

# Etude et développement d'un dispositif d'excitation de la fluorescence

Dans ce second chapitre, nous nous intéressons au dispositif d'excitation de la fluorescence. La mesure de durée de vie de fluorescence dans le domaine temporel impose un certain nombre de contraintes à la source excitatrice. Nous commençons par rapporter ces différentes contraintes et les principaux systèmes utilisés pour réaliser les mesures de temps de vie dans le domaine temporel, puis nous présentons la solution que nous proposons d'étudier et de réaliser. Ensuite, nous nous intéressons aux différentes parties constitutives de l'architecture que nous développons : tout d'abord l'oscillateur laser solide impulsionnel émettant dans l'infrarouge et pompé par diode, puis les fibres optiques permettant d'élargir le spectre d'émission. Nous présentons pour chacune de ces parties quelques éléments théoriques, les montages réalisés et les résultats expérimentaux. Enfin, après une analyse critique des résultats obtenus, nous présentons et caractérisons la source commerciale utilisée au final sur le dispositif de microscopie, et nous expliquons les raisons de ce choix.

## I - Introduction

La mesure de temps de vie de fluorescence dans le domaine temporel impose un certain nombre de contraintes au dispositif d'excitation. Tout d'abord, pour réaliser ce type de mesures, il faut exciter la fluorescence avec une source impulsionnelle. Deux paramètres temporels principaux doivent alors être maîtrisés : la durée des impulsions et leur cadence. De manière générale, la durée de l'impulsion doit être bien plus courte que le phénomène que l'on doit observer. Ainsi l'excitation est ponctuelle et l'apparition temporelle du phénomène en est bien distincte. Pour les mesures de durée de vie de fluorescence, on souhaite donc des impulsions de l'ordre de quelques picosecondes ou moins. Quant à la durée entre deux impulsions consécutives, elle doit être plus longue (3 à 10 fois plus longue) que le phénomène observé pour laisser le temps au système de se relaxer, de se désexciter. Ainsi si on souhaite pouvoir observer des temps de fluorescence plus longs, il faut une cadence plus basse. Cette dernière ne doit cependant pas être trop faible pour ne pas engendrer des temps d'acquisition interminables. Ainsi des cadences comprises entre 1 et 100 MHz sont désirées. Enfin, spectralement, la source utilisée doit permettre d'exciter le (ou les) fluorophore(s) étudié(s).

L'apparition et le développement des sources laser ont joué un rôle prépondérant dans la place importante qu'occupe aujourd'hui la microscopie de fluorescence dans l'imagerie du vivant. En effet, avec de telles sources, il est possible de travailler avec des longueurs d'ondes très diverses, couvrant un spectre de l'ultraviolet à l'infrarouge, et de générer des impulsions ultracourtes. La forte densité spectrale et la qualité spatiale des faisceaux laser permettent d'exciter efficacement un grand nombre de fluorophores. De plus, la maîtrise théorique et technologique de ce type de

sources permet actuellement de façonner les trains d'impulsions à façon. C'est donc tout naturellement que ces sources lasers sont à la base de la plupart des systèmes d'excitation de la fluorescence. Pour faire de l'imagerie de temps de vie de fluorescence dans le domaine temporel, différentes sources laser impulsionnelles sont utilisées dans la littérature.

La référence absolue depuis plus de 10 ans est le laser à saphir dopé au titane (ou Ti:saphir) à verrouillage de modes en phase par effet Kerr. Comme son nom l'indique, le milieu amplificateur de ce laser est une matrice de saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) dopée avec des ions titane ( $\text{Ti}^{3+}$ ). Les caractéristiques spectroscopiques de cet ion permettent non seulement d'avoir des impulsions courtes (d'une dizaine de fs à quelques ps), mais également d'avoir une accordabilité en longueur d'onde (de 680 à 1020 nm en routine et jusqu'à 1080 nm pour les dernières générations). Ce cristal est pompé optiquement à 532 nm, dans la plupart des cas avec un laser néodyme ( $\text{Nd:YAG}$  ou  $\text{Nd:YVO}_4$ ) doublé en fréquence.

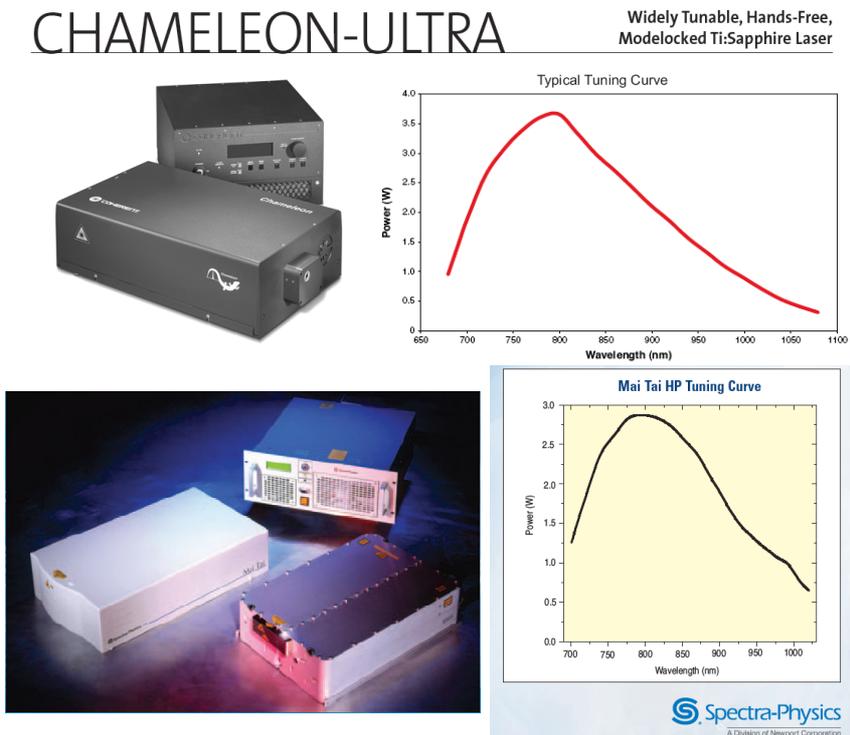


Figure 2-1 : photographies et spectres de lasers Ti:saphir commerciaux. En haut, laser Chameleon Ultra II de la société Coherent. En bas, laser Mai Tai de la société Spectra Physics.

Des efforts technologiques importants ont permis à ces lasers Ti:saphir d'atteindre des niveaux de fiabilité et de simplicité d'utilisation importants, et ainsi d'envahir les plates-formes d'imagerie. Aujourd'hui, les principaux fabricants de lasers (essentiellement Spectra Physics et Coherent) proposent ces sources, vendues clés en mains, extrêmement simples d'utilisation, robustes et qui nécessitent très peu d'entretien (figure 2-1). Ces systèmes délivrent des trains d'impulsions fs à des cadences comprises entre 75 MHz et 100 MHz, avec une accordabilité dans le rouge et le proche infrarouge. Pour certaines applications, notamment sur des dispositifs à balayage, les lasers Ti:saphir sont utilisés tels quels pour faire de la fluorescence par excitation à deux photons [Soper 1994], [Pelet 2006], [Kumar 2007], [Deniset-Besseau 2007]. En imagerie plein champ, la fluorescence est usuellement excitée par des processus d'absorption à un photon : dans ces conditions, le faisceau du laser est étendu spatialement et doublé en fréquence grâce à des cristaux non linéaires pour atteindre des longueurs d'ondes visibles [Elangovan 2002]. Les lasers Ti:saphir commerciaux ont des cadences relativement élevées (de 75 à 100 MHz), ce qui limite les temps de vie de fluorescence mesurables. Aussi pour augmenter la période des impulsions (et donc diminuer la fréquence), des modulateurs acousto-optiques ou électro-optiques sont utilisés

(pulse-pickers). Etant synchronisés sur la cadence du laser, ils permettent de sélectionner une impulsion sur  $n$  ( $n$  étant un nombre entier défini par l'utilisateur), ce qui permet de réduire la fréquence d'un facteur  $n$  et d'atteindre des fréquences jusqu'à quelques kHz. Ainsi dans la pratique un grand nombre d'expérimentateurs utilisent ces techniques en cascade : le faisceau de sortie du laser Ti:saphir passe dans un modulateur pour réduire la cadence, puis un cristal non linéaire est utilisé pour atteindre des longueurs d'onde visibles [Tramier 2006], [Nair 2006], [Agronskaia 2003], [Dahan 2001], [Smith 2005], [Bruno 2008], [Mattheyses 2004]... On peut également noter l'utilisation des lasers Ti:saphir pour la génération de spectres larges en injectant le faisceau dans des fibres optiques microstructurées [Grant 2005], [Auksorius 2008].

Pour l'imagerie de fluorescence résolue en temps sur des fluorophores s'excitant dans le proche ultraviolet, l'utilisation de lasers à cristaux dopés aux ions néodyme est assez répandue. Le faisceau laser à 1064 nm est triplé en fréquence grâce à des cristaux non linéaires pour atteindre la longueur d'onde de 355 nm [Munro 2005], [Schneckenburger 2003]. Remarquons aussi que pour ces longueurs d'onde, quelques lasers impulsionsnels à gaz sont utilisés mais de manière marginale : laser à azote (ou nitrogène) [Chan 2001], laser à argon [Schneckenburger 2004].

Quelques équipes utilisent aussi des diodes laser impulsionsnelles commerciales [Dahan 2001], [Elson 2002], [Ruck 2003]. Ces diodes avec des impulsions de quelques dizaines de ps, couvrent de manière discrète un spectre de 375 à 1550 nm [Picoquant 2008]. Actuellement, pour les longueurs d'onde les plus basses, les puissances sont encore relativement faibles (jusqu'à 1W en puissance crête pour des impulsions de 70 ps à une cadence de 80 MHz), mais les progrès constants de cette technologie incitent de plus en plus de groupes à utiliser ces diodes impulsionsnelles.

En résumé, pour faire de la fluorescence résolue en temps en champ large, c'est-à-dire en utilisant des processus d'absorption à un photon, le dispositif de référence actuel est composé d'une (ou plusieurs) diode(s) laser de pompe, d'un laser Nd:YAG, d'un premier cristal doubleur, d'un laser Ti:saphir, d'un modulateur pour diminuer la cadence et d'un second cristal doubleur pour atteindre des longueurs d'onde visible et pouvoir exciter les échantillons (figure 2-2).

