 800 nm par verrouillage de modes passif de la Rh700 [88]. Avec une cavité courte et HITCI comme absorbant saturable, nous sommes parvenus à une très bonne stabilité, comparable à celle des lasers femtosecondes opérant à 620 nm.

Ces résultats sont meilleurs que ceux obtenus par l'équipe de l'Imperial Collège [81, 82] avec la Rh700. Récemment, J.A.R. Williams et coll. [89] ont étudié le verrouillage de modes passif de la Rhodamine 800 dans une cavité linéaire en utilisant le néocyanine comme absorbant saturable. La très faible efficacité du mélange Rhodamine 800/Pyridine 1 excité par un laser à Argon (transfert d'énergie), a donné des performances assez faibles. Des impulsions de 260 fs à 814 nm ont été obtenues avec une puissance moyenne de 1 mW. Plus intéressants sont les derniers travaux présentés par W. Knox [90] au congrès CLEO 89. Il a utilisé une cavité en anneau contenant de la Rhodamine 800 comme milieu amplificateur et HITCI comme absorbant saturable. Le laser à colorant est excité par un laser continu à saphir dopé au titane (émettant vers 710 nm) lui-même pompé par un laser à Argon continu. Pour éviter un fonctionnement avec des impulsions multiples, la longueur de la cavité a été réduite à 1,8 m rendant impossible l'utilisation d'un système de prismes. Dans ces conditions, des impulsions de 100 fs à 820 nm ont été produites. Cette solution est très lourde et beaucoup plus complexe à utiliser que celle que nous avons développée et présentée dans ce chapitre.

Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter une application du laser femtoseconde infrarouge à la spectroscopie non linéaire des structures à puits quantiques GaAs / GaAlAs.

### III.4 SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE RESOLUE EN TEMPS DANS LES STRUCTURES A PUIITS QUANTIQUES GaAs/GaAlAs.

#### III.4.1 Introduction

L'utilisation d'une source d'impulsions femtosecondes dans l'infrarouge proche (800 nm), à haut taux de répétition (140 MHz), permet d'augmenter de façon spectaculaire la détectivité des expériences de spectroscopie non linéaire résolue dans le temps.

L'exemple que nous présentons ici concerne l'étude de la saturation d'absorption dans les structures à puits quantiques multiples GaAs /GaAlAs. Les structures étudiées sont fabriquées par le Laboratoire Central de Recherche de la société Thomson CSF. Elles sont destinées à la réalisation de modulateurs de lumière bidimensionnels [91]. La modulation de lumière peut être réalisée par commande électrique ou optique. Dans le cas de la commande optique (qui nous intéresse ici), un plasma dense d'électrons et de trous photoexcités modifie la structure de bande du semiconducteur et donc son spectre d'absorption. La longueur d'onde du laser femtoseconde infrarouge est située dans la zone d'absorption de GaAs, et permet donc d'étudier ces phénomènes de saturation.

#### III.4.2 Structures étudiées

Les structures étudiées sont constituées par un empilement périodique de couches de GaAs et GaAlAs. La concentration en Aluminium dans les couches de GaAlAs est de 0,28. L'épaisseur des couches de GaAs est de 8 nm et celle de GaAlAs est de 12 nm. Ces structures sont réalisées par la technique d'épitaxie par jet moléculaire. Le schéma de bandes de ces structures est présenté sur la figure 66 . Le confinement latéral des porteurs ( dans la direction z ) dans le puit de potentiel, permet d'observer les transitions excitoniques à température ambiante.

Ces transitions sont clairement visibles sur le spectre de transmission linéaire de l'échantillon montré sur la figure 67. La quantification des niveaux par le confinement du champ permet d'observer le premier niveau excitonique décomposé en deux pics. Ceux-ci correspondent, d'une part, aux transitions entre le niveau des trous lourds et la première sous bande de conduction ( $\lambda=840$  nm) et, d'autre part, entre le niveau des trous légers et la première sous bande de conduction ( $\lambda=830$  nm).

La deuxième transition excitonique est également visible sur le spectre vers 770 nm. Par contre les transitions associées aux trous lourds et légers ne sont pas résolues à température ambiante.

On observe enfin, dans la zone de transparence de GaAs, des franges d'interférences (par effet Fabry-Pérot) dues aux réflexions sur les faces d'entrée et de sortie de l'échantillon.

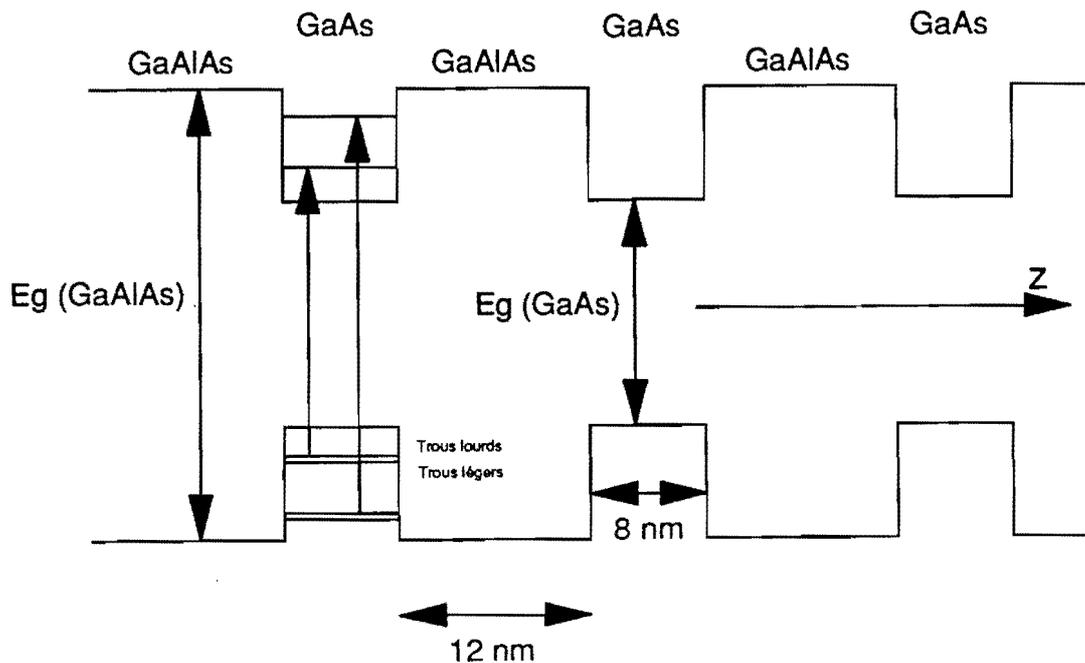


Figure 66 : Structure périodique des niveaux d'énergie dans un puit quantique.

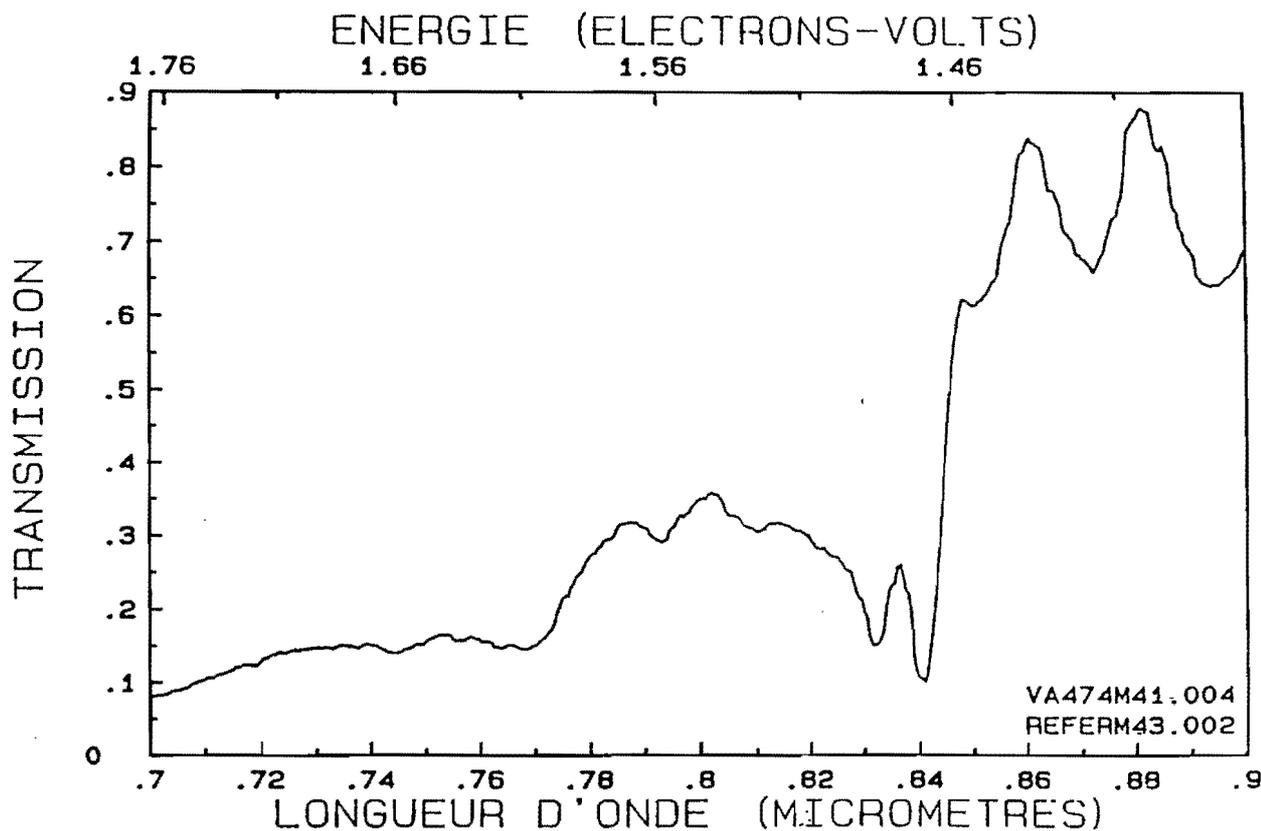


Figure 67 : Spectre d'absorption linéaire d'un puit quantique.

### III.4.3 Rappels sur les origines des non linéarités optiques

Les non linéarités optiques dans les semiconducteurs peuvent être décomposées en deux grandes classes :

- non linéarités intrinsèques
- non linéarités extrinsèques.

Dans le cas des non linéarités intrinsèques, la longueur d'onde du faisceau optique est située dans la zone de transparence de l'échantillon. L'énergie des photons est donc inférieure à l'énergie de la bande interdite de GaAs. Il n'y a donc pas création de porteurs photoexcités dans la bande de conduction. Dans ce cas il n'y a pas d'échange d'énergie entre le faisceau optique et le semiconducteur. Les variations induites sur le spectre sont donc ultrarapides mais nécessitent des puissances de commande gigantesques. C'est le cas par exemple de l'effet Stark optique [92]. La puissance délivrée par l'oscillateur femtoseconde n'est pas suffisante pour engendrer ce type d'effet, il faut alors utiliser un système femtoseconde amplifié.

Au contraire, dans le cas des non linéarités extrinsèques la longueur d'onde du faisceau saturant est située dans la bande d'absorption du semi-conducteur. Il existe alors un échange d'énergie entre l'onde optique et l'échantillon, sous forme de création d'un plasma d'électrons dans la bande de conduction et de trous dans la bande de valence. Dans ce cas on peut espérer obtenir des puissances de commande plus faibles, mais les temps de réponse sont alors limités par les temps de relaxation des populations photoexcitées, en général assez longs [93].

Les effets de non linéarités extrinsèques peuvent être séparés en deux catégories [94] :

- les effets liés au remplissage de l'espace des phases,
- les effets liés aux interactions à N corps.

En régime d'excitation subpicoseconde, les effets liés à l'occupation de l'espace des phases se traduisent par une transparence photo-induite à la longueur d'onde de la pompe ( hole burning ) puis par une redistribution de l'énergie des porteurs qui relaxent vers le bas de la bande de conduction. Les transitions optiques deviennent alors impossibles au voisinage de la bande interdite, induisant une diminution de l'absorption.

L'excitation d'un plasma dense d'électrons et de trous induit (par interaction à N corps ), d'une part, un écrantage de l'interaction excitonique et, d'autre part, une renormalisation de la bande interdite.

Aux fortes densités de puissance tous ces effets sont simultanément présents et difficilement discernables. Nous allons montrer comment expérimentalement , grâce à l'utilisation d'une source d'impulsions infrarouges à haut taux de répétition, nous avons pu isoler les cinétiques de ces différents effets.

Le montage expérimental est présenté sur la figure 68. On utilise comme montage de base l'autocorrélateur décrit précédemment (Chapitre I). Une densité sur la voie 1 permet de créer un faisceau sonde suffisamment peu intense pour tester l'effet créé par la pompe sans le perturber. Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés dans l'échantillon avec un objectif X20 sur un diamètre de 25  $\mu\text{m}$  environ. Grâce au taux de répétition élevé du laser (140 MHz), il est possible de visualiser en temps réel, sur l'écran d'un oscilloscope, la cinétique de l'effet.

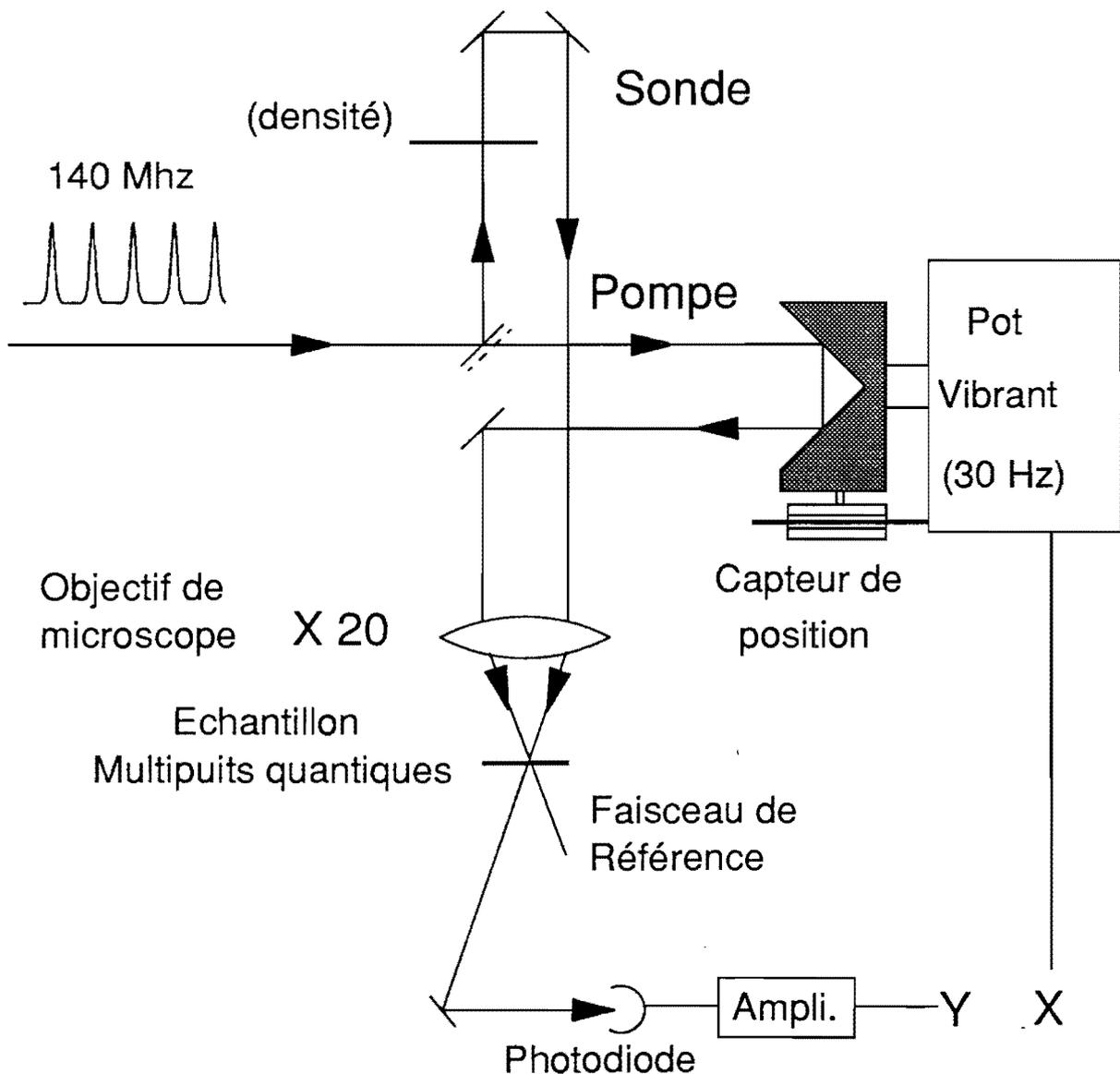


Figure 68 : Schéma du montage.

A la longueur d'onde de 800 nm, les porteurs (électrons) sont injectés uniquement dans la première sous bande de GaAs (voir figure 69), et hors résonance excitonique. L'effet visualisé par le faisceau sonde est la transparence photoinduite (par saturation de l'absorption) à la même longueur d'onde (800 nm).

En mesurant la cinétique de la saturation en fonction de la densité de puissance on peut isoler les différentes contributions aux phénomènes observés. Cette mesure est facile et relativement précise grâce à la bonne stabilité du laser. Les résultats expérimentaux pour différentes densités d'énergie de la pompe sont présentés sur la figure 70.

Dans le cas où la densité de puissance de pompe est forte, tous les effets précédemment évoqués sont présents simultanément et on observe uniquement une cinétique correspondant au temps de vie des porteurs dans l'état excité, c'est à dire plusieurs nanosecondes. L'effet est donc pratiquement constant sur la durée d'analyse de l'expérience (figures 70 a,b) car nous avons utilisé, pour réaliser ces expériences, un autocorrélateur qui est conçu pour mesurer des impulsions inférieures à 1 ps. Le domaine d'excursion du pot vibrant n'est donc pas suffisant pour analyser des cinétiques durant plus de quelques picosecondes.

Quand la densité de puissance diminue, donc quand le nombre de porteurs photoexcités diminue, les effets à N corps deviennent négligeables et on peut observer le remplissage de l'espace des phases. On peut alors mesurer le temps de thermalisation des porteurs vers le bas de la bande de conduction. On voit qu'à faible flux incident ( $10^{12}$  photons /  $\text{cm}^2$ ), le temps de désexcitation vers le bas de la bande de conduction est d'environ 900 fs si l'on considère une décroissance mono-exponentielle (figure 70 d), ce qui n'est pas totalement assuré.

Si on considère généralement que le nombre de porteurs excités est environ égal à 1 % du nombre de photons incidents, il y a donc une densité de  $10^{10}$  porteurs /  $\text{cm}^2$  dans la bande de conduction. Nous avons donc réussi à étudier l'absorption induite dans ce type de structure dans le cas de faibles densités grâce au taux de répétition élevé du laser. En améliorant encore la détectivité de l'expérience (par utilisation d'une détection synchrone par exemple) nous pensons pouvoir mieux isoler les deux phénomènes d'interaction entre porteurs et de désexcitation vers le bas de la bande de conduction et pouvoir évaluer des cinétiques jusqu'alors non mesurées. En effet, jusqu'à présent, de telles expériences sont la plupart du temps réalisées à faible taux de répétition en isolant, dans un continuum produit par un système femtosecondes amplifiées, les impulsions infrarouges et nécessitent donc l'utilisation d'énergie plus élevée.

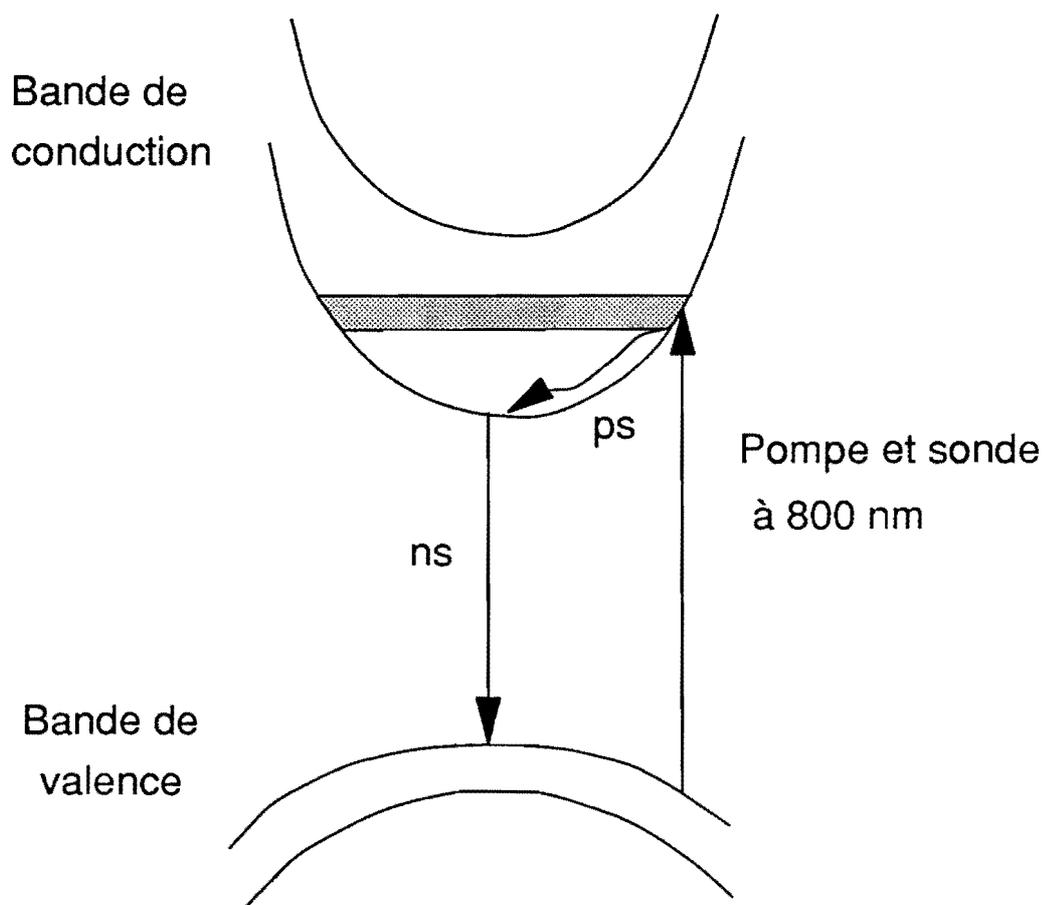


Figure 69 : Représentation schématique de l'évolution des porteurs dans la bande de conduction.

