
Mise en forme temporelle d'impulsions laser ultra-brèves

1.1 Généralités sur l'impulsion laser ultra-brève

Depuis leur apparition dans les années 60, les lasers impulsionnels sont devenus des outils indispensables dans de nombreux domaines de recherche en permettant notamment d'atteindre de grandes puissances instantanées. Les premiers lasers à impulsions courtes étaient basés sur un principe encore utilisé actuellement : le déclenchement de cavité (Q-switching). Ce principe est simple : les pertes de la cavité sont modulées temporellement de sorte à engendrer l'effet laser sur une courte échelle de temps. L'énergie injectée par pompage s'accumule donc dans la cavité tant que les pertes sont trop importantes. Périodiquement, ces pertes sont diminuées, soit activement (par effet électro-optique ou acousto-optique) soit passivement (absorbant saturable), de façon à permettre l'effet laser dans la cavité et donc à l'énergie de fuir à l'extérieur. L'énergie est donc concentrée temporellement sur une courte durée. Les premiers lasers déclenchés généraient des impulsions de l'ordre de quelques nanosecondes (10^{-9} s). Aujourd'hui il est courant de générer des impulsions ultracourtes de quelques dizaines de femtosecondes (10^{-15} s) par blocage de mode, certaines s'expriment même en attosecondes (10^{-18} s) [Agostini 2004]. Pour ces dernières, le problème consiste à élargir le spectre. Les principales techniques actuellement développées sont la génération de hautes harmoniques et la diffusion Raman.

En ce qui concerne l'interaction laser-matière dans le cas femtoseconde, elle diffère du cas continu. En effet, le processus d'absorption d'un photon se décompose en deux étapes. Tout d'abord ce photon est absorbé par les électrons de la bande de valence des atomes puis, dans une échelle de temps subnanoseconde, l'énergie est transmise à la structure sous forme de phonons. Dans le cas d'un champ électromagnétique continu, électrons et phonons entrent dans un régime stationnaire durant lequel les électrons sont toujours excités et l'énergie est couplée en continue aux phonons de la structure. Dans le cas femtoseconde, à l'image d'un circuit électrique, l'absorption se fait toujours en régime transitoire : l'énergie n'est apportée que sur une courte durée et se trouve très peu couplée aux phonons. La zone thermiquement affectée est donc considérablement limitée [Le Harzic 2002]. Toute une théorie doit être développée pour modéliser l'interaction laser-matière en régime ultra-bref qui dépend également du matériau considéré. Pour exemple, Colombier et al. Propose un schéma interprétatif dans le cas métallique [Colombier 2005]. L'interaction est alors approchée par un modèle à "deux températures" permettant de décrire l'évolution de la température des électrons et des phonons au cours du temps, d'obtenir les différentes phases induites par l'impulsion ultracourte dans le volume de matière, puis de simuler le taux d'ablation ou d'ionisation par exemple.

Grâce à leur courte durée, les lasers à impulsions ultracourtes ont permis le développement de nouveaux domaines de recherche. Pour exemple, la seule façon d'observer les processus ultra-brefs de la matière est d'utiliser ces très courtes impulsions. De plus, étant donnée leur grande puissance instantanée, ces impulsions favorisent les processus d'absorption multiphotonique et permettent par conséquent d'étudier les phénomènes non-linéaires ou d'engendrer un processus physico-chimique par effet non-linéaire.

Les impulsions lasers ultracourtes sont particulièrement pertinentes pour le micro-usinage [Mazur 2007]. La zone thermiquement affectée étant de petite dimension, la résolution atteignable par ces lasers est plus grande que celle des lasers à impulsions courtes. Dans le cas des matériaux absorbants (métaux, semi-conducteurs) l'intérêt porte donc essentiellement sur la microstructuration de haute qualité (à des fins tribologiques par exemple). En ce qui concerne les matériaux transparents (diélectriques), le laser femtoseconde est d'un intérêt plus spécifique pour la photoinscription de guides d'ondes ou de fonctions optiques plus complexes par modulation de l'indice de réfraction [Hirao 1998, Zoubir 2004]. Dans ce cas, l'impulsion provoque un changement d'état rapide du matériau diélectrique qui passe subitement de l'état solide à l'état liquide voire plasma, puis se re-solidifie tout aussi rapidement. La densité de matière est alors

modulée au voisinage du faisceau focalisé et une variation d'indice est introduite, notamment liée à la présence de contraintes dans le matériau. Une autre technique plus chimique consiste à faire précipiter un ion spécifique dopant un verre [Takeshima 2004]. L'impulsion ultracourte permet alors à l'atome ionisé de se stabiliser en comblant le déséquilibre électronique. Les électrons manquants sont alors pris à son environnement, induisant du même coup des défauts dans le verre et une modification de l'indice de réfraction.

Les impulsions lasers ultracourtes sont également appliquées à la microstructuration de surface pour la microfluidique [Bellouard 2004, Hnatovsky 2005] : le procédé est alors une ablation comme dans le cas d'un matériau absorbant. Les lasers impulsions ultracourts sont également utilisés à des fins chirurgicales [Cheng 2007]. Les processus d'absorption multiphotoniques et la faible diffusion thermique en font un outil chirurgical plus précis et moins agressif pour les tissus biologiques que les lasers continus ou les outils mécaniques. Ces lasers peuvent également être utilisés afin d'augmenter le débit en télécommunications [Wada 2004]. Dans ce genre d'application, ce sont les grandes puissances instantanées qui permettent par effet non linéaire une commutation ultrarapide. Ces techniques laissent ainsi la possibilité d'obtenir une télécommunication entièrement optique (commutateurs et démultiplexeurs optiques) : le débit est alors grandement augmenté (quelques Tb/s).

Mais les impulsions femtosecondes ne sont pas uniquement un outil de fabrication. Elles sont aussi un « outil » de diagnostic très intéressant. La caractérisation à l'aide de lasers femtosecondes est de nos jours possible (tomographie en milieu diffus [Zipfel 2003], spectroscopie [Rullière 1998]) : l'impulsion se propage en profondeur dans les tissus organiques puis est rétro-diffusée. L'étude de ce signal permet de déterminer les épaisseurs et les densités des différents tissus organiques traversés. Dans le domaine de la chimie, ces lasers ont aussi leur place en tant qu'analyseurs en temps réel de la matière [Zewail 1988]. Deux impulsions identiques décalées sont émises : la première appelée pompe excite les molécules, la seconde appelée sonde étudie leur état à l'instant t , écart temporel entre ces deux impulsions. En faisant varier cet écart temporel, il devient possible de déterminer l'évolution dans le temps des molécules subissant l'excitation de la pompe. Les impulsions ultracourtes peuvent aussi servir la chimie en jouant le rôle de catalyseur de réaction [Rabitz 2003] pour oxyder un métal par exemple [Gondal 2004]. L'impulsion laser est alors mise en forme temporellement de façon à apporter l'énergie aux molécules d'une façon organisée. La création ou destruction de liaisons inter-atomiques ciblées ne s'opérant pas naturellement devient alors possible. Enfin, de nouvelles

applications sont actuellement en plein essor telles que la photopolymérisation [Zhai 2001, Misawa 2006] par absorption multiphotonique ou encore la photodéposition par plasma [Ohtomo 2005] dans laquelle les atomes sont arrachés d'une cible par les impulsions et se déposent sur un substrat.

