

CHAPITRE III

GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A D'AUTRES LONGUEURS D'ONDE PAR VERROUILLAGE DE MODES PASSIF

III.1. INTRODUCTION

Le fonctionnement des lasers à verrouillage de modes passif est lié au couple de colorants milieu amplificateur-absorbant saturable. Le milieu amplificateur étant pompé en continu, l'énergie stockée dans la cavité est assez faible. L'efficacité du milieu amplificateur est donc très importante car si l'énergie dans la cavité est faible, il faut diminuer la concentration de l'absorbant saturable pour diminuer son absorption. Mais, dans ce cas, le verrouillage de modes se fait mal et le laser produit des impulsions longues et instables. Or, la Rhodamine 6G est le colorant le plus efficace dans le visible. Ceci explique pourquoi, jusqu'à maintenant, seul le couple Rh6G/DODCI a été étudié en verrouillage de modes passif, limitant la longueur d'onde des impulsions produites vers 620 nm.

Il est néanmoins possible d'obtenir des impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'onde en utilisant la technique du verrouillage de modes actif. Le milieu amplificateur étant pompé avec des impulsions très puissantes, l'énergie dans la cavité est beaucoup plus élevée. On peut donc se permettre d'utiliser des colorants moins efficaces que la Rh6G. Mais, pour obtenir des performances comparables à celle des lasers à verrouillage de modes passif, il faut utiliser des systèmes d'asservissement de la longueur de la cavité du laser à colorant sur celle du laser de pompe [53].

Une autre méthode développée pour produire des impulsions de 100 fs dans une large gamme de longueur d'onde consiste à amplifier des impulsions produites à 620 nm en utilisant comme lasers de pompe des lasers Nd-Yag déclenchés [54] ou à vapeur de cuivre [55]. L'énergie des impulsions obtenues est telle qu'en focalisant ces dernières dans une cuve d'eau (ou un jet d'éthylène glycol) on obtient un continuum spectral [56].

Pour obtenir des impulsions de 100 fs à d'autres longueurs d'onde, il suffit alors de sélectionner, avec un filtre interférentiel suffisamment large (10 nm), une partie du continuum à la longueur d'onde voulue. Cette technique est largement utilisée dans des expériences du type pompe et sonde en spectroscopie résolue dans le temps [57]. Mais cette méthode est très complexe à mettre en oeuvre, coûteuse et la stabilité des impulsions obtenues dans le continuum est toute relative.

Nous avons étudié la possibilité de produire directement des impulsions femtosecondes par verrouillage de modes passif à des longueurs d'ondes différentes de 620 nm. Nous avons surtout centré nos efforts dans le proche infrarouge pour des besoins internes au groupe d'Optique Non Linéaire de l'Institut d'Optique. Ces impulsions pourront être utilisées directement après l'oscillateur [58] ou amplifiées.

III.2. GENERATION D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES A 685 nm. ETUDE D'UN REGIME DE FONCTIONNEMENT PARTICULIER DU TYPE SOLITON

III.2.1. Génération d'impulsions femtosecondes à 685 nm

Afin de mieux cerner les problèmes liés à la génération d'impulsions femtosecondes à d'autres longueurs d'ondes, nous avons commencé par étudier la possibilité de produire des impulsions vers 700 nm. Cette étude avait également pour but d'élargir la gamme du produit commercialisé. Il existe plusieurs colorants ayant une assez bonne efficacité entre 640 et 700 nm : le DCM (4-dicyanométhylène-2-méthyl-6p-diméthylaminostyryl-4H-pyran), la Rhodamine 640 (Rh 640) et la Sulforhodamine 640 (SR 640). Ces deux derniers colorants organiques appartiennent à la même famille et possèdent des propriétés d'absorption et d'émission très proches. Toutefois leur maximum d'absorption situé vers 578 nm [figure 41], est loin des raies d'émission du laser à Argon de pompe (514 et 488 nm). Le DCM semble donc plus adapté, car son absorption est centrée sur ces deux raies laser [figure 42].

Le rendement d'émission du DCM est assez bon. Si l'on compare ses performances avec celles de la Rhodamine 6G, on peut dire que le DCM permet d'avoir une plus grande plage d'accord en longueurs d'onde mais qu'au maximum de cette bande d'émission (650 nm) la puissance obtenue est plus faible. Compte-tenu du spectre de fluorescence du DCM, nous avons testé le DQTCI (1,3'-diéthyl-4-2'-quinolythiacarbocyanine iodide) comme absorbant saturable car [figure 43] il présente un maximum d'absorption vers 635 nm.

Malheureusement, dans une cavité similaire à celle utilisée pour le couple Rh6G/DODCI, nous n'avons jamais obtenu d'impulsions. Le spectre du laser est resté toujours très étroit et se décalait vers les grandes longueurs d'onde (675 nm) au fur et à mesure que nous augmentions la concentration de l'absorbant saturable, le plaçant en dehors de la bande d'absorption de DQTCI.

Nous avons donc remplacé le DQTCI par le DOTCI (3,3 diéthyl-2-2' oxatricarbocyanine iodide) dont le spectre d'absorption est décalé vers les plus grandes longueurs d'onde (maximum à 685 nm dans l'éthylène glycol). Les résultats n'ont pas été plus concluants car dans ce cas, le spectre du laser se situait vers 620 nm sur le mauvais côté de la bande d'absorption.

Il semblerait que la bande de fluorescence du DCM soit trop large pour qu'il existe des absorbants saturables bien adapté. Pour forcer le laser à émettre aux bonnes longueurs d'onde, nous avons inséré un filtre de Lyot dans la cavité mais cela n'a rien changé. Il faut néanmoins signaler que French et coll. [59] ont reporté la génération d'impulsions dans une cavité linéaire avec le couple DCM/DQTCI, sans toutefois préciser la durée des impulsions obtenues.

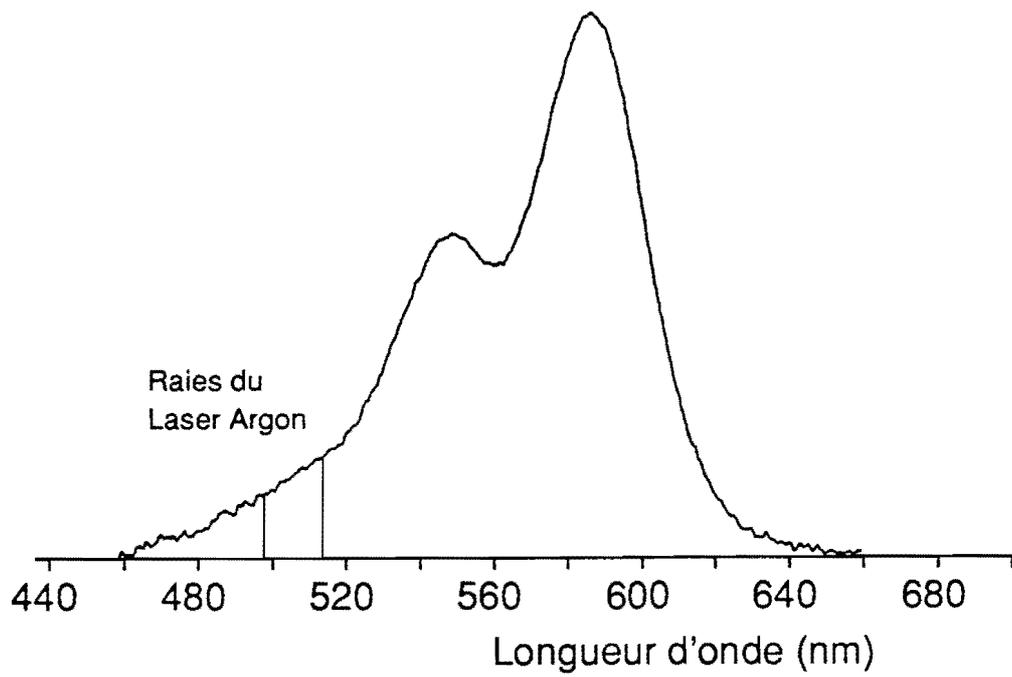


Figure 41 : Spectre d'absorption de la Sulforhodamine 640 dans l'éthylène glycol.

