

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Or :

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

Avec :

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

on obtient :

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

ou :

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

ou encore :

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

On pose :

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

d'où finalement :

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

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

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

soit :

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

avec :

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

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

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

soit :

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

On pose alors :

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

d'où :

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

En notant que :

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

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

A étant complexe, on a :

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

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

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

Or :

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

d'où finalement :

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

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

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

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

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

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

ou :

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

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

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

Sa fréquence instantanée vaut :

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

d'où :

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

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

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

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

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

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

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

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

donc :

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

d'où :

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

de même, on calcule que :

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

Or, pour le matériau considéré :

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

d'où :

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

et donc :

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

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

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

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

et donc :

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

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

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

avec :

$n_0$  : indice de réfraction linéaire du solvant,

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

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

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

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

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

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

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

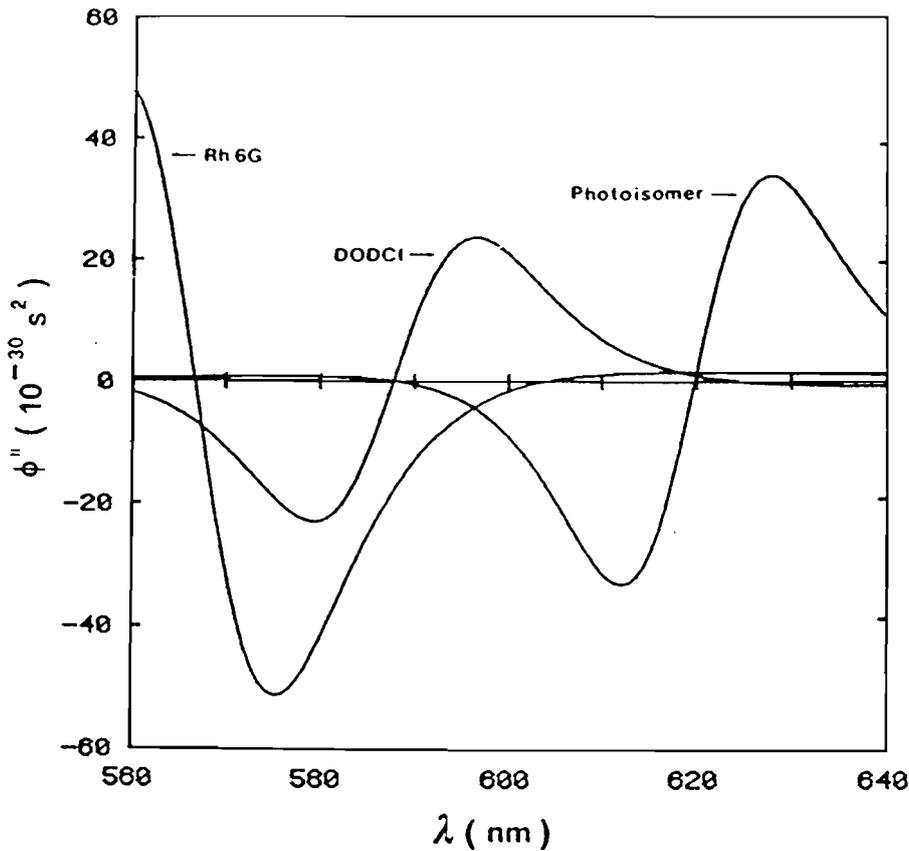


Figure 16 : Dispersion d'ordre 2 ( $\phi''$ ) de la Rhodamine 6G, de DODCI et de son photoisomère tiré de la référence [21].