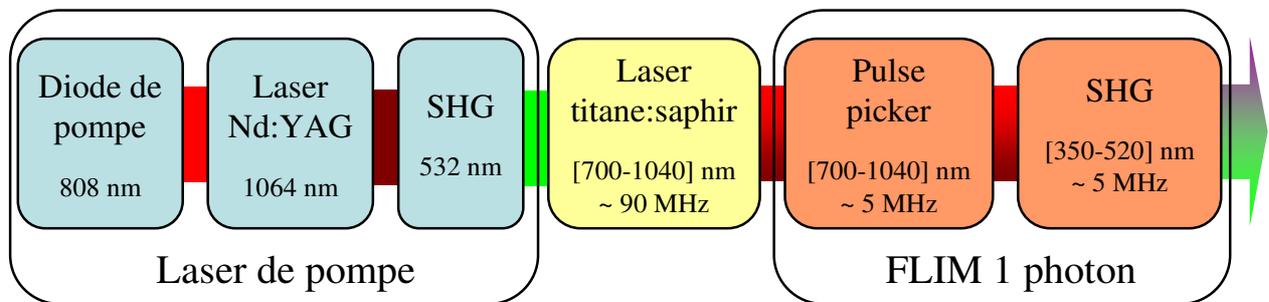


Figure 2-2 : dispositif de référence pour faire de la fluorescence résolue en temps par absorption à un photon.

On voit tout de suite les limitations d'un tel dispositif d'excitation :

- sa complexité. Même si tous les éléments sont des produits commerciaux, il y a un certain nombre de réglages précis à réaliser (obtention de l'accord de phase dans les cristaux non linéaires, synchronisation précise du modulateur sur la cavité laser).
- son encombrement.
- son faible rendement. Si on évalue le rendement entre la puissance optique à la sortie de la chaîne et la puissance électrique consommée, on trouve une valeur extrêmement faible.
- son prix. Surtout que, pour mesurer des temps de vie de fluorescence par excitation à un photon, l'utilisation d'un laser femtoseconde onéreux n'est pas indispensable...

- sa rigidité. En effet, à chaque instant, une seule longueur d'onde est accessible à la sortie de cette chaîne. Et même si l'accordabilité du laser Ti:saphir permet d'avoir une certaine gamme de longueurs d'onde en sortie, la partie du spectre couverte est limitée, et le cristal non linéaire à l'extrémité de la chaîne doit être réglée pour chaque changement de longueur d'onde.

C'est pourquoi nous avons cherché à développer une solution alternative, plus simple, moins onéreuse et avec des performances vraiment ciblées pour la microscopie de fluorescence résolue en temps par absorption à un photon (figure 2-3).

Cette solution repose sur le développement d'un oscillateur laser impulsif basse cadence pompé par diode émettant dans l'infrarouge. Le principe d'une telle source, basée sur l'utilisation d'une cavité multipassage a déjà été validé à une longueur d'onde de 1064 nm [Papadopoulos 2003]. Des cadences de quelques MHz pour des durées d'impulsion de quelques ps ont été obtenues avec une telle cavité, sans utilisation de modulateurs acousto-optiques, éléments difficiles à synchroniser et qui induisent des pertes conséquentes. D'un point de vue spectral, nous souhaitons développer une source qui permette d'exciter un grand nombre de fluorophores, avec le moins d'ajustements nécessaires. Pour cela, l'utilisation des effets non linéaires dans les fibres semble très attractive : en élargissant de la sorte le spectre, de nombreuses longueurs d'onde seront disponibles simultanément à la sortie de la chaîne d'excitation, et il suffira de choisir le bon filtre pour exciter le fluorophore souhaité.

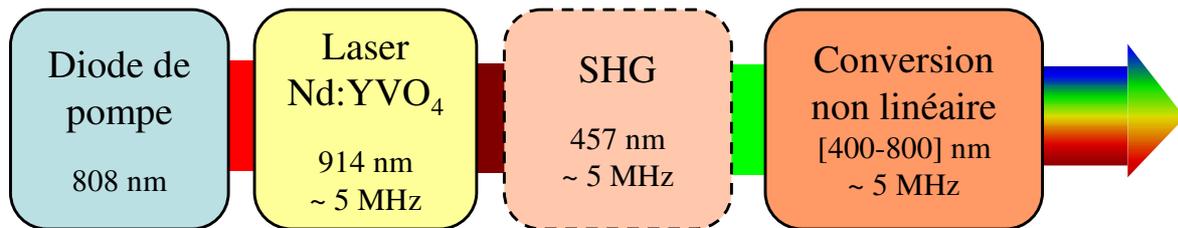


Figure 2-3 : solution alternative que nous voulons développer.

Notre programme de travail pour le développement de ce dispositif d'excitation de la fluorescence est donc le suivant :

Dans un premier temps, nous travaillons sur la réalisation d'un oscillateur pompé par diode, émettant dans l'infrarouge, délivrant des impulsions picoseconde à basse cadence (sur le modèle de la source citée juste au-dessus). Le faisceau émis doit par la suite être injecté dans une fibre pour élargir le spectre, or avec les effets non linéaires, il est relativement aisé d'obtenir des longueurs d'onde plus grandes que celle d'injection. Le problème est d'atteindre les longueurs d'onde plus courtes. C'est pourquoi nous décidons de travailler avec une transition plus énergétique de l'ion néodyme pour diminuer la longueur d'onde d'émission autour de 900 nm. Ainsi nous pourrions observer l'élargissement spectral obtenu en injectant dans la fibre le faisceau doublé en fréquence (longueur d'onde vers 450 nm, et dans ce cas, l'élargissement spectral dans le visible est obtenu essentiellement par effet Raman en cascade), ou le fondamental (et alors la génération de longueurs d'ondes visibles est réalisée par des processus non linéaires nécessitant des accords de phase, comme le mélange à quatre ondes). Bien entendu, l'énergie par impulsion (à 450 nm ou à 900 nm) doit être suffisante pour obtenir dans la fibre un élargissement du spectre.

Dans un second temps, une fois l'oscillateur obtenu, nous étudions les effets non linéaires dans les fibres optiques et réalisons les expériences d'élargissement spectral. Pour cela, nous utilisons des fibres microstructurées originales, ayant des propriétés de guidage particulières favorisant l'apparition de nouvelles longueurs d'onde par mélange à quatre ondes.

## **II – Développement d'une source laser solide impulsionnelle pompée par diode**

Commençons par rappeler ici brièvement le principe de fonctionnement d'une source laser. Les sources « laser » tiennent leur nom de l'effet physique qu'elles exploitent. Le mot « laser » est l'acronyme de Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, ce qui signifie en français amplification de lumière par émission stimulée.

Comme on l'a vu en introduction (p 13), l'émission stimulée, est la désexcitation d'un atome - préalablement situé dans un niveau d'énergie supérieur - par une excitation extérieure. Cette désexcitation est provoquée par un photon (dit photon incident), et elle s'accompagne de l'émission d'un nouveau photon en tout point identique au premier. L'amplification de lumière par émission stimulée va donc consister en une cascade d'émissions de photons tous identiques entre eux. Le faisceau émis par le laser sera, par conséquent, très peu divergent, monochromatique et cohérent.

A l'équilibre thermodynamique, dans le milieu à gain, beaucoup plus d'atomes se situent dans leur niveau fondamental que dans le niveau excité. Or pour amplifier, il faut une inversion de population, i.e. plus d'atomes dans le niveau excité que dans le niveau fondamental. Il faut donc réaliser un « pompage » pour que cette émission stimulée soit prépondérante par rapport à l'émission spontanée. Ensuite un confinement de ces photons émis dans une cavité, pour leur permettre de passer plusieurs fois dans le milieu amplificateur est nécessaire.

Ainsi, un laser est constitué de trois éléments fondamentaux :

- ✓ le milieu amplificateur
- ✓ le système de pompage
- ✓ le résonateur optique ou la cavité laser

Il existe différents types de lasers suivant la nature du milieu amplificateur (gaz, solide, liquide), le mode de pompage (électrique, optique, chimique,...), le domaine de longueur d'onde d'émission (de 100 nm à 500  $\mu\text{m}$ ), et le mode de fonctionnement (continu impulsionnel). Et ce sont en général les applications qui dictent le choix du laser. Notre but est de développer un laser compact, émettant des impulsions ps à une cadence de quelques MHz et à une longueur d'onde située autour de 900 nm. Nous présentons donc dans la suite, les différents choix technologiques que nous avons fait pour atteindre cet objectif.

### **II.1 – Le milieu amplificateur : cristaux dopés avec des ions $\text{Nd}^{3+}$**

Pour réaliser ce laser, nous avons choisi une technologie dite « solide », c'est-à-dire que nous utilisons un cristal dopé comme milieu amplificateur. En effet, les cristaux sont plus facilement manipulables que les gaz ou les colorants. De plus, nous désirons obtenir un laser impulsionnel, or ces lasers à cristal permettent un stockage d'énergie important, favorisant des impulsions courtes et énergétiques. Enfin, ces lasers ont des faisceaux d'excellente qualité spatiale, et émettent dans l'infrarouge proche (800 -1500nm). Notre but est de trouver un matériau laser avec lequel nous pouvons travailler à des longueurs d'onde relativement courtes vers 900-950 nm, ce qui permet également, en utilisant un cristal non linéaire doubleur de fréquence, de descendre vers 450 nm.

Les systèmes basés sur des matériaux dopés au néodyme utilisent en général la transition  ${}^4F_{3/2}$ - ${}^4I_{11/2}$  de cet ion, émettant vers  $1\ \mu\text{m}$ , bien connue pour son extrême efficacité. Ces systèmes sont, de plus, simples et très robustes. Cependant, l'arrivée sur le marché de nouvelles diodes laser, de plus en plus performantes, permet d'envisager le développement de lasers utilisant des raies moins efficaces du néodyme comme par exemple la transition  ${}^4F_{3/2}$ - ${}^4I_{9/2}$  qui varie entre 900 et 950 nm selon la matrice hôte. L'idée est donc de transposer les systèmes à  $1\ \mu\text{m}$  dans la gamme de longueurs d'ondes 900 -950 nm, tout en conservant leurs avantages [Herault 2007]. Le développement de sources lasers infrarouges à des longueurs d'ondes autour de 900-950 nm est un axe de recherche important de l'équipe ELSA, le but étant de construire un laser bleu. Pour ces transitions lasers étudiées, le milieu à gain se comporte comme un système trois niveaux ou quasi trois niveaux, ce qui impose des contraintes assez fortes sur l'oscillateur [Herault 2006], [Castaing 2007]. Pour générer un rayonnement bleu, des géométries de cavités assez complexes, avec notamment de la somme de fréquences intracavité avec des cristaux non linéaires ont été développées [Herault 2005]. Ces travaux continuent actuellement notamment grâce à de nouveaux cristaux [Castaing 2008].