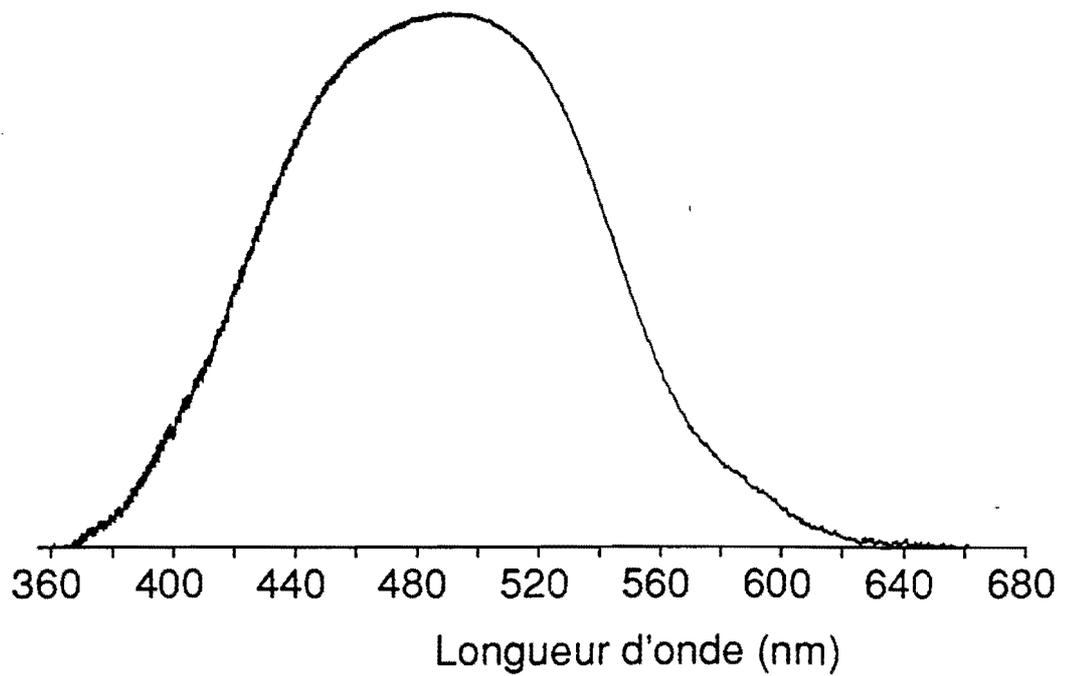


Figure 42 : Spectre d'absorption du DCM dans l'éthylène glycol.

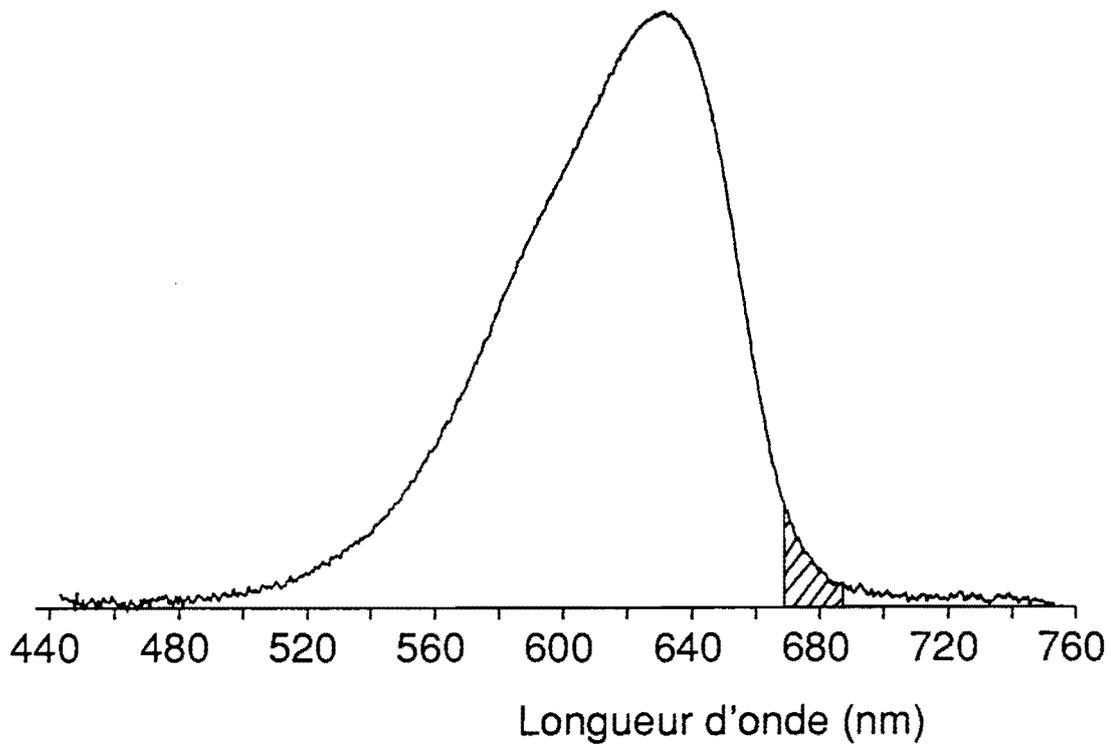


Figure 43 : Spectre d'absorption de DQTCI dans l'éthanol.

Nous avons donc décidé d'utiliser un des deux autres colorants : Rh640 ou SR640. La méthode généralement utilisée pour exciter un colorant avec un laser opérant en dehors de sa bande d'absorption est le transfert d'énergie [60].

Il faut pour cela disposer d'un autre colorant ayant un spectre de fluorescence qui recouvre bien le profil d'absorption du premier colorant. Ce deuxième colorant (colorant "donneur") est choisi de telle façon que son absorption soit centrée sur les raies d'émission du laser d'excitation. La fluorescence du colorant "donneur" est donc absorbée par le colorant "accepteur" qui réémet dans sa bande de fluorescence [figure 44]. L'efficacité d'un tel processus dépend du bon recouvrement du profil d'émission du colorant "donneur" avec le profil d'absorption du colorant "accepteur" [61]. Nous avons donc utilisé le principe du transfert d'énergie entre la Rh6G ("donneur") et la SR640 ("accepteur") en mélangeant 10^{-3} Mole de SR640 avec 10^{-3} Mole de Rh6G. Nous avons obtenu dans le laser une bonne efficacité autour de 650 nm.

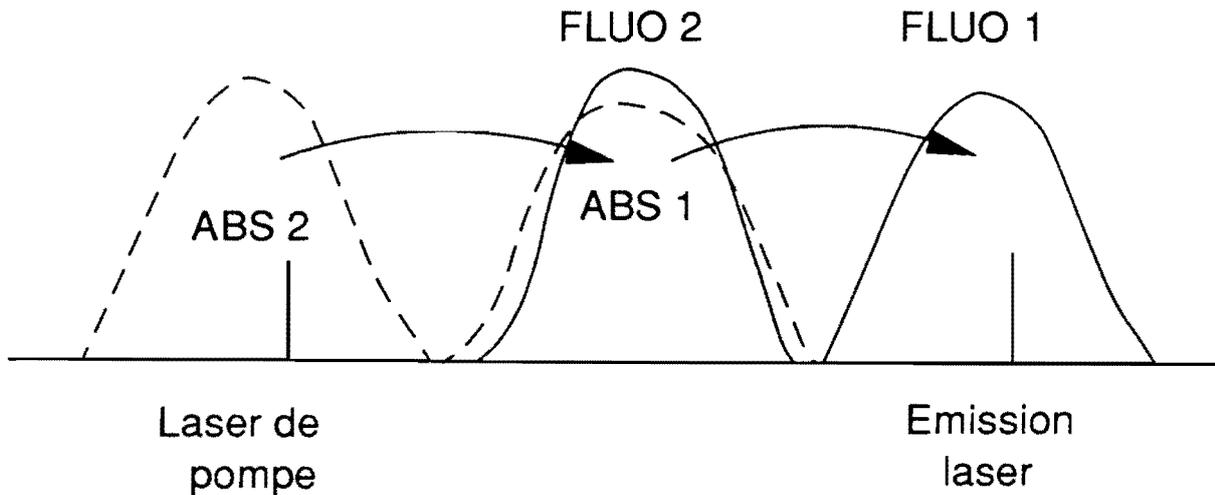


Figure 44 : Principe du transfert d'énergie entre deux colorants.

La cavité laser est similaire en tout point à celle présentée au Chapitre II, à l'exception des miroirs. En effet, suite à nos travaux à 620 nm, nous nous sommes aperçus que les miroirs influent fortement sur les performances du laser. Les miroirs "mono empilement" présentés dans le chapitre II nous ont permis d'obtenir de bons résultats. Ils ont néanmoins l'inconvénient de présenter une bande de réflectivité maximale sensiblement plus étroite que des miroirs classiques de laser à colorant. La raison est liée à la diminution du nombre de couches multidiélectriques formant l'empilement. Nous avons donc étudié avec la Société MATRA (Division Couches Minces) la possibilité de réaliser des miroirs présentant très peu de dispersion de vitesse de groupe avec un maximum de réflectivité sur la plus grande bande de longueur d'onde possible. Cette dernière caractéristique était très importante car nous ne savions pas exactement à quelles longueurs d'onde allait se situer le spectre des impulsions produites par le nouveau couple de colorants.

La solution retenue a été la suivante : une couche d'Argent est recouverte par quatre couches diélectriques permettant d'avoir une réflectivité supérieure à 99,5% de 520 à 700 nm. Ce traitement est appelé Argent protégé ou Argent amélioré. A partir de la modélisation d'un tel traitement, MATRA a calculé le déphasage introduit à la réflexion. Ces calculs nous ont permis de déterminer la dispersion de vitesse de groupe introduite par la réflexion sur un tel miroir [figure 45]. Pour les fréquences situées entre $1,1 \omega_0$ (558 nm) et $0,9 \omega_0$ (680 nm), avec ω_0 fréquence centrale du miroir (612 nm), la dispersion de vitesse de groupe est équivalente à celle d'un miroir classique (voir figure 17 du Chapitre I pour comparaison). Par contre, on n'observe pas une brutale augmentation de la dispersion lorsqu'on s'éloigne davantage de la fréquence centrale. Cela signifie que la dispersion d'ordre 3 de tels miroirs n'augmente pas violemment lorsqu'on se rapproche du bord de réflectivité. Ce comportement est simplement le fait de la couche d'Argent qui ne présente pas de chute brutale de sa réflectivité. Signalons toutefois que ce traitement présente l'inconvénient d'être plus fragile qu'un revêtement classique multidiélectrique.