Ce chapitre est une introduction et un état de l'art succinct sur les impulsions ultra-brèves ainsi qu'aux moyens utilisés pour leur mise en forme temporelle. Il vise tout simplement à introduire les bases des impulsions lasers et de leur mise en forme temporelle nécessaires à la bonne compréhension du travail présenté.

a. Génération d'une impulsion laser ultra-brève

Cette partie vise à expliquer la génération d'une impulsion laser ultra-brève pour en déduire ses caractéristiques spectrales. Le spectre d'une telle source laser sera la connaissance de base nécessaire à la mise en forme temporelle de ces impulsions. Le lecteur pourra également se reporter à la référence [Hirlimann 1998] pour de plus amples informations sur la génération d'impulsions lasers ultra-brèves.

Une cavité laser est constituée d'un résonateur au sein duquel est placé un milieu amplificateur. Le résonateur, élément de base du dispositif, est généralement une cavité Fabry-Perot permettant de créer des interférences constructives pour certaines longueurs d'ondes. Pour qu'un effet laser puisse s'établir entre les deux miroirs de celle-ci, la longueur de la cavité doit accommoder un nombre demi-entier de longueur d'onde générées par émission spontanée. On définit le temps caractéristique T de la cavité optique comme étant :

$$T = \frac{2L}{c} \quad (1.1)$$

où L est la longueur de la cavité et c la vitesse de la lumière dans le vide.

Deux éléments vont donc contribuer à la réponse spectrale d'un tel résonateur. Tout d'abord la cavité Fabry Perot permet à différents modes longitudinaux d'exister dans le résonateur. Ces modes sont d'autant plus nombreux que la cavité est longue et ont des fréquences sensiblement différentes (fig. 1.1a). L'écart spectral $\delta\nu$ entre ces différents modes est simplement inversement proportionnel au temps caractéristique T de la cavité, soit $\delta\nu = \frac{c}{2L}$. Le deuxième élément qui va

intervenir sur le spectre de la cavité laser est le milieu actif : il permet une amplification des composantes sur une certaine bande spectrale par le biais d'une émission stimulée. Il n'y a amplification que lorsque le gain introduit par le milieu actif est supérieur aux pertes introduites par les optiques. Une allure de spectre laser est donnée sur la figure 1.1b.

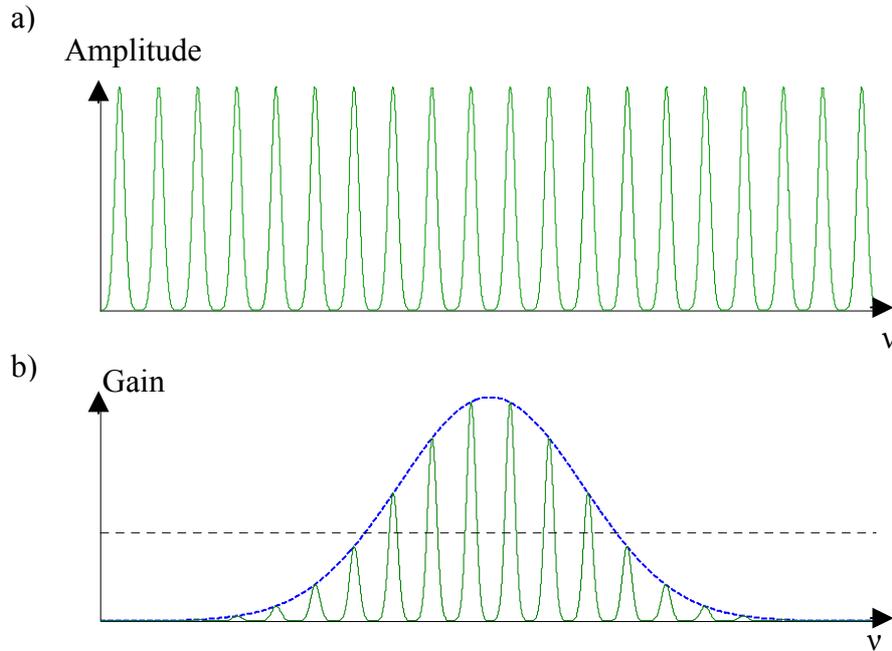


Figure 1.1 : a) réponse spectrale de la cavité Fabry-Pérot et b) spectre en sortie du milieu amplificateur. Le seuil de pertes est indiqué en tirets.

En régime continu, l'amplification de la cavité est quasiment linéaire et cohérente de sorte que l'onde électromagnétique qui la traverse ne subit pas de déformation temporelle. En régime stationnaire, le gain et les pertes se contrebalancent. Le champ électromagnétique peut être vu spectralement comme l'enveloppe de gain discrétisée suivant un pas équivalant à la résolution $\delta\nu$ caractéristique de la cavité optique. Le champ électromagnétique $E(\nu)$ en sortie du laser peut alors s'écrire comme suit :

$$E(\nu) \propto E_0(\nu) \sum_{n=0}^{+\infty} \delta\left(\nu - \frac{n}{T}\right) \quad (1.2)$$

Le spectre est donc discrétisé suivant une période $\delta\nu = \frac{c}{2L}$ généralement très faible devant la fréquence centrale du laser. Les pics de Dirac caractérisent les différents modes longitudinaux du

laser. En réalité, ces pics ont une certaine largeur qui reflète la finesse du Fabry-Perot (fig. 1.1). De plus, la série de pics est limitée par l'enveloppe de la courbe correspondant à un gain supérieur aux pertes.

Considérons maintenant deux de ces modes adjacents. Le champ électrique résultant de la superposition de ces deux modes s'écrit :

$$e(t) = E_1 \exp(j(2\pi\nu_1 t + \Phi_1)) + E_2 \exp(j(2\pi\nu_2 t + \Phi_2)) \quad (1.3)$$

En posant $\Delta\Phi = \Phi_2 - \Phi_1$, l'intensité résultante sera :

$$I(t) = (E_1)^2 + (E_2)^2 + 2E_1 \cdot E_2 \cdot \cos(2\pi\delta\nu t + \Delta\Phi) \quad (1.4)$$

Un phénomène d'interférences entre les modes de la cavité laser produit alors un battement de l'intensité. On distingue deux cas : si les deux modes ne sont pas corrélés, alors $\Delta\Phi$ varie aléatoirement au cours du temps et l'intensité fluctue autour d'une valeur moyenne (cas des lasers continus). Le second cas est observé si $\Delta\Phi$ est constant en fonction du temps : l'intensité varie périodiquement (lasers impulsionnels). La phase spectrale de la source est alors constante sur tout le spectre de l'impulsion.

Le simple fait de faire battre entre eux deux modes d'un laser, en maintenant constante leur relation de phase, permet donc de distribuer périodiquement l'énergie lumineuse dans le temps. Si on généralise le cas à la superposition de N modes, on trouve que le champ électrique prend la forme :

$$e(t) = \sum_{n=0}^{N-1} \exp[2\pi j(\nu_0 + n\delta\nu)t] = \frac{1 - \exp(2\pi j N \delta\nu t)}{1 - \exp(2\pi j \delta\nu t)} \exp(2\pi j \nu_0 t) \quad (1.5)$$

et l'intensité totale devient :

$$I(t) \propto \frac{\sin^2(\pi N \delta\nu t)}{\sin^2(\pi \delta\nu t)} \quad (1.6)$$

On constate que plus le nombre de modes présents dans la cavité est grand et plus la largeur de l'impulsion laser diminue tendant même vers une distribution de Dirac. La forme des impulsions est approchée par une cosécante hyperbolique ou plus fréquemment par une gaussienne.