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

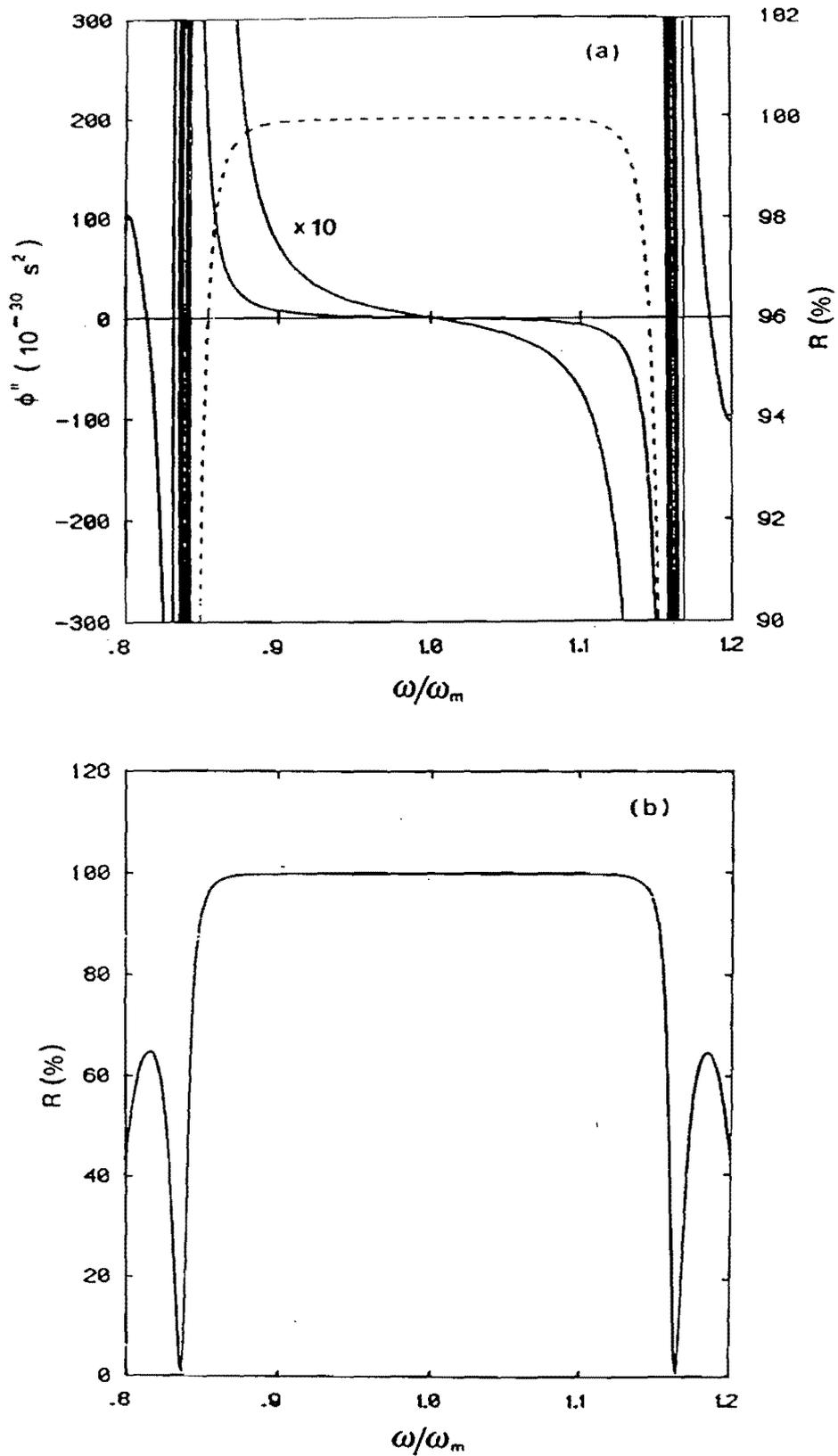


Figure 17 : Coefficient de réflexion (b) et dispersion de groupe ( $\phi''$ ) en fonction de  $\omega/\omega_m$ . Le miroir est constitué de 23 couches de haut ( $n_H = 2,28$ ) et bas ( $n_B = 1,45$ ) indice de réfraction d'après [21].

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

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

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

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

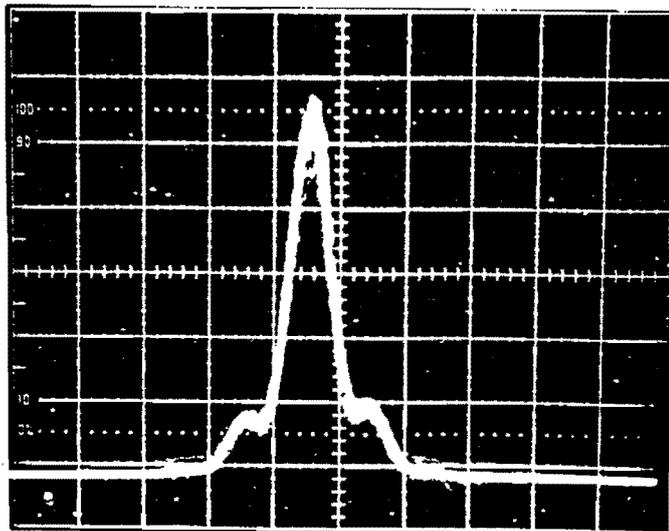


Figure 18 : Autocorrélation d'une impulsion de 60 fs après réflexion sur un miroir présentant de la dispersion de vitesse de groupe importante.