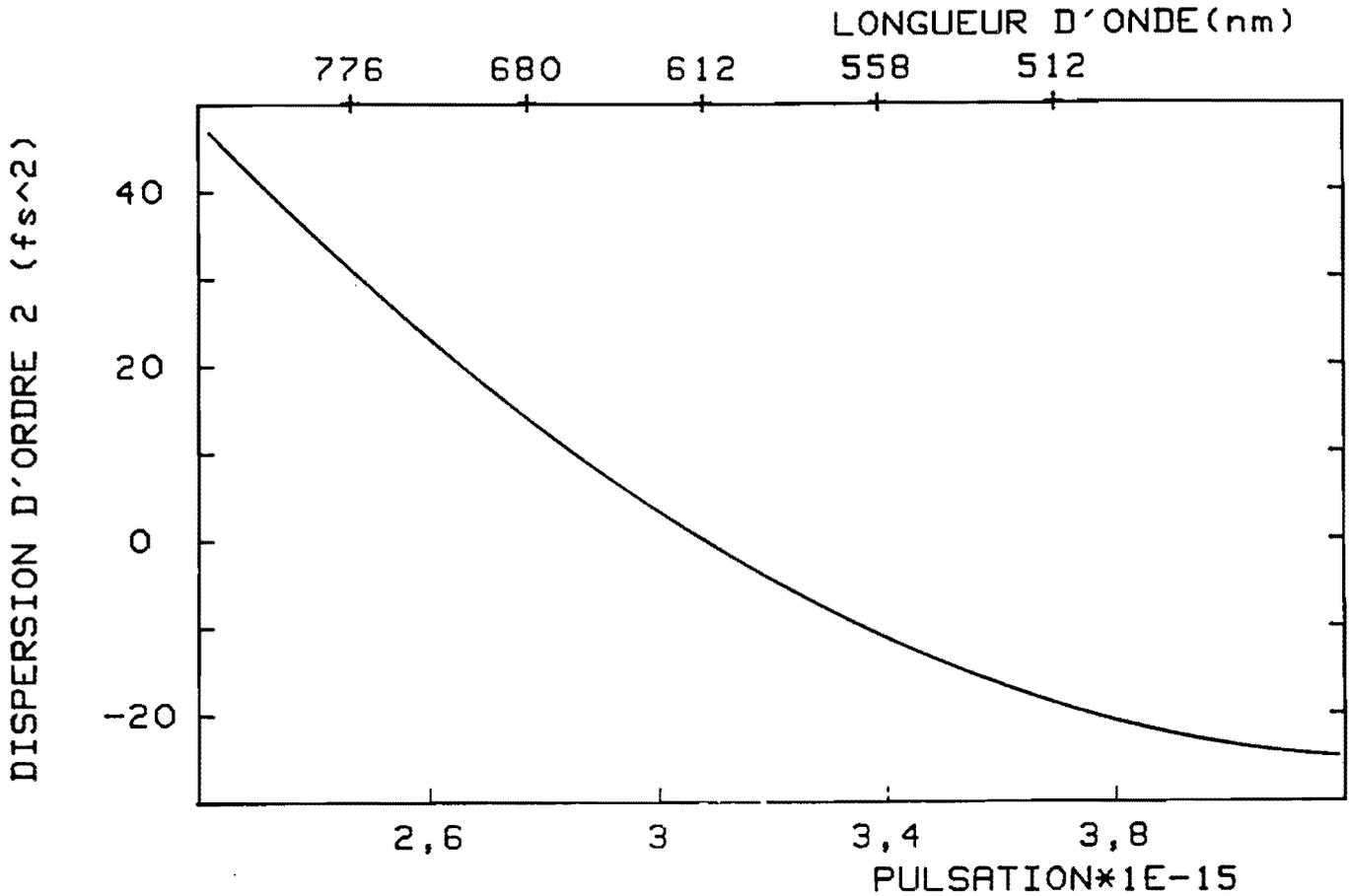


Figure 45 : Dispersion d'ordre 2 (ϕ'') introduit à la réflexion d'un miroir du type "Argent amélioré".

Avec ces miroirs, la longueur d'onde d'émission du laser en continu est à 640 nm. En ajoutant un filtre de Lyot dans la cavité, on peut accorder la longueur d'onde de 620 nm à 690 nm. Le seuil de l'effet laser est de 1,3 W avec un miroir de sortie qui transmet 1 % entre 620 et 750 nm. L'efficacité de ce mélange de colorants n'étant pas aussi efficace que la Rh6G seule, il faut en effet diminuer la transmission de miroir de sortie pour conserver une concentration en absorbant saturable suffisamment élevée. Cette condition est nécessaire pour obtenir un bon blocage des modes.

L'absorbant saturable utilisé est le DQTCI. Son coefficient d'extinction est de $11.10^4 \text{M}^{-1} \text{cm}^{-1}$ à 628 nm dans une solution 3-1 d'éthylène glycol-éthanol. Pour des concentrations entre 10^{-5} et 3.10^{-4} Mole/l, le laser produit des impulsions inférieures à 100 fs. La stabilité des impulsions obtenues est bonne et augmente au fur et à mesure qu'on augmente la concentration en absorbant saturable. Les impulsions les plus courtes produites ont une durée temporelle $\Delta t = 58$ fs (en supposant un profil temporel en $1/\text{ch}^2$). Leur spectre est centré à 685 nm et a une largeur $\Delta\lambda = 12,2$ nm [figure 46]. Ces impulsions ne sont pas limitées par la transformée de Fourier car le produit $\Delta t \cdot \Delta\nu$ est égal à 0,455 (avec $\Delta\nu = c\Delta\lambda/\lambda^2$). Le profil du spectre est dissymétrique avec un front raide vers les grandes longueurs d'onde. L'autocorrélation présente des pieds indiquant que toutes les fréquences composant le spectre n'ont pas la même phase.

Les meilleures performances du laser (largeur temporelle des impulsions, stabilité) sont obtenues pour des concentrations en absorbant saturable élevées (de l'ordre de 3.10^{-4} Mole/l) correspondant à des seuils de l'effet laser de l'ordre de 4 W. La puissance du laser de pompe en régime normal est de 300 à 400 mW au-dessus du seuil. La puissance moyenne de chaque faisceau de sortie du laser à colorant est de 10 mW environ, correspondant à une puissance crête par impulsion de 2 KW.

Les résultats obtenus [62] sont sensiblement meilleurs que ceux de French et coll. [63] qui les premiers ont utilisé le verrouillage de modes passif pour produire des impulsions avec le mélange Rh6G/SR 640. Mais comme leur cavité était linéaire et ne comportait pas de système de contrôle de la dispersion de vitesse de groupe, ils ont obtenu des impulsions de 120 fs avec une stabilité moyenne. Il faut toutefois signaler que Dawson et coll. [64] ont produit des impulsions de 60 fs à 685 nm par verrouillage de modes actif de la SR640 avec également DQTCI comme absorbant saturable.

Le comportement de notre laser à 685 nm est globalement similaire à celui observé à 620 nm. En particulier, il faut également défocaliser légèrement le jet d'absorbant saturable pour obtenir les meilleures performances. Toutefois, il existe quelques différences de comportement entre ces deux versions.

En particulier, il est possible d'obtenir des impulsions assez courtes (100 fs) en introduisant un excès de dispersion positive dans la cavité alors que cela était rigoureusement impossible à 620 nm. Le laser opérait alors dans un autre régime de fonctionnement qui a été étudié par F. Salin et coll. [65] et analysé en terme de solitons d'ordre supérieur. Après une présentation de nos observations expérimentales à 685 nm, nous étudierons ce comportement en utilisant également la théorie soliton.