D'un point de vue expérimental, les lasers femtosecondes soulèvent plusieurs problèmes. Tout d'abord, dans un laser continu, un atome n'amplifie qu'un mode de la cavité à la fois, choisi

aléatoirement, causant ainsi des fluctuations dans l'intensité et la phase relative des différents modes. Pour obtenir des impulsions de très courte durée, il faut faire appel à la méthode dite de synchronisation de modes. Pour ce faire, il suffit de s'assurer que les pertes de la cavité laser sont faibles uniquement lorsque ces différents modes sont en phase : ils sont alors amplifiés de façon organisée. Il existe différentes méthodes de blocage de mode basées sur un effet non-linéaire soit actif (modulateur acousto-optique) soit passif (absorbant saturable). Une des méthodes utilisées actuellement est le blocage de mode passif par collision d'impulsions (Colliding Pulse Modelocking). Elle consiste à injecter deux impulsions voyageant en sens contraire dans la cavité. Un absorbant saturable [Fork 1981] est inséré sur leur chemin de sorte que la transmission de ce dernier soit maximale lorsque les deux impulsions arrivent simultanément sur l'absorbant : les modes sont donc bloqués temporellement en phase. Dans le cas du laser Titane:Saphir, les modes sont auto-bloqués de par les propriétés du milieu amplificateur. Pour de plus amples informations sur les méthodes de blocage de mode, le lecteur pourra se reporter à la référence [Ducasse 1998].

Le deuxième problème posé réside dans la façon d'augmenter l'énergie de l'impulsion. En effet, sur de si courtes durées même une faible énergie engendre une puissance instantanée colossale. La résistance du milieu amplificateur au flux limite donc l'énergie de l'impulsion. La solution est trouvée au début des années 80 par G. Mourou et S. Strickland [Mourou 1985]. Il suffit d'étirer l'impulsion avant chaque amplification puis de la recompresser. Les puissances développées dans le milieu amplificateur peuvent ainsi être diminuées considérablement. Aujourd'hui, les lasers femtosecondes peuvent atteindre des fluences de 10^{21} W/cm² en sortie d'amplificateur.

Nous venons donc de définir les deux quantités caractéristiques d'une impulsion laser femtoseconde que sont sa phase et son amplitude. Si la chaîne laser est parfaitement réglée, la phase spectrale est constante et l'intensité temporelle vérifie l'expression (1.6). Cependant par soucis de simplification, celle-ci est souvent approchée par une gaussienne : $I(t) = e^{-\frac{t^2}{\Delta t^2}}$. Comme nous le verrons plus tard, il est indispensable de bien connaître les caractéristiques de cette impulsion à la sortie du laser afin de faire de la mise en forme temporelle. Pour l'instant nous allons faire un petit rappel sur les propriétés des impulsions électromagnétiques.

b. Propriétés des impulsions électromagnétiques

Comme dans le cas d'une onde plane électromagnétique, le champ électrique d'une impulsion femtoseconde est une fonction à valeurs réelles dépendant du temps et solution des équations de Maxwell. Il s'exprime mathématiquement sous la forme d'une enveloppe qui donne la forme temporelle de l'impulsion modulée par un champ oscillant.

Nous venons de voir dans la partie précédente la méthode utilisée pour générer des impulsions lasers. Découlant de celle-ci, le champ électrique de l'impulsion peut s'écrire de deux façons duales l'une de l'autre dans le domaine temporel et dans le domaine spectral (1.2) liées par la transformée de Fourier :

$$\tilde{e}(t) = \text{TF}^{-1}[\tilde{E}(v)] = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(v) \cdot \exp(2\pi jvt) \cdot dv \quad (1.7) \quad \text{dans le domaine temporel}$$

ou encore

$$\tilde{E}(v) = \text{TF}[\tilde{e}(t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{e}(t) \exp(-2\pi jvt) \cdot dt \quad (1.8) \quad \text{dans le domaine spectral}$$

Et comme dans toute paire de quantités liées par une relation de Fourier, l'inégalité de Schwartz doit être respectée. Cette relation d'incertitude temps-énergie, également appelée relation d'Heisenberg, prend habituellement la forme :

$$\Delta t \Delta v \geq \text{Cste} \quad (1.9)$$

où Δt est la durée à mi-hauteur, Δv la largeur spectrale à mi-hauteur et Cste une constante dépendant de la forme de l'impulsion (0,441 pour une gaussienne et 0,315 pour une sécante hyperbolique). Cette relation peut également s'écrire dans le domaine des longueurs d'onde pour une impulsion laser femtoseconde de profil gaussien centrée sur une longueur d'onde λ_0 de 800 nm par :

$$\Delta t \Delta \lambda_{\text{pulse}} \approx 941 \text{ nm} \cdot \text{fs} \quad (1.10)$$

où $\Delta \lambda_{\text{pulse}}$ est la largeur spectrale à mi-hauteur en intensité de l'impulsion femtoseconde gaussienne incidente.

Dans le cas des lasers femtosecondes, la largeur spectrale de l'impulsion est grande et les effets de dispersion ne peuvent être considérés comme constants sur toute la plage des longueurs

d'ondes du spectre. La phase spectrale de cette impulsion est donc constante si elle n'a traversé aucun milieu à forte dispersion. Par conséquent, sa phase temporelle varie linéairement avec le temps. Il est alors possible d'approcher son champ oscillant par une sinusoïde de fréquence égale à la fréquence centrale ν_0 du spectre. On pourra donc exprimer le champ électrique de cette onde sous la forme suivante :

$$e(t) = f(t) \cos(2\pi\nu_0 t) \quad (1.11)$$

où $f(t)$ représente l'enveloppe temporelle de l'impulsion et $\nu_0 = \frac{c}{\lambda_0}$ la fréquence centrale de son spectre.

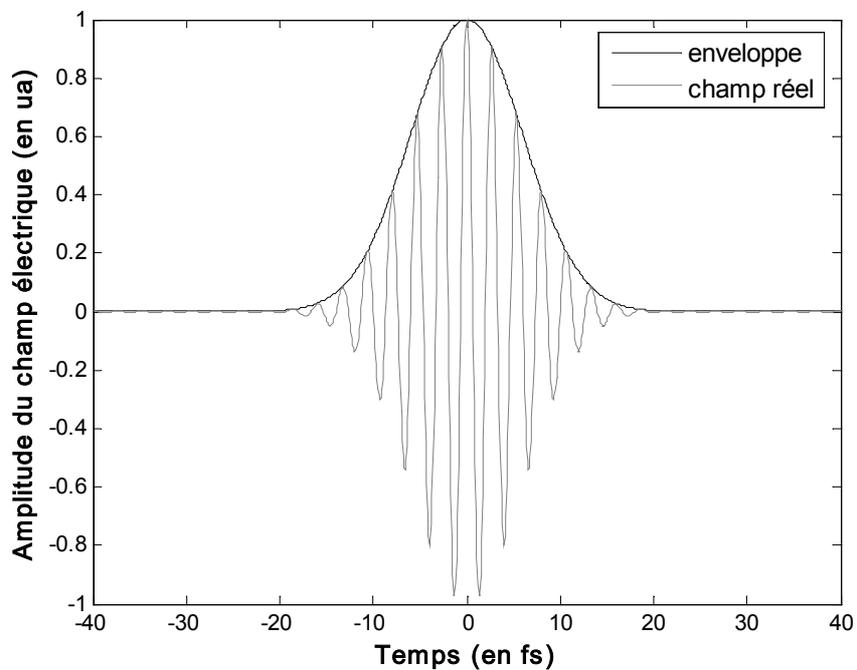


Figure 1.2 : exemple de champ électrique réel à enveloppe gaussienne.