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

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

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

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

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

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

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

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

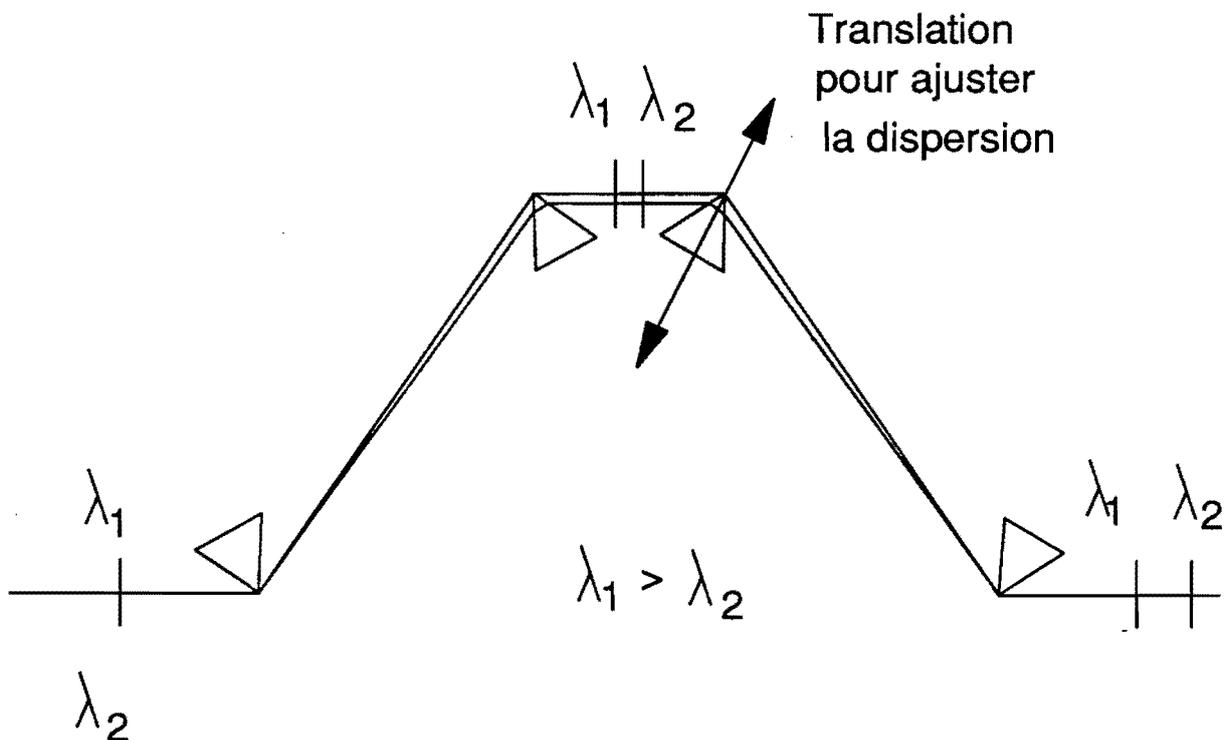


Figure 19 : Principe de la ligne à retard dispersive utilisant quatre prismes.