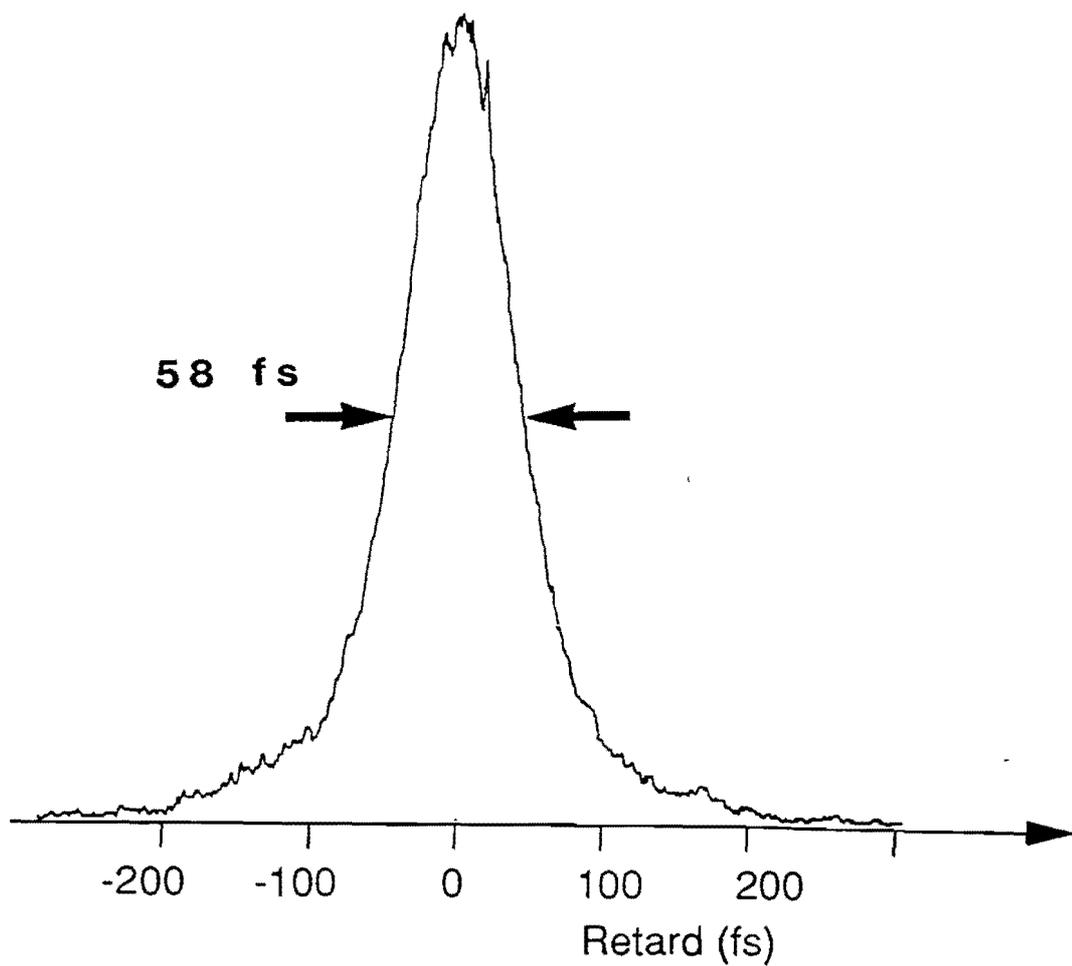
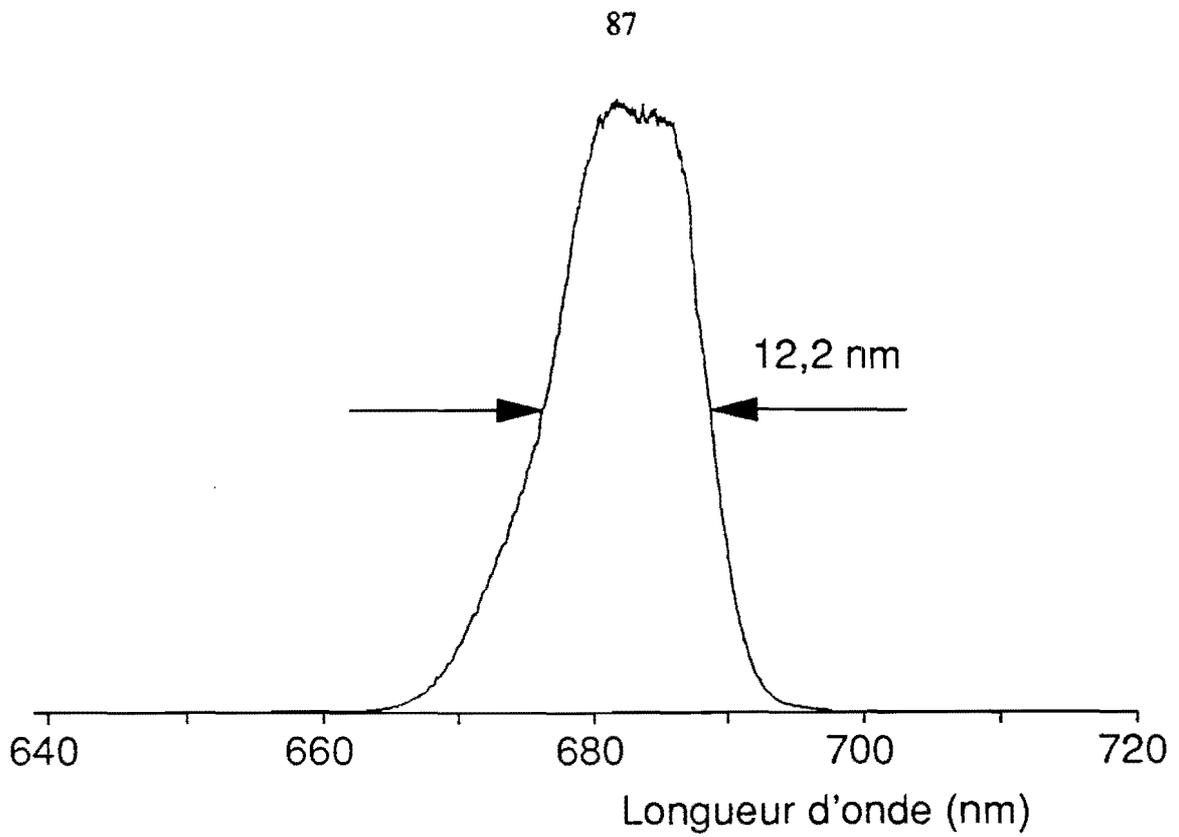


Figure 46 : Autocorrélation et spectre des impulsions les plus courtes produites avec le couple de colorants Rh 6G/SR 640 et DQTCI

III.2.2. Etude d'un régime de fonctionnement particulier du laser femto-seconde à 685 nm

III.2.2.1. Observations expérimentales

Les performances des lasers à verrouillage de modes passif dépendent essentiellement de la compensation de la dispersion de vitesse de groupe. En modifiant celle-ci, on change la forme et la durée des impulsions produites. La figure 47 présente l'évolution de la trace d'autocorrélation et du spectre des impulsions en fonction de la dispersion dans la cavité fonctionnant à 685 nm. Les variations de dispersion sont déterminées à partir de la position d'un des prismes qu'on translate plus ou moins. L'expérience est réalisée pour une position du jet d'absorbant saturable correspondant aux meilleures performances obtenues dans le laser. Pour un excès de dispersion négative, le comportement du laser est similaire à celui observé à 620 nm. En translatant un prisme pour ajouter du verre dans la cavité (la dispersion totale de la cavité augmente) les impulsions sont peu à peu compressées jusqu'à leur durée minimale: 60 fs. Parallèlement, le spectre initialement dissymétrique s'élargit et devient plus symétrique [Figures 47a,b]. A partir de la position optimale [figure 47 b], le laser saute brutalement dans un autre régime de fonctionnement si on introduit davantage de verre. La trace d'autocorrélation devient bruiteuse puis présente une structure à trois bosses [Figures 47 c,d,e]. Le train des impulsions est modulé périodiquement à une fréquence de quelques dizaines de kHz [figure 48]. Cette modulation est responsable du bruit observé sur les traces d'autocorrélation car l'autocorrélateur fonctionne à une fréquence de balayage de quelques dizaines de Hz seulement. En introduisant plus de verre, on observe dans un premier temps l'apparition d'ailes dans l'autocorrélation qui se rapprochent vers le pic central [Fig. 47 b, c]. Ensuite, les ailes de l'autocorrélation s'éloignent du pic central. On observe simultanément que la fréquence de la modulation reste constante, mais son amplitude diminue. La trace d'autocorrélation devient alors de moins en moins bruiteuse [Figures 47 d,e,f]. Puis, la position des ailes de l'autocorrélation se stabilise tandis que leur énergie diminue progressivement [Figures 47 f,g,h]. Parallèlement à cette évolution temporelle, la fréquence de la modulation diminue. Nous avons enfin observé que l'énergie totale des impulsions diminuait progressivement lorsqu'on introduisait du verre à partir de la position de stabilisation des ailes de l'autocorrélation par rapport au pic central.

La figure 49 montre l'évolution de la largeur du pic central de l'autocorrélation et de la période de modulation du train des impulsions en fonction de la dispersion intracavité. On peut y distinguer trois parties. Dans la première (a et b) le fonctionnement est classique : la durée des impulsions diminue quand on augmente la dispersion. Ensuite, l'évolution est plus complexe. La période de modulation du train des impulsions et la largeur du pic central de l'autocorrélation restent constantes. Mais la largeur du spectre des impulsions [Figures 47 c à g] diminue, ce qui tendrait à prouver que les impulsions initialement sont modulées en phase.