La figure 1.2 montre le champ électrique d'une onde monochromatique d'enveloppe gaussienne de 10 fs de durée à mi-hauteur et de longueur d'onde 800 nm. Le spectre de cette onde est donné par la transformée de Fourier du champ électrique (1.11) :

$$\begin{aligned}
 \tilde{E}(\nu) &= \int_{-\infty}^{+\infty} e(t) \exp(-j2\pi\nu t) \cdot dt = \text{TF}[e(t)] \\
 \Leftrightarrow \tilde{E}(\nu) &= \text{TF}[f(t)] * \text{TF}[\cos(2\pi\nu_0 t)] \\
 \Rightarrow \tilde{E}(\nu) &\propto \tilde{F}(\nu) * (\delta(\nu - \nu_0) + \delta(\nu + \nu_0)) \\
 \Rightarrow \tilde{E}(\nu) &\propto \tilde{F}(\nu - \nu_0) + \tilde{F}(\nu + \nu_0)
 \end{aligned} \tag{1.12}$$

où le symbole * représente l'opération mathématique de convolution. Le spectre obtenu est donc la transformée de Fourier du signal enveloppe translatée des quantités $+\nu_0$ et $-\nu_0$. Il est donc suffisant de le connaître pour des valeurs positives de fréquence. Définir le champ électrique par une notation complexe devient alors naturel et simplificateur :

$$\tilde{e}(t) = f(t) \cdot \exp(2\pi j\nu_0 t) \Leftrightarrow \tilde{E}(\nu) = \tilde{F}(\nu - \nu_0) \tag{1.13}$$

La densité de puissance (ou intensité) est alors définie à partir du produit du champ électrique complexe par son conjugué, soit :

$$I(t) \propto \tilde{e}(t) \cdot \tilde{e}^*(t) = |\tilde{e}(t)|^2 = f(t)^2 \tag{1.14}$$

L'intensité est donc proportionnelle au carré de l'enveloppe du champ électrique de l'impulsion. Ce champ peut alors être caractérisé à partir de deux grandeurs physiques mesurables que sont son intensité (caractérisant l'enveloppe de l'impulsion) et sa phase (caractérisant la fréquence de la porteuse et mesurable à partir d'une référence) :

$$\tilde{e}(t) = \sqrt{i(t)} \cdot \exp(-j\varphi(t)) \Leftrightarrow \tilde{E}(\nu) = \sqrt{I(\nu)} \cdot \exp(-j\Phi(\nu)) \tag{1.15}$$

domaine temporel

domaine spectral

Nous venons donc d'introduire le formalisme des impulsions électromagnétiques ainsi que leurs propriétés mathématiques. La partie suivante traite de l'effet de la dispersion des matériaux traversés sur cette impulsion, soit encore de l'influence d'une modulation de phase spectrale sur le profil temporel.

c. Impulsion laser ultra-brève et dispersion

Lors de son évolution dans un dispositif expérimental, une onde électromagnétique traverse différents éléments optiques dont la réponse varie suivant la longueur d'onde. Ce phénomène est le plus souvent dû à la nature du matériau traversé dont l'indice de réfraction dépend de la longueur d'onde : il y a alors un effet de dispersion qui fait que les ondes monochromatiques se propagent à des vitesses différentes dans le milieu. Cependant, si le spectre de l'onde est suffisamment étroit (impulsions nanosecondes), ce phénomène peut être négligé pour de faibles épaisseurs traversées. En revanche, les impulsions lasers femtosecondes ont des spectres relativement larges (quelques dizaines de nanomètres) qui obligent à tenir compte de la dispersion des matériaux. Par exemple, si toutes les longueurs d'onde qui composent l'impulsion femtoseconde arrivent ensemble sur une lame de verre, elles en ressortent légèrement décalées : l'impulsion subit un étirement de son profil temporel comme le montre le schéma de la figure 1.3.

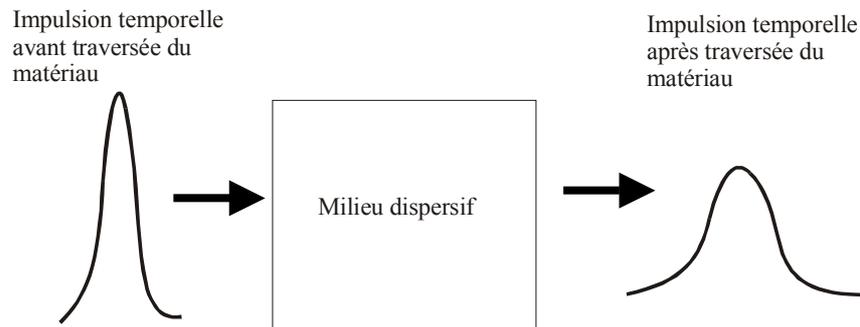


Figure 1.3 : étirement du profil temporel par la dispersion.

En fait, les composantes spectrales vont voir des indices de réfraction différents. Ceci va conduire à des temps de propagation différents pour chacune des composantes spectrales. Ce décalage temporel peut aussi s'exprimer en terme de déphasage spectral [Chériaux 1997] que l'on peut écrire sous forme d'un développement en série de Taylor au voisinage de la fréquence centrale de l'impulsion :

$$\phi(\nu) = \phi_0 + \left(\frac{d\phi}{d\nu}\right)_{\nu_0} (\nu - \nu_0) + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2\phi}{d\nu^2}\right)_{\nu_0} (\nu - \nu_0)^2 + \frac{1}{6} \left(\frac{d^3\phi}{d\nu^3}\right)_{\nu_0} (\nu - \nu_0)^3 + \dots \quad (1.16)$$

Le retard est alors donné par la relation :

$$T(\nu) = \frac{d\phi}{d\nu} = \phi^{(1)} + \phi^{(2)}(\nu - \nu_0) + \frac{1}{2}\phi^{(3)}(\nu - \nu_0)^2 + \dots \quad (1.17)$$

où $\phi^{(n)}$ est la valeur de la dérivée $n^{\text{ième}}$ de la phase spectrale par rapport à la fréquence en $\nu = \nu_0$. Ces notions sur la dispersion sont très utiles pour la réalisation d'une mise en forme temporelle des impulsions lasers. En effet, nous pouvons constater à partir de cette expression (1.17) qu'une modification de la phase spectrale de l'impulsion va provoquer une déformation dans le domaine temporel. Ce phénomène se traduit mathématiquement par les propriétés de la transformée de Fourier. Ainsi, si l'ajout d'un terme constant ϕ_0 dans la phase n'a aucune influence sur le retard des différentes composantes spectrales, il n'en va pas de même pour d'autres ordres :

- une phase linéaire produit un retard constant pour toutes les composantes donc une translation de l'impulsion dans le domaine temporel,
- une phase d'ordre deux implique un retard $\phi^{(2)} \cdot (\nu - \nu_0)$ appelé dispersion de vitesse de groupe se traduisant par un élargissement de l'impulsion dans le domaine temporel,
- une dispersion d'ordre trois rend l'impulsion dissymétrique en rejetant les fréquences proches de la fréquence centrale sur le front avant ou arrière.

En résumé, les termes d'ordres pairs ont un effet symétrique sur la forme temporelle alors que les termes d'ordres impairs ont un effet dissymétrique.