Pour notre étude nous choisissons des cristaux standards de  $\text{Nd:YVO}_4$ , largement utilisés pour des systèmes à  $1\ \mu\text{m}$ . La transition qui nous intéresse se trouve à 914 nm (figure 2-4).

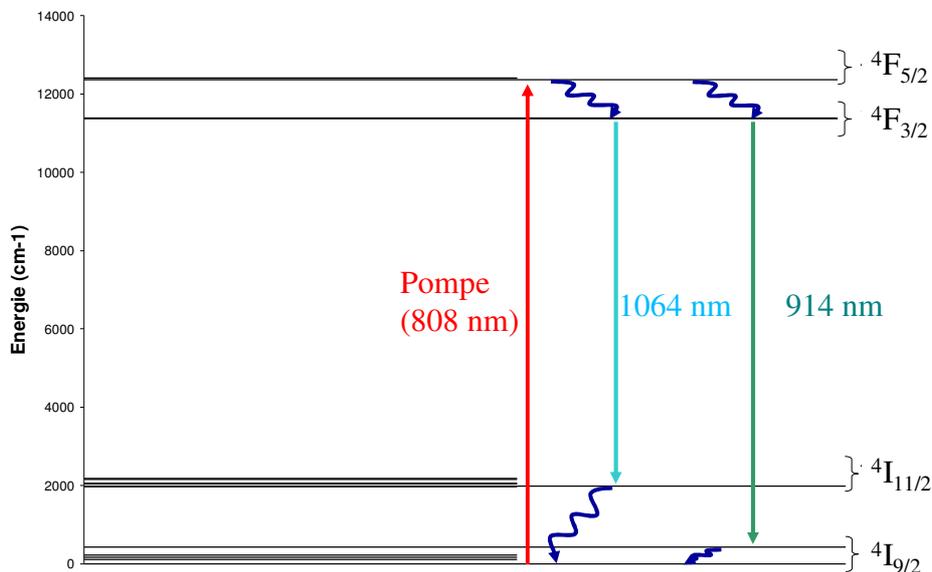


Figure 2-4 : spectroscopie (simplifiée) de l'ion  $\text{Nd}^{3+}$  dans la matrice de vanadate. Nous avons seulement indiqué ici les niveaux qui vont nous intéresser, à savoir le niveau  ${}^4F_{5/2}$  que l'on va peupler grâce au pompage optique à 808 nm ; les atomes se désexcitent non radiativement vers le niveau  ${}^4F_{3/2}$  puis à partir de ce niveau là, nous assisterons à une désexcitation radiative vers le niveau  ${}^4I_{11/2}$  avec émission d'un photon à 1064 nm, ou bien à une désexcitation vers le niveau  ${}^4I_{9/2}$  avec émission d'un photon à 914 nm. C'est cette dernière qui nous intéresse et que nous allons devoir privilégier.

Autour de cette transition, l'ion néodyme se comporte comme un système quasi trois niveaux. En effet, le niveau  ${}^4I_{9/2}$  est très près du niveau fondamental. Par conséquent, ce niveau est peuplé à température ambiante, réduisant ainsi l'inversion de population. Cette population thermique de l'état bas de la transition conduit aussi à des phénomènes de réabsorption (figure 2-5) qui peuvent induire des fortes pertes sur le faisceau laser (toute partie non pompée du cristal sera en effet absorbante). Pour obtenir un effet laser efficace, un pompage efficace est donc nécessaire pour augmenter l'inversion de population [Zeller 2000], [Schlatter 2005]. Utiliser des cristaux standards comme le  $\text{Nd:YVO}_4$  est très intéressant car cela permet de travailler avec des diodes standards émettant à 808 nm (où se situe un des pics d'absorption du néodyme figure 2-5) pour réaliser le pompage optique et ainsi de profiter des derniers développements technologiques sur ces diodes.

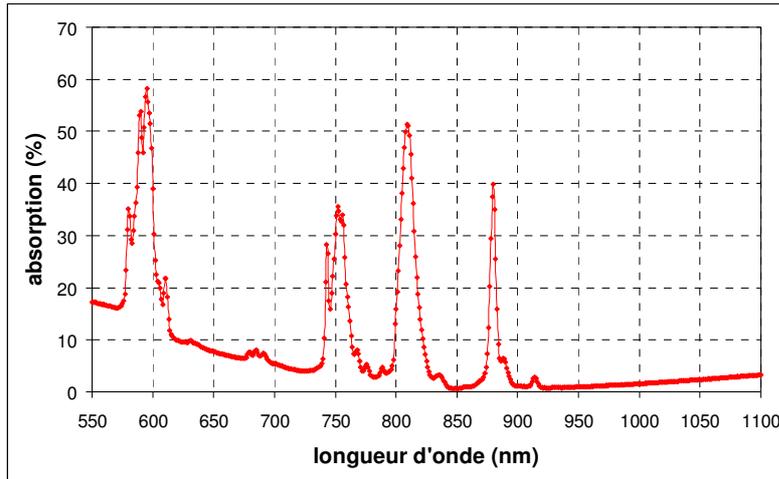


Figure 2-5 : spectre d'absorption d'un cristal de Nd:YVO4 obtenu expérimentalement. Avec une diode de pompe émettant à 808 nm, on est dans une fenêtre d'absorption conséquente, et on peut alors réaliser l'inversion de population souhaitée. On remarque sur ce spectre un petit pic de réabsorption vers 914 nm. [Herault 2007]

En comparant (tableau 2-1) les caractéristiques des cristaux de Nd:YVO<sub>4</sub> et de Nd:YAG, on s'aperçoit que le Nd:YVO<sub>4</sub> a des meilleures sections efficaces d'absorption et d'émission, et une longueur d'onde laser plus basse [Czeranowsky 2002]. Ainsi, on pourra descendre plus bas en longueur d'onde, ce qui répond mieux à nos attentes. De plus, le cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> étant biréfringent, l'émission est polarisée, ce qui facilitera ce doublage de fréquence.

	Nd:YVO4		Nd:YAG
	π	σ	
polarisation			
temps de vie du niveau excité [μs]	97		250
longueur d'onde de pompe [nm]	808		808
section efficace d'absorption [10e-20 cm <sup>2</sup> ]	60,1	12	7,9
longueur d'onde laser [nm]	914	915	946
section efficace d'émission [10e-20 cm <sup>2</sup> ]	4,8	4,3	3,7
énergie du niveau bas de la transition laser [cm <sup>-1</sup> ]	433		857
population de ce niveau à 20°C [%]	4,8		0,7
à 100°C [%]	6,8		1,5
Rapport des sections efficaces d'émission à 1064nm et autour de 900nm	0,04		0,09

Tableau 2-1 : Comparaison Nd:YVO4, Nd:YAG.

Cependant le cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> présente plusieurs inconvénients : son niveau bas de la transition laser a une énergie de 433 cm<sup>-1</sup> (contre 857 cm<sup>-1</sup> pour le Nd:YAG), ce qui signifie une population thermique de ce niveau plus importante et donc plus de pertes par réabsorption [Kaminskii 1990]. De plus, ses propriétés thermiques sont bien inférieures à celles du Nd:YAG (conductivité thermique de 5,1 W/m.K pour le YVO<sub>4</sub> non dopé contre 10,3 W/m.K pour le YAG non dopé). En outre, le rapport des sections efficaces d'émission à 914 nm et 1064 nm vaut 0,04 (contre 0,09 pour le YAG), ce qui est très faible. La section efficace d'émission à 1064 nm vaut 114.10<sup>-20</sup> cm<sup>2</sup>, elle est plus de 28 fois plus importante que celle à 914 nm. Nous allons donc être plus gênés par la forte concurrence de l'émission à 1064 nm (figure 2-6) dans le Nd:YVO<sub>4</sub> que dans le Nd:YAG.

La section efficace d'émission à 914 nm est faible (4.10<sup>-20</sup> cm<sup>2</sup>) et conduit à un seuil laser élevé qui nécessite une intensité de pompe importante. Cependant, si l'on pompe trop fort, on va avoir de l'absorption à partir du niveau excité vers les niveaux parasites. S'en suivra une désexcitation non radiative importante, qui va se traduire par un échauffement de notre cristal.

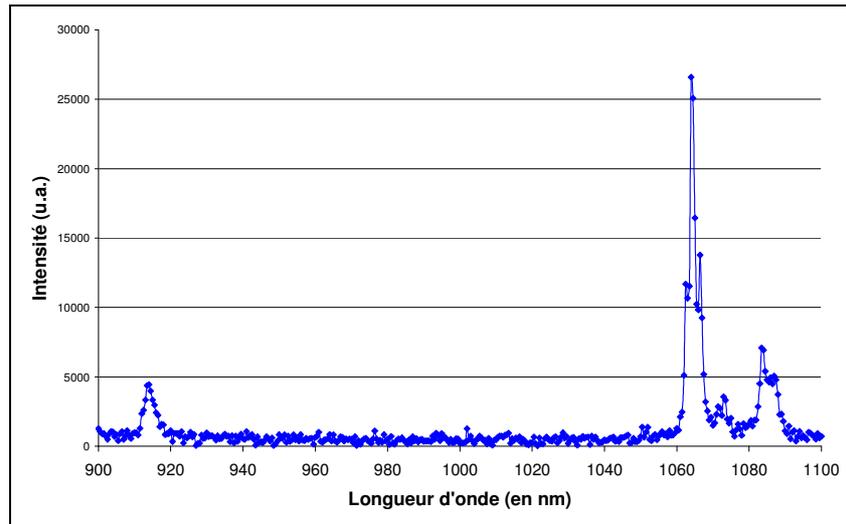


Figure 2-6 : spectre d'émission d'un cristal de Nd:YVO4 obtenu expérimentalement. On voit bien ici que l'émission à 914 nm est bien moins importante que celle à 1064 nm [Herault 2007].

Comme on vient de le voir à plusieurs reprises, le choix de ce cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> impose un certain nombre de contraintes sur le système de pompage, que nous allons maintenant détailler.