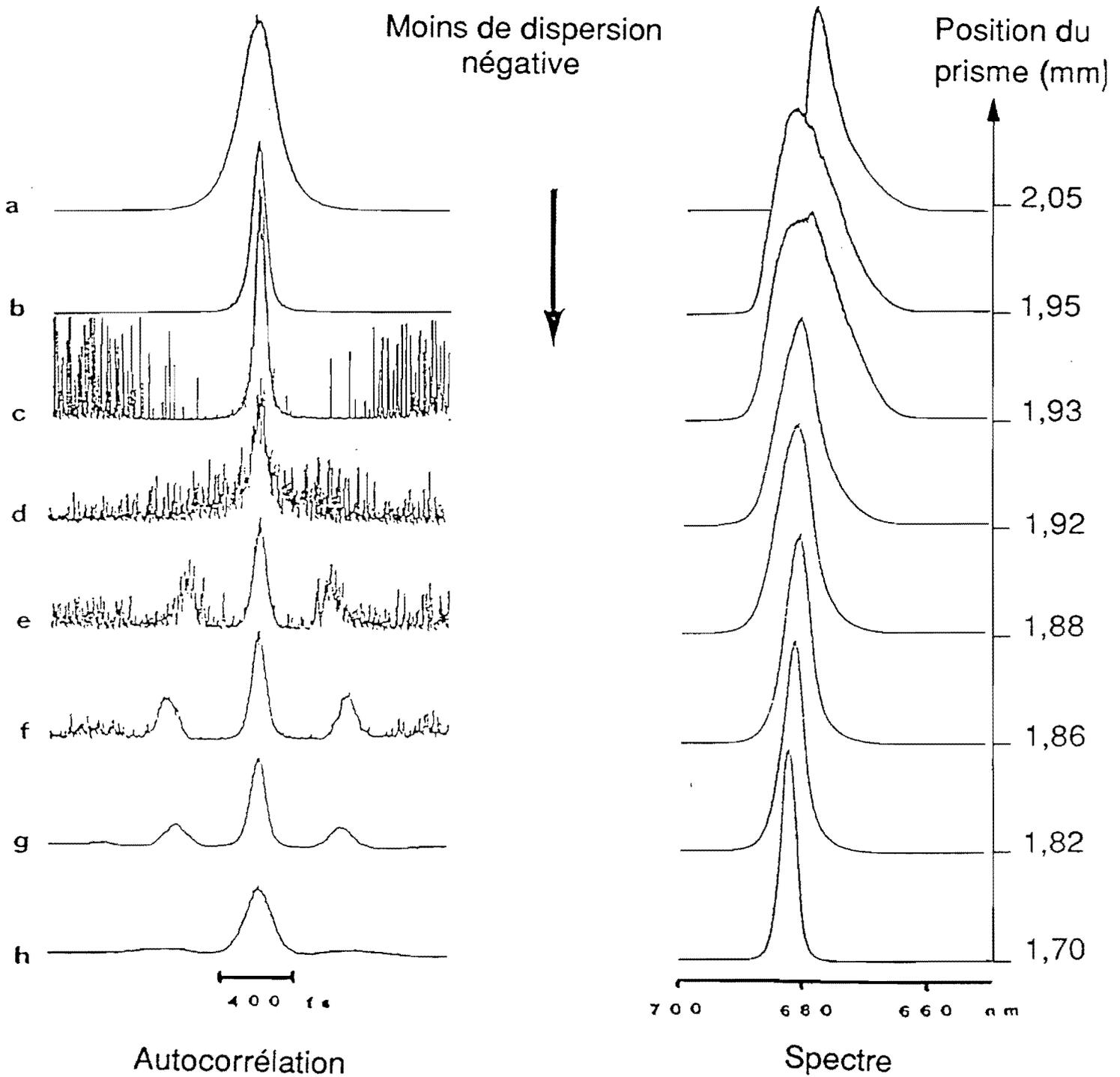


Figure 47 : Traces d'autocorrélation et spectres des impulsions obtenues en fonction de la dispersion intracavité.

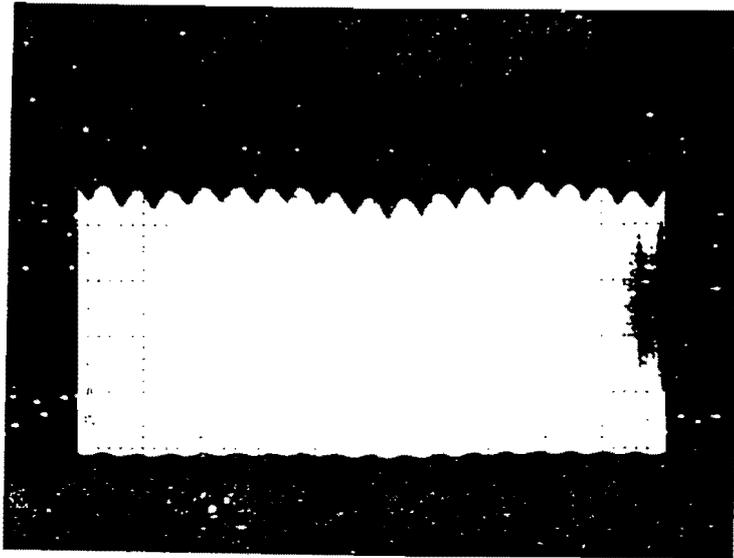


Figure 48 : Modulation du train des impulsions.

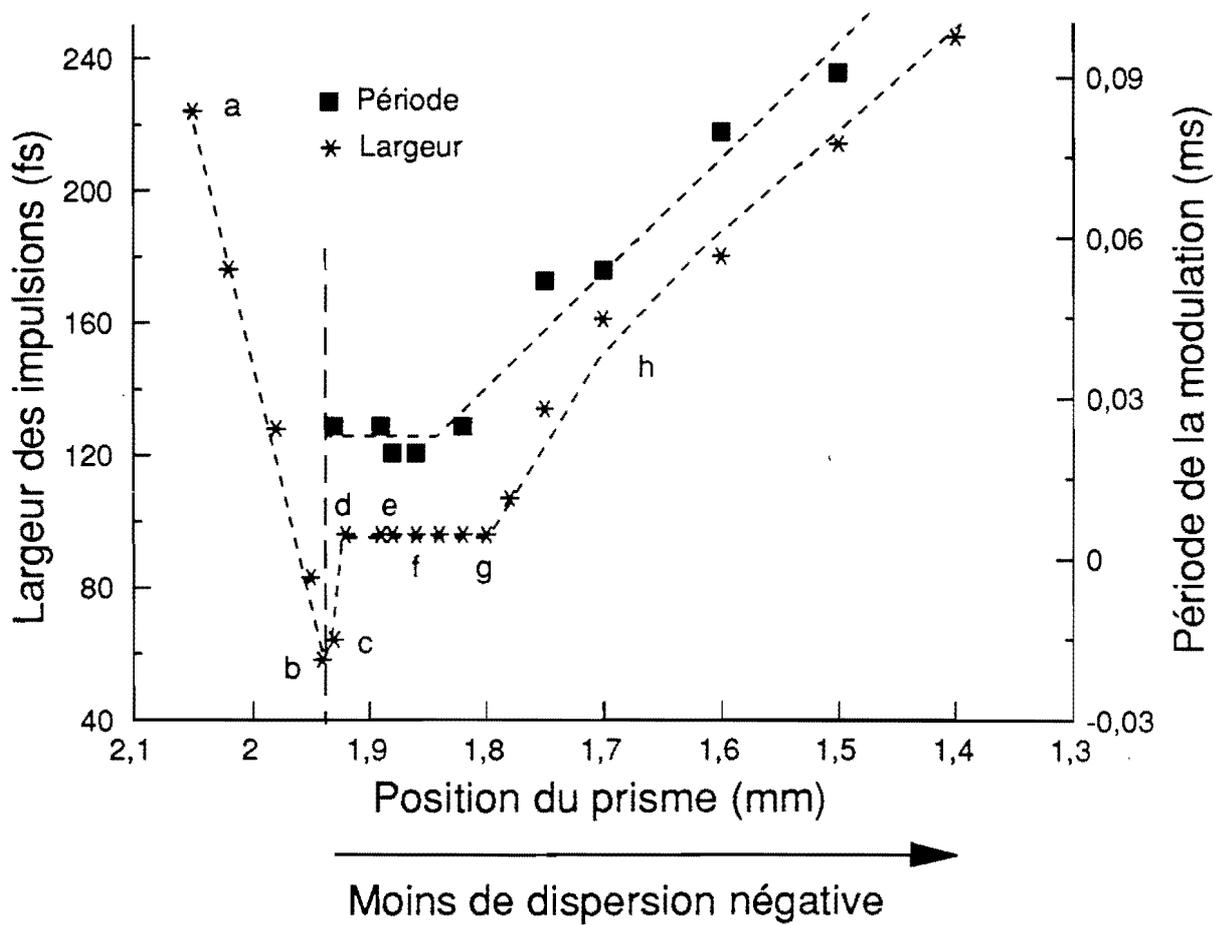


Figure 49 : Evolution de la durée des impulsions et de la période du train des impulsions en fonction de la dispersion intracavité

Nous allons tenter d'expliquer ces divers comportements en utilisant le concept d'impulsion soliton.

III.2.2.2. Modélisation de l'évolution des impulsions

L'évolution d'impulsions courtes dans les fibres optiques, en présence d'automodulation de phase et de dispersion de vitesse de groupe, a été analysée en terme de solitons optiques en 1980 par Mollenauer et coll. [66].

Le caractère soliton des impulsions produites directement par un laser à verrouillage de modes passif a été évoqué il y a quelques années déjà par Diels et coll. [67, 68] et Valdmanis et coll [51]. Il a été observé expérimentalement pour la première fois à l'Institut d'Optique en 1986 par F. Salin et coll. [38]. Depuis, d'autres expériences ont confirmé le caractère soliton de ces impulsions [69-71]. L'équation non linéaire de Schrödinger permettant de décrire l'évolution d'impulsions solitons dans un milieu non linéaire tel que les fibres optiques est a priori trop simple pour être appliquée à l'étude du laser (car elle ne tient pas compte des phénomènes de saturation du gain et des pertes) mais permet néanmoins de décrire assez fidèlement les observations expérimentales obtenues avec des lasers à 620 nm.

Nous allons donc utiliser ce formalisme pour analyser le comportement nouveau de notre laser fonctionnant à 685 nm.

L'évolution d'une impulsion lumineuse dans un milieu non linéaire en présence d'automodulation de phase et de dispersion de vitesse de groupe peut être représentée, dans le cas de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, par l'équation de Schrödinger non linéaire (ENLS) [72]. L'amplitude du champ électrique de l'impulsion $u(z,t)$ vérifie l'équation :

$$(3.1) \quad i \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u = 0$$

avec t : temps écoulé dans un repère lié à l'impulsion
et z : distance de propagation dans le milieu.