Cette partie introductive laisse penser qu'il est possible de modifier le profil temporel d'une impulsion laser femtoseconde en modifiant uniquement sa phase spectrale. Cette technique est actuellement courante [Wiener 2000]. Le déphasage est alors réalisé non pas par dispersion de matériaux, mais par des modulateurs de phase purs résolus chromatiquement. Il est à noter aussi l'influence de ce décalage temporel des longueurs d'onde sur l'impulsion. En effet, la dispersion engendre une modulation de fréquence dans le champ électrique qui peut modifier la phase spectrale de l'impulsion ultracourte, donc son profil temporel dans les cas extrêmes (forte dispersion du milieu). Analysons de plus près les techniques actuelles de mise en forme dans le domaine temporel.

1.2 La mise en forme temporelle : "Pulse Shaping"

La mise en forme temporelle ou "pulse shaping" en anglais est l'ensemble des techniques visant à modifier l'intensité d'impulsions ultracourtes dans l'espace temporel. Le principe repose sur les caractéristiques des impulsions lasers femtosecondes rappelées dans les paragraphes précédents. Ainsi, la modulation temporelle sera effectuée par le biais d'une modulation spectrale. Généralement une modulation de phase pure est préférée à une modulation d'amplitude afin de conserver la totalité de l'énergie de l'impulsion. Des techniques simples existent depuis longtemps pour la compression et l'étirement d'impulsions lasers femtosecondes. Ces opérations de base ont avant tout été développées pour palier le problème de haute puissance lors de l'amplification. Mais l'intérêt s'est très vite porté sur des profils d'impulsions autres que gaussiens nécessitant par conséquent leur mise en forme temporelle. Très rapidement la technique basée sur la ligne à dispersion nulle cumulée à l'utilisation de modulateurs spatiaux de lumière est devenue la référence [Weiner 2000]. L'ensemble de ses méthodes est présenté de façon succincte dans cette partie.

a. Opérations de base : compression et étirement

Le principe des étireurs-compresseurs consiste à créer des différences de trajet optique entre les différentes longueurs d'ondes [Treacy 1969]. La base du dispositif est une paire de réseaux de diffraction. Un rayon qui arrive sur le réseau avec un angle θ_i est réfléchi suivant la loi des réseaux en réflexion dans une direction θ_d qui dépend de la longueur d'onde [Loewen 1997] :

$$\sin \theta_d + \sin \theta_i = -m \frac{\lambda}{\Lambda} \quad (1.18)$$

où θ_i et θ_d sont respectivement les angles d'incidence et d'émergence, λ est la longueur d'onde, Λ est le pas du réseau et m est l'ordre de diffraction. Grâce à la loi du chemin inverse de la lumière, si le rayon éclaire le réseau avec un angle θ_d , il sera « renvoyé » suivant l'angle θ_i . L'un des montages optiques qui permettent de mettre en oeuvre cette propriété pour compresser une impulsion est donné sur la figure 1.4.

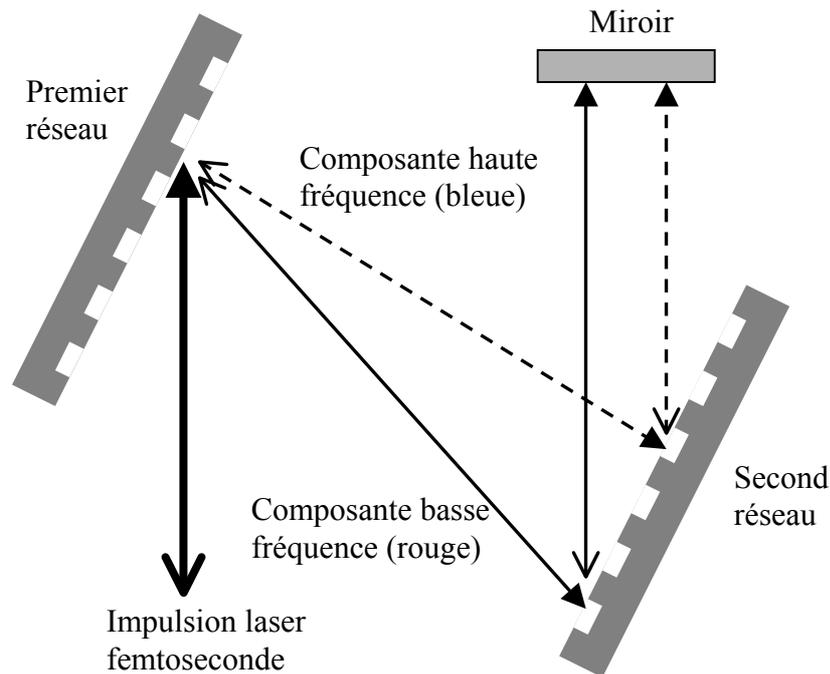


Figure 1.4 : schéma d'un compresseur à paire de réseaux.

Le système est constitué de deux réseaux identiques et parallèles. L'impulsion femtoseconde arrive sur un premier réseau. Elle est ainsi angulairement dispersée suivant les longueurs d'ondes qui composent son spectre. Sur la figure 1.4 sont représentées les deux longueurs d'ondes extrêmes présentes dans l'impulsion que l'on appellera composante à basse fréquence "rouge" et composante à haute fréquence "bleue". La composante à haute fréquence est déviée par le premier réseau avec un certain angle. Après une réflexion sur le second réseau le faisceau ressort parallèle au faisceau incident d'après le principe du réseau évoqué plus haut (1.18). Pour la composante à basse fréquence, le schéma est le même. Seul change l'angle de diffraction par le premier réseau, plus grand, et donc la distance parcourue dans le système par les différentes longueurs d'ondes.

Dans le plan du miroir, les longueurs d'ondes sont spatialement étalées. Les rayons monochromatiques sont alors réinjectés dans le système par le miroir de sorte qu'ils réempruntent le même chemin qu'à l'aller. Ainsi, les grandes longueurs d'ondes parcourent des chemins optiques plus grands que les petites longueurs d'ondes induisant un retard temporel différent pour chacune d'elles. Deux réseaux de diffraction identiques et parallèles introduisent

donc une modulation de phase dans le spectre de l'impulsion. Cette phase peut alors être décomposée en série de Taylor comme dans la partie précédente relative à la dispersion. On constate qu'un compresseur produit une dérivée seconde de phase ou vitesse de groupe de sens opposé à celle induite par la dispersion des matériaux. Par conséquent, il est possible de compenser les élargissements temporels introduits par la propagation de l'impulsion. En sortie, les longueurs d'ondes sont toutes regroupées dans l'espace et rapprochées temporellement. L'énergie se concentre encore plus dans le temps que dans l'impulsion initiale : la compression est réalisée.

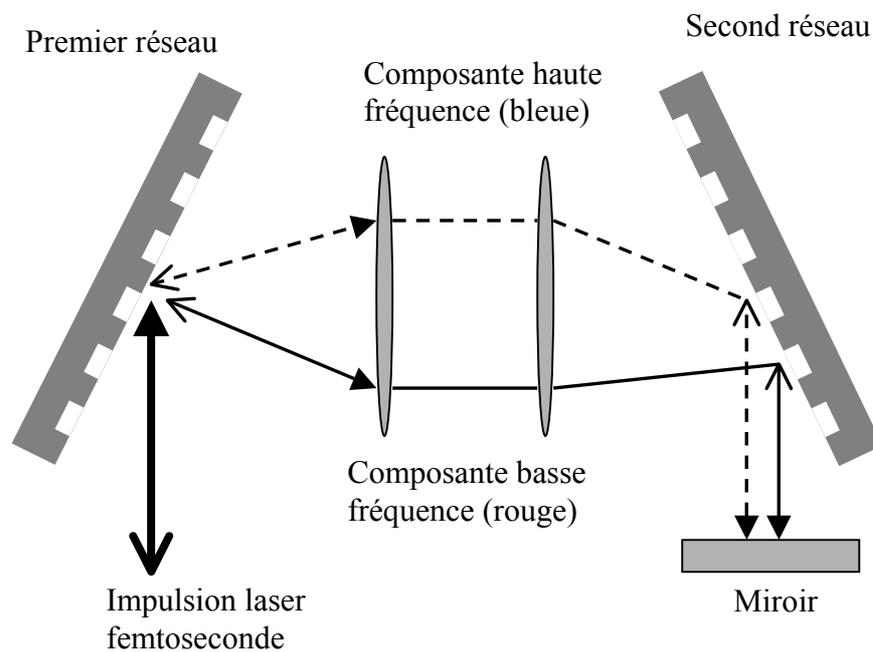


Figure 1.5 : schéma d'un étireur à réseaux.