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

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

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

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

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

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

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

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

Avec les notations de la figure 20, on obtient :

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

avec :

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Si l'on pose :

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

on obtient :

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



avec :

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

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

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

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

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

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

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

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

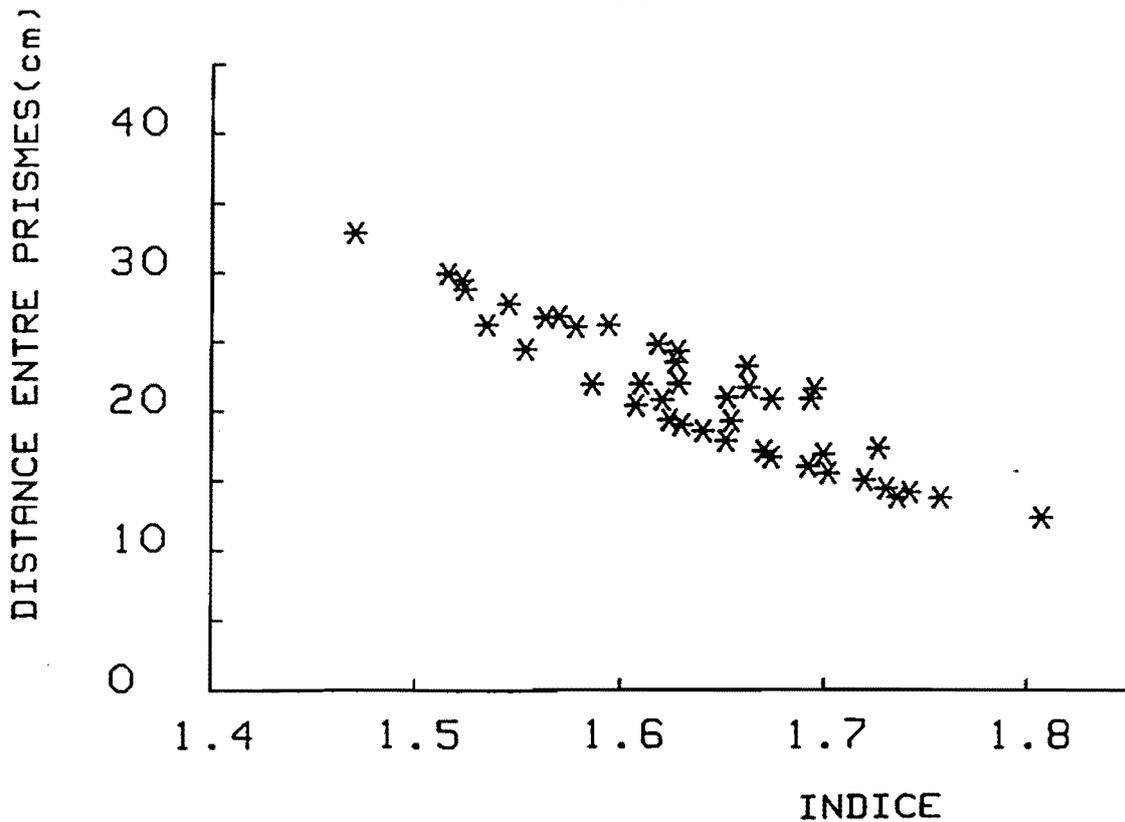


Figure 21 : Variation de la distance  $L$  entre les prismes nécessaire à compenser une même valeur de dispersion de vitesse de groupe en fonction de l'indice de réfraction du matériau utilisé. La valeur de l'épaisseur de verre traversée ( $e$ ) est maintenue constante et égale à 4 mm pour deux prismes.