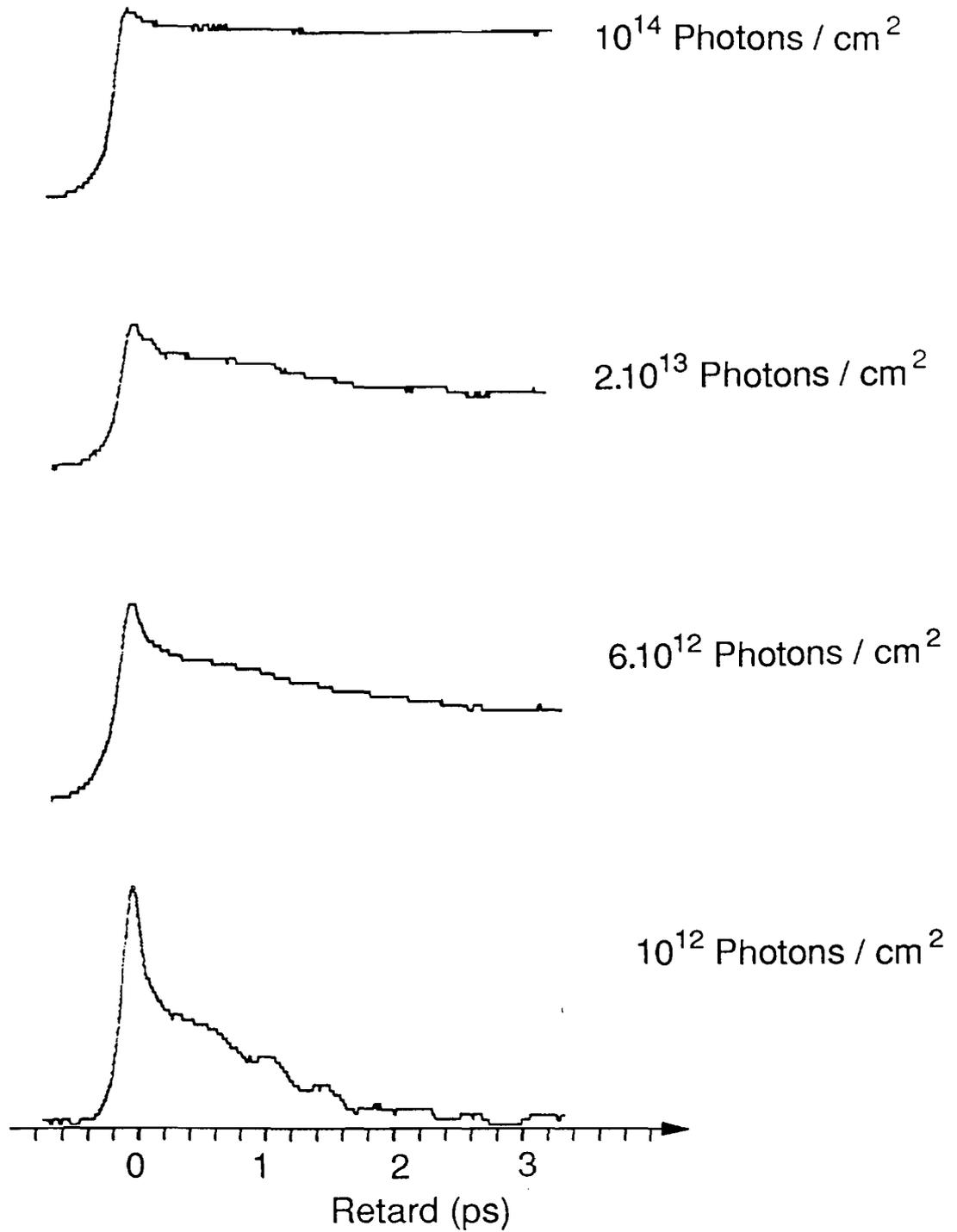


Figure 70 : Cinétiques de saturation d'absorption pour différentes énergies du faisceau pompe.



## CHAPITRE IV

### **AMPLIFICATION ET COMPRESSION D'IMPULSIONS COURTES**



## IV.1. INTRODUCTION

Les lasers femtosecondes à verrouillage de modes passif suivis de systèmes amplificateurs ont permis aux physiciens et aux chimistes de disposer de sources d'impulsions brèves (100 fs) dans une large plage de longueurs d'onde ( $0,3 \mu\text{m} \rightarrow 1,5 \mu\text{m}$ ). La résolution temporelle d'expériences de spectroscopie a ainsi considérablement été améliorée et cela a conduit à une meilleure compréhension des phénomènes physiques de base. Toutefois, il apparaît que certaines expériences sont encore limitées par la largeur temporelle des impulsions excitatrices. Il existe, en effet des phénomènes bien plus brefs que 100 fs. Il s'est donc avéré nécessaire d'étudier des systèmes permettant de diminuer la largeur temporelle des impulsions.

La technique couramment utilisée pour diminuer la largeur temporelle des impulsions consiste à élargir leur spectre par automodulation de phase (variation de l'indice en fonction du profil temporel) dans un matériau présentant de l'effet Kerr optique. Pour obtenir des effets importants il faut, soit disposer d'un matériau ayant de forts coefficients non linéaires, soit augmenter les longueurs d'interaction pour accumuler les effets, en utilisant par exemple une fibre optique. L'indice non linéaire de la silice est assez faible par comparaison avec d'autres matériaux tels que le  $\text{CS}_2$ , mais le confinement du champ électrique sur une très faible surface ( $10^{-7}\text{cm}^2$ ) et sur une longue distance permet d'obtenir des effets non linéaires importants.

Une fois le spectre élargi, un système optique adapté (à base de réseaux ou de prismes) permet de remettre toutes les fréquences en phase et ainsi de compresser l'impulsion. Grâce à cette technique, des impulsions de 6 fs à 620 nm ont été obtenues aux laboratoires AT&T aux Etats Unis. En considérant que ces impulsions ne contiennent que quelques oscillations du champ électrique, il est raisonnable de se poser quelques questions sur la validité de certaines hypothèses généralement admises. Par exemple, l'équation non linéaire de Schrödinger décrivant l'évolution d'une impulsion dans un matériau présentant de l'automodulation de phase et de la dispersion de vitesse de groupe ne permet plus de décrire les observations expérimentales. En particulier, le profil des spectres élargis ne correspond pas aux simulations numériques, contrairement aux expériences de compression en régime picoseconde où un bon accord entre l'expérience et la théorie est obtenu.

Nous avons donc développé un programme informatique permettant de modéliser l'équation non linéaire de Schrödinger en tenant compte de l'influence de termes d'ordres supérieurs auparavant négligés. Nous nous sommes également attachés à cerner l'influence du profil temporel de l'impulsion de départ sur la forme des spectres obtenus à la sortie de la fibre afin d'essayer de reproduire nos observations expérimentales.

Si de telles expériences de compression d'impulsions ont permis d'atteindre les limites ultimes en matière de largeur temporelle, ces impulsions ne sont que très rarement utilisables en spectroscopie résolue en temps. En effet, l'énergie des impulsions compressées est limitée par la fibre à quelques nanojoules car les densités de puissance dans la fibre (quelques TW/cm<sup>2</sup>) sont telles que le champ électrique à l'interface air-verre est de l'ordre de grandeur des forces de liaison intramoléculaires. L'énergie des impulsions est donc trop faible pour créer un phénomène non linéaire dans le matériau à étudier.

Pour remédier à cet inconvénient, nous avons développé un amplificateur multipassage permettant d'atteindre un niveau d'énergie suffisant (quelques μJ) pour utiliser ces impulsions ultracourtes comme signal d'excitation dans une expérience d'optique non linéaire. Nous avons résolu le problème de l'amplification des spectres très larges issus de la fibre en étudiant un mélange de colorants bien adapté. Cette expérience a été réalisée à faible cadence en utilisant un laser Nd-Yag déclenché, puis reproduite avec un laser à vapeur de cuivre opérant à haute cadence. Ces impulsions amplifiées puis recompressées à 20 fs environ ont ensuite été utilisées dans une expérience de saturation d'absorption dans un colorant organique : le vert de malachite. Cette expérience nous a permis de mettre en évidence des temps de saturation très courts inférieur à 30 fs.

## **IV.2. PROPAGATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES EN REGIME D'AUTOMODULATION DE PHASE DANS DES FIBRES OPTIQUES MONOMODES - APPLICATION A LA COMPRESSION D'IMPULSIONS.**

### **IV.2.1. Equation non linéaire de Schrödinger (ENLS)**

Nous avons vu au chapitre I que lorsqu'une impulsion intense se propage dans un matériau, le champ électromagnétique modifie ses propriétés en déformant les nuages électroniques. Ces déformations provoquent une variation autoinduite de la phase du rayonnement qui est souvent interprétée comme résultant des variations de l'indice de réfraction du matériau avec l'intensité lumineuse (effet Kerr optique) :

$$(4.1) \quad n(\omega, E) = n_0(\omega, E) + n_2 |E|^2$$

où  $n_2$  vaut :  $3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2\text{W}^{-1}$  pour la silice.

Pour une onde se propageant dans un matériau présentant de l'effet Kerr optique, le champ électrique  $E(z,t)$  est donné par l'équation d'onde :

$$(4.2) \quad \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = \frac{2 n_2 n_o}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( |\vec{E}|^2 \vec{E} \right)$$

où  $D$  est le vecteur déplacement.

On écrit le champ électrique en faisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$(4.3) \quad \vec{E}(z,t) = A(z,t) \exp(i (k_o z - \omega_o t))$$

et on trouve [95-98] :

$$(4.4) \quad i \left( \frac{\partial A}{\partial z} + k'_o \frac{\partial A}{\partial t} \right) - \frac{k''_o}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{\omega_o n_2}{2c} |A|^2 A - i \frac{k'''_o}{6} \frac{\partial^3 \phi}{\partial t^3} + i n_2 \frac{\partial}{\partial t} (|A|^2 A) = 0$$

avec :

$$(4.5) \quad k_o^{(n)} = \left( \frac{d^{(n)} k_o}{d\omega^{(n)}} \right)_{\omega_o}$$

Pour obtenir cette équation, plusieurs hypothèses ont été faites :

- les pertes dans le milieu sont négligées car les distances de propagation sont de l'ordre de quelques centimètres ;
- la distribution spatiale du champ n'est pas modifiée par la variation non linéaire de l'indice ;
- les effets de biréfringence autoinduite ne sont pas pris en compte et la polarisation du champ électrique reste linéaire.

On trouve souvent dans la littérature une formulation plus simple de l'équation non linéaire de Schrödinger en posant :

$$\tau = \frac{(t - k'_0 z)}{\tau_0} \quad ; \quad \xi = \frac{|k''_0|}{2} \cdot z$$

et :

$$(4.6) \quad q(\xi, \tau) = \left( \frac{k_0 z_0 n_2}{\pi} \right)^{1/2} A(z, t)$$

avec  $1,76 \cdot \tau_0 =$  largeur à mi-hauteur de l'impulsion initiale.

On obtient alors l'équation normalisée suivante :

$$(4.7) \quad i \frac{\partial q}{\partial \xi} + (-) \frac{1}{2} \frac{\partial^2 q}{\partial \tau^2} + |q|^2 q = i\beta \frac{\partial^3 q}{\partial \tau^3} - \frac{i}{\omega_0 \tau_0} \frac{\partial (|q|^2 q)}{\partial \tau}$$

avec :

$$(4.8) \quad \beta = \frac{k'''_0}{(6 |k''_0| \tau_0)}$$

Le signe +(-) correspond au cas où la propagation se fait dans un matériau présentant de la dispersion positive (négative).

Le terme  $\partial^2 q / \partial \tau^2$  correspond à la dispersion de vitesse de groupe alors que le terme  $|q|^2 q$  traduit l'automodulation de phase.

Les deux termes de droite dans l'équation (4.7) correspondent à la dispersion d'ordre 3 :  $\partial^3 q / \partial \tau^3$  et au terme dit de "choc" :  $\partial (|q|^2 q) / \partial \tau$ . Ils correspondent aux termes d'ordre supérieur de

l'ENLS qui en général sont négligés lorsqu'on considère des impulsions picosecondes. Dans ce cas l'équation (4.7) devient :

$$(4.9) \quad i \frac{\partial q}{\partial \xi} \pm \frac{\partial^2 q}{\partial \tau^2} + |q|^2 |q| = 0 \quad .$$

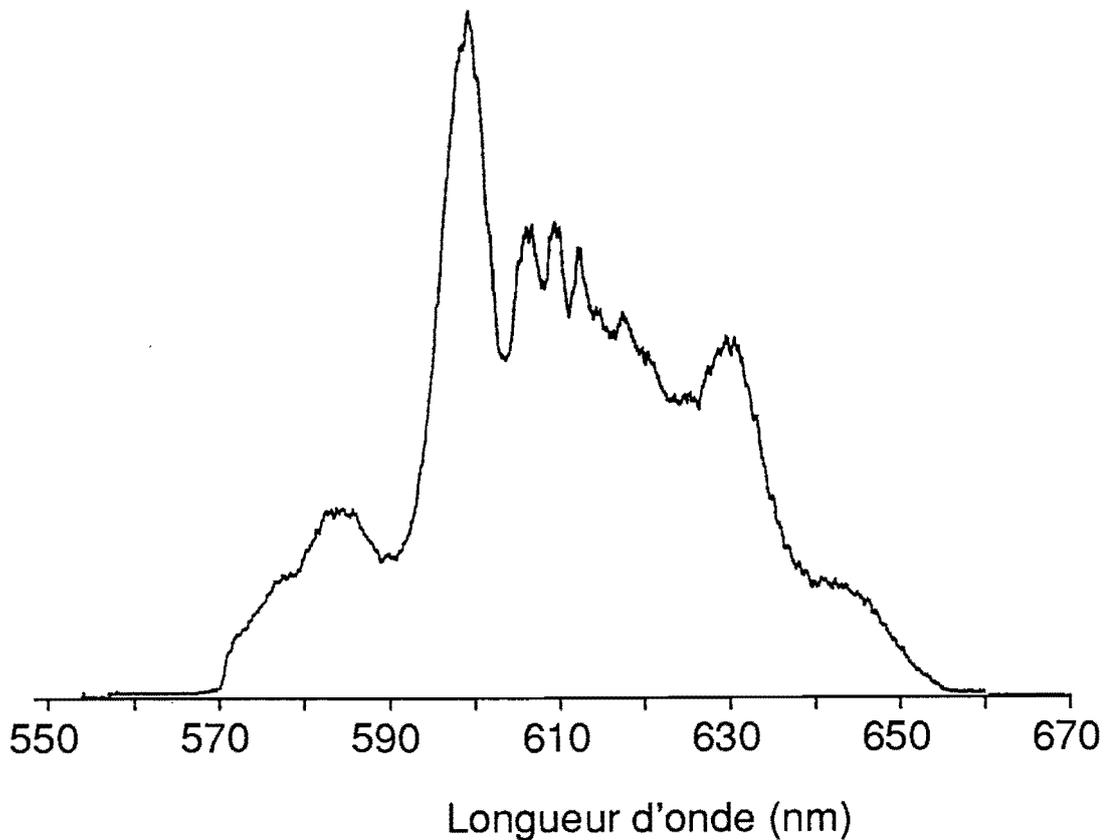
On retrouve l'équation non linéaire de propagation considérée au chapitre 1.

Dans le cas où la dispersion du matériau est négative, les solutions stables de l'équation (4.9) sont les impulsions solitons car il y a une exacte compensation des effets d'automodulation de phase par ceux de dispersion de vitesse de groupe.

Lorsque la dispersion du matériau est positive, l'impulsion en sortie de la fibre s'est élargie car les basses fréquences créées dans le front avant de l'impulsion voyagent plus vite dans le matériau que les hautes fréquences créées dans le front arrière de l'impulsion. On assiste donc à un élargissement à la fois temporel et spectral. C'est le cas dans une fibre optique lorsque la longueur d'onde centrale des impulsions injectées est inférieure à 1,3  $\mu\text{m}$  (minimum de dispersion de la silice). Pour compresser les impulsions, il est donc nécessaire de remettre en phase toutes les fréquences composant le spectre en utilisant une ligne à retard à dispersion négative à base de prismes ou de réseaux analogue à celle utilisée dans l'oscillateur femtoseconde.

#### IV.2.2. Etude de l'influence des termes d'ordres supérieurs

L'équation non linéaire de Schrödinger classique permet d'obtenir de bons résultats à la fois sur le profil des spectres d'impulsions automodulées en phase ainsi que sur les facteurs de compression prévisibles lorsqu'on travaille avec des impulsions picosecondes [99]. Lorsqu'on considère des impulsions de 100 fs se propageant dans une fibre optique, on s'aperçoit que les spectres obtenus sont très différents des prévisions théoriques. La figure 71 présente le spectre d'impulsions de 100 fs après propagation dans une fibre de 15 mm de long. L'énergie des impulsions est estimée à 8 nJ environ, correspondant à une puissance crête de 80KW. On voit clairement une dissymétrie dans la répartition de l'énergie, avec une partie prépondérante du côté des basses longueurs d'onde. On note également la présence de deux bosses à chaque extrémité du spectre.



*Figure 71 : Spectre d'une impulsion de 100 fs après propagation dans une fibre optique monomode de 15 nm de long. L'énergie de l'impulsion est de 8 nJ environ.*

Nous avons développé un programme informatique [77, 100] permettant de simuler l'évolution d'une impulsion ultrabrève dans un guide d'onde monomode en y incluant, ou non, les termes d'ordres supérieurs. Pour simplifier le calcul, nous avons pris en compte séparément les effets de propagation en régime de dispersion de vitesse de groupe (déphasage spectral), puis les effets de propagation avec une variation non linéaire de l'indice de réfraction (déphasage temporel auto-induit). On décompose une longueur de fibre optique réelle en une succession de tronçons élémentaires dispersifs linéaires, puis non linéaires et sans dispersion. Pour obtenir les caractéristiques de l'impulsion sortant de la fibre, il suffit alors de calculer pour chaque tronçon élémentaire l'influence de ces effets soit sur le spectre, soit sur le profil temporel de l'impulsion.

Les paramètres expérimentaux (100 fs, 8 nJ) injectés dans l'ENLS "classique" (équation 4.9) donnent un spectre parfaitement symétrique (figure 72 a) qui ne correspond pas à celui de la figure 71. Le profil temporel de l'impulsion à la sortie de la fibre ainsi que sa phase, obtenus par simulation, sont représentés sur la figure 72.b). On s'aperçoit que l'impulsion s'est allongée (à cause des effets combinés de dispersion et d'automodulation de phase) et présente un profil temporel symétrique carré.

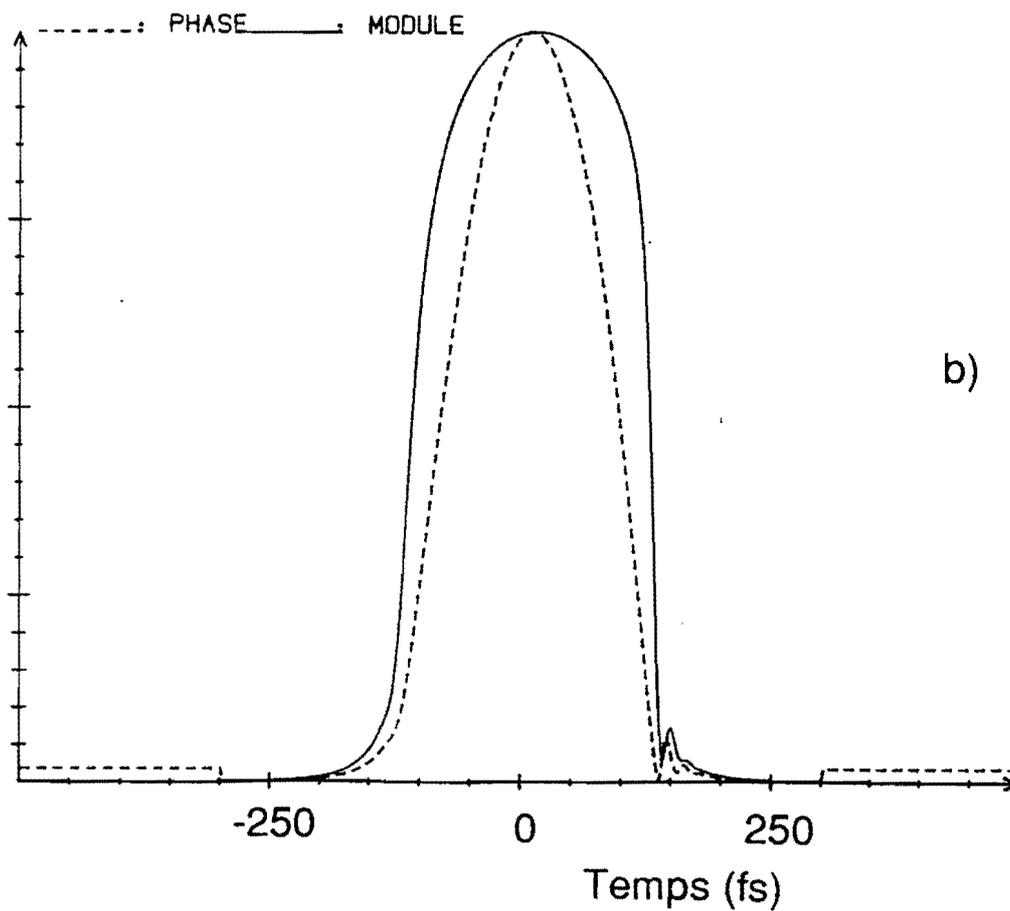
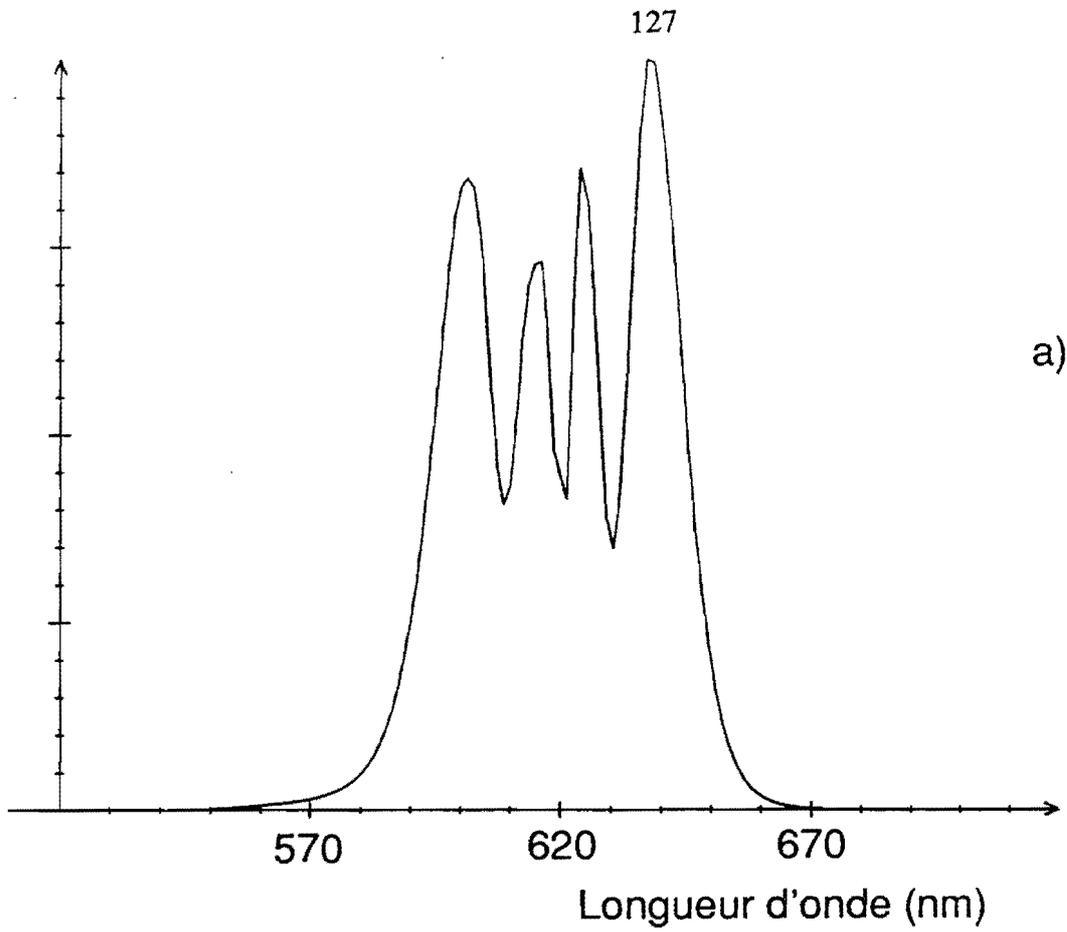


Figure 72 : Modélisation théorique en utilisant l'ENLS "classique" du spectre d'une impulsion (a) de 100 fs, 8 nJ après propagation dans 15 nm de fibre. La phase et le profil temporel en sortie de fibre sont donnés en b).