Pour l'étirement d'impulsion, le principe reste le même [Pessot 1987]. La différence réside dans le fait qu'il faut que la composante à basse fréquence parcoure un trajet plus court que la composante à haute fréquence à l'intérieur du système afin d'accentuer le retard. L'astuce consiste à insérer un sous-système optique de grandissement -1 (ici, il s'agit de deux lentilles mais les systèmes actuels utilisent des miroirs). Ainsi, le chemin parcouru par les grandes longueurs d'ondes est plus court que celui parcouru par les petites comme l'indique le schéma de la figure 1.5. Le retard temporel est alors opposé à celui du compresseur : une vitesse de groupe de même sens que celle induite par la dispersion des matériaux est introduite produisant un étirement de l'impulsion initiale.

Nous venons donc de voir les deux opérations de base de mise en forme temporelle d'impulsions que sont la compression et l'étirement temporel. En ajustant la distance et l'angle entre les deux réseaux en fonction des longueurs d'ondes présentes dans le spectre, il est possible d'étirer ou de comprimer une impulsion d'un facteur 1000. Cependant des profils plus complexes qu'une simple impulsion gaussienne sont parfois utiles pour certaines applications. La partie suivante rappelle les bases de filtrage linéaire nécessaires à la mise en forme temporelle d'impulsions lasers femtosecondes.

b. Rappels sur le filtrage linéaire

L'objectif à atteindre est donc de mettre en forme une impulsion laser. La première idée qui vient à l'esprit est de tailler cette impulsion directement dans le domaine temporel. Cependant, à de telles échelles de temps, les modulateurs de lumière sont trop lents. Les techniques actuelles sont donc basées sur le fait que ces impulsions sont modélisées par la transformée de Fourier. Ainsi, modifier le spectre d'une impulsion revient à modifier sa forme temporelle.

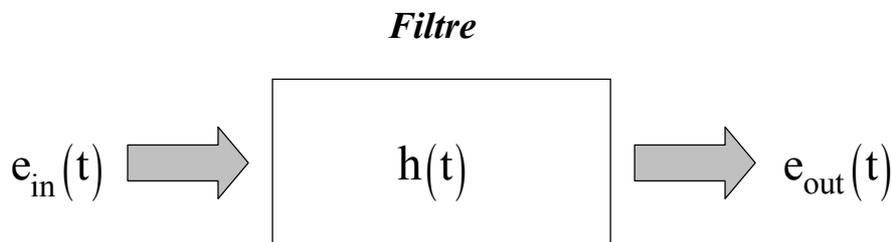


Figure 1.6 : schéma bloc de filtrage linéaire.

L'idée du "pulse shaping" est basée sur le principe classique du filtrage linéaire et obéit par conséquent aux mêmes lois de la physique des systèmes linéaires (figure 1.6). Considérons une impulsion $e_{in}(t)$ excitant un filtre de réponse impulsionnelle $h(t)$. Le signal $e_{out}(t)$ obtenu en sortie est donné par le produit de convolution suivant :

$$e_{out}(t) = h(t) * e_{in}(t) = \int h(\tau) \cdot e_{in}(t - \tau) \cdot d\tau \quad (1.19)$$

Cette expression se traduit dans le domaine spectral par un simple produit des transformées de Fourier de l'impulsion d'entrée et de la fonction de transfert du filtre :

$$\tilde{E}_{\text{out}}(\nu) = \tilde{H}(\nu) \cdot \tilde{E}_{\text{in}}(\nu) \quad (1.20)$$

La fonction de transfert du filtre peut aussi être définie par une transmittance $T(\nu)$ modifiant uniquement l'intensité spectrale, et un terme de phase pure $\psi(\nu)$:

$$\tilde{H}(\nu) = T(\nu) \cdot \exp(j\psi(\nu)) \quad (1.21)$$

Dans la pratique, le signal d'entrée étant parfaitement défini temporellement donc spectralement, ce sont ces deux paramètres qu'il faut déterminer afin d'obtenir l'impulsion de sortie voulue :

$$T(\nu) = \left\| \frac{\tilde{E}_{\text{out}}(\nu)}{\tilde{E}_{\text{in}}(\nu)} \right\| \quad \text{et} \quad \psi(\nu) = \arg \left(\frac{\tilde{E}_{\text{out}}(\nu)}{\tilde{E}_{\text{in}}(\nu)} \right) \quad (1.22)$$

Cette étape est la plus facile à réaliser, surtout depuis les progrès réalisés par le calcul numérique qui donne des résultats proches du calcul analytique. Cependant, la conception du filtre n'est pas toujours immédiate voire technologiquement possible dans certains cas : le filtre calculé peut aboutir à une modulation d'amplitude et de phase alors que le modulateur utilisé n'effectue qu'un de ces deux types de modulations. La partie suivante introduit le dispositif de base des techniques actuelles de mise en forme temporelle d'impulsions lasers permettant de générer des profils d'impulsions quelconques.

c. Principe de base : ligne à dispersion nulle

La ligne à dispersion nulle est le dispositif de référence pour la mise en forme temporelle d'impulsions lasers femtosecondes. Ce système à double transformée de Fourier, basé sur des éléments dispersifs et un système d'imagerie, permet de moduler la phase et l'amplitude spectrale d'une impulsion courte par le biais d'une modulation spatiale [Weiner 2000].

La ligne à dispersion nulle, ou ligne $4f$, est constituée de deux lentilles minces intercalées entre deux réseaux de diffraction parfaitement identiques comme l'indique la figure 1.7. Le premier réseau, placé au foyer objet de la première lentille, effectue une dispersion angulaire des composantes spectrales de l'onde électromagnétique incidente suivant la loi des réseaux en réflexion (1.18). Tous les faisceaux "monochromatiques" semblent alors émis à partir du foyer objet de la première lentille avec un angle différent pour chacun d'entre eux. Cette lentille rend donc parallèles tous les vecteurs d'onde des composantes spectrales et focalise chaque faisceau

en son plan focal image (plan de la transformée de Fourier spatiale de l'onde) : les différentes longueurs d'ondes sont alors spatialement séparées. Ainsi, au centre de la ligne est créé un plan, dit de Fourier, couramment utilisé en filtrage optique et dans lequel les composantes spectrales sont focalisées et spatialement séparées. C'est dans ce plan que peut alors être inséré un modulateur permettant de modifier le spectre de l'impulsion avec la meilleure résolution possible.