#### 1.3.4. Mesure des impulsions

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

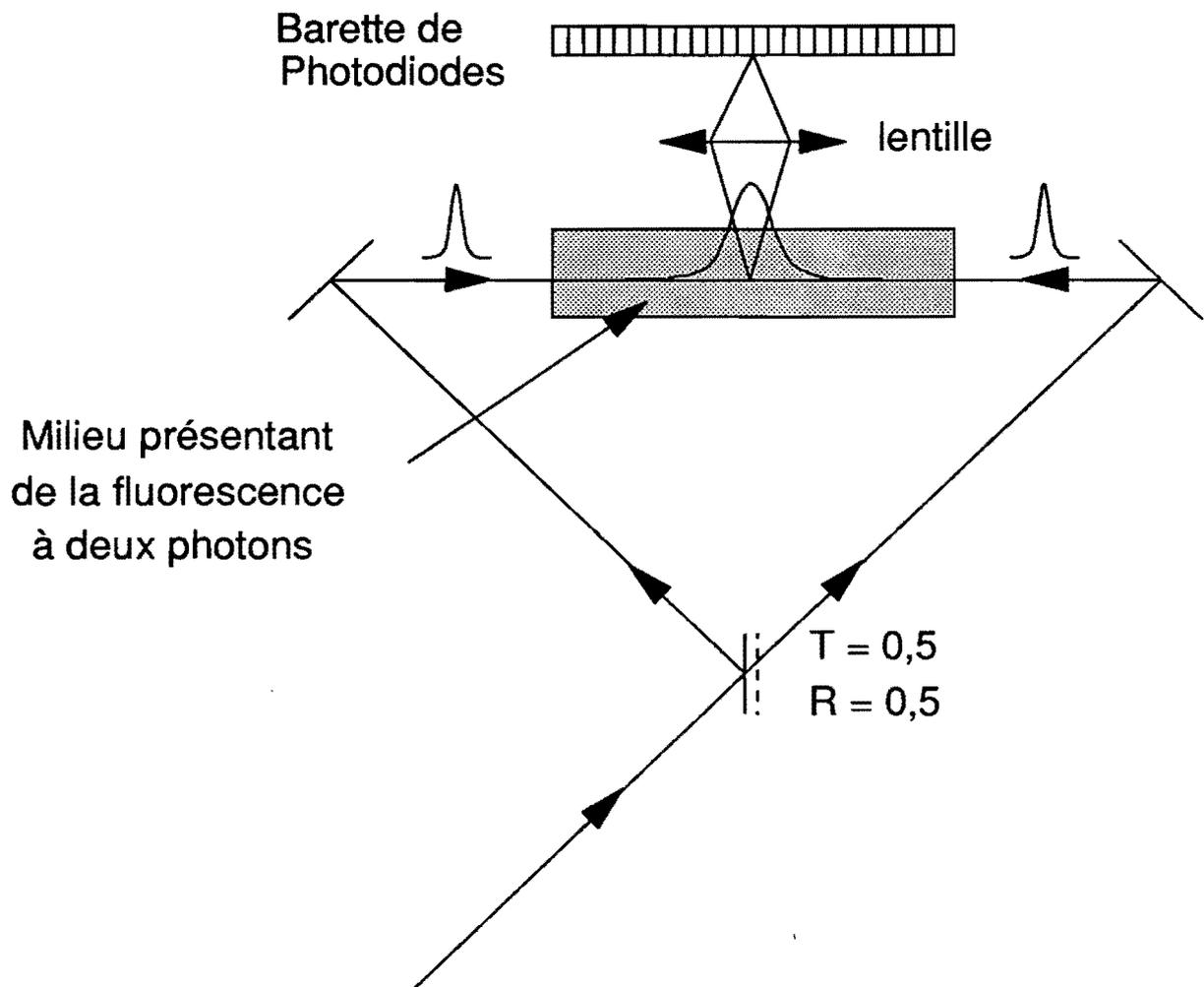


Figure 22 : Principe de la mesure d'une impulsion par la méthode de la fluorescence à deux photons.