En 1987, Bourkoff et coll. [101] ont pensé que le mauvais accord entre les simulations numériques et l'expérience pouvait provenir des termes d'ordres supérieurs (dispersion d'ordre 3 et terme de choc) qui avaient été négligés précédemment. Ils ont présenté des simulations numériques en incluant ces termes d'ordre supérieurs dans l'ENLS. Les résultats [figure 73] montrent que les spectres présentent effectivement une dissymétrie. Mais, pour obtenir de tels résultats les auteurs ont ajusté  $\beta$  (voir équation 4.8) à une valeur 0,015 bien supérieure à la valeur réelle 0,0035 caractérisant la silice. Nous avons refait la simulation avec une valeur de  $\beta$  égale à 0,0035 et obtenu un spectre dont le profil en intensité ne présente pas de dissymétrie importante [figure 74]. On observe uniquement l'apparition d'une petite bosse du côté des basses longueurs d'onde. Il semble donc que les termes d'ordre supérieur ne soient pas responsables de la dissymétrie observée sur les spectres à la sortie de la fibre.

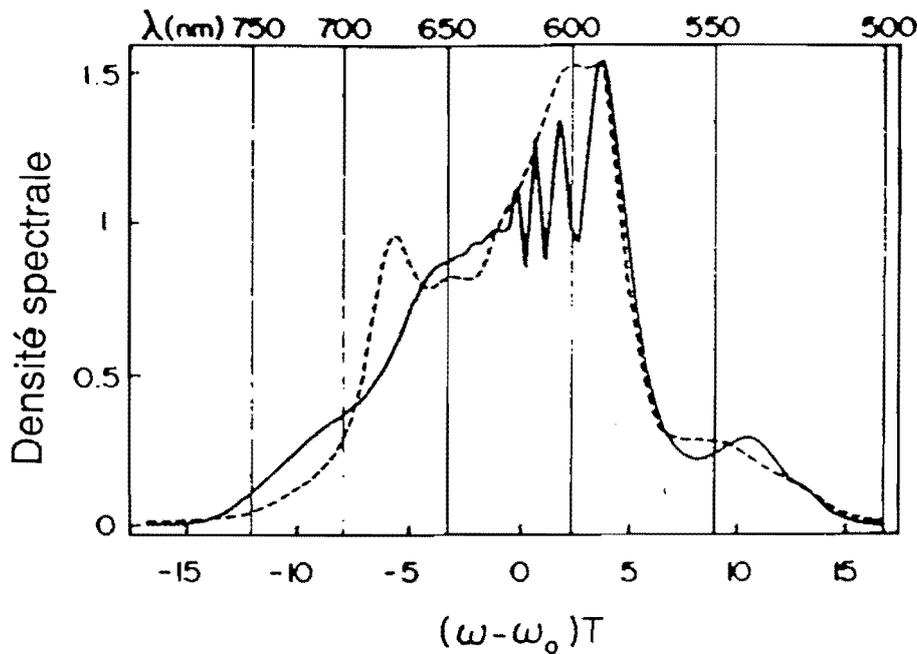


Figure 73 : Spectre théorique obtenu par Bourkoff et coll. [101] avec  $\beta = 0,015$  (voir texte). La courbe en pointillé correspond aux résultats expérimentaux de Knox et coll. [102] lors de la compression d'impulsion de 8 fs à 5 kHz.

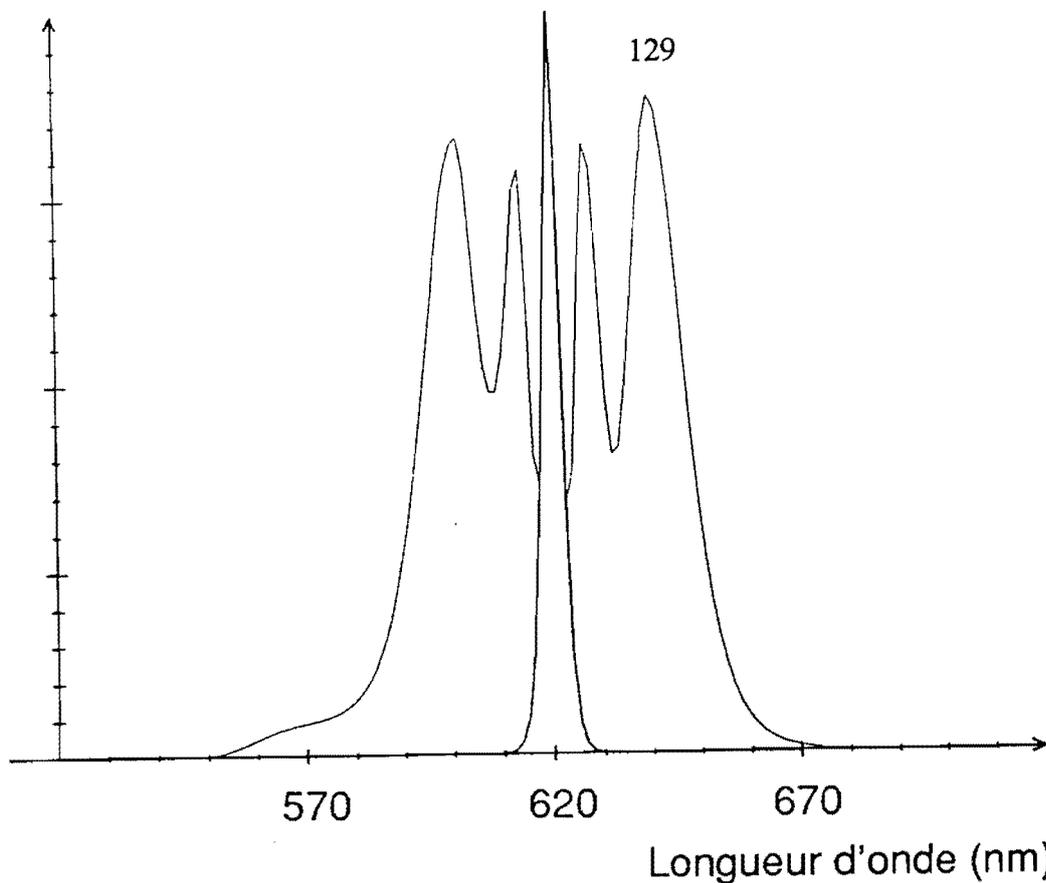


Figure 74 : Profil théorique obtenu avec l'ENLS incluant le terme d'ordre 3 et de choc avec  $\beta = 0,0035$ . Le spectre de départ est donné pour comparaison.

#### IV.2.3. Influence du profil temporel initial de l'impulsion

Dans les calculs précédents, nous avons effectué toutes les simulations numériques en supposant que le profil temporel de l'impulsion de départ était en sécante hyperbolique (profil symétrique à la fois dans le domaine temporel et spectral). Or, nous avons vu au chapitre I que les deux phénomènes de saturation de l'absorption et du gain, qui sont à la base du fonctionnement des lasers femtosecondes, conduisent très certainement à des impulsions dont le profil temporel est dissymétrique. De plus, ces impulsions sont d'abord amplifiées avant d'être injectées dans la fibre. Des phénomènes de filtrage spectral dans l'amplification peuvent alors modifier leur profil temporel.

Nous avons été amenés à penser que la dissymétrie temporelle des impulsions d'entrée pourrait affecter le profil des spectres obtenus à la sortie de la fibre.

Pour cela, nous avons effectué des simulations numériques en définissant une impulsion telle que son front de montée correspond à une sécante hyperbolique de largeur totale à mi-hauteur égale à 100 fs alors que le front de descente correspond à une sécante hyperbolique de largeur égale à  $k \cdot 100$  fs ( $k > 1$ ). L'impulsion obtenue a donc un front de montée plus raide que son front de descente ce qui doit vraisemblablement correspondre à la réalité. La largeur à mi-hauteur de l'impulsion obtenue est donc égale à  $(k+1) \cdot 50$  fs [voir figure 75] .

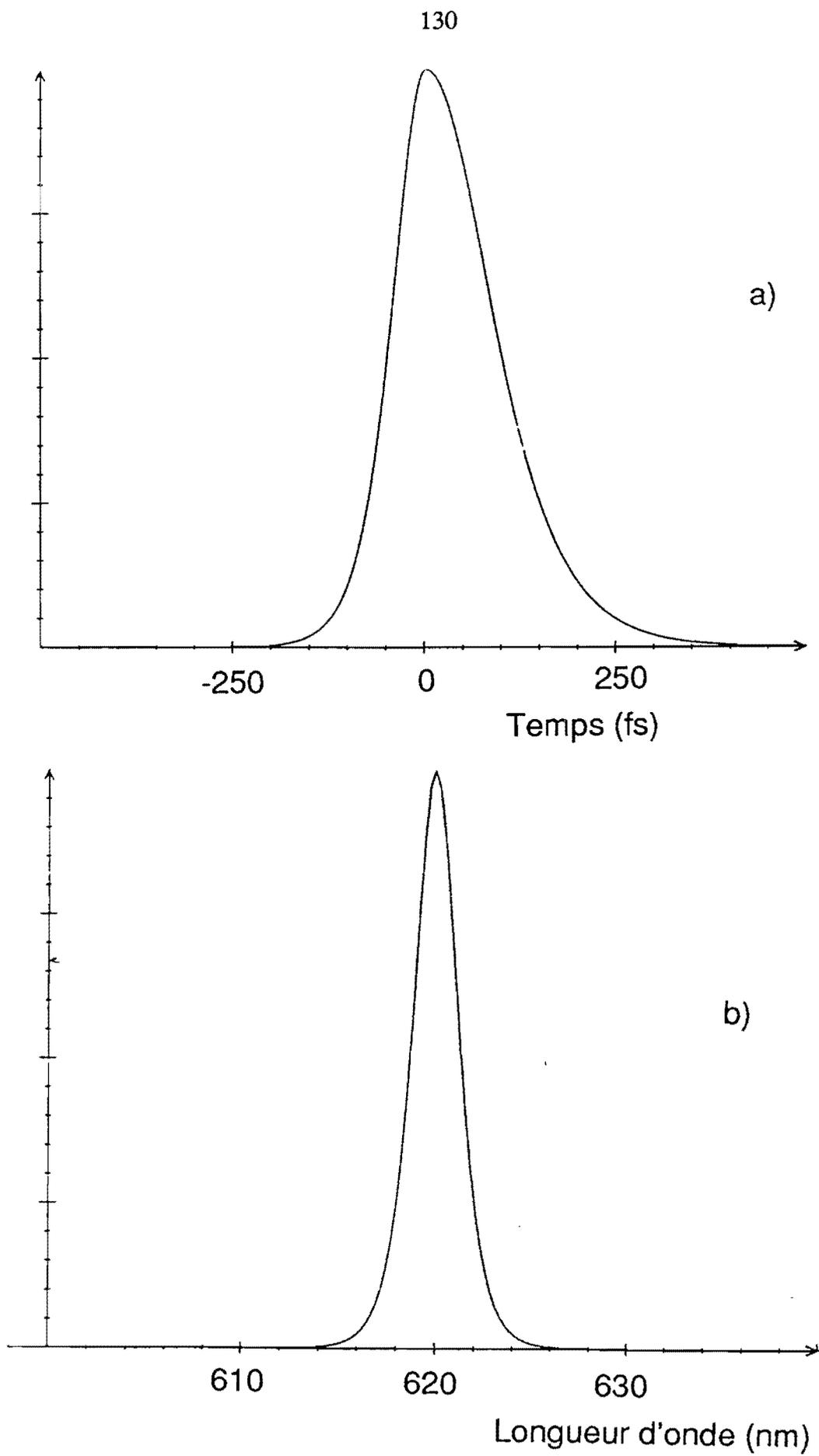


Figure 75 : Profil temporel (a) et spectre (b) d'une impulsion de 150 fs dissymétrique ( $k = 2$ ).

La figure 76 présente les résultats des calculs de la répartition en intensité du spectre de l'impulsion en sortie de la fibre pour  $k = 2$ . On voit que l'énergie est plus importante pour les basses longueurs d'onde que pour les hautes longueurs d'onde correspondant mieux aux spectres expérimentaux. Plus la dissymétrie temporelle de l'impulsion d'entrée augmente, plus la dissymétrie spectrale après la fibre est prononcée. Si l'on regarde le profil temporel de l'impulsion émergeant de la fibre [figure 77], on s'aperçoit que la dissymétrie s'est inversée et fait apparaître un front plus raide dans la partie arrière de l'impulsion.

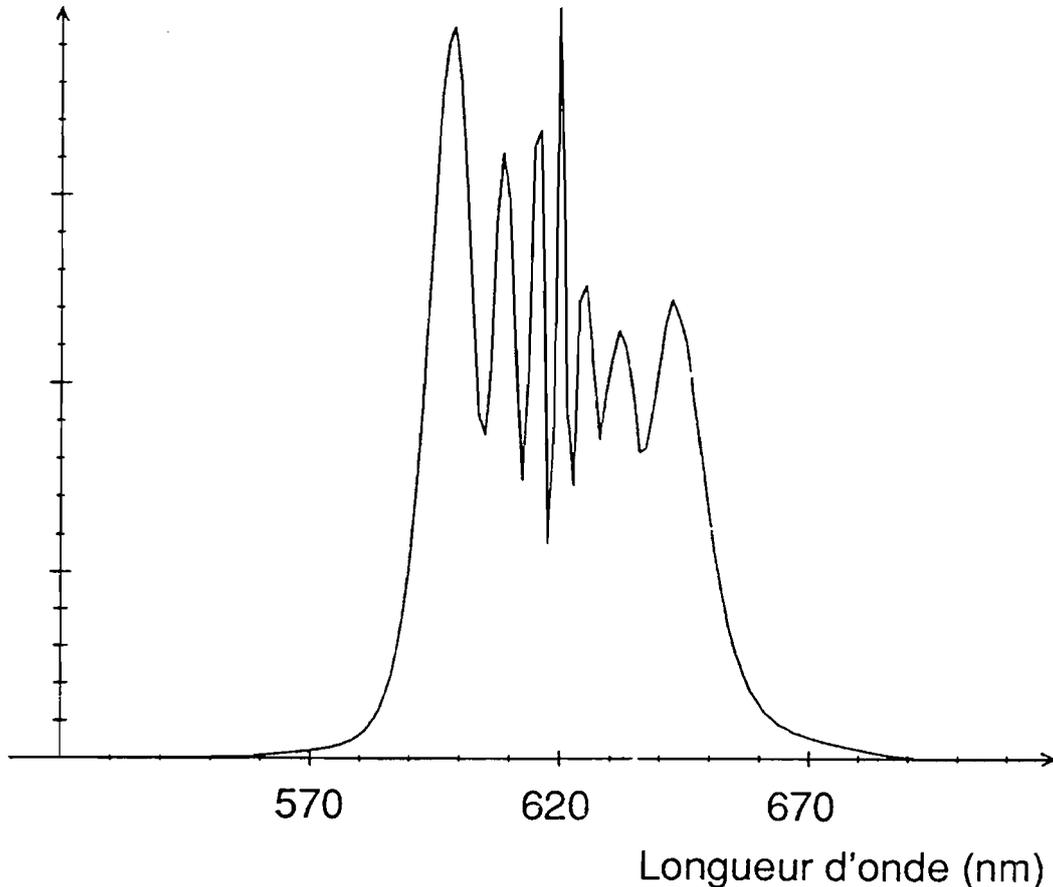


Figure 76 : Spectre obtenu après propagation d'une impulsion de dissymétrie (voir Fig. 75) dans 15 mm de fibre. L'énergie des impulsions est de 8 nJ.

Il faut noter également que la dissymétrie spectrale ne dépend pas de l'énergie de l'impulsion d'entrée ou, ce qui revient au même de la distance de propagation dans la fibre. En effet, la figure 78 représente le spectre d'une impulsion dissymétrique de 3 nJ après 15 mm de fibre. L'élargissement spectral est évidemment plus faible mais la dissymétrie est au moins aussi importante [voir figure 76]. Ce résultat est en accord avec la figure 79 qui représente l'élargissement spectral obtenu expérimentalement en augmentant progressivement l'énergie de l'impulsion dans la fibre. On obtient dès le départ un élargissement dissymétrique qui se conserve quelle que soit l'énergie injectée dans la fibre. On voit également sur cette évolution que les bosses situées à chaque extrémité du spectre n'apparaissent que pour les puissances les plus élevées. Il faut de plus remarquer que la modulation rapide observée sur le côté des faibles longueurs d'onde du spectre n'apparaît pas du côté des hautes longueurs d'onde.

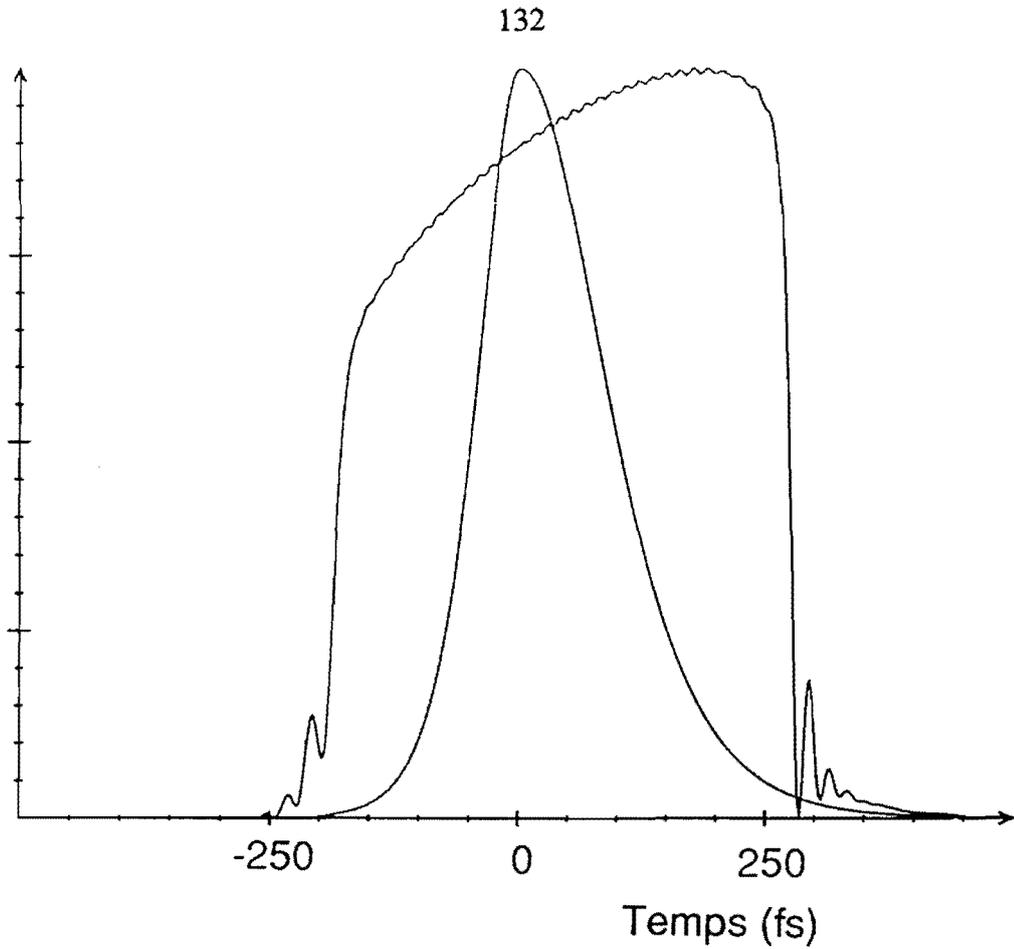


Figure 77 : Profil temporel de l'impulsion à l'entrée et à la sortie de la fibre.