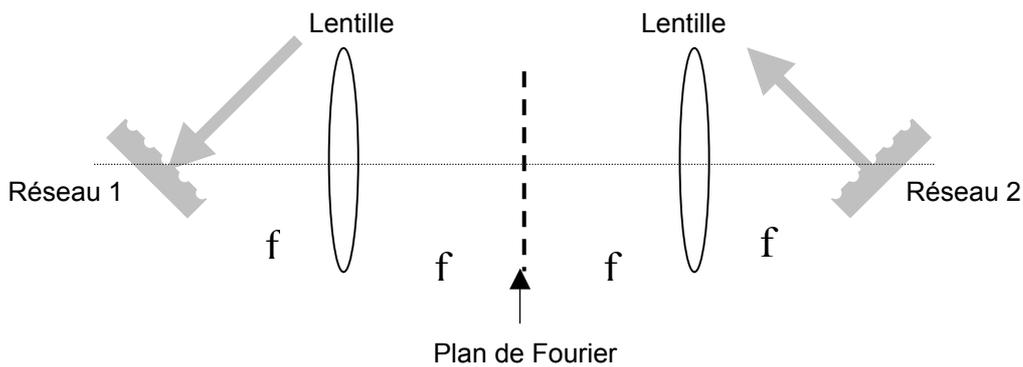


Figure 1.7 : schéma d'un dispositif à dispersion nulle

Une deuxième lentille identique à la première est placée de sorte que le plan de Fourier soit situé dans le plan focal objet de celle-ci. Elle voit les rayons monochromatiques parallèles à son axe et les focalise donc en son foyer image avec le même angle qu'après dispersion du premier réseau. Maintenant, en plaçant en ce point un deuxième réseau identique au premier et orienté symétriquement, toutes les longueurs d'ondes sont réfléchies avec le même angle d'après la loi du chemin inverse de la lumière. De plus, puisqu'elles sont issues du même point (point focal image de la deuxième lentille), le faisceau se recombine spatialement. Si aucune modification spectrale n'est apportée dans le plan de Fourier, le premier réseau est imagé par le système afocal composé des deux lentilles sur le second réseau.

Le système est donc géométriquement à dispersion nulle bien qu'en pratique la dispersion introduite par la propagation dans les lentilles n'est pas négligeable. C'est pourquoi ces lentilles sont souvent remplacées par des systèmes optiques achromatiques ou des paraboles hors axe. Dans ces conditions, l'impulsion d'entrée n'est pas altérée par la traversée d'une ligne $4f$ sans modulateur. Notons aussi que le premier réseau est orienté de façon à confondre le rayon correspondant à la longueur d'onde centrale du spectre avec l'axe des deux lentilles pour un

ordre de diffraction donné (généralement ± 1). Ce spectre est donc spatialement centré dans le système optique. On peut alors connaître la position x de toute longueur d'onde λ par rapport à l'axe optique du système donc par rapport à la longueur d'onde centrale λ_0 :

$$x = f \cdot \tan(\theta_d - \theta_{d_0})$$

$$x = f \cdot \tan\left(A \cdot \sin\left(m \frac{\lambda}{\Lambda} - \sin \theta_i\right) - A \cdot \sin\left(m \frac{\lambda_0}{\Lambda} - \sin \theta_i\right)\right) \quad (1.23)$$

d'après la formule (1.18).

Considérons maintenant le cas d'une ligne à dispersion nulle dans laquelle pénètre une impulsion courte de forme $e_{in}(t)$. Nous venons de voir qu'il est possible de moduler son spectre $\tilde{E}(\nu)$ dans le plan de Fourier en insérant un modulateur spatial. Insérons donc un filtre en phase et en amplitude défini par une fonction de transfert $\tilde{H}(\nu) = T(\nu) \cdot \exp(j\psi(\nu))$ au sein du dispositif à dispersion nulle comme sur la figure 1.8.

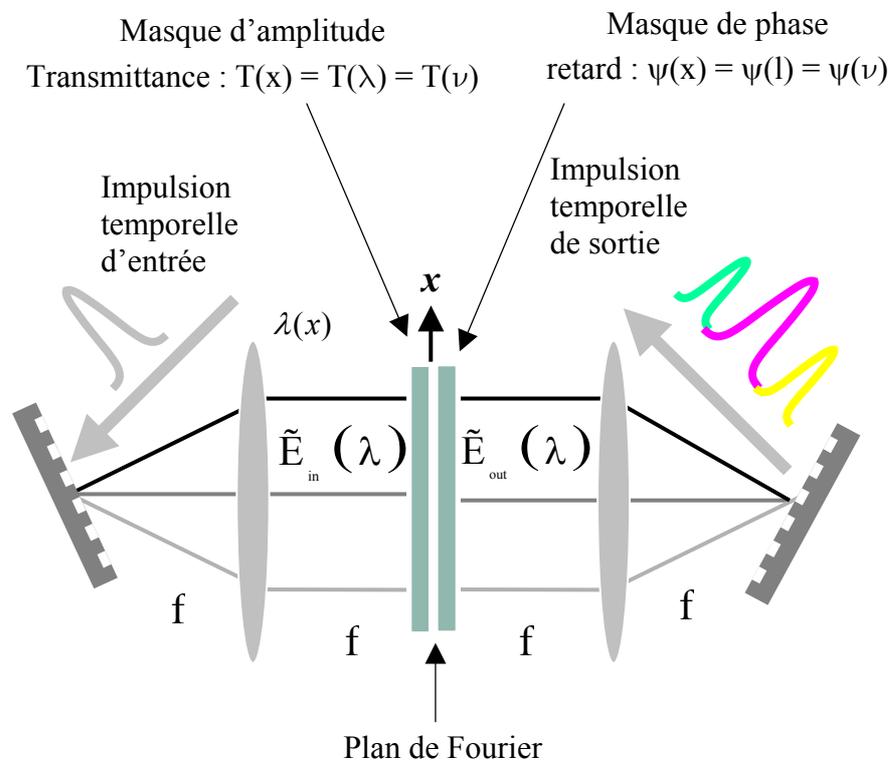


Figure 1.8: modification du profil temporel d'une impulsion dans une ligne 4f.

Le spectre de l'impulsion de sortie ainsi obtenu est donc égal à :

$$\tilde{E}_{\text{out}}(\nu) = \tilde{H}(\nu) \cdot \tilde{E}_{\text{in}}(\nu) = T(\nu) \cdot \exp(j\psi(\nu)) \cdot \tilde{E}_{\text{in}}(\nu) \quad (1.24)$$

d'où la forme temporelle de l'impulsion en sortie donnée par la transformée inverse du spectre de sortie :

$$\tilde{e}_{\text{out}}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_{\text{in}}(\nu) \cdot T(\nu) \cdot \exp[j(\psi(\nu) + 2\pi t\nu)] \cdot d\nu \quad (1.25)$$

N'importe quelle impulsion de sortie peut, en théorie, être générée à partir de n'importe quelle impulsion d'entrée. En pratique, la mise en forme temporelle d'impulsion femtoseconde sera limitée par les aptitudes technologiques à réaliser le modulateur spatial nécessaire. La partie suivante est un résumé des principales technologies actuellement utilisées.

d. Les modulateurs spatiaux de lumière (SLM)

Nous venons de voir que le dispositif de ligne à dispersion nulle permet de moduler dans l'espace spectral une impulsion en phase et en amplitude en plaçant un masque dans le plan de Fourier. Une modulation de phase spectrale peut être obtenue soit par variation du chemin optique de chaque composante spectrale, soit en contrôlant le retard de chacune d'entre elles (diffractées par un réseau). Une modulation d'amplitude peut être réalisée avec deux modulateurs de phase. Plusieurs techniques ont été élaborées pour d'atteindre ce but [Weiner 2000]. Le type de modulateur spatial de lumière (SLM) utilisé dépend de l'application visée.