## II.2 – Le système de pompage : le pompage par diode

Pour permettre l'amplification de lumière par émission stimulée, c'est-à-dire pour obtenir l'effet laser, une inversion de population est indispensable. En 1950, Alfred Kastler démontre théoriquement que le pompage optique permet d'obtenir l'inversion de population [Kastler 1950], ce qu'il réalisa expérimentalement avec son équipe deux ans plus tard [Brossel 1952]. C'est ce type de pompage qu'utilisa Ted Maiman en 1960 [Maiman 1960], lorsqu'il réalisa expérimentalement le premier laser à rubis impulsif (693 nm). A cette époque, le pompage optique était réalisé par des lampes hélicoïdales à flash. Depuis, la découverte et l'amélioration de moyens de pompage optique ont permis des avancées majeures dans la réalisation des sources laser. Petit à petit, ces lampes furent remplacées par des lampes linéaires à flash, puis par des lampes à décharge. Par la suite, le développement et l'utilisation des diodes laser comme moyen de pompage optique fut une véritable révolution. Le premier laser solide pompé par diodes (5 diodes en GaAs en l'occurrence) fut réalisé en 1964 [Keyes 1964]. Dans le courant des années 70-80, de gros efforts furent faits pour réaliser des diodes de puissance fonctionnant à température ambiante. Ainsi l'utilisation pratique de ce procédé ne remonte qu'à une vingtaine d'années, une fois les diodes devenues assez puissantes et fiables à température ambiante pour envisager leur utilisation pour le pompage optique.

Les avantages du pompage par diodes laser sont nombreux : ce type de pompage augmente le rendement global : en effet, le rendement électrique-optique de la diode laser est très bon et avoisine les 50% (on peut par exemple comparer au rendement électrique optique de laser à gaz du type argon ionisé ou krypton ionisé, qui ont des rendements globaux de l'ordre de  $10^{-5}$  à  $10^{-4}$ ). Les diodes sont petites, légères et fonctionnent avec une alimentation de taille réduite : elles vont donc permettre de réaliser des systèmes plus compacts. Elles sont également fiables, robustes (durée de vie > 10000 heures) et nécessitent peu d'entretien.

De plus leur spectre d'émission est étroit (quelques nm) : toute la puissance est concentrée sur une plage de longueurs d'onde réduite. Si cette plage correspond aux pics d'absorption du matériau laser qui nous intéresse, une efficacité accrue est obtenue avec moins de problèmes thermiques. Mais il y a également des inconvénients : tout d'abord les diodes doivent être stabilisées en température, ce qui pratiquement nécessite un refroidissement, par exemple à l'aide d'un module à effet Peltier dans nos expériences. De plus, le choix des diodes de puissance est limité : comme on l'a vu précédemment, ces diodes ont une faible largeur spectrale : le choix en longueur d'onde est imposé par la nature du semi-conducteur (AlGaAs à 808 nm, soit InGaAs à 940/980 nm). Or actuellement, le marché des diodes de puissance est centré sur 808 nm pour les matériaux dopés Nd et 940-980 nm pour les matériaux dopés Yb. Ce point est important car cela est un frein à l'utilisation en pompage par diode direct de certains matériaux laser performants mais ayant des longueurs d'onde d'absorption différentes de 808 et 900-940 nm (comme le saphir dopé au titane par exemple qui nécessiterait des diodes de puissance émettant dans le bleu/vert et qui n'existent malheureusement pas actuellement). Pour le développement de la source que nous proposons, le pompage par diode apporte une avancée importante, puisque les sources lasers impulsionnelles à ces longueurs d'onde déjà développées utilisent jusqu'à présent un pompage par laser Ti:Saphir, avec un rendement global plus faible et un encombrement bien supérieur [Schlatter 2005].

## **II.3 – La cavité laser : travailler en régime impulsionnel**

### **II.3.1 – Le verrouillage des modes en phase**

Etant donné que nous développons un dispositif pour faire de l'imagerie de temps de vie de fluorescence dans le domaine temporel, nous devons construire un oscillateur laser impulsionnel. Intéressons nous donc maintenant aux différents régimes permettant ce type de fonctionnement. Ils sont au nombre de trois (figure 2-7) :

- ✓ le régime déclenché simple (ou « Q-switch »), constitué d'un voire quelques modes longitudinaux. Dans ce régime, on obtient des impulsions qui se forment à chaque fois en démarrant sur du bruit. Ces impulsions se construisent sur plusieurs allers et retours dans la cavité, et arrêtent d'osciller lorsque le milieu à gain est dépeuplé. La cadence des impulsions (généralement kHz) dépend ici du taux de pompage et les durées (de l'ordre de la ns) du temps de vie moyen du photon dans la cavité laser.
- ✓ le régime à verrouillage de modes en phase (ou ML pour « Mode-Locked »). Tous les modes se propagent en phase, chacun d'entre eux oscillant en régime continu. L'enveloppe du champ électrique est un peigne d'impulsions à la cadence  $c/2L$  (généralement autour de 100 MHz), avec  $L$  longueur optique de la cavité. La durée des impulsions (fs-ps) dépend ici du nombre de modes mis en jeu.
- ✓ le régime déclenché à verrouillage de modes en phase (ou QML pour « Q-switch Mode-Locked »). Comme son nom l'indique ce régime constitue la superposition des deux précédents : plusieurs modes se propagent en phase dans un régime déclenché. On observe alors un peigne d'impulsions de cadence  $c/2L$  modulé par le régime déclenché. Cette modulation entraîne de fortes variations de l'amplitude.

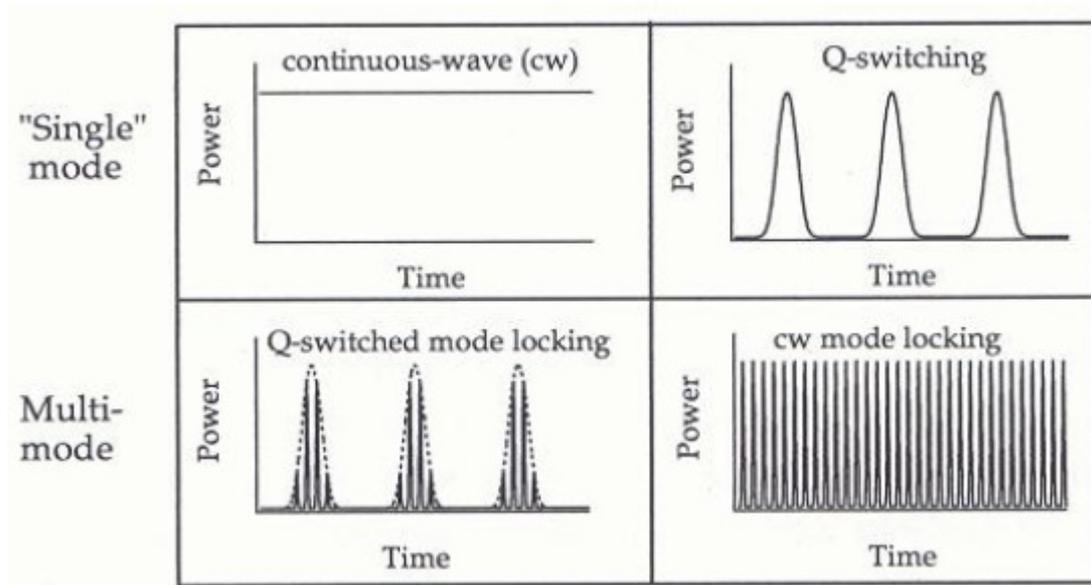


Figure 2-7 : les différents régimes de fonctionnement temporel d'un laser : continu, déclenché simple, déclenché à verrouillage de modes en phase, à verrouillage de modes en phase. [Keller 1996]

Pour notre application, nous souhaitons obtenir des impulsions courtes (sous la centaine de ps) avec une amplitude constante. Le régime de verrouillage des modes en phase (cw ML) semble par conséquent le plus adapté, et nous allons donc nous attarder sur lui. Lorsque plusieurs modes oscillent en phase, l'enveloppe de l'intensité du champ électrique total (somme du champ électrique des différents modes) forme des impulsions, à une cadence  $c/2L$ , avec  $L$  la longueur optique de la cavité (figure 2-8). La durée des impulsions dépend du nombre de modes en phase : plus ce nombre est important (i.e. plus le spectre est large), plus les impulsions sont courtes (figure 2-9). On peut noter que si les modes ne sont pas en phase, le signal obtenu est de type continu très bruité.

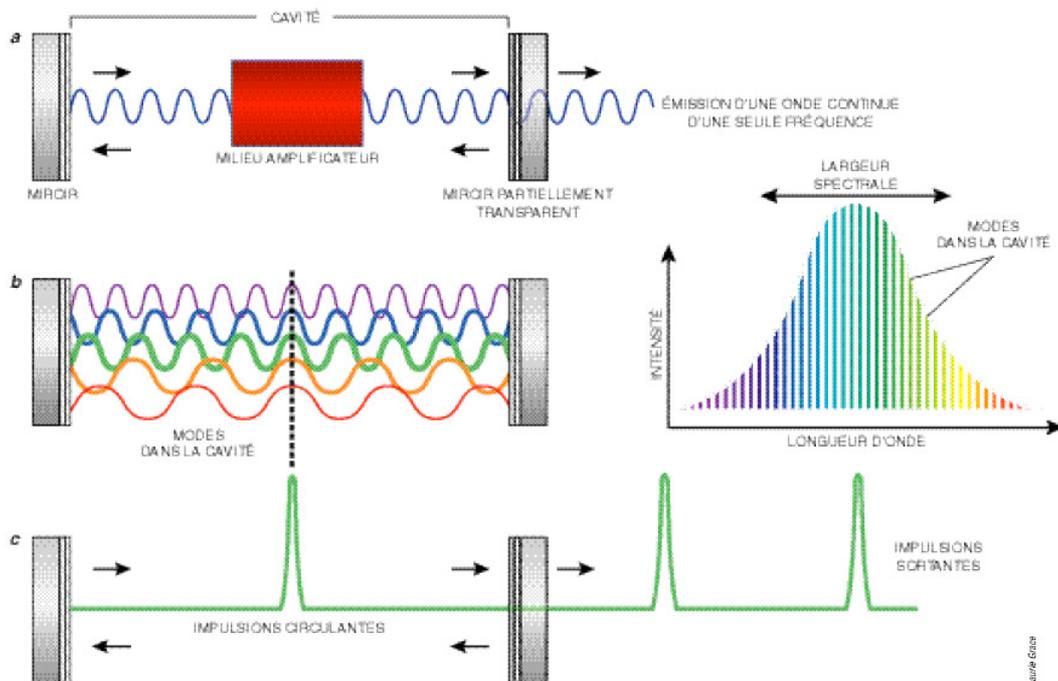


Figure 2-8 : explication du principe de verrouillage des modes en phase [Hopkins 2000].

