CHAPITIRE III

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

ı

u.

II.1. INTRODUCTION ETUDE DU COMPORTEMENT DE LA CAVITE LINEAIRE

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

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



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

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



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

Nous avons donc décidé de placer un système de prismes dans la cavité linéaire [figure 27]. En se basant sur les calculs du paragraphe I.3.3.3., il nous a semblé préférable d'utiliser des prismes d'indice élevé. Ce choix permet de diminuer la distance L entre les prismes et de réduire ainsi l'encombrement du sytème. Les prismes utilisés sont taillés dans un verre du type FED D 4028 de

Sovirel (indice 1,73 pour $\lambda = 620$ nm). Alors qu'avec des prismes en silice, la distance entre les prismes pour un oscillateur femtoseconde est de 310 mm environ, les prismes FED D 4028 permettent de réduire la distance L à 100 mm. Afin de diminuer au maximum les pertes intracavité,

les prismes sont taillés pour l'incidence de Brewster et l'angle des prismes ($\alpha = 60^{\circ}$) est choisi pour correspondre également au minimum de déviation. Les deux jets de colorants étant horizontaux, le faisceau est polarisé verticalement (polarisation p), il faut donc placer les prismes dans un plan vertical. Le milieu amplificateur est la Rhodamine 6G et l'absorbant saturable le DODCI, couple de colorants organiques ayant donné jusqu'alors les meilleurs résultats.



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

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

On sait par ailleurs que plus la saturation de l'absorbant saturable est importante, plus le laser est stable [3-5]. Plusieurs expériences [44] ont montré qu'en plaçant l'absorbant saturable à une extrémité de la cavité [figure 28], il était possible de produire des impulsions plus courtes. L'explication est la suivante : l'impulsion interfère avec sa propre réflexion dans l'absorbant saturable, y augmente le champ électrique, et donc le sature davantage. Pour optimiser cet effet, Fork et coll. [45] ont fermé une cavité linéaire pour la transformer en cavité en anneau [Figure29]. Dans ce cas, il y a deux impulsions qui naissent sur un pic de bruit dans l'absorbant saturable et se propagent en sens inverse dans la cavité. Elles interfèrent dans l'absorbant saturable et y créent une onde stationnaire. Aux ventres de l'onde, l'intensité est maximale, sature totalement l'absorbant et minimise les pertes. Aux noeuds de l'onde, l'absorbant n'est pas saturé, mais le champ électrique étant minimum, les pertes le sont également.



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



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

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

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

II.2. TRANSFORMATION DE LA CAVITE EN ANNEAU

La figure 30 montre le schéma de la cavité en anneau réalisée sur la base du laser modèle 702.

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



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

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



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

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

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

sont plus longues (~1 ps) et l'autocorrélation est très bruiteuse.

L'instabilité en énergie semble provenir d'un problème de gain dans le milieu amplificateur. Celui-ci ne semble pas identique pour les deux impulsions qui circulent dans la cavité. Pour un bon fonctionnement il faudrait qu'elles soient amplifiées de la même manière afin qu'il n'y ait pas une impulsion prépondérante dans la cavité. Etant pompé en continu, il faut environ 4 ns à la Rh 6G pour que le gain se rétablisse à sa valeur initiale après le passage de l'impulsion. Etant donné qu'il y a deux impulsions dans la cavité, elles doivent donc arriver dans le milieu amplificateur séparées temporellement par plus de 4 ns. Le temps de parcours T₀ dans la cavité de longueur L doit alors être supérieur à 8 ns [48]. S'il est inférieur à 8 ns, la distance milieu amplificateur-absorbant saturable doit être égale à L/4. Les deux impulsions arrivent alors dans le milieu amplificateur espacées de T₀/2 et voient donc un même état du milieu amplificateur [figure 32]. Dans notre laser, la longueur de la cavité vaut 2 m ce qui correspond à un temps de parcours T₀ = 6,5 ns.



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

Nous avons fait varier la distance milieu amplificateur-absorbant saturable d'une valeur bien inférieure à L/4 à une valeur bien supérieure. Nous avons constaté que l'une puis l'autre des voies s'arrêtait, démontrant bien que l'instabilité était due à un problème de recouvrement du gain dans la Rh6G.

Des études menées au Laboratoire d'Optique Appliquée de Palaiseau [49] ont montré que pour des temps de parcours dans la cavité inférieurs à 8 ns, le positionnement de l'absorbant saturable par rapport au milieu amplificateur est très critique et qu'un désaccord de quelques dizaines de microns suffit à arrêter une des deux voies du laser. Afin d'éviter un réglage délicat et étant donné que le choix du colorant impose le temps de rétablissement du gain, il faudra augmenter la longueur de la cavité.

