CHIAPITTRE 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 Δv donné par :

(1.1)
$$\Delta v = v_k - v_{k-1} = \frac{c}{2L}$$

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 v_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.

15

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

(1.2)

$$E_{k} = A \cos (2\pi v_{k} t + \phi_{k})$$

$$E_{k+1} = A \cos (2\pi v_{k+1} t + \phi_{k+1}).$$

La superposition E de ces deux champs s'écrit :

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

Les détecteurs utilisés en optique ayant un temps de réponse θ bien plus grand qu'une période du signal optique $1/v_k$ (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)
$$I(t) = A^2 \left[1 + \cos(2\pi(v_{k+1} - v_k)t + \phi_{k+1} - \phi_k) \right].$$



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

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

$$\frac{1}{v_{k+1}} = \frac{c}{2L}$$

Toutefois, nous avons fait précédemment l'hypothèse que la fréquence v_k et la phase ϕ_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 ϕ_k et ϕ_{k+1} varient indépendamment l'une de l'autre, le terme d'interférence :

$$\cos[2\pi (v_{k+1} - v_k) + \phi_{k+1} - \phi_k]$$

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

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

Si les phases ϕ_k des modes varient aléatoirement et indépendamment les unes des autres, les termes d'interférences entre modes donnent une valeur moyenne nulle sur le temps de réponse θ 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)
$$E(t) = \sum_{k=1}^{N} E_{k} \exp[i(\omega_{0} + 2\pi k \Delta \nu) t]$$



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 v_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)
$$E(t) = \int_{0}^{\infty} S(\omega) e^{i\omega t} d\omega$$

et donc :

(1.8)
$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{0}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt \quad .$$

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)
$$A(t) = \int_{0}^{\infty} B(\omega) e^{i\omega t} d\omega \text{ avec } A(t) = |E(t)|$$

(1.10)
$$B(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{0}^{\infty} A(t) e^{-i\omega t} dt \quad \text{avec} \quad B(\omega) = |S(\omega)|$$

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 :

 $\Delta v \Delta t \geq \kappa$

où Δt et Δv sont les largeurs à mi-hauteur respectivement de l'impulsion et de son spectre et κ une constante dépendant du profil exact de l'impulsion. Le tableau 1 présente différentes valeurs de κ pour des impulsions caractérisées par différents profils en amplitude [2].

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

Tableau 1 : Valeurs de κ 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 connait 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 Δv 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 Nd³⁺ 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 $\Delta v \approx 4.10^{14}$ 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 (Ti:Al₂O₃) présentant des bandes de fluorescence extrêmement larges (supérieures à 300 nm pour Ti:Al₂O₃) 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 influer 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 v_k dont l'amplitude est modulée à la fréquence f. Son spectre présente deux bandes latérales à $v_k \pm f$ (figure 5). Le couplage avec le mode voisin de fréquence $v_k + c/2L$ devient d'autant plus fort que la fréquence $v_k + f$ est voisine de v_{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.

C)

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'odre de $1/\Delta v$ avec Δv 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 μ 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.

I.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 décroit 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 IA 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 :

$$I(t) = a^{2} [1 + \cos (2\pi (v_{1} - v_{2}) t + \phi_{1} - \phi_{2})] .$$

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 σ_e du milieu amplificateur et d'absorption σ_a de l'absorbant saturable :

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

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

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 parait 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/cm². 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)
$$n(t) = n_0 + n_2 . I(t)$$

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)
$$A(t) = A_0 [exp(-a^2 t^2)] . exp(2i\pi v_0 t)$$

avec a = $\ln 2/\tau_0$ et τ_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)
$$\varphi(t) = \frac{2\pi v_o d}{c} (n_o + n_2 I(t))$$

avec d : épaisseur du milieu, et :

(1.18)
$$I(t) = |A(t)|^2 = A_o^2 \exp(-2a^2t^2)$$

Après passage dans le milieu, le champ électrique vaut :

(1.19)
$$A(t) = A_0 \exp(-a^2 t^2) \exp(2i\pi v_0 t) \exp(i \phi(t)).$$

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

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

avec :

$$\lambda_{o} = \frac{c}{v_{o}}$$

donc :

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

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

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

(1.23)
$$\Delta\omega(t) = \frac{2\pi d}{\lambda_o} n_2 A_o^2 \frac{d}{dt} \left[\exp\left(-2 a^2 t^2\right) \right]$$

donc :

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

ou bien :

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

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

٠



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 $B(\upsilon)$ 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 n₂ 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 n₂ négatifs.

WwwW

Longueur d'onde

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] :

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

Compte-tenu des diamètres des faisceaux laser dans le jet du milieu amplificateur (~ 25 μ m) et dans le jet d'absorbant saturable (~ 8 μ 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 n2 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 ($1/ch^2(t/t_0)$) 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.