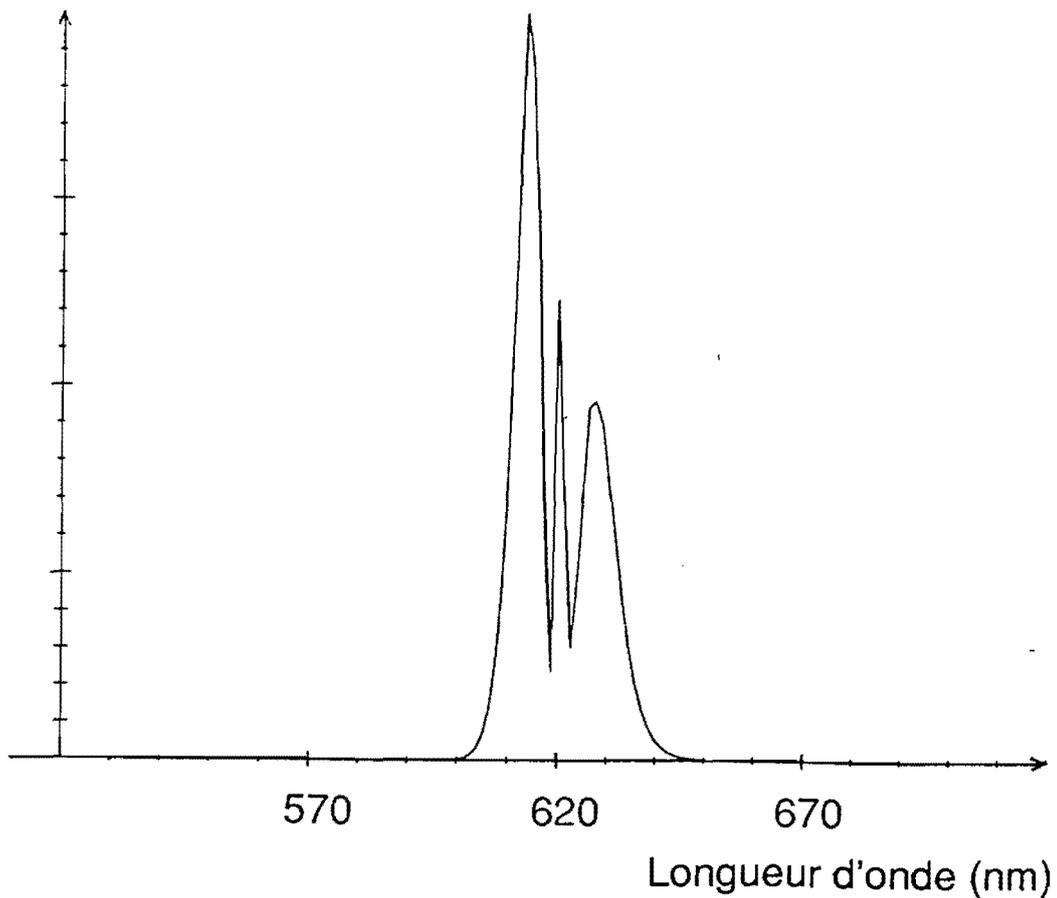
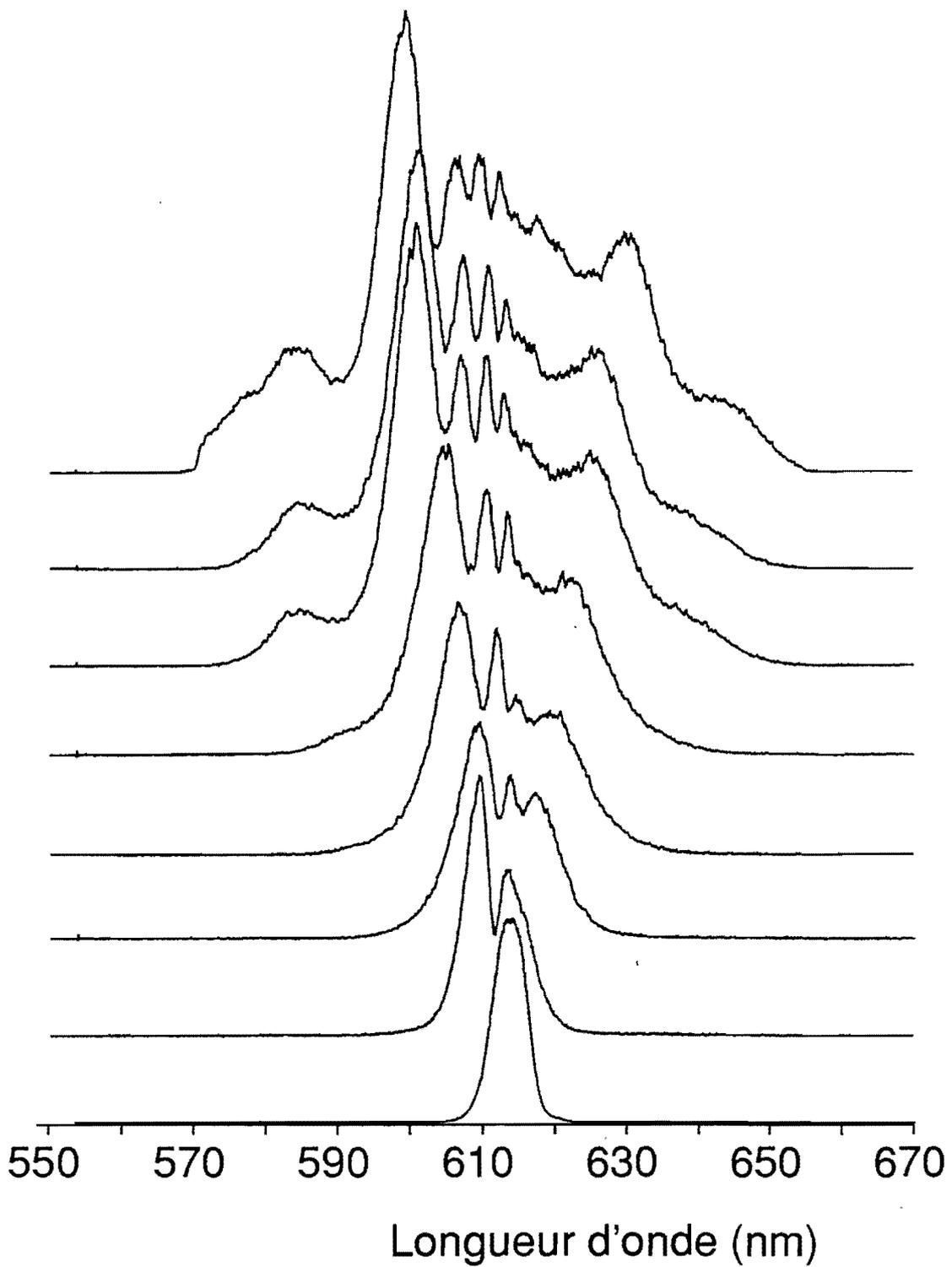


Figure 78 : Spectre d'une impulsion dissymétrique moins énergétique (3 nJ) après propagation dans 15 mm de fibre.



*Figure 79 : Evolution expérimentale du spectre d'une impulsion après propagation dans une fibre de 15 mm en fonction de l'énergie injectée. Le premier spectre correspond au spectre initial, ensuite l'énergie augmente jusqu'à 10 nJ.*

Si nous avons observé une baisse du contraste des franges du spectre dans nos simulations numériques lorsque le profil temporel des impulsions est dissymétrique, nous n'avons toutefois pas réussi à simuler des spectres sans aucune modulation sur la partie la moins énergétique. Nous pensons que cette chute de modulation est due à la modulation de la phase des impulsions incidentes sur la fibre. En effet, les impulsions utilisées dans les expériences de compression sont issues d'un oscillateur femtoseconde suivi d'un amplificateur. Afin de compenser la dispersion de vitesse de groupe introduite par les éléments constituant l'amplificateur (lentilles, cuve de colorants,...) un système de quatre prismes identiques à celui utilisé dans le laser permet de compresser les impulsions et de retrouver leur largeur initiale. Toutefois, il apparaît que le profil des spectres issus de la fibre dépend fortement de la compensation réalisée par les prismes sans que cela soit réellement visible sur la trace d'autocorrélation des impulsions amplifiées.

En conclusion, nous pouvons dire qu'il est très difficile de faire des simulations théoriques d'évolution d'impulsions femtosecondes dans une fibre optique. En effet, le nombre de paramètres est trop important pour obtenir des conclusions exploitables. Mais, nous avons montré que le profil temporel des impulsions influençait fortement le profil en intensité des spectres issus de la fibre, alors qu'un développement au delà de l'ordre 2 de l'équation non linéaire de Schrödinger décrivant l'évolution d'une impulsion dans une fibre optique ne permet pas de simuler les spectres observés. Cependant, il faut remarquer que les facteurs d'élargissement obtenu théoriquement sont proches de ceux observés expérimentalement.

Comme nous l'avons déjà évoqué plus haut, bien que les expériences de compression d'impulsions femtosecondes permettent de produire des impulsions très courtes (des impulsions de 6 fs ont été obtenues par les laboratoires AT&T [103]), ces impulsions ne sont que très rarement utilisables dans des expériences de spectroscopie résolue dans le temps [104]. En effet, la fibre optique limite l'énergie des impulsions compressées à quelques nanojoules. Pour pouvoir utiliser ces impulsions en optique non linéaire, nous avons développé un amplificateur multipassage pour augmenter l'énergie des impulsions tout en conservant leur très faible largeur temporelle.

### **IV.3. AMPLIFICATION D'IMPULSIONS COURTES**

#### **IV.3.1. Choix des colorants**

Les impulsions ultrabrèves sont caractérisées par un spectre très large. Par exemple, la largeur à mi-hauteur du spectre d'une impulsion de 20 fs limitée par la transformée de Fourier est de 20 nm (pour un profil en sécante hyperbolique). Si l'on veut amplifier de telles impulsions, il faut trouver un milieu amplificateur dont le gain reste élevé sur toute cette largeur spectrale.

On a vu au chapitre I que seuls les colorants possèdent (dans le visible) des spectres de fluorescence suffisamment larges pour ne pas filtrer le spectre des impulsions courtes. Il faut de plus que la bande d'amplification soit centrée sur le spectre des impulsions à amplifier, donc autour de 620 nm. Or, à cette longueur d'onde, il n'y a pas de colorant possédant une bande d'amplification suffisante. Elle est de 10 à 15 nm environ pour la Rhodamine 640 qui est le colorant le mieux adapté.

Nous avons testé plusieurs autres colorants tels que la Rhodamine 610 (Rh 610) ou le Kiton Red, pour connaître leurs caractéristiques. Les spectres élargis issus de la fibre optique ont donc été amplifiés avec ces différents colorants pour estimer leurs bandes d'amplification. La figure 80 montre les spectres amplifiés avec la Rh 610 et le Kiton Red. On s'aperçoit que pour la Rh610, la largeur à mi-hauteur du spectre amplifié est de 20 nm environ et que la bande d'amplification est décalée vers les longueurs d'onde inférieures à 620 nm. Pour le Kiton Red, le spectre amplifié est plus large mais se compose de deux bosses centrées à 590 et 610 nm. Cette absence d'amplification vers 605 nm est caractéristique du Kiton Red et ne provient pas du spectre initial à amplifier. Ce trou dans la bande d'amplification provoque un filtrage spectral dans le spectre des impulsions amplifiées et entraîne une modulation de la phase des impulsions qui empêche d'obtenir une bonne compression. La Rh 610 et le Kiton Red ne sont donc pas adaptés à l'amplification de tels spectres.

Il est rapidement devenu évident que si l'on voulait amplifier les spectres très larges des impulsions issues de la fibre optique, il fallait utiliser un mélange de colorants. Or, un nouveau problème se pose alors : la fluorescence du premier colorant ne doit pas être absorbée par le second colorant utilisé. Il faut donc trouver un colorant permettant d'amplifier la partie "jaune" du spectre des impulsions et un autre la partie "rouge" sans que ce dernier colorant n'absorbe l'émission du premier. Deux colorants permettent d'amplifier relativement bien des spectres situés entre 620 et 640 nm : la Rhodamine 640 et le DCM (4 dicyanométhylène - 2-méthyl - 6p-diméthylaminostyryl-4H-pyran). Mais la Rhodamine 640 présente un maximum d'absorption vers 570 nm. Dans un mélange avec la Rh 610, toute la partie "jaune" amplifiée par la Rh 610 est absorbée par la Rh 640 (voir figure 81). Par contre, le DCM présente un maximum d'absorption à 481 nm, longueur d'onde qui est inférieure à celle du maximum de fluorescence de la Rhodamine 610 (588 nm) [figure 82 a].

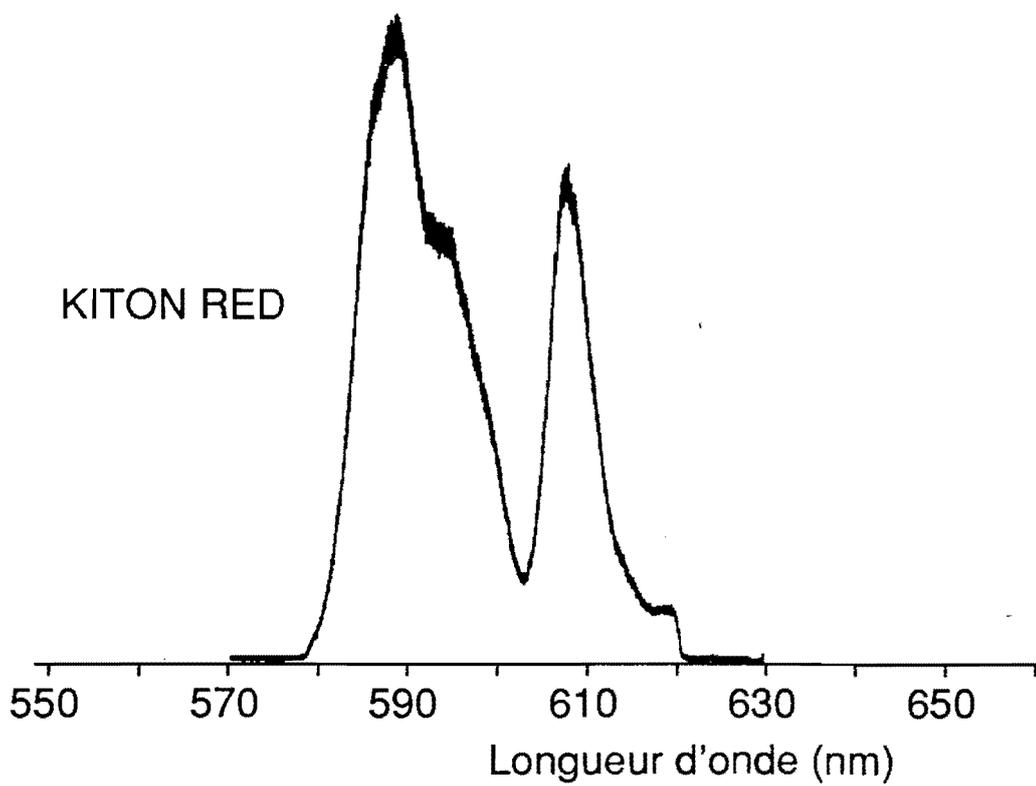
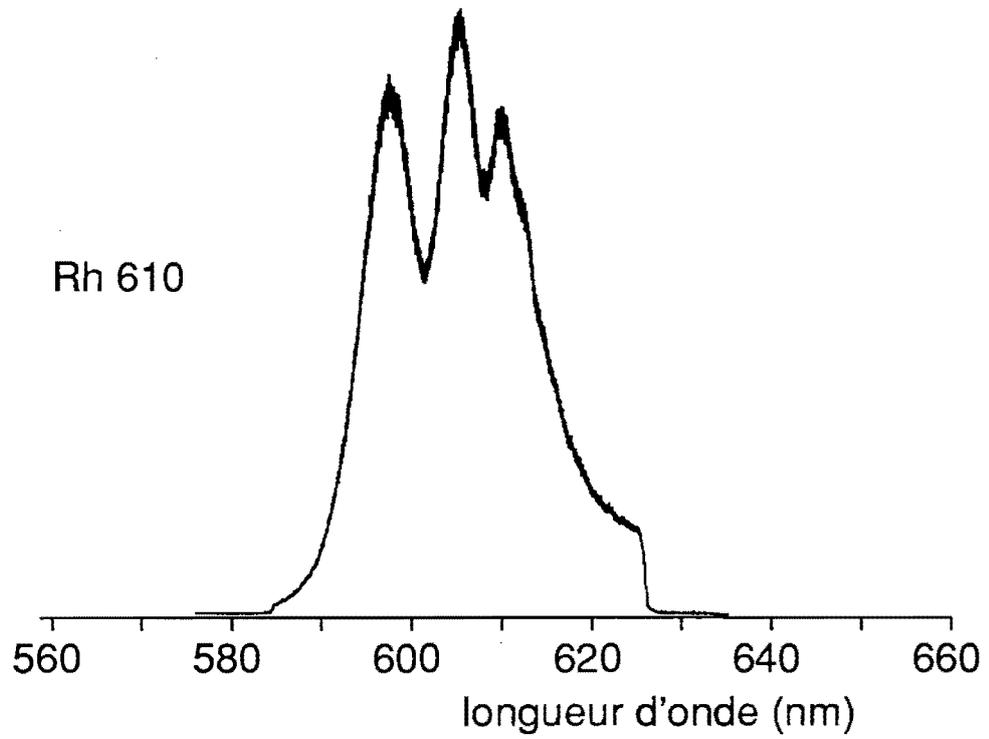


Figure 80 : Spectres amplifiés avec la Rh 610 et le Kiton Red.

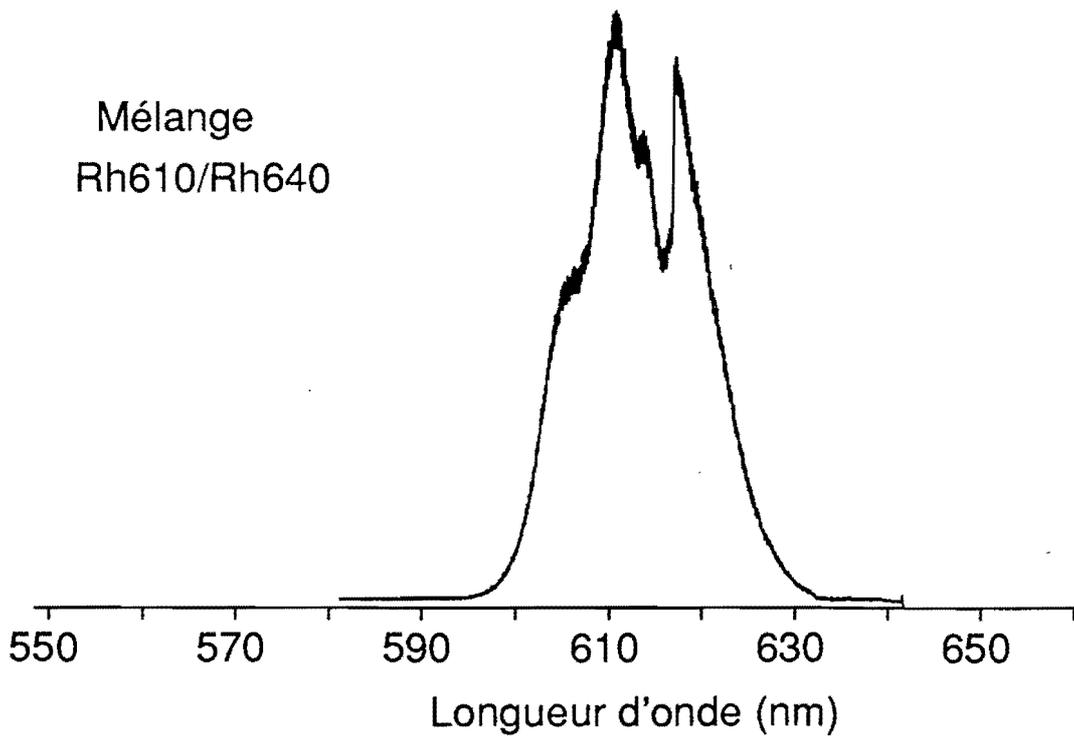
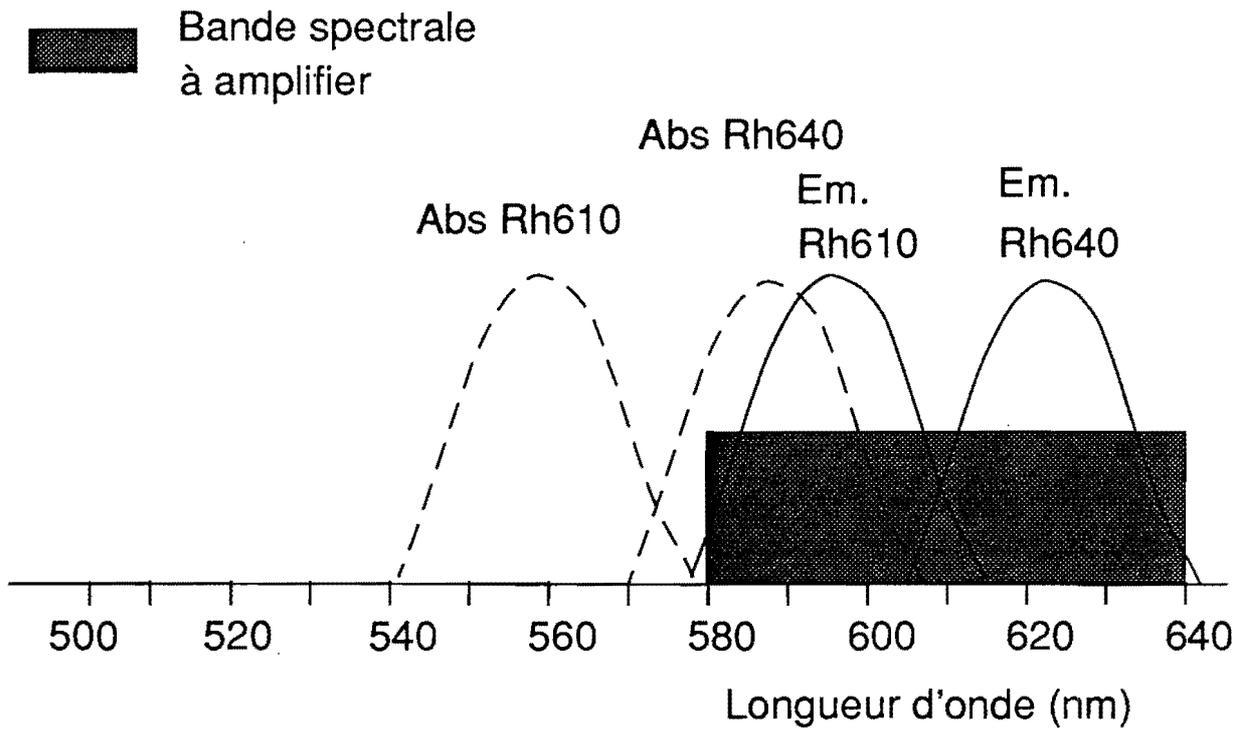


Figure 81 : Bande d'amplification d'un mélange de Rh 610 et Rh 640 théorique et expérimentale.