Deux solutions sont possibles :

- conserver le barreau d'Invar actuel et introduire un repli avec deux miroirs supplémentaires [figure 33];

- ou conserver la structure actuelle à 6 miroirs mais augmenter la longueur du barreau d'Invar.



Figure 33 : Schéma de la cavité en anneau à 8 miroirs allongée grâce à un repli.

Les deux solutions ont été testées (pour des temps de parcours dans la cavité de 9 ns environ) et se sont avérées concluantes. Les deux trains d'impulsions sont très stables et une modification de la position du jet d'absorbant saturable de quelques centimètres autour de L/4 n'entraine aucune modification sur l'une ou l'autre des voies. Cela prouve bien qu'on est au-dessus de la valeur nécessaire à une bonne stabilité et à un alignement non critique.

Parmi ces deux solutions, celle qui a été retenue est l'allongement du barreau car cela permet de conserver un schéma de cavité simple, contrairement à la solution du repli qui complique les réglages et augmente le nombre de miroirs. De plus, le système de prismes ne compense la

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

Le problème de la stabilité ayant été résolu, il reste à analyser pourquoi le laser produit des impulsions aussi longues. Tout d'abord, précisons que la largeur Δv du spectre des impulsions de durée $\Delta t = 300$ fs obtenues vaut environ 2 nm. Ceci conduit à un produit Δt . $\Delta v = 0.4$ proche de la valeur théorique 0.315 pour une impulsion dont le profil temporel est en sécante hyperbolique. Les impulsions sont donc proches de la limite imposée par Fourier. Il n'y a pas de modulation importante et pas d'espoir d'obtenir des impulsions beaucoup plus courtes en ajustant la phase des impulsions à l'extérieur de la cavité (avec un deuxième système de prismes par exemple). Il apparait donc que les impulsions obtenues ont un spectre trop étroit. La question est donc de savoir si dans la cavité, il existe un (ou plusieurs) élément(s) responsable(s) de cette limitation. Nous nous sommes intéressés au système de prismes de haut haut indice de réfraction car c'est le principal élément qui agit sur la phase des impulsions.

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

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

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

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

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

Si ρ est le chemin optique dans les prismes :

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

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

(2.3)
$$\left(\frac{\partial^3 \varphi}{\partial \omega}\right)_{\omega = \omega_{\rm L}} = \frac{2\lambda_{\rm o}^4}{\pi c^3} 3L \left(n'_{\rm o}^2 + \lambda_{\rm o} \left[n'_{\rm o} n''_{\rm o} + n'_{\rm o}^3 \left[2n_{\rm o} - \frac{1}{n_{\rm o}^3}\right]\right]\right)$$

$$-e\left[\frac{n_{o}}{1+n_{o}^{2}}\left(3n''_{o}+\lambda_{o}n''_{o}\right)+3\left(1-\frac{1}{n_{o}^{2}+n_{o}^{4}}\right)\left(n'_{o}^{2}+\lambda_{o}n'_{o}n''_{o}\right)+3\lambda_{o}n'_{o}^{3}\left(2n_{o}-\frac{1}{n_{o}^{4}}+\frac{1}{n_{o}^{5}}\right)\right].$$

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



Figure 34 : Valeur de $(\partial^3 \phi / \partial \omega^3)$. $\Delta \omega / 3$ (en fs²) en fonction de l'indice du verre utilisé $(\partial^2 \phi / \partial \omega^2 \text{ est constant}).$

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

Il est très difficile d'évaluer l'influence de l'ordre 3 sur le fonctionnement du laser et en particulier sur la durée des impulsions. Toutefois, on peut montrer qu'en présence d'ordre 3 les impulsions s'élargissaient temporellement et présentaient des rebonds [figure 35] néfastes à la production d'impulsions courtes. D'autre part nous avons récemment pu déterminer que les impulsions les plus courtes sont produites lorsque la dispersion d'ordre deux de la cavité est nulle (à 5 fs² près) [50]. Il ne faut donc pas utiliser des prismes qui introduisent de la dispersion d'ordre 3 trop importante. Les considérations précédentes relatives à l'influence de l'ordre 3 nous ont amené à tester dans le laser plusieurs types de prismes d'indices différents afin de rechercher un compromis encombrement-durée des impulsions.



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

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

type de verre Sovirel	indice	Distance entre prisme (cm)	φ'''.Δω/3 en fs2
FED D 4028	1,73	10	12,2
FED C 9930	1,69	12	10,4
FD C 2036	1,61	15	6,8
FC A 6365 (silice)	1,46	31	1,5

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

 d'ordre 2 est la même.