Le terme $\partial^2 u / \partial t^2$ correspond à la dispersion de vitesse de groupe (positive ou négative) et le terme $|u|^2 u$ à l'automodulation de phase.

Cette équation non linéaire a été résolue analytiquement par Zakharov et Shabat en utilisant la méthode de diffusion inverse [73]. L'équation (3.1) a une infinité de solutions parmi lesquelles les solutions stables sont appelées états solitons. La solution la plus connue est le soliton fondamental

ou soliton d'ordre 1 dont l'expression est :

$$(3.2) \quad u(z,t) = 2\eta_1 \frac{e^{i2\eta_1^2 z}}{\text{ch}(2\eta_1 t)}$$

où η_1 est une constante . Le soliton d'ordre 1 est une impulsion symétrique qui se propage sans déformation dans le milieu non linéaire. Pour obtenir d'autres solutions avec un profil temporel symétrique il suffit d'augmenter l'énergie E_0 du soliton fondamental. Le soliton d'ordre N symétrique possède une énergie $N^2 E_0$ et se déforme périodiquement au cours de sa propagation.

Les solitons peuvent également présenter un profil temporel dissymétrique. Zakharov et al. [73] ont montré que la résolution de l'ENLS était équivalente à la recherche des valeurs propres complexes Δ_j d'un système d'équations différentielles couplées. Les valeurs propres obtenues sont appelées "pôles" du soliton et sont notées $\Delta_j = \xi_j + i\eta_j$ où ξ_j correspond à la vitesse de groupe du soliton et η_j à son énergie. La connaissance des N pôles Δ_j et de leurs N résidus ξ_j suffit à déterminer entièrement la solution appelée soliton d'ordre N . Nous nous intéresserons ici uniquement aux solutions stables par propagation. Dans ce cas tous les ξ_j sont situés sur une ligne parallèle à l'axe des imaginaires. On peut donc considérer que tous les pôles sont sur l'axe des imaginaires en choisissant un axe se déplaçant avec le soliton ; donc $\Delta_j = i\eta_j$. De même, Haus et Islam [74] ont montré que la partie imaginaire du résidu introduit uniquement un décalage global de la phase du soliton que l'on peut annuler en réalisant un changement de l'origine des temps. L'étude revient donc à déterminer N couples de réels (η_j, C_j) qu'on appellera également pôles et résidus dans la suite. Zakharov et Shabat ont montré que la recherche des N solutions était équivalente à la résolution de N équations linéaires :

$$(3.3) \quad \lambda_j^* \sum_{k=1}^N \frac{\lambda_k^2}{(\xi_j^* - \xi_k) (\xi_k - \xi_1^*)} \lambda_1 \psi_1 + \lambda_j^* \psi_j = \lambda_j^{*2}$$

avec :

$$(3.4) \quad \lambda_j = \sqrt{C_j} e^{i\xi_j t} e^{i4\xi_j^2 z}$$

et :

$$(3.5) \quad u(z,t) = -2 \sum_{\kappa=1}^N \lambda_{\kappa}^* \varphi_{\kappa}^* .$$

Nous nous limiterons aux solitons d'ordre 2. Dans ce cas, l'expression de $u(z,t)$ en fonction de ses deux pôles η_1 et η_2 et des deux résidus C_1 et C_2 est [70] :

$$(3.6) \quad u(z,t) = 2N(z,t)/D(z,t)$$

avec :

$$(3.7) \quad N(z,t) = C_1(1 + A_2) \exp(-2\eta_1 t + 4i \eta_1^2 Z) + C_2(1 + A_1) \exp(-2\eta_2 t + 4i \eta_2^2 Z)$$

$$(3.8) \quad D(z,t) = 1 + (C_1^2/4\eta_1^2) \exp(-4\eta_1 t) + (C_2^2/4\eta_2^2) \exp(-4\eta_2 t) + A_1 A_2 + 2 [C_1 C_2 / (\eta_1 + \eta_2)^2] \exp(-2(\eta_1 + \eta_2) t) + \cos(4(\eta_1^2 - \eta_2^2) z)$$

et :

$$(3.9) \quad A_j = C_j^2 [(\eta_1 - \eta_2) / (\eta_1 - \eta_2)]^2 / 4\eta_j^2 \exp(-4\eta_j t) \quad j = 1,2 .$$

Les fonctions $u(z,t)$ sont périodiques en z avec une période donnée par :

$$(3.10) \quad T_p = \frac{\pi}{\left(\begin{array}{c} 2 \quad 2 \\ \eta_2 - \eta_1 \end{array} \right)} .$$

La période dépend donc uniquement des pôles. En général, un soliton d'ordre deux est formé de deux impulsions. Le rapport en énergie entre les deux impulsions et le temps séparant celles-ci, dépendent des valeurs des pôles et des résidus. On peut toutefois séparer leurs rôles en observant que le temps séparant les deux impulsions dépend de la valeur des résidus et que la valeur des pôles détermine la répartition d'énergie entre les deux impulsions. Le temps entre les impulsions augmente lorsque la valeur d'un des deux résidus augmente. D'autre part, l'énergie totale du soliton est proportionnelle à $\eta_1 + \eta_2$.

Utilisons ces résultats pour expliquer le comportement de notre laser. La première partie de l'évolution [Figures 47 a, b] correspond à un soliton d'ordre 1 qui se comprime quand on augmente la dispersion. Dans ce cas, les effets dus à l'automodulation de phase et à la dispersion de vitesse de groupe se compensent mutuellement. L'évolution de l'impulsion dans la cavité s'effectue sans déformation et l'intensité moyenne du faisceau de sortie est constante. L'enveloppe du train d'impulsions n'est pas modulée. On peut ensuite, interpréter le changement de comportement du laser par un régime de fonctionnement du type soliton dissymétrique d'ordre 2. L'autocorrélation présente trois pics [figure 47] et le train des impulsions est modulé. Les impulsions sont donc formées d'une impulsion principale suivie d'une plus petite. La distance les séparant dépend de la dispersion intracavité.

Nous avons modélisé [figure 50] ce comportement en utilisant comme impulsion un soliton d'ordre 2 dissymétrique caractérisé par des pôles valant : $\eta_1 = 0,7$ et $\eta_2 = 1,3$. Pour simuler le déplacement de la petite impulsion par rapport à l'impulsion principale, nous avons maintenu constante, la valeur de C_1 à 1 nous avons fait varier C_2 d'une valeur très grande (e^{+10}) à une valeur nulle (figure 50 a). L'énergie des impulsions est constante car η_1 et η_2 sont constants. Ensuite les valeurs des deux résidus sont maintenues constantes ainsi que la valeur du pôle η_1 . Pour traduire une diminution de l'énergie contenue dans le pic secondaire (et donc de l'énergie totale du soliton) nous avons fait tendre η_2 vers 0. La figure 50.b représente l'évolution théorique obtenue. Signalons toutefois que les évolutions théoriques présentent le profil temporel des impulsions et non pas de l'autocorrélation sur un grand nombre de période du soliton. L'évolution théorique modélise donc assez bien le comportement expérimental. Toutefois nous n'avons pas pu modéliser une évolution de la période de modulation du train des impulsions conforme à celle observée expérimentalement. D'autre part, il ne nous est pas possible de relier les variations de la valeur des pôles et des résidus à des paramètres physiques du laser.

Nous pensons que de tels comportements proviennent essentiellement des miroirs de la cavité qui jouent le rôle d'un filtre spectral. French et coll [75] ont présenté des observations similaires aux nôtres dans un laser à verrouillage de modes passif à 570 nm en utilisant le couple de colorants R 110/HICI. En augmentant la dispersion positive, ils ont également observé des autocorrélations à trois pics [figure 51].

Avramopoulos et coll. [76] ont ensuite développé un modèle théorique pour décrire l'évolution des impulsions femtosecondes dans leur cavité. Toutefois, pour simuler leurs observations expérimentales, ils ont été obligés d'introduire artificiellement un filtre spectral dans la modélisation de la cavité. Nous pensons que le rôle de filtre spectral dans leur cavité est joué par les miroirs utilisés sous un grand angle d'incidence, ce qui doit décaler leur bande de réflectivité maximale.