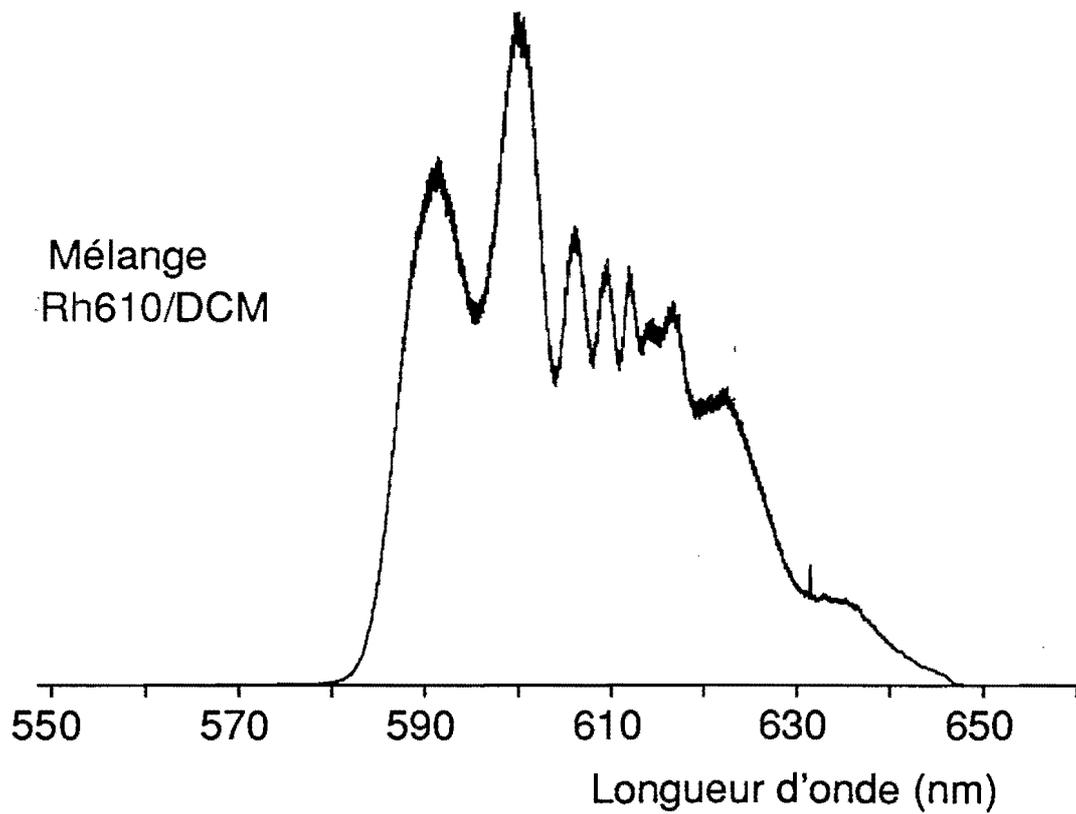
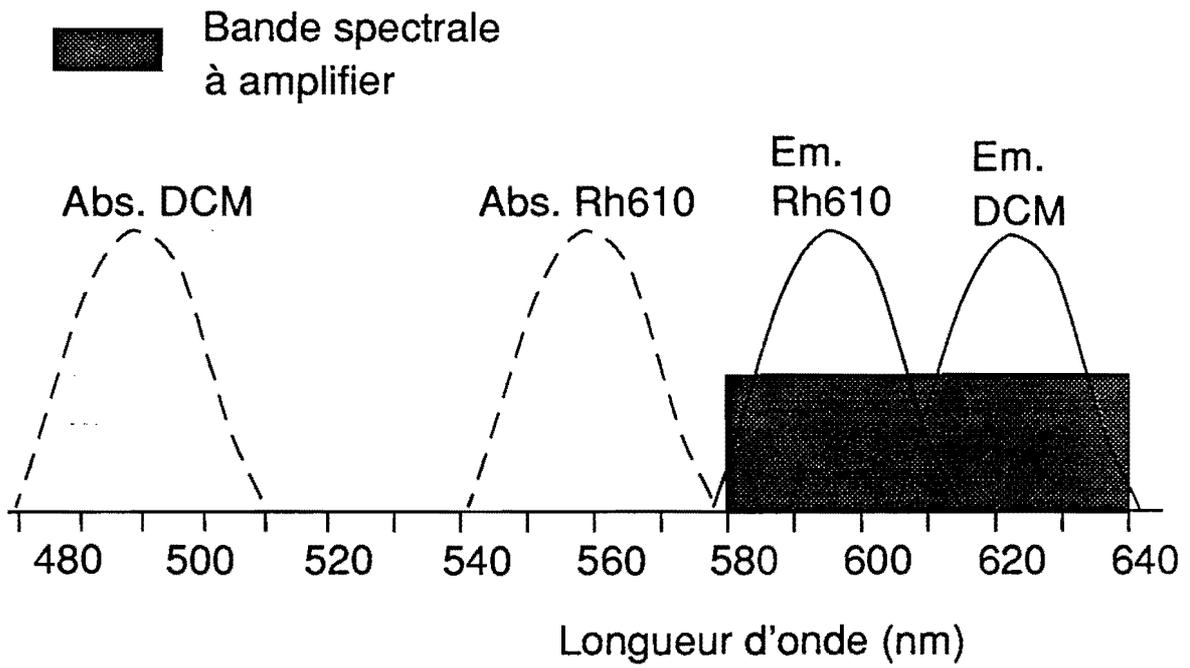


Figure 82 : Bande d'amplification d'un mélange de DCM et Rh 610 théorique et expérimentale.

Pour des concentrations égales en DCM et en Rh 610, nous avons obtenu une plage d'amplification suffisante pour les spectres issus de la fibre. La figure 82 b présente un spectre typique de l'impulsion amplifiée à l'aide de ce couple de colorants. On retrouve un spectre qui ressemble fortement à celui émergent de la fibre optique [figure 71]. On peut donc penser que l'amplification n'introduira pas de modulation de phase supplémentaire, qui serait difficilement compensée par le système de compression.

Afin d'augmenter l'efficacité du système d'amplification, nous avons développé un amplificateur multipassage [105]. En effet, la durée des impulsions des lasers de pompe est de quelques nanosecondes. On peut donc faire passer plusieurs fois l'impulsion femtoseconde dans l'amplificateur pendant le temps de fluorescence du colorant qui est de l'ordre de grandeur de la largeur temporelle de l'impulsion de pompe.

Nous avons, dans un premier temps, réalisé l'expérience en utilisant un laser Nd:Yag déclenché délivrant des impulsions de 6 ns à la cadence de 10 Hz. Cette expérience a été ensuite reproduite avec un laser à vapeur de cuivre délivrant des impulsions de 10 ns à la cadence de 11 kHz.

#### **IV.3.2. Amplification et compression d'impulsions courtes à 10 Hz**

Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure 83. Nous avons utilisé des impulsions produites par un oscillateur femtoseconde et amplifiées avec un laser Nd:Yag déclenché délivrant des impulsions de 6 ns à la cadence de 10 Hz. Les impulsions femtosecondes amplifiées ont une durée de 100 fs, et leur spectre est centré autour de 615 nm. Une partie du faisceau est prélevée et injectée dans une fibre monomode de 15 mm de long et dont le diamètre du coeur est de 4  $\mu\text{m}$ . Afin d'améliorer le profil spatial du faisceau à injecter dans la fibre, nous l'avons au préalable filtré pour obtenir un profil gaussien. Dans ce cas, le rendement de couplage dans la fibre est de l'ordre de 50 % avec un objectif x 20. La longueur de la fibre utilisée (15 mm) ne correspond pas à la longueur optimale calculée par simulation (10 mm). Ceci est tout simplement dû à un problème de connecteur qui nous empêchait technologiquement d'utiliser des fibres plus courtes.

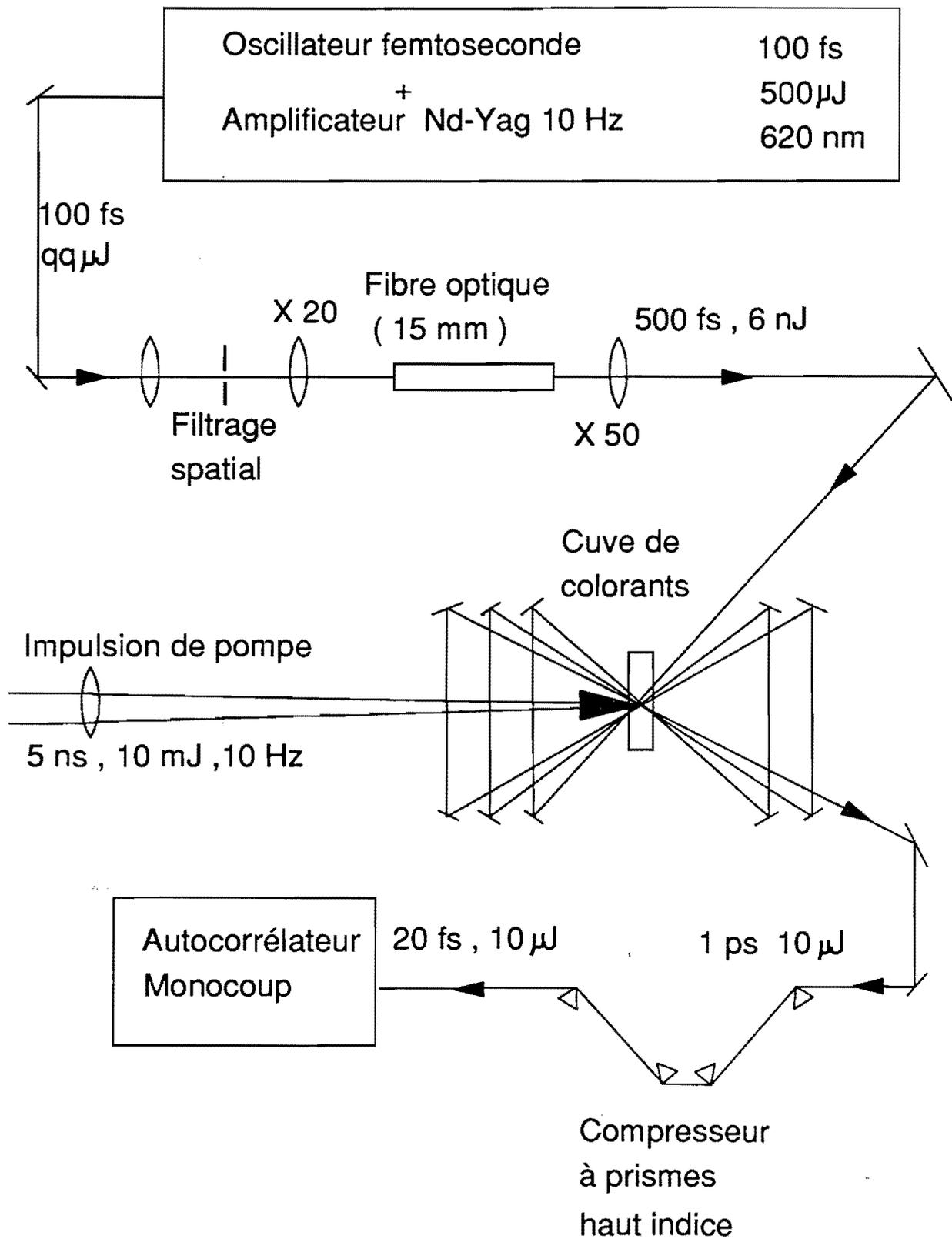


Figure 83 : Schéma de l'expérience de production d'impulsion de 20 fs à 10 Hz.

En analysant le spectre en sortie de la fibre, nous avons estimé que l'énergie des impulsions injectées était de l'ordre de 6 nJ correspondant à une puissance crête de 60 kW. D'après nos simulations numériques, la largeur temporelle de l'impulsion à la sortie de la fibre est d'environ 500 fs.

Pour éviter des effets non linéaires dans l'amplificateur, nous avons décidé d'amplifier les impulsions avant de les compresser. De récentes études [106] sur des amplificateurs d'impulsions linéairement modulées en phase ont montré que la relation de phase entre les différentes composantes fréquentielles de l'impulsion est conservée durant le processus d'amplification.

Les colorants sont dissous dans du méthanol avec des concentrations de  $2 \cdot 10^{-5}$  Mole/L pour le DCM et la Rh 610. Pour diminuer les effets de superfluorescence amplifiée dans l'amplificateur, multipassage, nous avons choisi une cuve de colorant assez épaisse (5 mm). En effet, pour une zone d'amplification cylindrique, (ce qui est notre cas) le niveau de superfluorescence diminue si on augmente le rapport  $L/d$  où  $d$  est le diamètre du faisceau de pompe et  $L$  la longueur du milieu amplificateur [107]. Aucune optique de focalisation n'est utilisée dans l'amplificateur, seul un objectif de microscope reprend la divergence du faisceau à la sortie de la fibre. Il est ajusté pour que le diamètre du faisceau augmente progressivement dans les étages de l'amplificateur pour diminuer les problèmes de saturation de l'amplification dans les derniers passages. Le diamètre du faisceau est de 1 mm pour le premier passage et augmente jusqu'à 3 mm environ lors du dernier passage.

En pompant avec des impulsions d'énergie de l'ordre de 10 mJ, nous avons obtenu un gain de 1 400 environ avec six passages correspondant à une énergie par impulsion voisine de 10  $\mu$ J. Le gain relativement faible peut s'expliquer par le fait qu'on amplifie une bande spectrale de 30 nm. Nous avons analysé le profil spatial du faisceau après l'amplificateur et nous pouvons affirmer que le passage dans l'amplificateur ne modifie pas le profil gaussien du faisceau.

La dispersion de vitesse de groupe introduite par les six passages dans le milieu amplificateur, allonge encore un peu l'impulsion dont la durée a pu être estimée voisine de 1 ps.

Pour compresser les impulsions nous avons choisi d'utiliser un système de quatre prismes d'indice élevé [108] (FeD D0525 de Sovirel,  $n = 1,8$ ) pour obtenir un coefficient de transmission du compresseur élevé ( $\sim 95\%$ ) et pour rendre le système plus compact.

Pour caractériser les impulsions produites, nous avons développé un autocorrélateur monocoup [109] permettant d'obtenir une visualisation en temps réel de la fonction d'autocorrélation et régler ainsi finement le compresseur. La cadence de tirs du laser Nd:Yag étant très faible, une autocorrélation classique construite point par point nécessite un temps de mesure trop long pour être compatible avec le réglage du compresseur.

### IV.3.3. Réalisation d'un autocorrélateur monocoup

Cette technique a été développée par R.N. Guyzalian et coll. [110] et nous l'avons adapté dans le domaine des impulsions femtosecondes. L'idée de base de la méthode est de transformer la forme temporelle de l'impulsion en une forme spatiale qui sera analysée par un détecteur spatial. En fait, on partage l'impulsion à analyser en deux répliques identiques qui se croisent dans un cristal non linéaire et qui engendrent par doublage de fréquence un faisceau dont l'image est enregistrée sur une barette de détecteurs CCD. Si les deux impulsions incidentes sur le cristal ne sont pas colinéaires, le signal doublé en fréquence est produit uniquement lorsque les impulsions coïncident à la fois spatialement et temporellement. Afin de comprendre qualitativement le principe, on se reportera à la figure 84. Les deux impulsions initiales à la fréquence  $\omega_0$  se croisent dans un cristal non linéaire de KDP. Si les diamètres des deux faisceaux incidents sont suffisamment grands et que leurs profils spatiaux sont uniformes, on peut montrer que le profil spatial  $S(x)$  du faisceau produit à  $2\omega_0$  sur la bissectrice des faisceaux incidents est directement proportionnel à la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 :

$$(4.10) \quad S(x) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(t + \tau) \cdot I(t - \tau) dt \quad .$$

Nous avons ici :

$$I_1(t) = I_2(t) = I(t)$$

et :

$$(4.11) \quad x = \frac{c\tau}{2n \sin(\phi/2)}$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $n$  l'indice de réfraction du cristal,  $\phi$  l'angle entre les deux faisceaux incidents et  $2\tau$  le retard entre les passages des maxima des deux impulsions à une abscisse  $x$  dans le cristal de KDP.

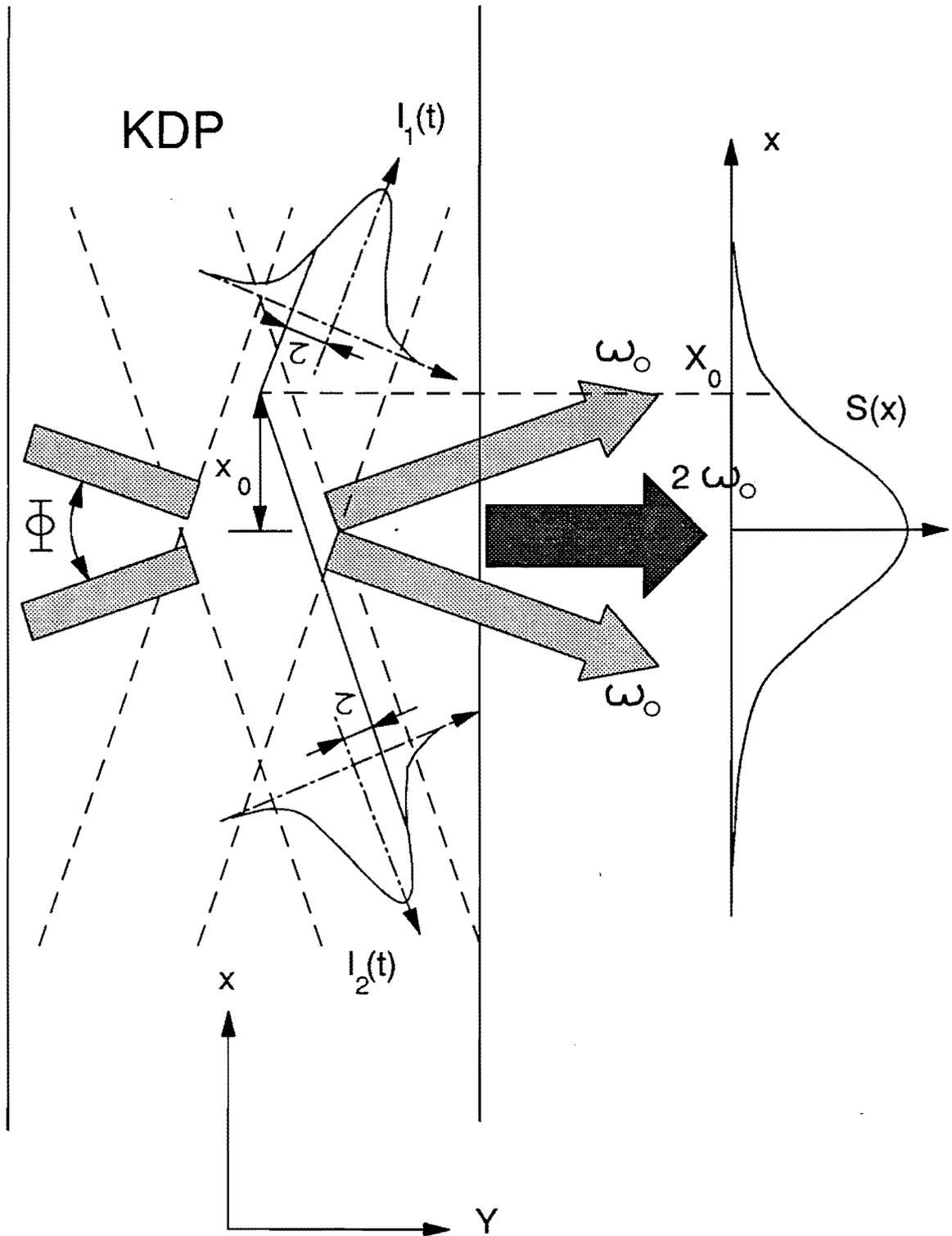


Figure 84 : Principe de l'autocorrélateur monocoup.

En enregistrant la répartition spatiale du signal doublé en fréquence  $S(x)$ , on obtient donc ainsi la même information qu'avec un autocorrélateur classique, mais dans ce cas avec une impulsion unique.

La mesure absolue de la largeur de l'impulsion peut être obtenue d'une façon aisée à mettre en oeuvre. La méthode consiste à introduire un délai  $\Delta t_0$  sur l'un des deux faisceaux incidents. L'allure spatiale de  $S(x)$  se décale alors le long de l'axe  $x$ . Ce décalage  $x_0$  est relié au retard  $\Delta t_0$  par la relation [109] :

$$(4.12) \quad \Delta x_0 = \frac{c \Delta t_0}{2n \sin(\phi/2)} .$$

Si nous nous souvenons que la forme  $S(x)$  du faisceau doublé en fréquence n'est pas exactement la fonction d'autocorrélation du second ordre :

$$G_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) \cdot I(t - \tau) dt$$

mais est reliée à la fonction :

$$G_2(2\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t + \tau) \cdot I(t - \tau) dt$$

on peut montrer que la largeur à mi-hauteur  $\delta_0$  de la fonction spatiale  $S(x)$  est liée à celle  $\eta_0$  de l'impulsion temporelle incidente par :

$$(4.13) \quad \eta_0 = \kappa \cdot \delta_0 \cdot \frac{\Delta t_0}{\Delta x_0}$$

où  $\Delta t_0$  et  $\Delta x_0$  sont définis plus haut et  $\kappa$  est un facteur de forme qui dépend de la forme temporelle de l'impulsion incidente (nous prenons habituellement un modèle en sécante hyperbolique qui conduit à  $\kappa = 1,55$ ).

Le schéma de l'autocorrélateur est représenté sur la figure 85. Nous avons enregistré avec un analyseur optique multicanal (OMA) le profil spatial du faisceau doublé en fréquence produit par les deux faisceaux étendus qui se croisent dans un cristal de KDP de 0,3 mm d'épaisseur.