- Modulation par variation du chemin optique :

La lame de phase : c'est une lame d'indice constant et d'épaisseur variable introduisant un déphasage. L'épaisseur en un point est calculée en fonction du déphasage désiré pour la composante spectrale passant par ce point. Ces masques sont statiques et sont destinés aux applications nécessitant une unique forme d'impulsion [Weiner 1988].

Matrice de cristaux liquides adressés électriquement : ce modulateur est constitué de pixels de cristaux liquides biréfringents [Weiner 1990]. L'indice de chaque pixel est commandé par une

tension électrique, ce qui introduit un déphasage. Comme les longueurs d'ondes sont spatialement étalées, ce déphasage peut être commandé pour chaque longueur d'onde. Ces modulateurs sont par conséquent programmables et peuvent donc générer différentes impulsions. Mais l'inconvénient majeur réside dans l'échantillonnage de la matrice qui impose qu'un déphasage soit non pas appliqué à une seule composante spectrale, mais à une petite plage de longueurs d'ondes étalées sur la taille du pixel. Ce type de composant présente aussi une transmittance particulière où le terme d'amplitude peut dépendre de la phase souhaitée.

Modulateurs à cristaux liquides adressés optiquement : appelés également valves optiques, ces modulateurs fonctionnent suivant le même principe que précédemment [Dorner 1998]. La variation est programmée par modulation de l'illumination projetée sur la couche d'un élément photoconducteur placée en série avec la couche de cristaux liquides, le tout entre deux électrodes. L'avantage est le caractère continu de la modulation du point de vue spatial.

Miroirs déformables : il s'agit de miroirs dont la surface est déformée par des poussoirs situés derrière [Kwong 1993, Zeek 1999]. L'onde incidente est alors déphasée en fonction de son angle d'incidence sur la surface du miroir. On peut ainsi déphaser les composantes spectrales indépendamment les unes des autres. Contrairement aux matrices de cristaux liquides, les miroirs déformables ont une faible résolution spatiale, mais ils restent programmables.

- Modulation par diffraction individuelle de chaque composante spectrale :

Pour ces modulateurs, la modulation est obtenue par diffraction du champ électrique par un réseau spatial placé dans le plan de Fourier. L'impulsion modulée correspond à l'ordre 1 mais la partie réfléchi à l'ordre 0 constitue une perte qui doit être éliminée. Du fait que l'on contrôle l'amplitude diffractée de chaque composante spectrale, ces modulateurs sont tous capables de moduler en phase et en intensité simultanément. On en distingue trois types :

Modulateurs acousto-optiques : une onde acoustique crée des variations d'indice dans un cristal acousto-optique. L'impulsion laser ultracourte spatialement dispersée traversant ce dernier se trouve confrontée à un réseau d'indice et diffracte [Dugan 1997]. Dans l'ordre -1 diffracté, le

spectre est donc modulé comme souhaité en fonction de la modulation spatiale du réseau d'indice.

Modulateurs à puits quantiques photoréfractifs : l'absorption par un puits quantique d'un photon crée une paire électron-trou. Il y a alors apparition d'un champ électrique d'espace qui, par le biais de l'effet électro-optique, produit une variation d'indice [Ding 1997]. Ce modulateur est programmable.

L'inconvénient majeur de ces modulateurs, par rapport aux modulateurs à variation de chemin optique, est la faible quantité d'énergie incidente récupérée dans l'impulsion mise en forme temporellement (à peine 50%).

1.3 Conclusion

Nous venons d'aborder le principe de génération d'impulsions laser ultra-brèves. De ce principe découlent les caractéristiques spectrales de telles impulsions et par conséquent leur forme temporelle. En sortie d'une chaîne laser ultracourte, l'impulsion a donc une phase plate et une amplitude gaussienne. Pour modifier le profil temporel de ces impulsions, il est nécessaire de passer par une modulation spectrale et plus particulièrement par une modulation de la phase spectrale afin de limiter les pertes énergétiques.

Si la compression et l'étirement de telles impulsions ne nécessitent pas de grands moyens expérimentaux, il n'en va pas de même pour la génération d'un profil quelconque : la modulation de phase à introduire peut vite devenir complexe. Un modulateur spatial de lumière est alors utilisé au sein d'une ligne à dispersion nulle. Le principe de cette technique est d'étaler spatialement les composantes spectrales de l'impulsion afin d'apporter une modulation indépendante pour chacune d'elle par le biais du modulateur spatial de lumière.

Il existe différents types de modulateurs spatiaux. Ceux-ci sont généralement programmables, c'est à dire que la modulation spatiale peut être informatiquement pilotée. L'avantage est donc de

pouvoir modifier à volonté la modulation de phase, donc le profil temporel [Meshulach 1998]. La génération de l'impulsion souhaitée pour l'application à un processus d'interaction laser-matière passe donc par la détermination de la phase spectrale nécessaire. Deux façons d'aborder le problème existent : soit l'intensité temporelle voulue est fixée et on recherche une phase spectrale approchant au mieux ce profil, soit le profil temporel est déterminé par optimisation suivant un critère physique (taux d'ablation, taux d'ionisation, etc.) mesuré en temps réel. Dans les deux cas, il est nécessaire de développer des algorithmes afin de retrouver la modulation de phase à introduire [Hacker 2001].

Ces modulateurs spatiaux sont donc très pratiques de par leur programmabilité. Leur utilisation est indiquée pour l'optimisation d'un processus en temps réel. Cependant nous avons vu que ces modulateurs sont des outils à la pointe de la technologie et parfois à coût de fabrication non négligeable. De plus la ligne à dispersion nulle dans laquelle ils sont utilisés est un dispositif sensible pouvant nécessiter des optiques de qualité suivant les performances de mise en forme temporelle recherchées. Ces deux inconvénients (coût de revient et mise en œuvre expérimentale) en font un outil de mise en forme temporelle d'impulsions lasers femtosecondes peu utilisé industriellement. Des techniques prometteuses de mise en forme sans étalement spatial existent mettant essentiellement en jeu des phénomènes de diffraction par un réseau de volume. Lorsque le pas du réseau satisfait la condition de Bragg pour une longueur d'onde spécifique, l'onde est réfléchi. En faisant varier le pas du réseau le long de la propagation de l'onde incidente, il devient possible de filtrer en amplitude et en phase les longueurs d'ondes indépendamment les unes des autres. Ces réseaux de volumes peuvent être créés par hologramme [Hill 1993] ou par effet acousto-optique [Kaplan 2004].

Nous proposons dans cette thèse un nouveau composant monolithique permettant de réaliser directement une modulation de phase spectrale. Ce composant est basé sur un réseau résonnant et fonctionne comme un miroir induisant un changement de phase dans le spectre d'une impulsion laser femtoseconde. Ce changement de phase résulte de l'excitation d'un mode de guide d'onde planaire par réseau de couplage. Ce type de déphaseur diffère complètement de tout ce qui est aujourd'hui utilisé pour du formatage temporel d'impulsions et requiert une étude spécifique que l'optique des guides d'ondes n'a pas poussée dans cette direction. Les chapitres 2 à 5 seront consacrés à cette étude dans le but d'identifier les propriétés remarquables de cet élément et de leur donner une expression propre à être utilisées dans la mise en forme temporelle d'impulsions femtosecondes ainsi qu'à pouvoir être mesurées.