Pour chaque type de verre, nous avons ajusté la distance entre les deux premiers prismes afin d'introduire une dispersion d'ordre 2 constante. Malheureusement, les prismes d'indice élevé donnent tous le même résultat expérimental. Il est impossible d'obtenir des impulsions stables de durée inférieure à 300 fs. En ajustant finement les paramètres de la cavité, on a réussi à diminuer la durée des impulsions jusqu'à 200-300 fs, mais celles-ci n'étaient pas stables. Nous étions à l'extrême limite du changement de régime de fonctionnement instable décrit plus haut. Il faut remarquer que c'était la première fois, à notre connaissance, qu'une équipe tentait d'utiliser des prismes d'indice élevé dans une cavité laser pour compenser la dispersion et produire des impulsions courtes. Ces tests n'ont malheureusement pas eut le succès éscompté et nous avons donc été obligé d'utiliser des prismes en silice comme dans tous les autres lasers femtosecondes. Avec ceux-ci le laser a produit des impulsions de 100 fs stables sans problème particulier.

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

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

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

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

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

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

La structure finale de la cavité qui a été choisie est une cavité en anneau à 6 miroirs [figure 36]. L'ensemble des montures de miroirs est fixé sur un barreau d'INVAR de 130 cm environ. Les miroirs sphériques de la cavité amplificatrice (M_1, M_2) ont un rayon de courbure de 150 mm et ceux de la cavité de l'absorbant saturable (M_4, M_5) ont un rayon de courbure de 50 mm. Les miroirs M₃ et M₆ sont plans. A l'exception du miroir de sortie M₆, tous les miroirs de la cavité (M_1-M_5) sont revêtus d'un traitement multidiélectrique "mono-empilement". Leur réflexion à l'incidence normale est centrée sur 620 nm. Le miroir de sortie a une transmission de 2 % entre 590 et 700 nm (ce miroir est un miroir de sortie d'un laser à colorant continu de COHERENT).



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

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

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

L'angle des prismes en silice est de 68°40' correspondant pour 620 nm, à la fois au minimum de déviation et à l'incidence de Brewster. Les jets de colorant étant horizontaux, les prismes sont placés dans un plan vertical, la distance D entre les prismes étant de 310 mm. Chaque prisme est monté sur un support permettant un positionnement fin dans le plan du laser ainsi qu'un ajustement précis de l'angle de Brewster. La quantité de verre traversée dans les prismes est contrôlée grâce à une translation perpendiculaire à la base du prisme afin de ne pas modifier l'alignement géométrique de la cavité. Le prisme P3 est monté sur une double translation XY permettant d'égaliser finement la distance P1- P2 avec la distance P3- P4 et d'avoir ainsi un système parfaitement achromatique. La longueur totale de la cavité est de 3 mètres environ correspondant à un taux de répétition des impulsions de 100 MHz. Le laser à Argon de pompe est focalisé dans le jet de Rhodamine 6G à l'aide d'un miroir de 100 mm de rayon de courbure dont la réflexion est maximale pour les deux principales raies d'émission de l'argon (488 et 514 nm).

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

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

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



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

Soit un faisceau laser oscillant sur un mode transverse fondamental (TEM₀₀) caractérisé par une répartition spatiale gaussienne de l'énergie et défini à partir du diamètre minimal W_0 (appelé waist) en fonction de la distance z du waist par :

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

La divergence θ du faisceau est définie par :

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

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

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

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

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

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

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

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

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

qui permet de calculer l'image d'un rayon caractérisé par sa position X_1 et son angle d'incidence θ_1 par rapport à l'axe du système optique grâce à la relation :

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

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

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

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

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

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

$$\binom{1 L/n}{0 1}.$$

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

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

$$q = \frac{Aq + B}{Cq + D}$$

soit :

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



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

A l'aide de cette relation nous pouvons déterminer les caractéristiques des faisceaux dans la cavité en fonction de ses paramètres. En particulier, il est très important de connaitre les tailles des faisceaux dans les deux jets de colorants. Nous avons donc déterminé ces deux grandeurs en fonction des deux paramètres importants de la cavité à savoir: la distance M1-M2 (L₁) et la distance M4-M5 (L₂). Nous avons adopté plusieurs hypothèses pour simplifier les calculs. les miroirs sphériques, travaillant hors de l'axe, introduisent de l'astigmatisme sur le faisceau. Cette aberration a été négligée car l'angle d'incidence est faible. De même, si l'on ne considère pas les problèmes de chromatisme, le système de prismes est équivalent à une lame à faces planes et parallèles.

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

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



Figure 39 : Evolution du diametre du waist sur le jet de Rh 6G (L1 varie de 77 à 72,5 mm).



Diametre du waist sur le jet de DODCI

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