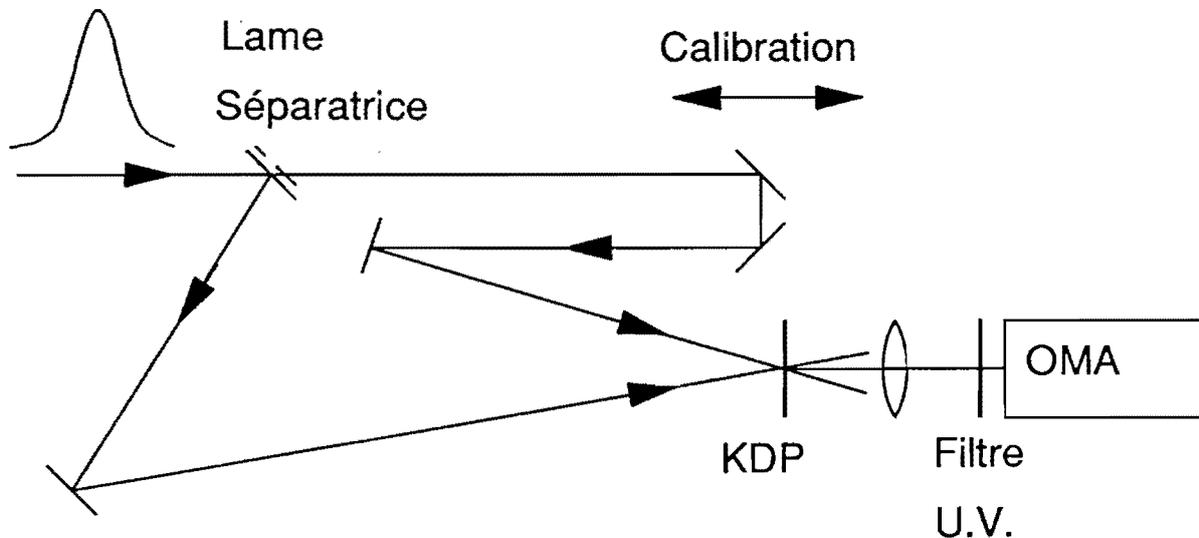


Figure 85 : Schéma expérimental de l'autocorrélateur monocoupe.

Ce système nous permet d'obtenir en temps réel la visualisation de la fonction d'autocorrélation de l'impulsion et ainsi d'ajuster précisément le compresseur à prismes. Nous obtenons régulièrement des autocorrélation qui permettent d'estimer que la durée des impulsions est toujours inférieure à 25 fs. Les impulsions les plus courtes obtenues ont une largeur à mi-hauteur de 20 fs (figure 86) [111]. La largeur du spectre correspondant montrée sur la figure 82 b) étant de 30 nm, et en supposant une forme temporelle en  $1/\text{ch}^2$ , on peut prévoir que des impulsions de 13 fs pourraient être obtenues, indiquant ainsi que nos impulsions sont proches de la limite imposée par la transformée de Fourier.

On peut noter, sur la figure 86, que la fonction d'autocorrélation présente des ailes. Nous pensons que cela est dû à une modulation non linéaire de la phase des impulsions qui n'est pas compensée par notre système de compression [112]. En fait, si le système de quatre prismes à haut indice de réfraction de notre compresseur est très compact et a une bonne transmission, il présente une dispersion d'ordre trois négative importante. La dispersion d'ordre trois positive de la fibre optique se trouve alors surcompensée.

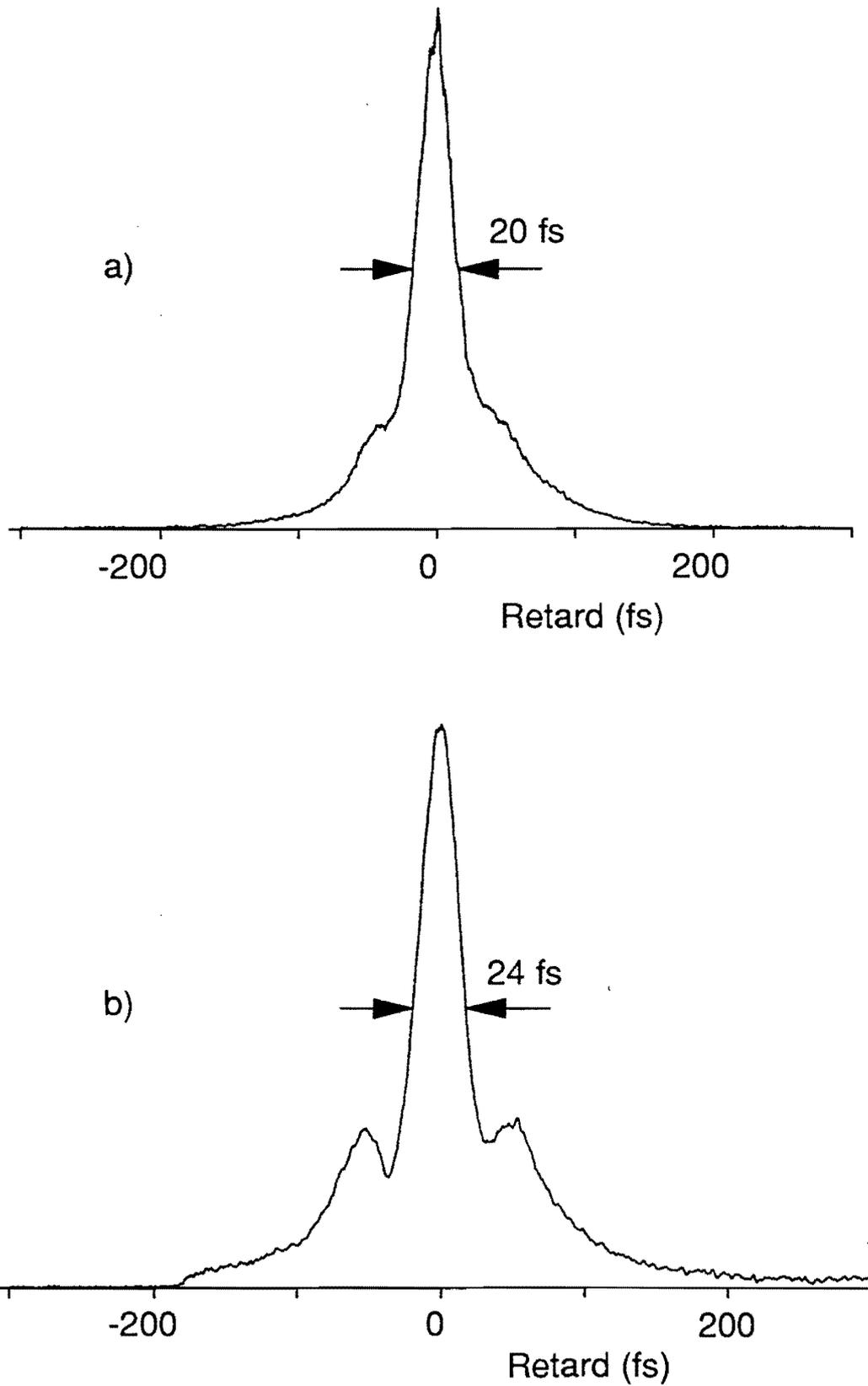


Figure 86 : Autocorrélation monocoup d'une impulsion de 20 fs amplifiée et compressée (a). La valeur moyennée sur 20 tirs est présentée en (b).

La solution pour remédier à ce problème serait de réaliser une compensation de la phase à l'ordre 3 en utilisant un compresseur avec quatre prismes et quatre réseaux [113]. Les réseaux servant alors à compenser l'ordre 3 de la phase créée dans la fibre et par les prismes, des impulsions plus proches de la limite imposée par la transformée de Fourier seraient alors obtenues. Il faut noter néanmoins que les pieds de l'autocorrélation peuvent être éliminés en filtrant le spectre des impulsions pour supprimer les fréquences inutiles [114], ce que nous n'avons pas essayé. Les impulsions de 20 fs ont une puissance crête suffisante pour créer un continuum spectral en focalisant le faisceau avec une lentille de 50 mm de focale dans une cuve d'eau.

Nous verrons dans le paragraphe IV.4. l'utilisation de telles impulsions pour l'étude de la saturation d'absorption d'un colorant organique.

#### **IV.3.4. Amplification d'impulsions femtosecondes à la cadence de 11 Khz**

Il est très intéressant de pouvoir disposer d'un laser de pompe fonctionnant à une cadence supérieure à celle des lasers Nd:Yag déclenchés. Pour cela Knox et coll. [115] ont développé un amplificateur utilisant un laser à vapeur de cuivre fonctionnant à quelques kilohertz. Une cadence de plusieurs kHz permet en particulier d'utiliser des techniques de détection synchrone pour améliorer la sensibilité de la détection.

Nos collègues du Laboratoire d'Optique Appliquée de l'ENSTA possédant un tel système, nous sommes allés chez eux reproduire notre expérience en l'adaptant aux caractéristiques de leur laser de pompe. Leur laser à vapeur de cuivre délivre des impulsions de 10 ns à la cadence de 11 Khz avec une énergie par impulsion de l'ordre de 2 mJ (Oxford Laser, CU 40). Les raies d'émission de la vapeur de cuivre sont situées vers 511 et 578 nm.

Le système femtoseconde est constitué d'un oscillateur femtoseconde classique suivi d'un amplificateur multipassage produisant des impulsions de 50 fs et d'énergie de 2  $\mu$ J environ. Le milieu amplificateur, constitué d'un jet de Rhodamine 640 dissous dans de l'éthylène glycol, est pompé par des impulsions nanosecondes de 0,7 mJ à 511 nm (puissance moyenne du faisceau de pompe : 8 W).

Une partie des impulsions amplifiées est couplée dans une fibre optique monomode [figure 87]. L'énergie couplée dans la fibre est de l'ordre de 4 nJ produisant un élargissement du spectre représenté sur la figure 88 a). Les impulsions sont ensuite amplifiées dans un amplificateur à 5 passages basés sur le même principe que celui utilisé à 10 Hz. Toutefois, pour éviter des problèmes thermiques, le milieu amplificateur est constitué d'un jet de colorant épais (1,25 mm environ) dissous dans un mélange d'éthylène glycol et de propylène carbonate dans un rapport 1 à 3. La

concentration en DCM est de  $2 \cdot 10^{-4} \text{M/l}$  alors que celle en Rh610 est égale à  $3 \cdot 10^{-4} \text{M/l}$ . Le jet de colorant est pompé par l'autre moitié de la puissance disponible sur la raie verte du laser à vapeur de cuivre (7 W environ).

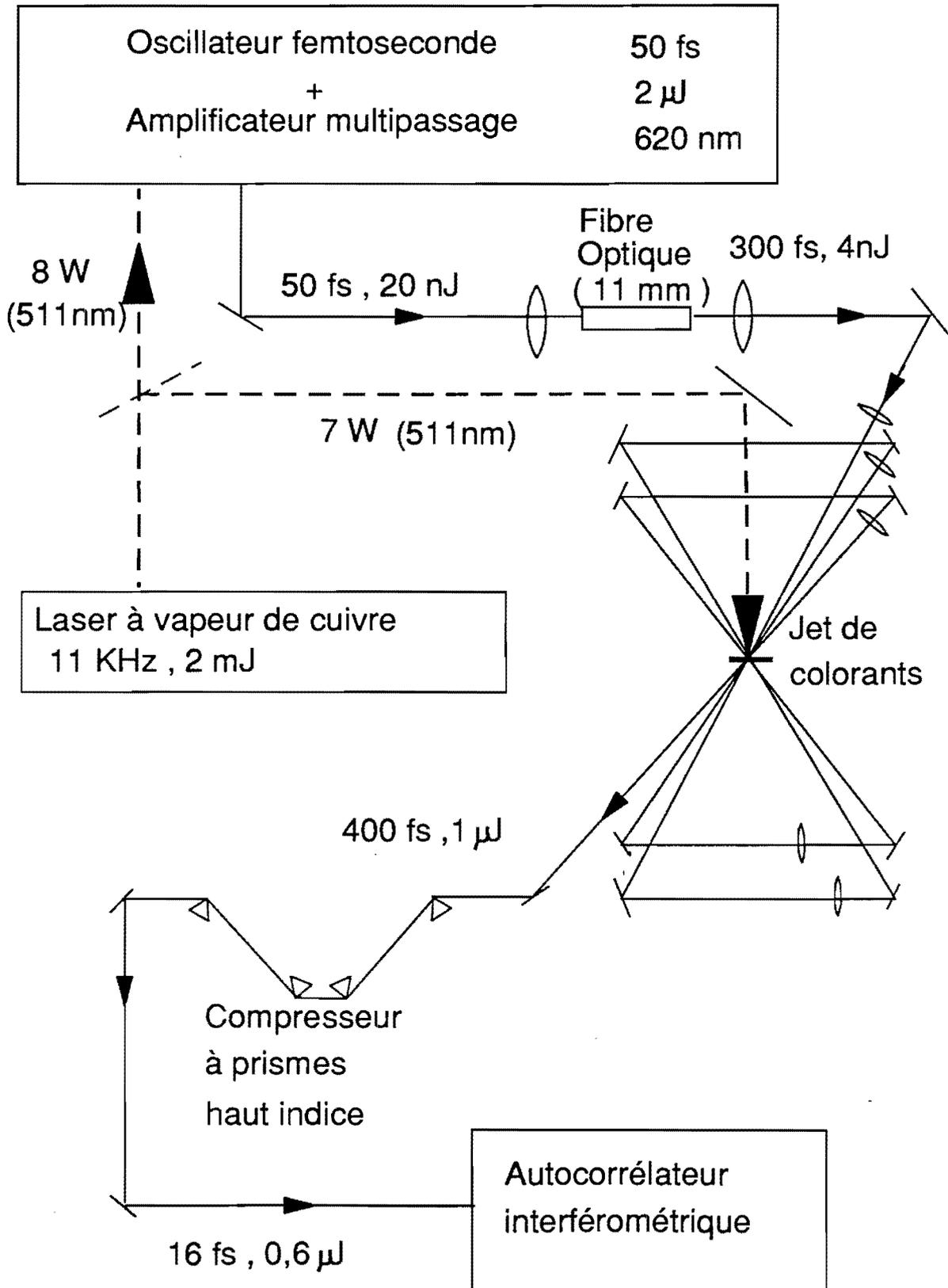


Figure 87 : Schéma de l'expérience réalisée avec un laser à vapeur de cuivre opérant à 11 kHz.

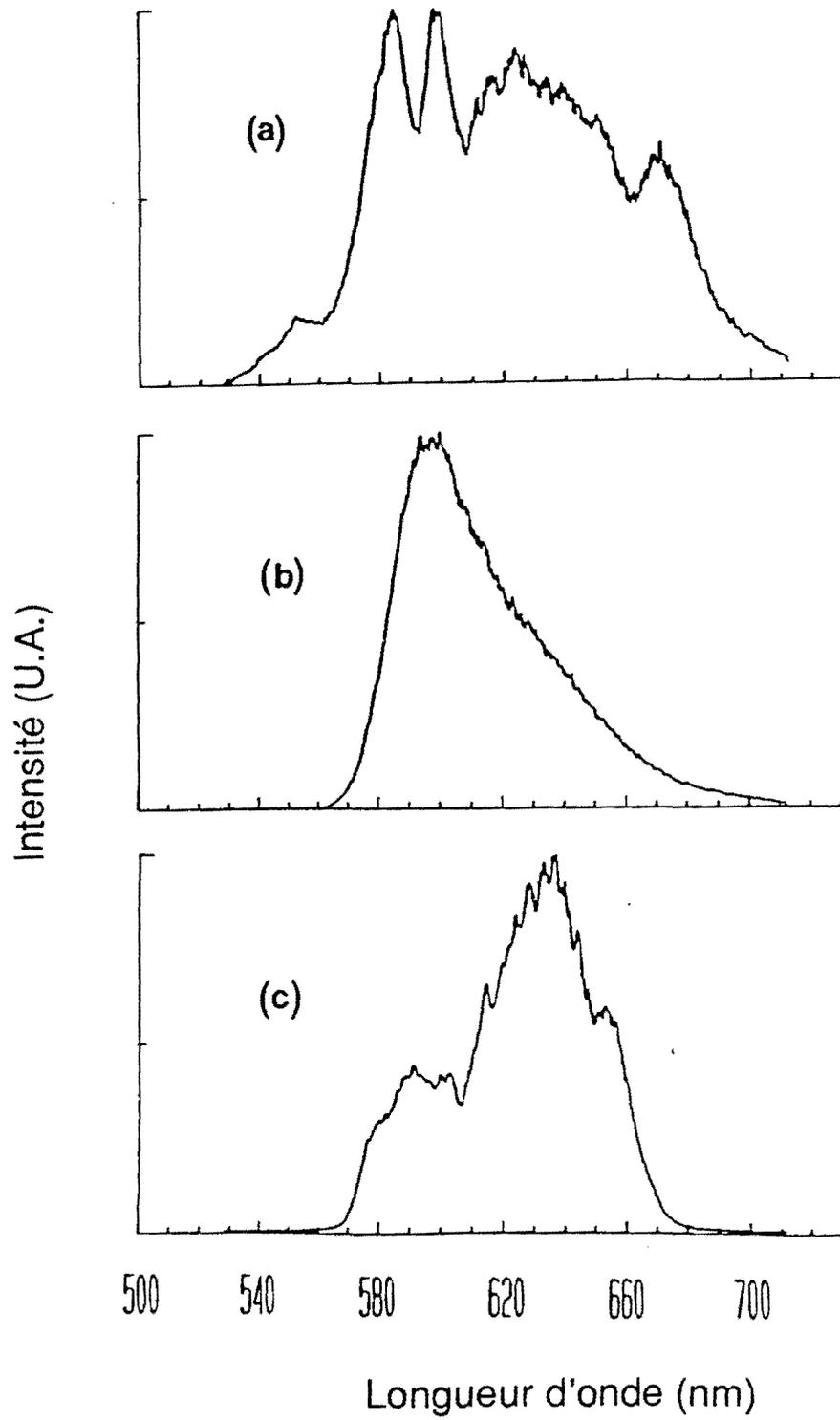


Figure 88 : Spectre de l'impulsion après la fibre (a), après amplification (b) et fluorescence du mélange de colorant (c).

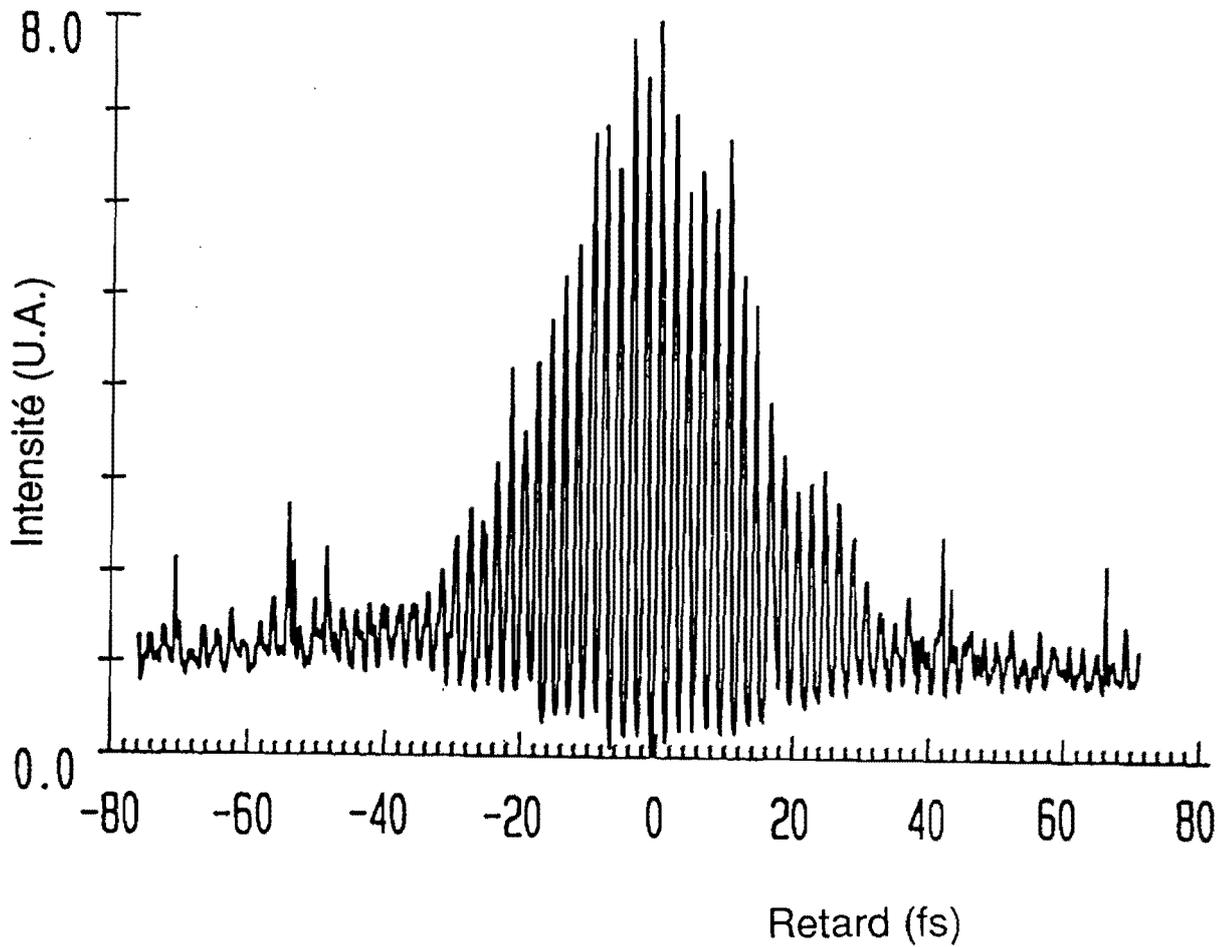


Figure 89 : Autocorrélation interférométrique d'une impulsion de 16 fs amplifiée et compressée avec un système de prismes.

La qualité spatiale du jet de colorant impose de travailler avec des faisceaux de quelques centaines de microns. Nous avons donc inséré entre chaque passage des lentilles permettant de focaliser le faisceau à amplifier dans le jet de colorants. Ces lentilles assurent en plus une expansion du faisceau de 30  $\mu\text{m}$  au premier passage à 300  $\mu\text{m}$  pour le dernier passage afin de ne pas saturer l'amplificateur. Après cinq passages, le gain est d'environ 250 correspondant à une énergie de 1  $\mu\text{J}$  par impulsion. On peut observer sur la figure 88 c) que la largeur du spectre des impulsions amplifiées est presque aussi importante qu'à l'entrée de l'amplificateur ce qui justifie ainsi l'utilisation d'un mélange de colorants.

Le faisceau amplifié traverse ensuite un système de quatre prismes haut indice (SF10 de Schott) pour compenser la dispersion de vitesse de groupe de la fibre et du milieu amplificateur. Nous avons observé des effets importants de dépolarisation dans la fibre optique dus à la puissance crête importante injectée. Ces effets ont affecté la transmission du système de prismes et les impulsions compressées avaient une énergie de 0,6  $\mu\text{J}$ . En utilisant un autocorrélateur interférométrique multicoups [116], nous avons obtenu une autocorrélation correspondant à des impulsions de 16 fs [117] si l'on considère que le profil temporel des impulsions est en sécante hyperbolique [figure 89].