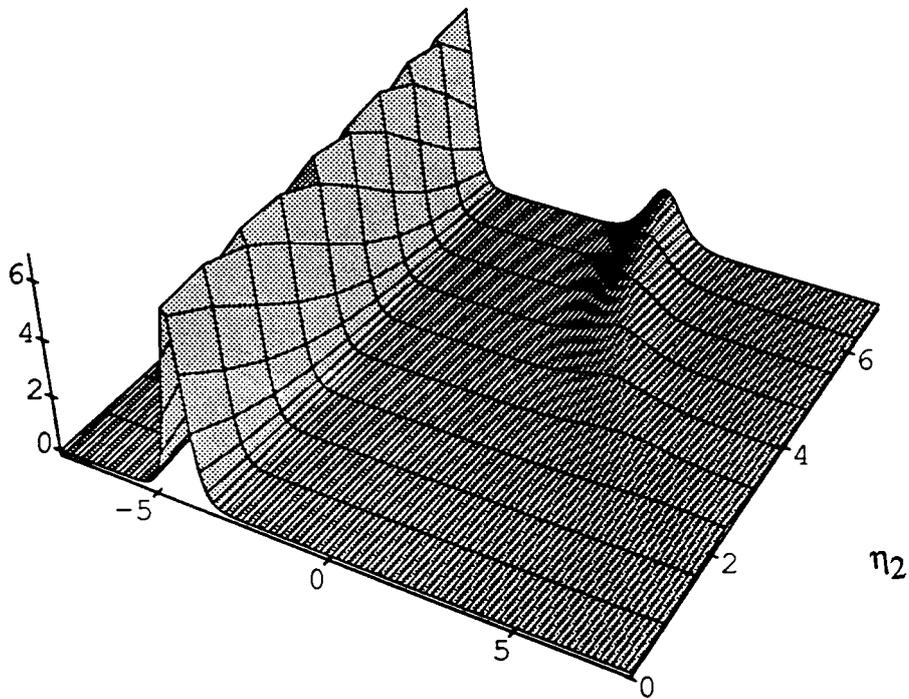
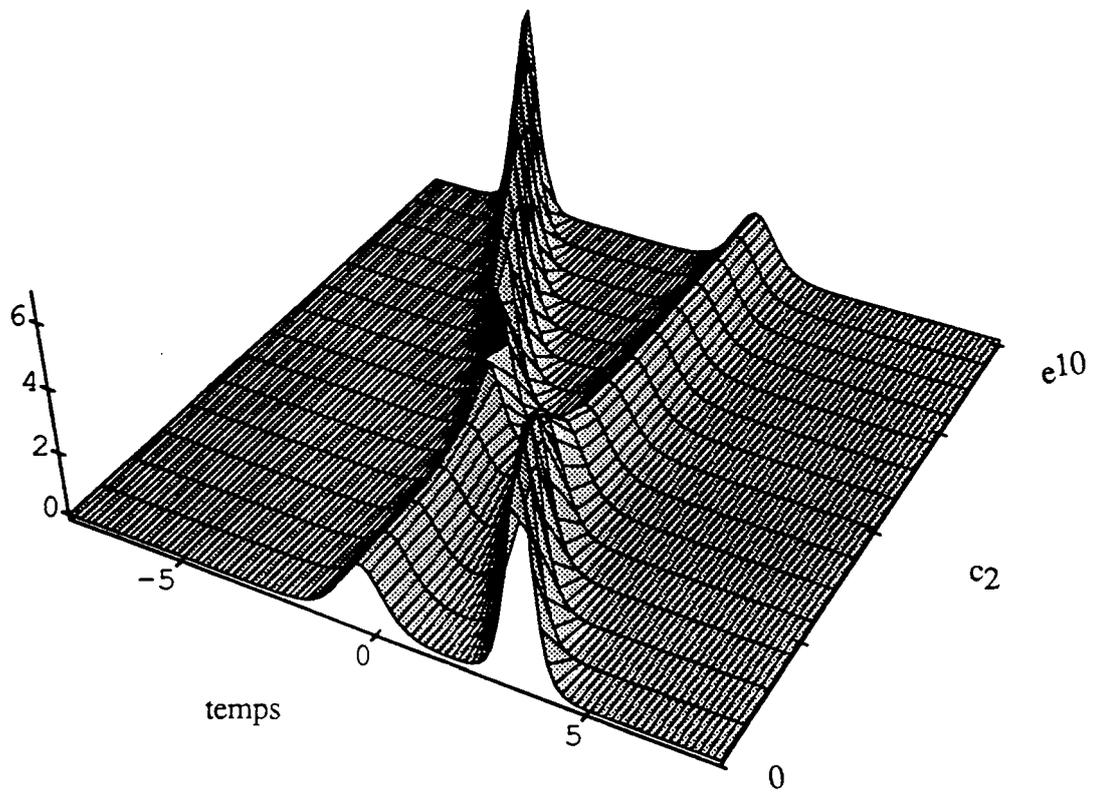


Figure 50 : Evolutions théoriques.

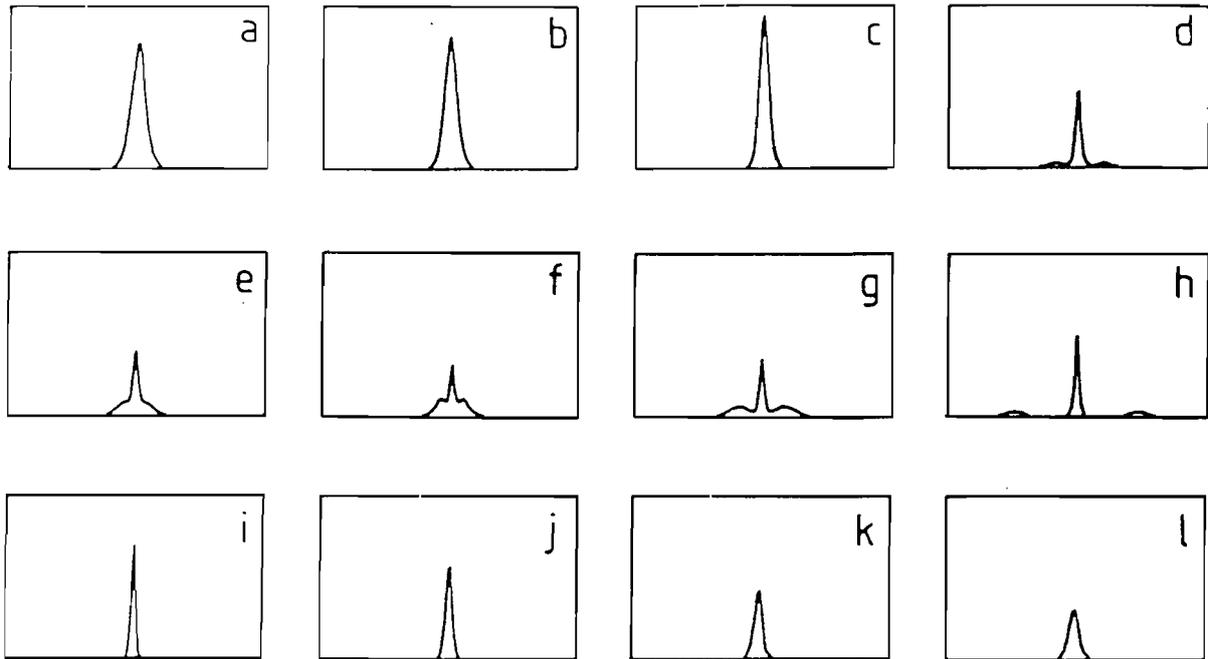


Figure 51 : Profils des autocorrélations obtenues par Avramopoulos et coll. [76]. La dispersion intracavité change d'une valeur positive (a) à une valeur négative . Le zéro dispersion correspond à la courbe (d).

Or, lorsque nous avons étudié notre laser à 620 nm, nous n'avons pas observé de telles évolutions car les miroirs étaient bien adaptés. Aucune sélection spectrale ne forçait donc le laser à émettre de telles impulsions singulières. Par contre, le comportement complexe du laser à 685 nm nous a amené à contrôler la réflectivité des miroirs "Argent protégé" utilisés. Nous nous sommes aperçu que la longueur d'onde de coupure haute (700 nm) était légèrement plus basse que celle prévue théoriquement, tendant à nous faire penser que nos miroirs pouvaient être responsables des comportements observés.

Afin de vérifier la validité de cette hypothèse, nous avons introduit un filtre de Lyot dans le laser femtoseconde opérant à 620 nm. Ce filtre avait une largeur spectrale suffisante (6 nm) pour obtenir des impulsions courtes (100 fs). Nous avons alors obtenu une évolution similaire aux observations de French et coll. [75].

La figure 52 présente la trace d'autocorrélation en fonction de la dispersion pour une position fixe du filtre de Lyot, évolution tout à fait semblable à celles observées par l'équipe de l'Imperial College. Ces observations semblent donc valider l'hypothèse du filtre spectral dans la cavité du laser opérant à 685 nm. Signalons également qu'une évolution tout à fait identique a été obtenue en laissant fixe la position des prismes et donc la dispersion, mais en changeant la longueur d'onde centrale transmise par le filtre de Lyot [77]. Il semble donc évident que lorsque l'on force le laser à