Pour réaliser ce verrouillage des modes en phase, il faut utiliser un élément dans la cavité qui permette de synchroniser tous les modes en phase. Cet élément fait office de porte temporelle très rapide et favorise le train d'impulsions courtes vis-à-vis du régime continu. Pour obtenir ce régime, des techniques de verrouillage de modes dites actives ou passives sont utilisées. Le verrouillage de modes actif est obtenu en modulant les pertes ou le gain par une source externe contrôlée, soit par modulation d'amplitude, soit par modulation de fréquence ou de phase. Le verrouillage de modes passif est produit classiquement soit par un absorbant saturable bien choisi (en général à base de semi-conducteur), soit par l'effet Kerr optique (qui peut aussi être considéré comme un type d'absorbant saturable). Ces techniques de verrouillage de modes passif sont préférées pour la génération de trains d'impulsions ultracourtes essentiellement à cause de leur plus grande simplicité et fiabilité [Druon 2001], [Georges 2004], [Delsart 2008].

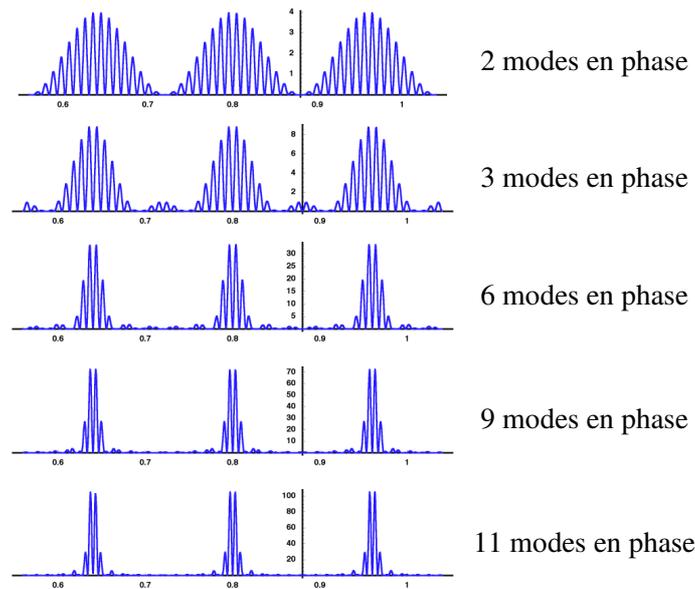


Figure 2-9 : enveloppe du champ électrique suivant le nombre de modes en phase.

Intéressons nous plus précisément au verrouillage de modes passif. Un tel verrouillage introduit de fortes pertes aux basses intensités et de faibles pertes aux hautes intensités (ce qui correspond à une mise en phase d'un certain nombre de modes). Il existe plusieurs méthodes de mise en phase des modes de manière passive [Hönninger 1999] : par exemple le verrouillage des modes par effet Kerr, basé sur une augmentation locale de l'indice de réfraction d'un matériau diélectrique avec les fortes intensités [Spence 1991], technique utilisée pour obtenir des impulsions fs dans les lasers basés sur des cristaux de saphir dopés au titane. Dans notre cas, nous souhaitons obtenir des impulsions ps, et pour cela, l'emploi d'autres techniques est nécessaire. Nous pouvons citer par exemple celle basée sur l'utilisation d'un cristal non linéaire doubleur. Dans cette méthode, les hautes intensités vont permettre une génération efficace de nouvelles longueurs d'onde dans le cristal non linéaire contrairement au régime continu. L'utilisation d'un miroir dichroïque [Stankov 1988], d'un polariseur [Couderc 1998] ou d'un processus de cascade [Zavelani-Rossi 1998] permet alors de réaliser la fonction d'absorbant saturable. Ainsi un tel processus induit de fortes pertes aux basses intensités et de faibles pertes aux hautes intensités et permet d'obtenir un verrouillage de modes en phase. Pour notre oscillateur, nous avons privilégié la technique de verrouillage de modes en phase par absorbant saturable rapide. Ce régime permet l'obtention d'impulsions picoseconde non limitées par la transformée de Fourier. Pour atteindre ce résultat, nous utilisons un miroir absorbant saturable à semi-conducteur (SESAM=Semiconductor Saturable Absorber Mirror) comme absorbant saturable rapide.

### II.3.2 – Le SESAM

Un SESAM est un dispositif contenant un absorbant saturable à semi-conducteur inséré entre deux miroirs. Le miroir de fond est un miroir de Bragg hautement réfléchissant alors que le miroir d'entrée n'est généralement constitué que par la réflectivité de Fresnel à l'interface air-semiconducteur (figure 2-10). Les SESAMs exhibent deux types de régimes suivant la fluence (qui quantifie l'énergie incidente par unité de surface) :

- en régime de fortes fluences laser (environ 10 fois la fluence de saturation du semi-conducteur, ce qui correspond au régime impulsif), l'absorbant va être saturé. La majeure partie de l'énergie de la cavité verra alors un absorbant blanchi et sera réfléchi dans la cavité par le miroir de Bragg, sans quasiment être absorbée,
- aux faibles fluences (inférieures à la fluence de saturation, ce qui correspond au régime continu), l'absorbant n'est pas saturé et absorbe plus d'énergie incidente, provoquant de la sorte plus de pertes.

Les SESAM ont cependant d'autres spécificités avantageuses. Les semi-conducteurs possèdent en effet des temps de recombinaison rapides et peuvent être élaborés en très fines couches facilement saturables. Ce sont de bons candidats pour postuler au rôle d'absorbants saturables rapides. De plus, l'utilisation de SESAM pour verrouiller les modes en phase possède d'autres avantages : en effet, le verrouillage de modes en phase est passif, il y a auto-initialisation du train d'impulsion et un alignement critique de la cavité n'est en général pas nécessaire [Keller 1996].

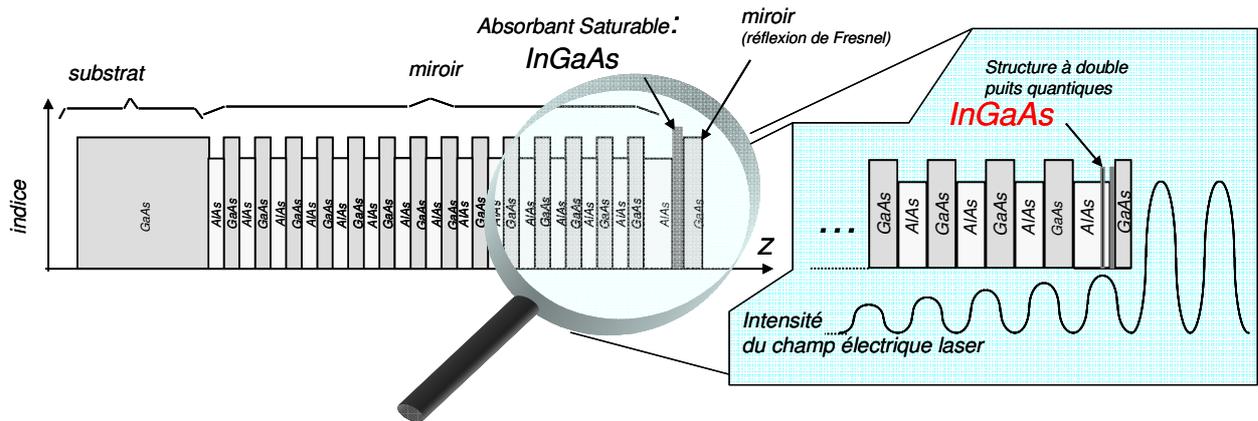


Figure 2-10: schéma d'un SESAM. On distingue les différents éléments : le substrat sur lequel on dépose les couches de semi-conducteur (AlAs/GaAs) du miroir de Bragg, l'absorbant saturable en InGaAs, et la couche de GaAs qui permet une réflexion de Fresnel [Druon 2001].

Physiquement, la lumière incidente va exciter les électrons de la bande de valence et les faire passer dans la bande de conduction (flèche bleue de la figure 2-11). A cause du principe d'exclusion de Pauli, quand tous les états de la bande de conduction seront occupés par des porteurs, notre absorbant sera « blanchi », c'est-à-dire que les photons qui arriveront alors traverseront le semi-conducteur sans être absorbés. La réponse temporelle du SESAM est ainsi définie par la dynamique des porteurs dans l'absorbant. On peut observer une première thermalisation des porteurs due à la diffusion électron-électron i.e. thermalisation intra-bande. Cela mène à une contribution rapide (environ 100 fs) dans la réponse temporelle (figure 2-11). Une seconde contribution plus longue (de l'ordre de la picoseconde à la nanoseconde) est aussi observée et est due aux recombinaisons inter-bandes. Elle peut se réaliser par l'intermédiaire d'une émission spontanée ou via des pièges et des défauts du matériau. Ainsi elle peut être accélérée en introduisant des impuretés dans la structure ce qui a pour conséquence de créer des

pièges entre la bande de conduction et la bande de valence [Keller 2006]. La réponse bi-temporelle de l'absorption est représentée sur la figure 2-11.

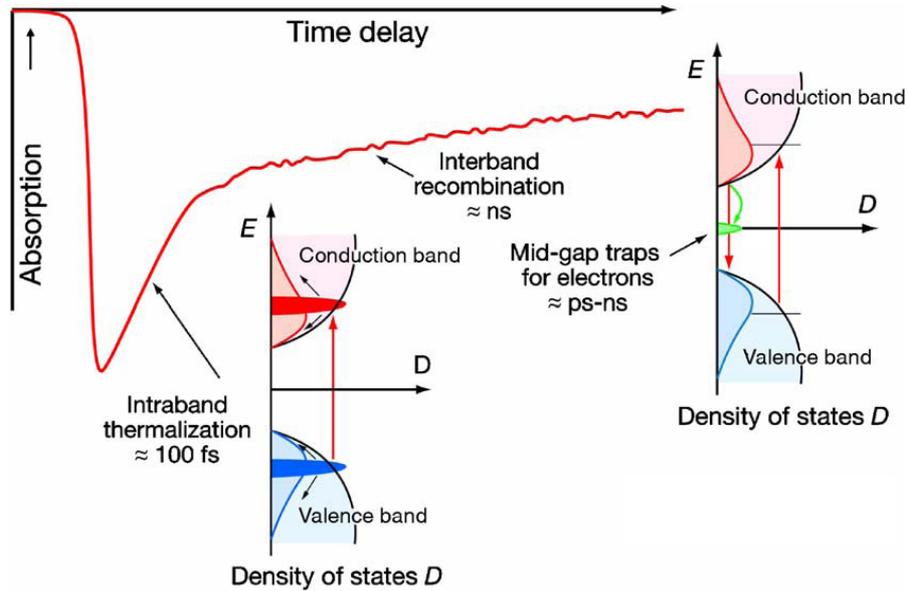


Figure 2-11 : réponse temporelle d'un SESAM. On distingue la thermalisation intra-bande rapide et la recombinaison inter-bandes, plus longue [Keller 2006].