Comme dans l'expérience réalisée à 10 Hz, le spectre des impulsions amplifiées montre qu'il serait possible d'obtenir des impulsions plus courtes que 16 fs si on parvenait à mieux compenser la phase de ces impulsions. En particulier, si les prismes permettent d'obtenir une bonne transmission, ils introduisent une dispersion d'ordre 3 supérieure à celle d'un système équivalent à base de réseaux. Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons remplacé le compresseur à prismes par un système de quatre réseaux et nous avons obtenu des impulsions de 12 fs. Les réseaux introduisant moins de dispersion d'ordre 3, nous avons donc produit des impulsions plus courtes, mais cette amélioration temporelle s'est faite au détriment du rendement global en énergie car les pertes par réflexion sont très grandes (l'énergie par impulsion était de l'ordre de 0,05  $\mu\text{J}$ ).

#### **IV.4. ETUDE DE LA CINÉTIQUE DE LA SATURATION D'ABSORPTION DU VERT DE MALACHITE**

Disposant d'impulsions très courtes et très puissantes, nous les avons utilisées pour étudier la dynamique de saturation d'absorption d'un colorant organique de la famille des Triphénylméthanes: le vert de malachite ( $\text{C}_{23}\text{H}_{25}\text{N}_2$ ) [voir figure 90 pour la formule semi éclatée]. Pour étudier une dynamique de relaxation, il est nécessaire de disposer d'impulsions plus courtes que le phénomène à étudier. Or, jusqu'à maintenant, toutes les expériences de saturation d'absorption dans le vert de

malachite ont montré que le temps de saturation était inférieur à la durée des impulsions utilisées dans l'expérience (en général 100 fs). Nous avons donc tenté de déterminer le temps de saturation en utilisant nos impulsions amplifiées et compressées.

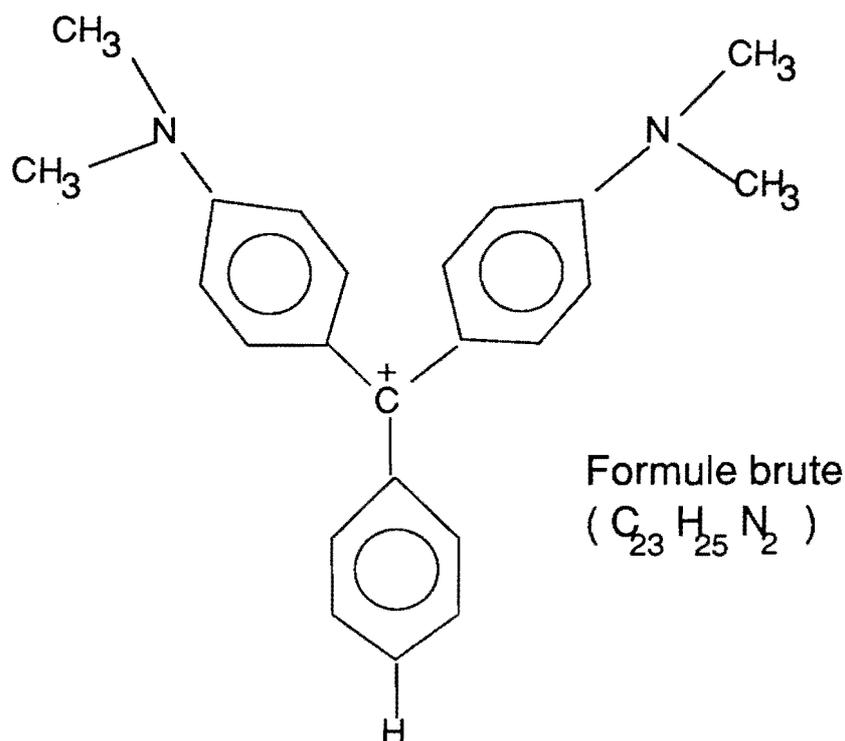


Figure 90 : Formule éclatée du vert de malachite.

Les niveaux électroniques de la molécule qui interviennent dans l'expérience sont l'état fondamental  $S_0$  et le premier état excité  $S_1$ . A chaque état électronique de la molécule sont associés des états vibrationnels et rotationnels, en particulier ceux des noyaux benzéniques qui forment cette molécule. Les niveaux se présentent donc sous forme de bandes  $S_0$  et  $S_1$ .

La fréquence d'excitation :  $16\,100\text{ cm}^{-1}$  ( $\lambda = 620\text{ nm}$ ) est en résonance avec la transition  $S_0 \rightarrow S_1$ .

Ces molécules ont été largement étudiées et on connaît assez bien les processus de relaxation du niveau excité  $S_1$  vers  $S_0$  ainsi que les constantes de temps. En particulier, Mokhtari [118] a montré récemment qu'il y avait d'abord un rééquilibrage dans  $S_1$  de la position angulaire des noyaux benzéniques avec une constante de temps de l'ordre de 500 fs pour le vert de malachite dissous dans l'eau. Puis, on observe une relaxation non radiative de l'état excité en un temps de 2,1 ps vers l'état fondamental [119].

Le principe d'une expérience d'excitation-sonde consiste à perturber le milieu à étudier à l'aide d'une première impulsion (pompe), puis de faire traverser ce milieu à une impulsion (sonde) sur laquelle on mesure les effets de la perturbation. Le montage réalisé est présenté sur la figure 91.

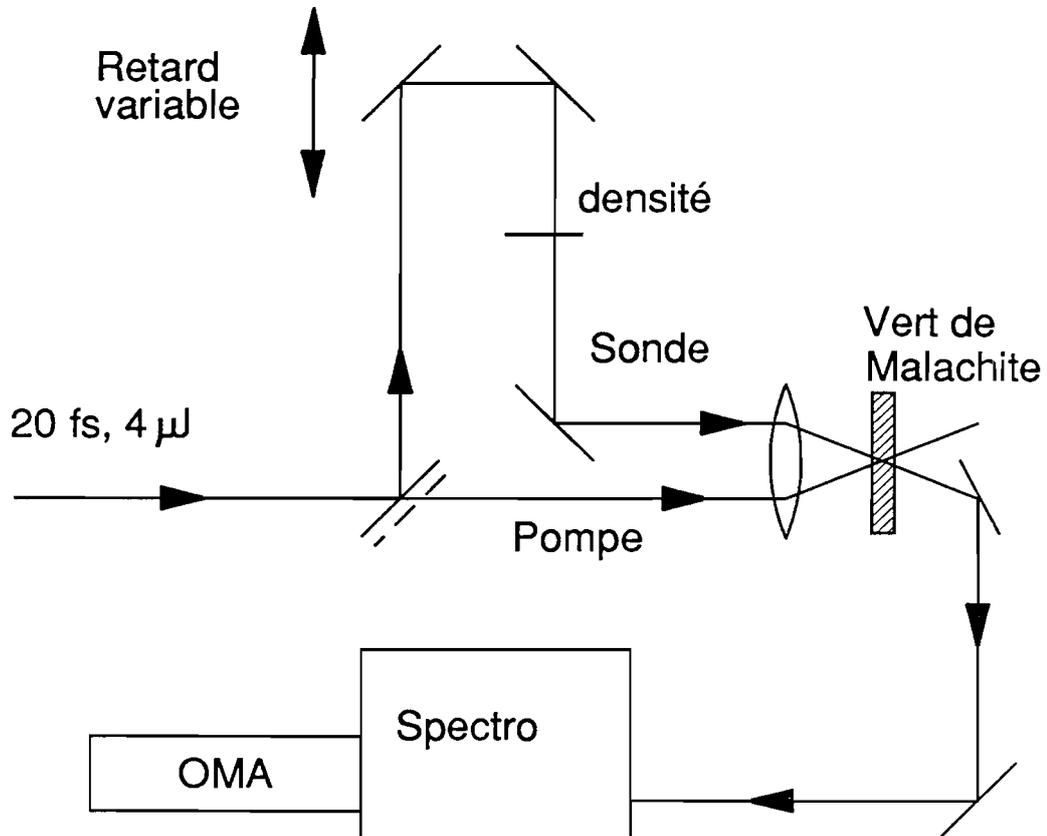


Figure 91 : Schéma de l'expérience de saturation d'absorption.

Les impulsions sont divisées en deux répliques. L'une, constituant la pompe, vient modifier l'absorption du vert de malachite (dissous dans du méthanol, concentration :  $10^{-5}$  M/l). La deuxième impulsion, beaucoup plus faible vient tester la variation de l'absorption créée par la pompe en fonction du retard  $\tau$  entre la pompe et la sonde. Ici les polarisations des deux faisceaux sont identiques. On enregistre donc le spectre de l'impulsion sonde transmis par l'échantillon en fonction de  $\tau$ . On retranche ensuite des spectres obtenus, le spectre de l'impulsion sonde transmis par la cuve de vert de malachite en l'absence de l'impulsion de pompe (donc intégrant l'absorption linéaire et les réflexions sur les faces de la cuve).

La figure 92 représente le spectre de transmission relative ( $I(t) - I(0)$ ) du vert de malachite en solution dans du méthanol. L'incrément entre chaque spectre est de 33 fs. On voit que le temps de montée de l'absorption est inférieur à 30 fs puis on observe ensuite une relaxation plus longue, de l'ordre de quelques picosecondes, déjà observée précédemment [figure 93]. Le but initial de l'expérience étant de déterminer le temps de montée de la saturation, nous n'avons pas poussé plus loin nos investigations pour déterminer la constante de relaxation vers l'état initial. Le pic plus intense présent dans les 60 premières femtosecondes correspond à un artefact cohérent [120] qui peut s'expliquer par le fait que les faisceaux de pompe et de sonde sont à la même "longueur d'onde".

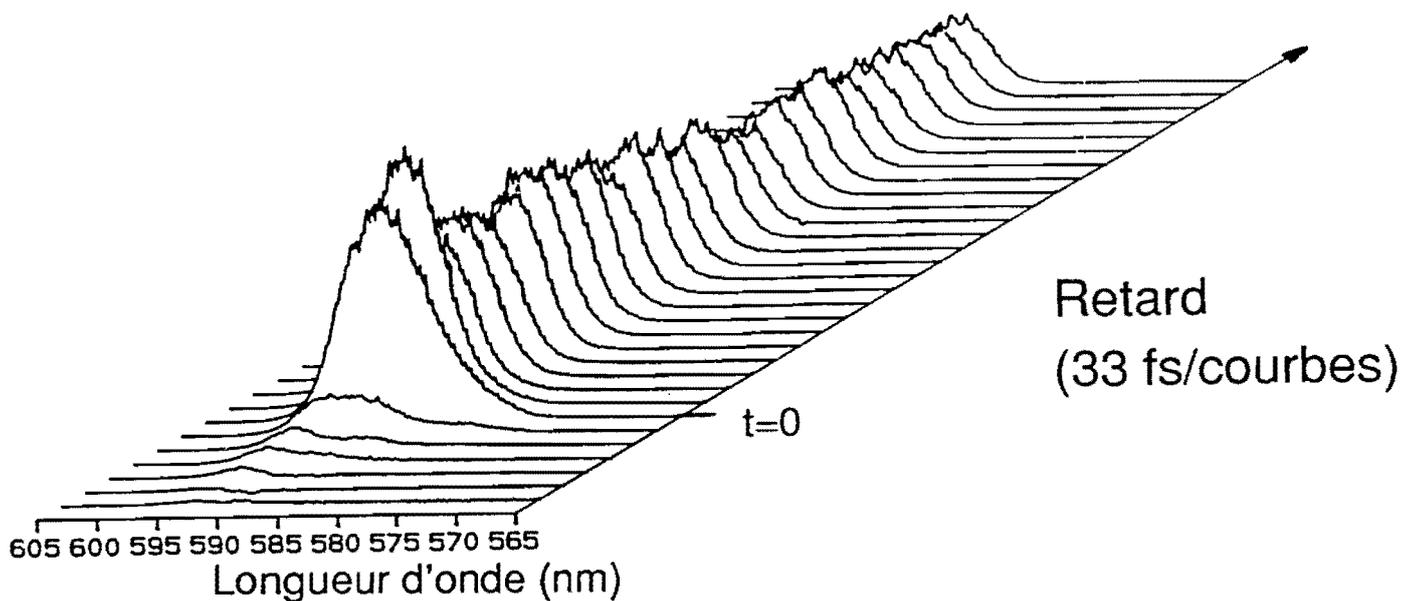


Figure 92 : Spectre de transmission relative du vert de malachite. Le retard entre chaque courbe est de 33 fs.

L'expérience présentée dans ce paragraphe nous a donc permis de déterminer un temps de saturation très court pour le vert de malachite. Elle prouve également qu'on dispose d'une source d'impulsions très courtes permettant de réaliser des expériences de spectroscopie résolue en temps avec une résolution temporelle de l'ordre de 30 fs. Néanmoins, le dispositif de génération de telles impulsions est très complexe et lourd à mettre en oeuvre.

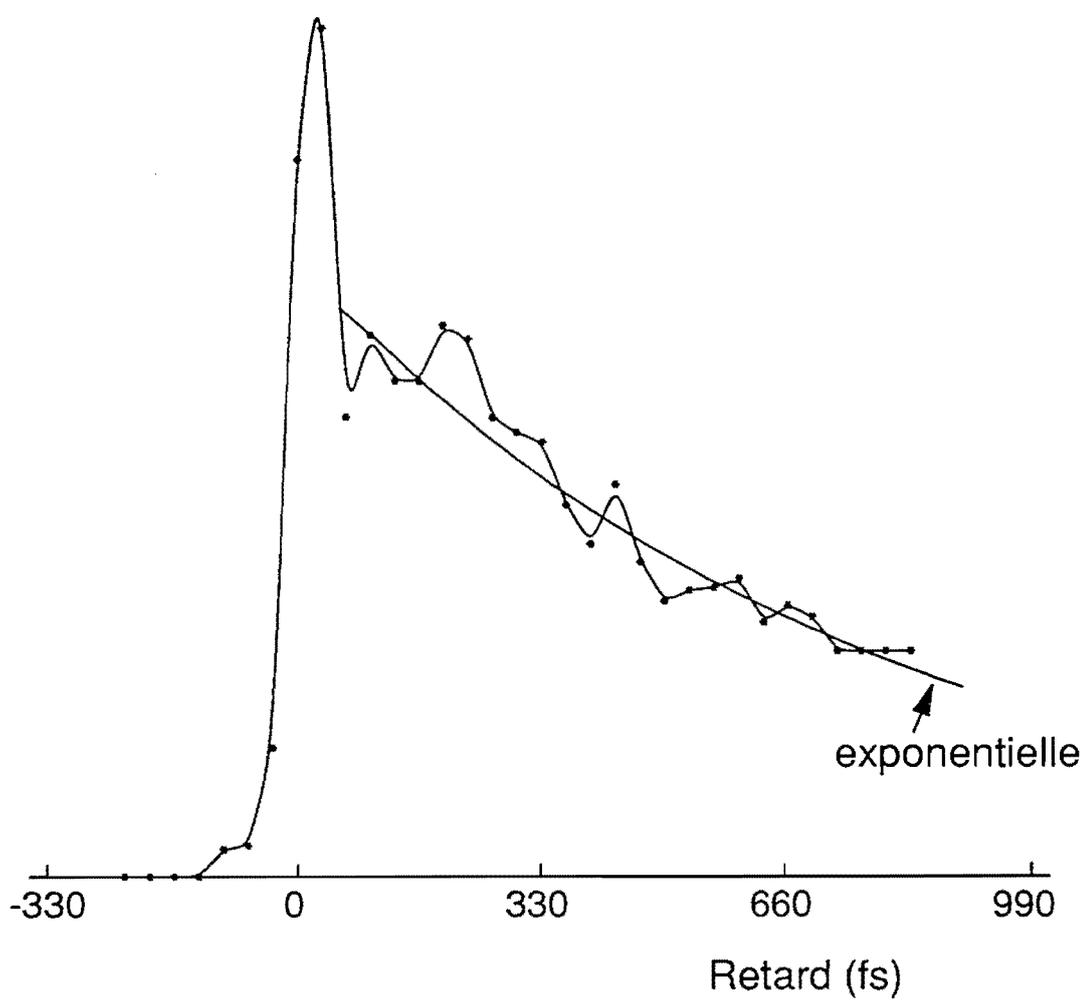


Figure 93: Cinétique d'absorption du vert de malachite à 590 nm.



## CONCLUSION



Le challenge que s'étaient fixés l'Institut d'Optique et la Société Photonetics a été atteint. Nous avons réalisé un laser à colorant femtoseconde à verrouillage de modes passif produisant des impulsions inférieures à 80 fs. Ce système est maintenant commercialisé et plusieurs exemplaires ont été vendus. Lors de l'analyse des performances de l'oscillateur, nous avons étudié l'influence du type de verre utilisé dans la ligne à retard dispersive et de la nature des traitements des miroirs de la cavité.

Jusqu'à maintenant, seul le couple de colorants Rh6G/DODCI avait été étudié dans des lasers à verrouillage de modes passif à dispersion contrôlée. La longueur d'onde des impulsions produites était donc limitée vers 620 nm. Nous avons étudié la possibilité de produire des impulsions courtes à d'autres longueurs d'onde directement avec l'oscillateur sans utiliser un système amplifié. Nous avons produit des impulsions inférieures à 60 fs vers 685 nm avec le couple de colorants SR 640/DQTCI. A cette occasion, nous avons isolé un mode de fonctionnement particulier du laser que nous avons analysé et modélisé en utilisant la théorie soliton.

D'autre part nous avons développé un oscillateur femtoseconde qui émet dans le proche infrarouge. Des impulsions inférieures à 50 fs ont été, pour la première fois au monde, produites par verrouillage de modes passif entre 775 et 800 nm. L'utilisation de telles impulsions ouvre plusieurs voies de recherche : d'une part la spectroscopie des semiconducteurs à structure multipuits quantiques (nous avons présenté des études de saturation d'absorption dans ces matériaux) et d'autre part, l'amplification de ces impulsions dans du saphir dopé au titane. En effet, la grande bande de fluorescence de ce matériau (700-1000 nm) combinée à une énergie de saturation élevée permettent d'envisager la production d'impulsions très courtes (< 100 fs) et très puissantes (puissance crête > 1 TW) dans l'infrarouge proche.

Nous avons également étudié la production d'impulsions ultracourtes (< 30 fs) et suffisamment puissantes pour permettre de réaliser des expériences de spectroscopie non linéaire avec une résolution temporelle accrue. Pour cela on élargit le spectre des impulsions par automodulation de phase dans une fibre optique. Nous avons dans un premier temps montré l'importance du profil temporel de l'impulsion se propageant dans la fibre monomode sur le profil du spectre obtenu en sortie. Pour augmenter l'énergie des impulsions, limitée par la fibre, nous avons développé un amplificateur multipassage qui augmente le rendement d'amplification. Pour résoudre le problème de l'amplification de spectres très larges nous avons été obligé d'utiliser un mélange de deux colorants : DCM et Rhodamine 610. A faible cadence (10 Hz) des impulsions de 20 fs d'énergie de l'ordre de 10  $\mu$ J ont été obtenues par compression dans une ligne à retard à dispersion négative. Utilisant ensuite un laser à vapeur de cuivre opérant à la cadence plus élevée de 11 kHz, nous avons produit des impulsions de 16 fs d'énergie égale à 0,6  $\mu$ J.

Ces impulsions ont ensuite été utilisées pour étudier la cinétique de la saturation de l'absorption dans un colorant organique : le vert de malachite. Nous avons ainsi pu observer des temps de réponse inférieurs à 30 fs.

En conclusion nous pensons que 6 ans après l'apparition dans les laboratoires des premiers oscillateurs femtosecondes en anneau à dispersion de vitesse de groupe contrôlée, ces sources commencent à devenir plus conventionnelles. Le niveau de fiabilité et de reproductibilité des performances est aujourd'hui tel que des chercheurs non spécialistes de ces sources peuvent les utiliser sans de réelles difficultés.

Toutefois, il reste encore des études à réaliser pour étendre les performances de ces lasers vers l'infrarouge pour des études spectroscopiques plus larges et en particulier dans les semi conducteurs.

Enfin, il n'est pas interdit de penser que dans l'avenir les sources d'impulsions femtosecondes utiliseront des matériaux solides (saphir dopé au titane, par exemple) où des diodes lasers. Il faudra alors adapter toutes les connaissances acquises sur les oscillateurs à colorants pour mettre ces nouvelles sources au point.

## BIBLIOGRAPHIE



- [1] B. Couillaud et A. Ducasse  
"Production d'impulsions picosecondes et subpicosecondes par lasers à colorant continus à modes bloqués"  
Rev. Phys. Appl. Tome 14, 331 (1979).
- [2] W.H. Lowdermilk  
"Technology of bandwidth limited ultrashort pulse generation"  
Dans Laser Handbook - Tome 3 - Editeur : M.L. Stick (North Holland, Amsterdam) 1979.
- [3] G.H.C. New  
"Pulse evolution in mode-locked quasi continuous lasers"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-10, 115 (1974).
- [4] H.A. Haus  
"Theory of mode locking with a slow saturable absorber"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-11, 736 (1975).
- [5] D. Kühlke, W. Rudolph et B. Wilhemi  
"Calculation of the colliding pulse mode locking in cw ring dye laser"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-19, 526, (1983).
- [6] M. Yoshisawa et T. Kobayashi  
"Experimental and theoretical studies on colliding pulse mode locking"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-20 797 (1984).
- [7] J. Etchepare, G. Grillon et A. Orzag  
"Third order autocorrelation study of amplified subpicosecond laser pulses"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-19, 775 (1983).
- [8] J.C. Diels, J.J. Fontaine, N. Jamasbiet et Ming Lai  
"Femto-nitpicker"  
Conference on Laser and Electro-Optic, Baltimore, (1987).
- [9] K. Nagamuna, K. Mogi et H. Yamada  
"Time direction determination of asymmetric ultrashort pulses from second harmonic generation autocorrelation signals"  
Appl. Phys. Lett. 54, 1201 (1989).
- [10] J.A. Valdmanis et R.L. Fork  
"Design consideration for a femtosecond pulse laser balancing self phase modulation, group velocity dispersion, saturable absorption and saturable gain"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-22, 112 (1986).
- [11] D.H. Auston  
"Picosecond non linear optics "  
Dans "Ultrashort Ligth Pulses", Editeur: S.L.Shapiro, Springer Verlag, New York (1977).
- [12] O.E. Martinez, R.L. Fork et J.P. Gordon  
"Theory of passively mode-locked lasers for the case of non linear complex-propagation coefficient"  
J. Opt. Soc. Am. B2, 750 (1985).