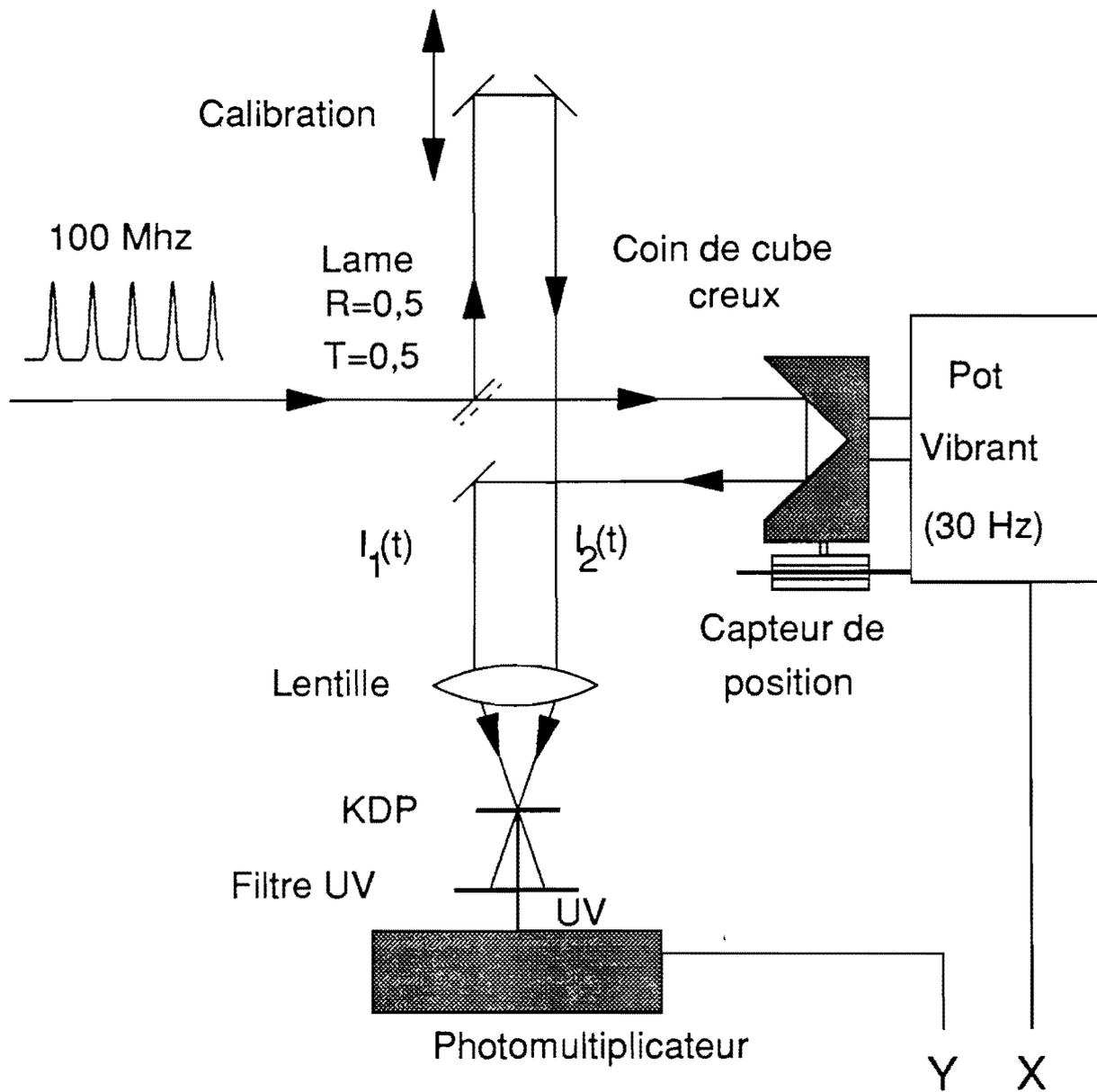


Figure 23 : Schéma de principe d'un autocorrélateur optique.

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

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

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

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

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

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

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

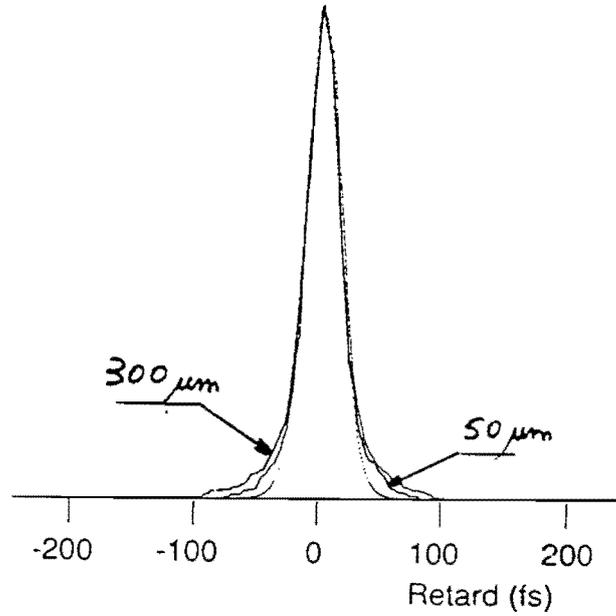
On a vu au paragraphe I.3.2. que la traversée d'un élément dispersif introduisait une modulation de fréquence de l'impulsion et élargissait l'impulsion. Afin de réduire au maximum la dispersion dans l'autocorrélateur et ne pas perturber la mesure, nous utilisons un coin de cube creux et une lame semi-réfléchissante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

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

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

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

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



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