Pour favoriser le régime verrouillé vis-à-vis du régime déclenché, il faut que notre absorbant saturable soit rapide : il doit être caractérisé par un temps de recouvrement de la saturation nettement inférieur au temps d'un aller et retour de l'impulsion dans la cavité. Comme nous voulons travailler à une cadence de quelques MHz (inférieure à 100 MHz), le temps d'un aller et retour de l'impulsion dans la cavité sera supérieur à 10 ns. Ainsi, nous pourrions utiliser un SESAM comme absorbant saturable rapide. Il est par ailleurs possible d'en ajuster les différents paramètres tels que : l'énergie de gap du semi-conducteur (un photon ne pourra être absorbé que si son énergie est supérieure au gap du matériau), la profondeur de modulation en variant l'épaisseur de l'absorbant ou le nombre de puits quantiques, et le temps de recombinaison inter-bandes en variant la température de croissance du matériau.

On caractérise les SESAMs en regardant la réflectivité en fonction de l'intensité de l'impulsion incidente. Ceci va nous révéler la fluence (ou intensité ou densité d'énergie) de saturation, la profondeur de modulation, et les pertes non-saturables (figure 2-12).

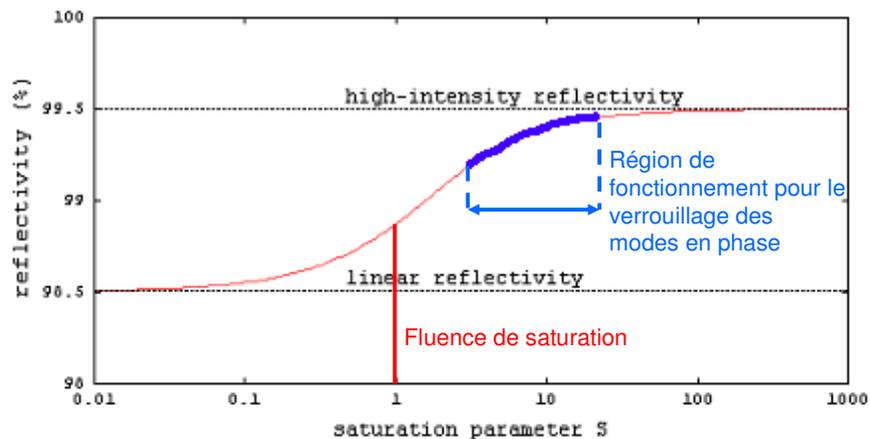


Figure 2-12 : exemple de réponse d'un absorbant saturable ayant une profondeur de modulation de 1% et des pertes non saturables de 0.5%. Le paramètre de saturation est normalisé à 1 pour la fluence de saturation du SESAM.

La profondeur de modulation mesure le changement maximum de réflectivité du dispositif. La fluence de saturation correspond à la fluence de l'impulsion nécessaire pour blanchir l'absorbant saturable à  $1/e$  de la profondeur de modulation. On voit sur la figure 2-12 que le régime optimum d'utilisation d'un SESAM se situe pour une fluence par impulsion de l'ordre de 10 fois celle de saturation du SESAM [Keller 1996]. Les pertes non-saturables incluent les pertes par diffusion à la surface de l'échantillon, les phénomènes d'absorptions résiduelles dans le semi-conducteur, et la transmission et l'absorption du miroir de Bragg.

Le miroir de Bragg sur lequel se trouve l'absorbant saturable est constitué d'un empilement d'une vingtaine de paires de couches d'AlAs/GaAs d'épaisseur optique  $\lambda/2$ . Les pertes par transmission au niveau du miroir décroissent avec un nombre croissant de couches. Ainsi pour un empilement de 25 paires de AlAs/GaAs, les pertes par transmission à la longueur d'onde  $\lambda$  sont inférieures à 0,1%. L'absorption dans les couches est également inférieure à 0,1%. Ce miroir de Bragg et le miroir d'entrée (qui peut être juste une interface air-semi-conducteur, une couche de GaAs par exemple ; le GaAs ayant un indice de 3,5, la réflexion de Fresnel vaut alors 30%), forment une cavité Fabry-Perot qui est ajustée à la condition d'anti-résonance pour la longueur d'onde de travail. Cette cavité va permettre à notre dispositif d'être large bande et d'avoir une faible dispersion (ces deux points sont importants en régime femtoseconde, mais beaucoup moins en régime picoseconde).

Après avoir présenté d'une manière théorique les éléments principaux qui constituent notre cavité et qui permettent de générer des impulsions picoseconde, penchons nous maintenant sur la réalisation expérimentale de notre oscillateur laser.

## II.4 – Réalisations expérimentales

### II.4.1 – La cavité

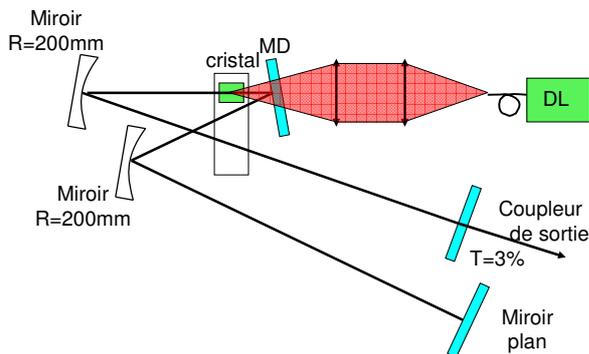


Figure 2-13: cavité impulsionnelle testée en continu. Ainsi le coupleur est à une extrémité et le miroir plan à l'autre extrémité. MD est le miroir dichroïque (HR à 914 nm, HT à 808 nm), DL est la diode laser.

La diode utilisée est une diode fibrée de puissance de la compagnie LIMO, vendue pour délivrer une puissance de 10 W à 808 nm en sortie de fibre. La fibre, quant à elle, a un diamètre de cœur de 100  $\mu\text{m}$ , et une ouverture numérique de 0,22 ce qui correspond à un  $M^2$  de 43 (ce facteur  $M^2$  caractérise, pour une direction donnée l'écart de divergence entre faisceau réel et faisceau gaussien de même taille au col mais limité par la diffraction. Une valeur de 1 correspond à un faisceau gaussien). Par le calcul, nous estimons alors la brillance à 840  $\text{kW}/\text{cm}^2/\text{sr}$ , ce qui est une valeur suffisante pour saturer l'absorption. En sortie de la fibre, le faisceau n'est pas polarisé.

Pour focaliser notre faisceau sur le cristal, nous utilisons deux doublets de focales respectives 50 mm et 80 mm et de diamètre 30 mm : ainsi, on va avoir un rayon de col (ou « waist ») de pompe sur le cristal de diamètre 160  $\mu\text{m}$ . On peut également évaluer la distance de Rayleigh :

$2z_0 = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda M^2} = 1,2 \text{ mm}$ . Ainsi ces optiques vont nous permettre de focaliser proprement dans le cristal.

Le cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> fourni par CASIX est dopé à 0,2% (ceci signifie que 0,2% des ions Y<sup>3+</sup> de la matrice cristalline sont remplacés par des ions Nd<sup>3+</sup>). Notre cristal a une longueur de 4 mm. Il est placé dans une monture en cuivre refroidie par eau. Ce refroidissement est indispensable pour diminuer la population thermique du niveau <sup>4</sup>I<sub>9/2</sub> et ainsi réduire la réabsorption dans le cristal.

Nous optimisons l'absorption dans le cristal en réglant la température de refroidissement de la diode et le courant d'alimentation. A 17°C et avec un courant de 25 A, le cristal absorbe 3,8 W sur les 6,7 W de puissance de pompe incidente.

Attardons nous ici sur un point essentiel de la réalisation de ce laser : le choix des miroirs. Comme nous l'avons vu précédemment, nous allons être fortement gênés par l'émission laser à 1064nm. Il va donc falloir nous débarrasser complètement de cette émission. Pour cela, on va utiliser des miroirs spécialement traités pour transmettre à 1064 nm et pour réfléchir à 914 nm. Ces miroirs nous sont fournis par la société Laseroptik. Pour le miroir dichroïque (MD), ils nous garantissent une transmission à 808 nm (pour la pompe) supérieure à 90% et une réflexion à 914 nm supérieure à 99,9%. Pour les différents miroirs concaves utilisés dans nos différentes cavités, ils assurent une transmission à 1064 nm supérieure à 74% et une réflexion à 914 nm supérieure à 99,9%.

La première étape consiste à construire une cavité laser à double bras collimaté. En effet, le problème est que le SESAM et le coupleur de sortie doivent être chacun en fond de cavité. On réalise une telle cavité laser, et on l'optimise en régime continu (figure 2-13). Au niveau des distances, on a la même distance entre le cristal et chacun des deux miroirs concaves (107 mm). Entre le deuxième miroir concave et le miroir plan, on a environ 500 mm. A une puissance de pompe incidente de 6,7 W, nous obtenons une puissance de sortie supérieure à 650 mW. Pour obtenir le régime impulsif, nous devons utiliser un miroir concave pour focaliser sur le SESAM, et ainsi augmenter la fluence incidente. La dernière étape de réglage du laser en continu consiste à remplacer le miroir plan de fond de la cavité précédente par un miroir concave qui focalise sur un miroir plan, qui se situe en lieu et place du SESAM. La puissance en sortie est légèrement supérieure à 600 mW. On est donc prêt à passer en régime impulsif...