- [13] H.A. Haus  
"Theory of mode locking with a fast saturable absorber"  
J. Appl. Phys. 46, 3049 (1975).
- [14] G.A. Mourou et T. Sizer II  
"Generation of pulses shorter than 70 fs with a synchronously pumped cw dye laser"  
Opt. Comm., Vol. 41, 47 (1982).
- [15] W. Dietel, J.J. Fontaine et J.C. Diels  
"Intracavity pulse compression with glass : a new method of generating pulses shorter than 60 fs"  
Opt. Letters 8, 4, (1983).
- [16] R.S. Miranda, G.R. Jacobovitz, C.H. Brito-Cruz et M.A.F. Scarparo  
"Positive and negative chirping of laser pulses shorter than 100 fs in a saturable absorber"  
Opt. Comm. 11, 224 (1986).
- [17] F. Salin, P. Grangier, G. Roger et A. Brun  
"Observation of high order solitons directly produced by a femtosecond laser"  
Phys. Rev. Letters, Vol. 56, n° 11, 1132 (1986).
- [18] J.C. Diels, W. Dietel, J.J. Fontaine, W. Rudolph et B. Wilhemi  
"Analysis of a mode-locked ring laser : chirped-solitary pulse solutions"  
J. Opt. Soc. Am. B2, 680 (1985).
- [19] M.J. Timmermans et Mme Hennaut-Roland  
"Etude des constantes physiques de vingt composés organiques"  
J. Chimie Phys., Vol. 32, 501 (1935).
- [20] J.C.Mialocq  
Communication privée.
- [21] S. de Silvestri, P. Laporta et O. Svelto  
"The role of cavity dispersion in cw mode locked lasers"  
IEEE J. Quantum Electron. QE-20, 533 (1984).
- [22] M. Born et E. Wolf  
"Principles of Optics"  
New-York : Pergamon, 1970, p. 51-70.
- [23] M. Yamashita, K. Torizuka, T. Sato et M. Ishikawa  
"Cavity Mirror Dispersion Dependence of Pulse Duration Generated from a simple CPM Laser : An Experimental Study"  
Dans Ultrafast Phenomena V, Editeurs : G.R. Fleming and A.E. Siegman (1986).
- [24] F. Gires et P. Tournois  
"Interféromètre utilisable pour la compression d'impulsions modulées en fréquence"  
Compte Rend. Acad. Sci. 258, 3112 (1964).
- [25] J. Heppner et J. Kuhl  
"Intracavity chirp compensation in a colliding pulse mode-locked laser using thin film interferometers"  
Appl. Phys. Lett., Vol. 47, 454 (1985).

- [26] R.L. Fork, O.E. Martinez et J.P. Gordon  
"Negative dispersion using pairs of prisms"  
Opt. Letters, 9, 150 (1984).
- [27] E.B. Treacy  
"Optical pulse compression with diffraction gratings"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-5, 454 (1969).
- [28] P. Yeh  
"Autocorrelation of ultrashort optical pulses using polarization interferometry"  
Opt. Letters 8, 330 (1983).
- [29] K.A. Stankov  
"A novel method of measuring coherent ultrashort light pulses using diffraction by a grating"  
Opt. Quant. Electron. 17, 215 (1985).
- [30] B. Winitzer  
"Measurement of ultrashort laser pulses"  
Opt. Comm. 48, 225 (1983).
- [31] O.E. Martinez  
"Linear measurement of ultrashort light pulses by phase contrast optical sweep"  
J. Opt. Soc. Am. B2, 327 (1985).
- [32] B. Colombeau, C. Froehly et M. Vampouille  
"Autocorrelation of laser pulses by optical processing of Fabry-Pérot spectrograms"  
Appl. Opt. 19, 534, (1980).
- [33] J.C. Diels, J.J. Fontaine, I.C. Mc Michael et F. Simoni  
"Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy"  
Appl. Opt., Vol. 24, 1270 (1985).
- [34] J. Sperber et Z. Penzkofer  
"Pulse shaping determination of intracavity compressed picosecond pulses by two photon fluorescence analysis"  
Opt. Quantum Electron. 18, 145 (1986).
- [35] J.A. Giordmaine, P.M. Rentzepis, S.L. Shapiro et K.W. Wecht  
"Two photons excitation of fluorescence by picosecond light pulses "  
Appl. Phys. Lett. 11, 216 (1967).
- [36] M. Maier, W. Kaiser et J.A. Giordmaine  
Phys. Rev. Lett. 17, 1275 (1966).
- [37] H.P. Weber  
"Method for pulsewidth measurement of ultrashort light pulses generated by phase locked lasers using non linear optics "  
J. Appl. Phys. 38, 2231 (1967).
- [38] F. Salin  
"Etude et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde. Rôle des phénomènes solitons dans les lasers femtosecondes à dispersion contrôlée"  
Thèse de Doctorat en Sciences, Institut d'Optique, (1987).

- [39] A. Yariv  
"Quantum Electronics" 2ème Edition. Editeur : John Wiley and Sons.
- [40] A.M. Weiner  
"Effect of group velocity mismatch on the measurement of ultrashort optical pulses via second harmonic generation"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-19, 1276 (1983).
- [41] A.M. Weiner, J.G. Fujimoto et E.P. Ippen  
"Femtosecond time resolved reflectometry measurement of multiple layer dielectric mirrors"  
Opt. Letters 10, 71 (1985).
- [42] C.V. Shank et E.P. Ippen  
"Subpicosecond kilowatt pulses from a mode locked cw dye laser"  
Appl. Phys. Lett. 24, 373 (1974).
- [43] P.M.W. French et J.R. Taylor  
"The passive mode-locking of the continuous wave rhodamine B dye laser"  
Opt. Comm. 58, 53 (1986).
- [44] D.J. Bradley  
Dans "Ultrashort light pulses"  
Editeur: S.L. Shapiro, Springer-Verlag, New-York (1977).
- [45] R.L. Fork, B.I. Greene et C.V. Shank  
"Generation of optical pulses shorter than 0,1 psec by colliding pulse mode locking"  
Appl. Phys. Letters, 38, 671 (1981).
- [46] E. Garmire et A. Yariv  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-3, 222 (1967).
- [47] R.L. Fork  
"Optical frequency filter for ultrashort pulses"  
Opt. Letters, 11, 629 (1986)
- [48] R.L. Fork, C.V. Shank, R. Yen et C.A. Hirlimann  
"Femtosecond Optical Pulses"  
IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE-19, 500 (1983).
- [49] J.P. Chambaret  
Communication privée.
- [50] F. Salin, P. Grangier, P. Georges et A. Brun  
"Measurement of femtosecond laser cavity dispersion using soliton like behaviors"  
Soumis à Opt. Letters (nov 1989).
- [51] J.A. Valdmanis, R.L. Fork et J.P. Gordon  
"Generation of optical pulses as short as 27 fs directly from a laser balancing self phase modulation, group velocity dispersion, saturable gain and saturable absorption "  
Opt. Letters, 10, 131 (1985).
- [52] H.W. Kogelnik et T. Li  
"Laser beams and resonators"  
Appl. Opt., 5, 1550 (1966).

- [53] J. Chesnoy et L. Findi  
"Stabilization of a femtosecond dye laser synchronously pumped by a frequency doubled mode locked YAG laser"  
Opt. Letters 11, 635 (1986).
- [54] A. Migus, C.V. Shank, E.P. Ippen et R.L. Fork  
"Amplification of subpicosecond optical pulses : Theory and Experiment"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE 18, 101 (1982).
- [55] W.H. Knox, M.C. Downer, R.L. Fork et C.V. Shank  
"Amplified femtosecond optical pulse and continuum generation 5 kHz repetition rate"  
Opt. Letters 9, 552 (1984).
- [56] R.L. Fork, C.V. Shank, C. Hirlimann et R. Yen  
"Femtosecond white light continuum pulses"  
Opt. Letters 8, 1, (1983).
- [57] "Ultrashort Laser Pulses and Applications"  
Editeur : W. Kaiser, Springer Verlag, Vol. 60, (1988).
- [58] M.J. Rosker, F.W. Wise, C.L. Tang et A.J. Taylor  
"Femtosecond Relaxation Dynamics of Large Organic Molecules"  
Ultrafast phenomena V, Editeurs G.R. Fleming et A.E. Siegman, Springer Verlag (1986)  
p.461.
- [59] P.M.W. French, J.A.R. Williams et J.R. Taylor  
"Passively mode locked cw dye laser operating from 490 to 800 nm"  
Rev. Phys. Appl. 22, 1651 (1987).
- [60] Th. Forster  
"Transfer mechanisms of electronics excitation"  
Discussions, Faraday Soc, 27, 7 (1959).
- [61] S. Muto, C. Ito et H. Inaba  
"Continuously tunable energy transfer laser operation in four dye mixture systems"  
Electron. Comm. Japan, 66, 120 (1983).
- [62] P. Georges, F. Salin, G.Le Saux, G. Roger et A. Brun  
"58 fs pulse generation near 685 nm from a passively mode-locked dye laser"  
Opt. Comm. 69, 281 (1989).
- [63] P.M.W. French et J.R. Taylor  
"Passive mode-locking of an Energy Transfer Continuous Wave dye laser"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-22, 1162 (1986).
- [64] M.D. Dawson, T.F. Boggess, D.W. Garvey et A.L. Smirl  
"Femtosecond pulse generation in the red/deep red spectral region"  
IEEE, J. Quantum Electron. QE-23, 290 (1987).
- [65] F. Salin, P. Grangier, G. Roger et A. Brun  
"Experimental observation of high order solitons in a colliding pulse mode locked laser"  
Dans "Ultrafast Phenomena V" Editeurs : G.R. Fleming et A.E. Siegman  
(Springer-Verlag, Berlin 1986), p. 20.

- [66] L.F. Mollenauer, R.H. Stolen et J.P. Gordon  
"Experimental observation of picosecond narrowing and solitons in optical fibers"  
Phys. Rev. Lett. 45, 1095 (1980).
- [67] J.C. Diels, J. Menders et H. Sallaber  
"Generation of Coherent Pulses of 60 Optical Cycles Through Synchronisation of the Relaxation Oscillations of a Mode locked Dye Laser"  
Dans Picosecond Phenomena, Editeurs : R.M. Hochstarsser, W. Kaiser et C.V. Shank.  
Springer Verlag, (1980), p. 41.
- [68] J.C. Diels, W. Dietel, J.J. Fontaine, W. Rudolph et B. Wilhemi  
"Analysis of a mode locked ring laser : chirp-solitary-pulse solutions"  
J. Opt. Soc. Am. B2, 681 (1985).
- [69] F.W. Wise, I.A. Valmsley et C.L. Tang  
"Simultaneous formations of solitons and dispersive waves in a femtosecond ring dye laser"  
Opt. Letters, 13, 129 (1988).
- [70] F. Salin, P. Grangier, G. Roger et A. Brun  
"Experimental observation of nonsymmetrical  $N = 2$  solitons in a femtosecond laser".  
Phys. Rev. Lett., 60, 569 (1988).
- [71] W.L. Nighan Jr, T. Gong et P.M. Fauchet  
"Solitons and related periodic evolutions in a femtosecond ring dye laser"  
IEEE, J. Quantum Electron., à paraitre (Dec. 1989).
- [72] A. Barthélémy  
"Propagation d'impulsions dans les fibres optiques. Etude de régime soliton en présence de non linéarité de Kerr "  
Thèse de Doctorat es Sciences, Université de Limoges (1986).
- [73] V.E. Zakharov et A.B. Shabat  
"Exact theory of two dimensional self focusing and one dimensional self-modulation of waves in non linear media"  
Zh. Eksp. Theor. Fiz. 61, 118 (1971)  
(Soviet Physics JETP, 34, 62 (1972)).
- [74] H.A. Haus et M.N. Islam  
"Theory of the soliton laser"  
IEEE, J. Quantum Electron., 21, 1172 (1985).
- [75] P.M. French et J.R. Taylor  
"The passively mode-locked and dispersion compensated Rhodamine 110 dye laser"  
Opt. Comm. 61, 224, (1987).
- [76] H. Avramopoulos, P.M.W. French, J.A.R. Williams, C.H.C. New et J.R. Taylor  
"Experimental and theoretical studies of complex evolutions in a passively mode locked ring dye laser"  
IEEE J. Quantum Electron. 24, 1884 (1988).
- [77] F. Salin, P. Georges, G. Roger et A. Brun  
Résultats à publier.
- [78] D.S. Chemla et D.A.B. Miller  
"Room temperature excitonic non linear optical effects in semiconductor quantum well structures"  
J. Opt. Soc. Am. B, 2, 1155 (1985).

- [79] A.J. Taylor, D.J. Erskine et C.L. Tang  
"Ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in GaAs and related compounds"  
J.Opt.Soc.Am. B, 2, 663, (1985).
- [80] W.H. Knox  
"Generation and kilohertz-rate amplification of femtosecond optical pulses around 800 nm"  
J.Opt.Soc.Am. B, 4, 1771, (1987).
- [81] K. Smith, N. Langford, W. Sibbett et J.R. Taylor  
"Passive mode-locking of a continuous wave dye laser in the red, near infrared spectral region"  
Opt. Letters, 10, 559 (1985).
- [82] P.M.W. French, J.A.R. Williams et J.R. Taylor  
"Passive mode locking of a continuous wave energy transfer dye laser operating in the near infrared around 750 nm"  
Opt. Letters 12, 684, (1987).
- [83] E.G. Marason  
"Energy transfer dye mixture for Argon pumped dye laser operation in the 700 to 800 region"  
Opt. Comm.40, 212, (1982).
- [84] F. Clérot, Communication privée.
- [85] P. Georges, F. Salin, G. Le Saux et A. Brun  
"Generation of 36 fs pulses around 775 nm from a colliding pulse passively mode locked dye laser"  
Post deadline paper PD 29, Conference on Laser and Electro-Optic, Baltimore, Avril 1989.
- [86] P. Georges, F. Salin et A. Brun  
"Generation of 36 fs pulses around 775 nm from a colliding pulse passively mode locked dye laser"  
Opt. Letters 14, 940, (1989).
- [87] P. Georges, F. Salin, G. Roger et A. Brun  
"Passive mode-locking of a Rhodamine 700 dye laser in the near infrared around 800 nm"  
Soumis à Opt. Letters,(Oct 1989).
- [88] P. Georges, F. Salin, G. Le Saux, G. Roger et A. Brun  
"Generation of femtosecond pulses in the near infrared from a colliding pulse passively mode locked dye laser "  
Conférence invitée, Europeen Congres on Optic 3, LA HAYE (Mars 1990).
- [89] J.A.R. Williams, P.M.W. French et J.R. Taylor  
"Passive mode-locking of a cw energy transfer dye laser operating in the infrared near 800 nm"  
Opt. Letters 13, 81, (1988).
- [90] W.H. Knox  
"820 nm colliding pulse mode locked dye laser pumped by a cw Ti Sapphire Laser"  
Post deadline paper PD 31, Conference on Laser and Electro-Optic,  
Baltimore, Avril 1989.

- [91] S.W. Koch, N. Peyghambarian and H.M. Gibbs  
"Band-edge Nonlinearities in direct-gap semiconductors and their applications to optical bistability and optical computing"  
J.A.P. 63 (2), R1 (1988).
- [92] B. Fluegel, N. Peyghambarian, G. Olbright, M. Lindberg, S.W. Koch, M. Joffre, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti  
"Femtosecond studies of coherent transients in semiconductors"  
Phys. Rev. Lett., 30 Novembre 1987.
- [93] W.Z. Lin, R.W. Schoenlein, J.G. Fujimoto  
"Femtosecond absorption saturation studies of hot carriers in GaAs GaAlAs"  
IEEE, J. Quantum. Electron. 24 (2), 267, (1988)
- [94] D.S. Chemla, D.A.B. Miller  
"Room temperature excitonic non-linear optical effects in semiconductor quantum well structures"  
J.Opt.Soc.Am. B2 , 7, 1155 (1985).
- [95] F. Shimuzu  
Phys. Rev. Lett. 19, 1097 (1967).
- [96] E.P. Ippen, C.V. Shank et T.K. Gustafson  
"Self phase modulation of picosecond pulses in optical fibers"  
Appl. Phys. Lett. 24, 190 (1974).
- [97] D.N. Christodoulides et R.I. Joseph  
"Femtosecond solitary waves in optical fibers - beyond the slowly varying envelope approximation"  
Appl. Phys. Lett. 47, 2 (1985).
- [98] G.R. Boyer et M.A. Franco  
"Numerical and experimental comparison of spectral broadening of femtosecond optical asymmetric pulses in a monomode fiber"  
Opt. Letters, 14, 465 (1989).
- [99] W.J. Tomlinson, R.H. Stolen et C.V. Shank  
"Compression of optical pulses chirped by self phase modulation in fibers"  
J.Opt.Soc.Am. B1, 139 (1984).
- [100] J. Gollier  
"Etude de la compression d'impulsions par effets non linéaire dans une fibre"  
Rapport de Stage de fin d'Etude, Ecole Supérieure d'Optique (Juillet 1988).
- [101] E. Bourkoff, W. Zhao, R.I. Joseph et D. Christodoulides  
"Intensity dependant Spectra of pulses propagating in optical fibers"  
Opt. Comm. 62, 284 (1987).
- [102] W.H. Knox, R.L. Fork, M.C. Downer, R.H. Stolen et C.V. Shank  
"Optical pulse compression to 8 fs et 5 kHz repetition rate"  
Appl.Phys. Lett. 46, 1120 (1985).
- [103] 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. letters 12, 483 (1987).

- [104] C.V. Shank, P.C. Becker, H.L. Fragnito et R.L. Fork  
"Femtosecond Photon Echoes"  
dans *Ultrafast Phenomena VI*, Editeur T. Yajima et coll. Springer Verlag (1988), p. 344.
- [105] M.M. Martin, E. Breheret et Y.H. Meyer  
"Spectral dynamics in Dye Lasers : A new Picosecond Source"  
*Opt. Comm.* 56, 61 (1985).
- [106] P. Maine, D.Strickland, P.Bado, M.Pessot et G.Mourou  
"Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification"  
*IEEE, J. Quantum Electron., QE.* 24, 398, (1988).
- [107] A.A. Hnilo et O.E. Martinez  
"On the design of pulsed dye laser amplifiers"  
*IEEE, J. Quantum Electron. QE-23,* 593 (1987).
- [108] F. Salin et A. Brun  
"Dispersion compensation for femtosecond pulses using high index prisms"  
*J. Appl. Phys.* 61, 4736 (1987).
- [109] F. Salin, P. Georges, G. Roger et A. Brun  
"Single shot measurement of a 52 fs pulse"  
*Appl. Opt.* 26, 4528 (1987).
- [110] R.N. Gyuzalian, S.B. Sogomonian et Z. Gy. Horwath  
"Background-free measurement of time behaviour of an individual picosecond laser pulse"  
*Opt. Comm.,* 29, 239 (1979).
- [111] P. Georges, F. Salin, G. Le Saux, G. Roger et A. Brun  
"20 fs amplified pulses"  
*Opt. Comm.* 6, 297 (1988).
- [112] W.J. Tomlinson et W.H. Knox  
"Limits of fiber-grating optical pulse compression"  
*J.Opt.Soc.Am. B4,* 1404 (1987).
- [113] C.H. Brito-Cruz, P.C. Becker, R.L. Fork et C.V. Shank  
"Phase correction of femtosecond optical pulses using a combination of prisms and gratings"  
*Opt. Letters* 13, 123 (1988).
- [114] C. Froehly, B. Colombeau et M. Vampouille  
"Shaping and analysis of picosecond light pulses"  
Chapitre II de *Progress in Optics*, Vol. 20. Editeur : E. Wolf (North-Holland Publ.)  
p.65-150 (1983)
- [115] W.H. Knox, M.C. Downer, R.L. Fork et C.V. Shank  
"Amplified femtosecond optical pulses and continuum generation at 5 kHz repetition rate"  
*Opt. Letters* 9, 553 (1984).
- [116] J.C. Diels, J.J. Fontaine, I.C. Mc Michael et F. Simoni  
"Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy"  
*Appl. Opt.* 24, 1270 (1985).

- [117] P. Georges, J.P. Chambaret, F. Salin, G.R. Boyer, M.A. Franco, G. Le Saux, G. Roger et A. Brun  
"Amplification and compression of 16 fs spectrally broadened pulses to the microjoule level at 10 kHz"  
dans *Ultrafast Phenomena VI*, Editeurs T. Yajima et coll., Springer Verlag (1988), p. 15.
- [118] A. Mokhtari  
"Spectroscopie non linéaire résolue en temps à l'échelle femtoseconde dans des molécules de colorant"  
Thèse de Doctorat en Sciences Physiques, Université de Paris-Sud [1989].
- [119] E.P. Ippen, C.V. Shank et A. Bergman  
"Picosecond Recovery Dynamics of Malachite Green"  
*Chem. Phys. Lett.* 38, 611 (1976).
- [120] E.P. Ippen, C.V. Shank  
"Ultrashort light pulses", Chapitre III.  
Vol. 18, Editeur : S.L. Shapiro, Springer Verlag, (1977) p. 83.

**Nom:** GEORGES

**Prénom:** Patrick

**Sujet:** Etude et réalisation d'un laser à colorant femtoseconde fonctionnant à différentes longueurs d'onde. Compression et amplification d'impulsions ultrabrèves.

## RESUME

Ce mémoire présente l'étude et la réalisation d'un laser à colorant à verrouillage de modes passif produisant des impulsions de 100 femtosecondes ( $10^{-13}$  s). Dans une cavité en anneau contenant un milieu amplificateur (Rhodamine 6G) et un absorbant saturable (DODCI), un système de prismes permettant de contrôler la dispersion de vitesse de groupe réalise une mise en phase de toutes les fréquences du spectre des impulsions.

Nous avons ensuite étudié la possibilité de produire des impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'onde directement avec l'oscillateur. Des impulsions de 60 fs à 685 nm et inférieures à 50 fs entre 775 nm et 800 nm ont été produites pour la première fois par verrouillage de modes passif. Un régime de fonctionnement particulier du laser a été observé et analysé en termes de solitons optiques.

Les impulsions dans le proche infrarouge nous ont permis d'étudier la cinétique de la saturation de l'absorption dans des semi-conducteurs du type multipuits quantiques GaAs/AlGaAs.

Afin de réaliser des expériences de spectroscopie résolue dans le temps avec des impulsions encore plus brèves, nous avons étudié un système de compression d'impulsions suivi d'une amplification pour augmenter leur énergie. Des impulsions de 20 fs avec une énergie de 10 microjoules (puissance crête : 0,5 GW) ont été obtenues à faible cadence (10 Hz) et des impulsions de 16 fs avec une énergie de 0,6 microjoules ont été produites à haut taux de répétition (11 kHz) en utilisant un laser à vapeur de cuivre. Ces impulsions ont été utilisées pour étudier la cinétique de la saturation de l'absorption dans un colorant organique: le Vert de Malachite.

**Mots-clefs:** Laser, Impulsions brèves (Optique), Verrouillage de modes passif (Laser), Amplificateur optique, Spectrométrie absorption, Semiconducteur