D'un point de vue pratique, on va placer le miroir plan de la cavité précédente dans une monture « flip-flap », ou escamotable. Ainsi l'alignement de la sous-cavité composée du miroir concave et du SESAM pourra se faire à l'aide du faisceau laser de la cavité continue. La cavité ainsi obtenue est représentée figure 2-14.

Nous disposons de deux SESAMs commerciaux (Batop GmbH) ayant des absorptions de 4% et 2% à 940 nm. Ce sont les seuls SESAMs commercialisés à l'heure actuelle dans cette gamme de longueurs d'onde, mais en travaillant à 914 nm, nous sommes en bord de bande.

Les pertes induites par le SESAM à cette longueur d'onde étant assez importantes, nous ne réussissons à obtenir un régime de verrouillage des modes en phase stable avec une puissance convenable en sortie qu'avec le SESAM avec une absorption de 2% (voir annexe 1) et le miroir de focale 100 mm. La puissance moyenne obtenue est alors de 86 mW. Dans ces conditions, nous estimons (grâce au logiciel PARAXIA de simulation de faisceau laser dans une cavité) que le faisceau laser sur le SESAM a un rayon de 30  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à une fluence de 1,08 mJ/cm<sup>2</sup>, soit 15 fois la fluence de saturation du SESAM.

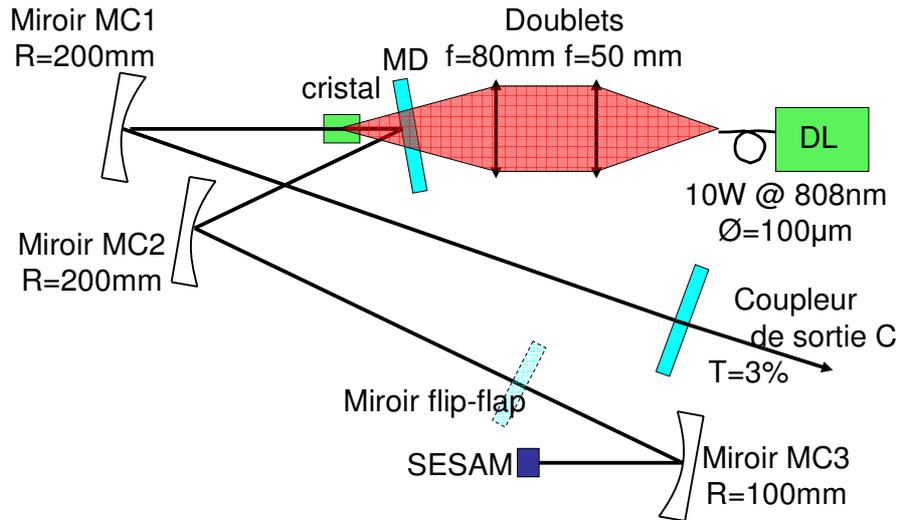


Figure 2-14 : schéma de la cavité en régime impulsif. Distances : C-MC1=600mm, MC1-cristal=105mm, Cristal-MD=20mm, MD-MC2=85mm, MC2-MC3=700mm. Dans notre cavité « optimale », MC3 a un rayon de courbure de 100mm, donc le SESAM est placé à 50mm du miroir.

Nous obtenons le verrouillage uniquement pour une puissance de sortie comprise entre 85 et 87 mW. Ainsi, si on augmente la puissance de pompe absorbée par le cristal laser, on perd le verrouillage. En re-réglant la cavité, on peut à nouveau l'obtenir, mais avec une puissance de sortie qui sera la même que précédemment. Par contre, lorsque l'on va diminuer la puissance en pompant moins, on va passer en régime déclenché à verrouillage de modes en phase et perdre définitivement le régime à verrouillage des modes en phase pur. Mais une fois obtenu, le « mode-locked » régime est stable : le verrouillage tient largement plusieurs heures. Il n'est pas parasité par un régime déclenché, comme on peut l'observer sur la figure 2-15.

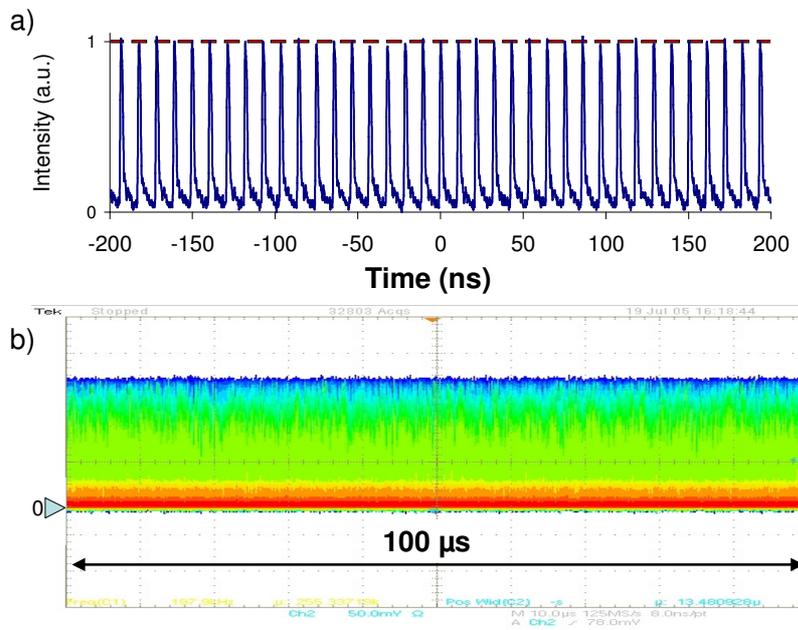


Figure 2-15: train d'impulsions observé avec deux échelles de temps différentes : 400 ns pour a) et 100µs pour b). On voit bien que sur une échelle de temps assez grande de 100µs (>>10ps), notre train d'impulsion n'est absolument pas modulé par un régime déclenché ; il est stable. On remarque également qu'il n'y a pas de composante continue.

## II.4.2 – Les performances

### II.4.2.1 - Caractérisation spectrale

Grâce à un analyseur de spectre optique, nous enregistrons le spectre, pour obtenir précisément la longueur d'onde d'émission, la largeur spectrale des impulsions et également pour vérifier que l'on s'affranchit bien de l'effet laser à 1064 nm.

Nous avons dans un premier temps réalisé un spectrogramme sur une large gamme afin d'observer le spectre de 900 à 1100 nm (figure 2-16). On remarque que le seul pic laser que nous obtenons se situe aux alentours de 914 nm. On a donc bien réussi à supprimer l'effet laser à 1064 nm.

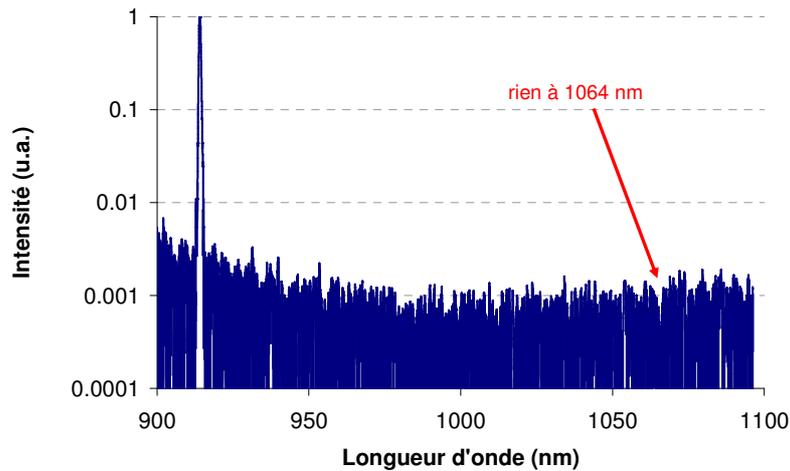


Figure 2-16 : Spectre élargi qui témoigne de l'absence d'effet laser à 1064 nm.

Ensuite nous avons réduit la gamme spectrale pour observer plus en détail la raie à 914 nm (la résolution de l'analyseur de spectre optique est de 0,07 nm). Comme le montre la figure 2-17, nous avons un spectre qui fait 0,26 nm de large et qui est centré à 913,8 nm. Pour comparaison on a aussi tracé le spectre en régime continu.

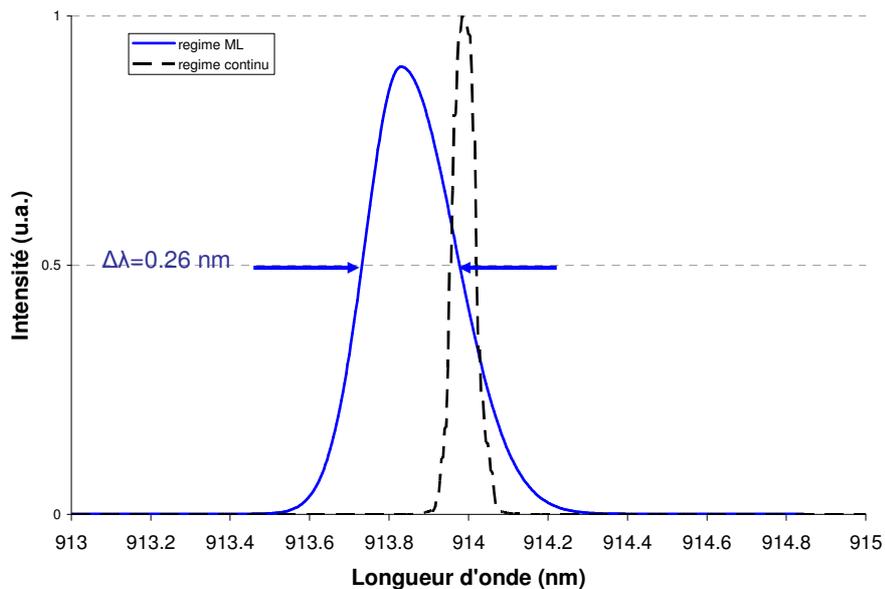


Figure 2-17 : Spectre optique des impulsions à 913,8 nm (courbe bleue) et spectre du régime continu naturel à 914nm (courbe en pointillés).

On notera deux choses : en régime impulsionnel, la largeur spectrale est plus importante : en effet c'est cet élargissement qui nous permet d'atteindre le régime picoseconde. On remarque également un léger décalage de la longueur d'onde centrale, sans pouvoir cependant apporter d'explication pertinente.

En supposant que les impulsions présentent un profil temporel en sécante hyperbolique au carré, comme c'est le cas usuellement pour des impulsions ultra-courtes, on obtient un produit [durée d'impulsion]×[largeur spectrale] qui vaut 0,315 lorsque l'on est limité par la transformée de Fourier. Si c'était le cas ici, vu la largeur spectrale des impulsions, on s'attendrait à avoir des durées d'impulsions de 3,3 ps. Regardons ce qu'il en est réellement.

#### II.4.2.2 – Caractérisation temporelle

Pour les caractéristiques sur une grande échelle temporelle on a utilisé une photodiode et un oscilloscope rapide (l'ensemble avait une bande passante de 3 GHz). Nous avons mesuré une cadence de 94 MHz pour un train en régime de verrouillage des modes en phase stable et sans composante continue (figure 2-15).

Pour la mesure de la durée des impulsions notre photodiode et l'oscilloscope rapide sont trop lents (réponse percussive  $\approx 200$  ps). Il faut donc utiliser un autocorrélateur optique pour les mesurer. Nous avons donc réalisé une autocorrélation optique en intensité (par génération de second harmonique) (voir annexe 2). Cette mesure est simple, mais elle ne fournit pas d'informations sur la phase des impulsions (distorsions, disymétries des impulsions, dérive de fréquence). Pour obtenir plus d'informations, il faudrait faire par exemple une autocorrélation croisée avec une autre impulsion très courte à même cadence ou encore mieux, disposer de techniques plus performantes comme la technique FROG (Frequency Resolved Optical Gating) [Trebino 1993].

En ajustant l'autocorrélation pour une impulsion de forme sécante hyperbolique carrée (et en tenant compte du facteur correctif 1,54 qui intervient pour un tel ajustement), nous obtenons des impulsions de durées égales à 8,8 ps (figure 2-18).

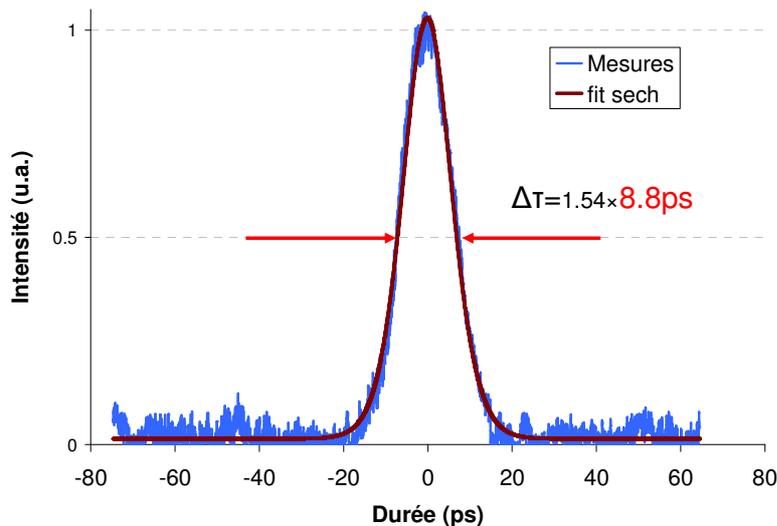


Figure 2-18 : signal d'autocorrélation des impulsions obtenu. En utilisant un ajustement par une sécante hyperbolique au carré, nous obtenons une durée de 8.8ps.

Ayant la durée des impulsions et la largeur du spectre, nous pouvons calculer le produit durée d'impulsion-largeur spectrale expérimentalement obtenu, qui nous donne une valeur de 0,82, ce

qui est 2,6 fois la limite de la transformée de Fourier pour une sécante hyperbolique au carré (qui vaut alors 0,315). Nous ne sommes pas étonnés d'avoir une valeur plus de 2 fois supérieure puisque nous n'avons nullement cherché à compenser la dispersion de vitesse de groupe dans notre cavité.

## **II.5 - Conclusion**

Pour commencer, le laser obtenu nous satisfait quant aux exigences formulées. En effet, nous avons des impulsions de 8.8 ps à une longueur d'onde de 913.8 nm comme souhaité. La cadence est légèrement haute avec 94 MHz, mais ceci n'apparaît pas comme un problème essentiel : en effet, nous savons que pour obtenir une cadence plus basse, il faut augmenter la longueur optique de la cavité. Ainsi, nous avons réalisé le premier laser impulsionnel à verrouillage de modes en phase passif obtenu grâce à un SESAM à 914 nm, ce qui nous a permis de publier ces résultats [Blandin 2006]. Nous pouvons toutefois noter que le réglage de notre cavité est très critique. En effet, notre système est stable, mais uniquement une fois réglé. Il est nécessaire de réajuster l'alignement à chaque allumage et notre laser passe en régime déclenché à la moindre légère perte de puissance due au désalignement du laser. (On pense que ces problèmes sont dus principalement aux SESAMs utilisés, qui sont d'une qualité moyenne et spécifiés pour travailler plutôt à 940 nm). De plus, la puissance moyenne obtenue 85 mW est assez décevante.

Ceci étant, en tant que premier élément du dispositif d'excitation de la fluorescence, cette source connaît certaines limitations rhédibitoires. Les problèmes majeurs résident dans la petite zone de stabilité de la cavité et dans la puissance de sortie qui est relativement faible. Dans ces conditions, augmenter la longueur de la cavité, et par conséquent augmenter les pertes, pour diminuer la cadence paraît plus que délicat. De plus, comme nous voulons exploiter le faisceau en sortie du laser pour générer de nouvelles longueurs d'ondes par effets non linéaires une puissance proche de 1W semble un minimum. Il nous faudrait donc gagner un facteur au moins 10 sur la puissance, ce qui est compliqué...

## **II.6 – Solution retenue, présentation de la source picoseconde basse cadence**

Ces considérations nous amènent à revoir la solution que nous avons initialement choisie. L'utilisation d'une source impulsionnelle pompée par diode émettant autour de 900-950 nm ne présente pas les garanties escomptées, et le travail nécessaire pour atteindre les performances souhaitées semble considérable. Aussi, nous avons décidé d'utiliser une source laser (développée et améliorée durant ces dernières années au laboratoire) émettant à 1064 nm et qui a déjà été confrontée avec succès à la mesure de durée de vie de fluorescence. Nous la présentons ci-dessous.

Comme tous les lasers développés dans l'équipe, ce laser possède un milieu à gain solide (un cristal de Nd:YVO<sub>4</sub>) et est pompé par diode. Le verrouillage des modes en phase était initialement obtenu grâce à un SESAM. La particularité de cet oscillateur est son faible taux de répétition. En effet, en développant une cavité multi-passage de 2m, dans laquelle le faisceau réalisait une cinquantaine d'allers et retours, mes prédécesseurs [Papadopoulos 2003] obtinrent une cadence extrêmement basse de 1,2 MHz, ce qui correspond à une longueur totale de cavité de 121 m. Les impulsions à 1064 nm avaient une largeur à mi-hauteur de 16,3 ps, et la puissance moyenne obtenue était de 470 mW. Ce laser fut utilisé à une cadence un peu plus élevée et plus optimale de 3,7 MHz (en réalisant moins d'allers et retours dans la cavité) pour mesurer des temps de vie de fluorescence pouvant aller jusqu'à 80 ns [Lévêque-Fort 2005]. Plus récemment, ce laser a encore été amélioré pour gagner en stabilité. Une technique originale de double verrouillage des modes en phase, basée sur l'utilisation à la fois d'un SESAM, mais aussi de la rotation de polarisation quadratique grâce à un cristal non linéaire [Couderc 1998], lui a conféré une stabilité encore plus grande [Gerhard 2006] (figure 2-19). Le lecteur intéressé pourra se reporter à l'article présentant précisément la source en annexe 3. Nous allons nous contenter ici de rapporter les principales caractéristiques de l'oscillateur.

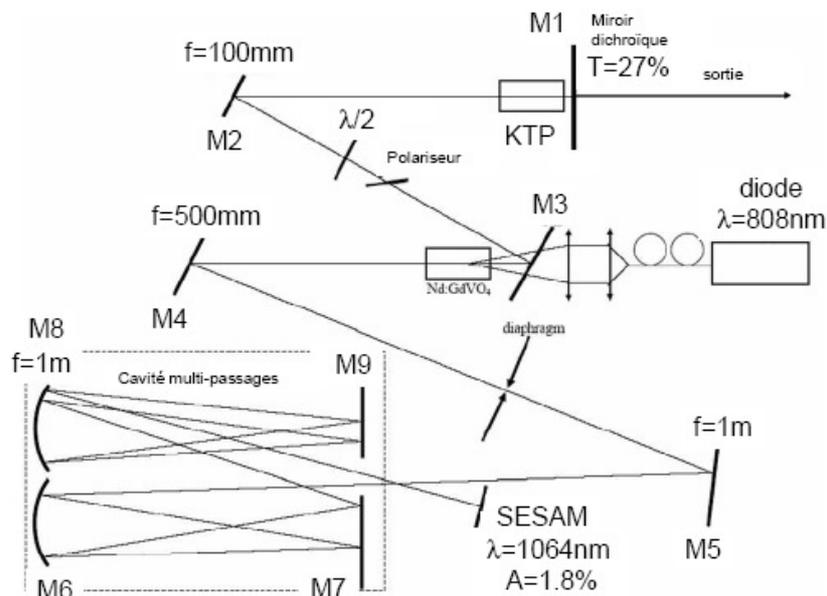


Figure 2-19 : schéma de la source ps basse cadence [Gerhard 2006].

Pour nos expériences, la source est utilisée avec un cristal Nd:YVO<sub>4</sub> de 10 mm de long dopé à 0,1% qui émet à 1064 nm. Le pompage optique est réalisé grâce à une diode fibrée de 400 μm de cœur, émettant une puissance de 30 W à 808 nm. Cet oscillateur délivre des trains d'impulsions de 15 ps à une cadence de 4 MHz. La puissance moyenne en sortie d'oscillateur est de 1,5 W, ce qui correspond à une énergie de 0,38 μJ par impulsion. Un amplificateur basé également sur un cristal de Nd:YVO<sub>4</sub> a été ajouté pour avoir accès à des énergies plus importantes. Il est constitué d'un cristal de 10 mm de long dopé à 0,1%, et pompé par une diode fibrée avec un cœur de 400 μm et délivrant une puissance pouvant atteindre 30 W (figure 2-20).

A la sortie de l'amplificateur, la puissance moyenne du faisceau infrarouge est de 4,5 W, correspondant à une puissance crête de 75 kW (soit 1,13 μJ par impulsion), avec une bonne qualité spatiale ( $M^2 = 1,3$ ).