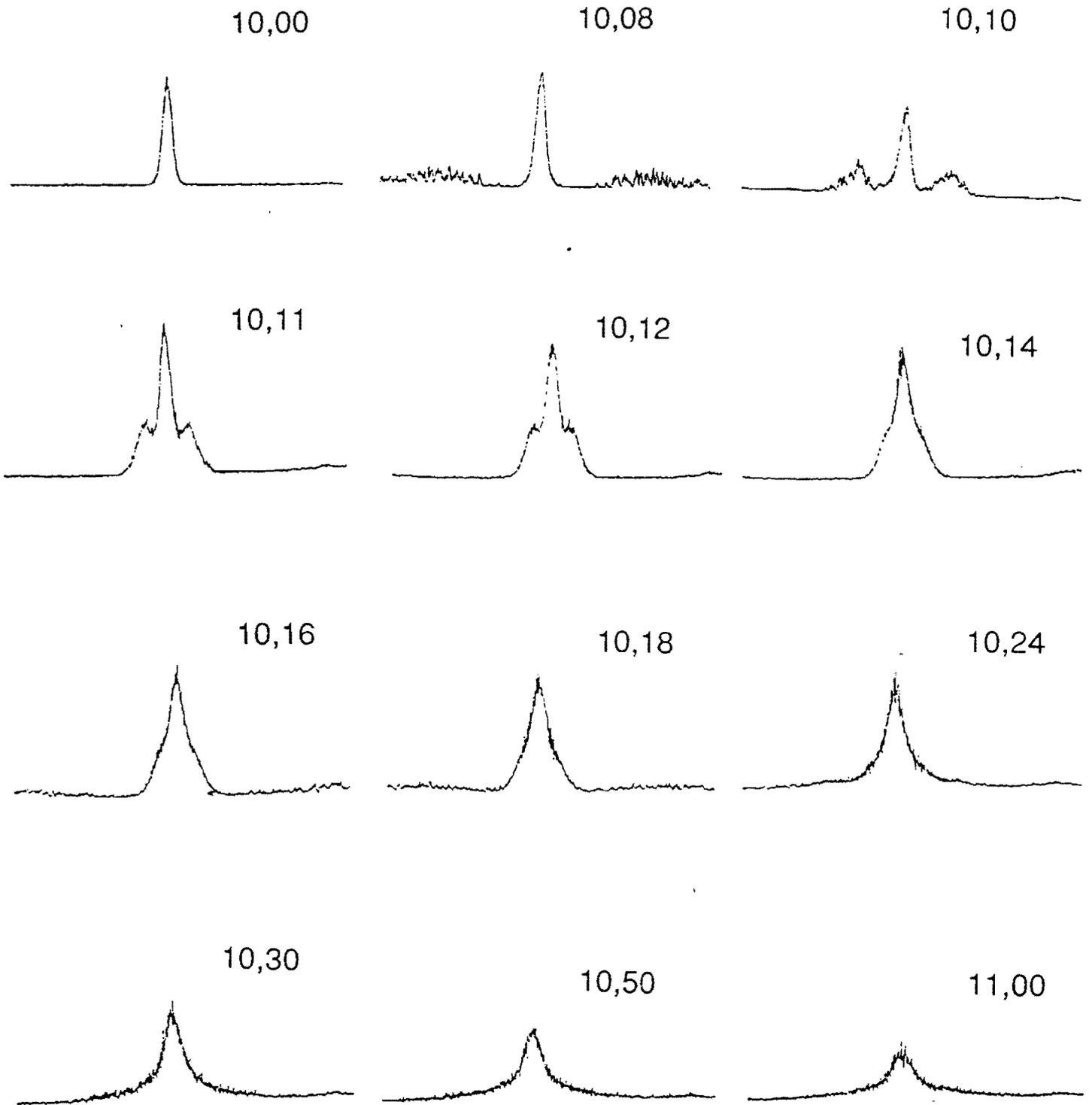


Figure 52 : Evolution de la fonction d'autocorrélation en fonction de la position d'un des prismes (donnée en mm) pour une position du filtre de Lyot Fixe .

émettre des impulsions dans une certaine plage de longueurs d'onde, celui-ci réagit et se comporte très différemment dans le cas où la longueur d'onde est déterminée uniquement par les deux colorants milieu amplificateur/absorbant saturable.

Compte tenu de la complexité et du nombre important des paramètres de la cavité régissant le fonctionnement de cette classe de lasers, il est très difficile de modéliser l'évolution des impulsions dans la cavité. Néanmoins, le formalisme soliton nous a permis de bien simuler les observations expérimentales et l'ensemble des résultats présentés montre l'extrême importance du choix des miroirs par rapport au spectre des impulsions.

III.3. VERROUILLAGE DE MODES PASSIF DANS LE PROCHE INFRAROUGE

La génération d'impulsions femtosecondes dans le proche infrarouge est intéressante pour l'étude des propriétés spectroscopiques des semiconducteurs III-V massifs ou dans des structures du type multipuits quantiques [78]. Certaines expériences sont réalisées directement avec l'oscillateur [79] alors que d'autres nécessitent une puissance crête supérieure à celles obtenues à 800 nm à partir d'un filtrage spectral vers 800 nm dans le continuum produit par des impulsions à 620 nm amplifiées. W. Knox [80] a pour cela développé une chaîne femtoseconde amplifiée à 800nm. Son système est constitué d'un laser à colorant à verrouillage de modes actif suivi d'un amplificateur pompé par un laser à vapeur de cuivre. Des impulsions de 120 fs et 1 μ J sont obtenues à une cadence de 5 KHz.

En verrouillage de modes passif, seule l'équipe de l'Imperial College a produit des impulsions de 110 fs à 750 nm dans des cavités linéaires sans système contrôlant la dispersion de vitesse de groupe [81, 82].

Nous allons présenter les résultats que nous avons obtenus dans le proche infrarouge en utilisant la technique du verrouillage de modes passif dans notre cavité en anneau équipée d'un système de prismes.

III.3.1. Génération d'impulsions courtes à 775 nm

Pour produire des impulsions femtosecondes vers 770-800 nm par verrouillage de modes passif, il faut tout d'abord disposer d'un colorant efficace dans cette gamme de longueur d'onde. Le plus performant est un colorant de la famille des Rhodamines : la Rhodamine 700 (Rh700). Son efficacité est comparable à celle de la Rh6G, et son absorption est centrée à 650 nm [figure 53].

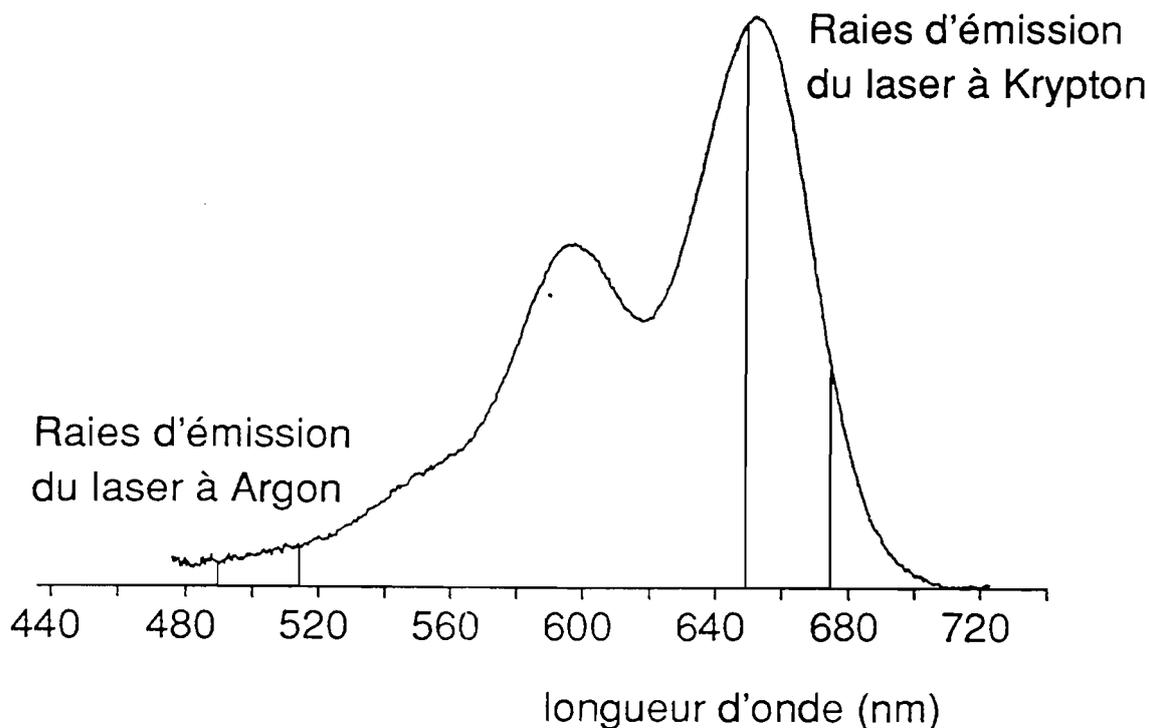


Figure 53 : Spectre d'absorption de la Rhodamine 700 dans l'éthylène glycol.

Pour exciter la Rh 700 avec un laser à Argon et non pas avec un laser à Krypton mieux adapté mais plus rare dans les laboratoires, Marason [83] a étudié le transfert d'énergie en continu entre le DCM et la Rh700 et a obtenu de très bons résultats. Nous avons donc utilisé ce mélange de colorants dans notre cavité. Les miroirs utilisés sont du type "mono-empilement" avec une réflexion maximale centrée à 760 nm. Le miroir de sortie transmet 1,5 % environ entre 760 et 800 nm. Malheureusement, nous n'avons pas du tout obtenu les mêmes résultats que Marason. L'efficacité du mélange de colorants s'est avérée trop faible. En additionnant la Rh 700 à la solution de DCM, nous avons bien observé un décalage de la longueur d'onde d'émission du laser de 650 à 750 nm prouvant qu'il y a bien un transfert d'énergie. Mais le seuil du laser est passé de 1 W avec le DCM à 4 W avec le mélange DCM/Rh700. Nous n'avons pas trouvé d'explications à cette mauvaise efficacité. Toutefois, nous avons récemment appris que des essais tout aussi infructueux avait été réalisés au CNET Lannion [84] dans une cavité linéaire différente de la nôtre prouvant que le problème semble se situer dans le mélange de colorants et non pas dans le type de cavité utilisée.

Une autre solution pour exciter directement la Rh 700 consiste à utiliser un laser à Krypton continu dont les deux principales raies d'émission dans le rouge se situent à 647 et 676 nm. Pour une puissance du laser Krypton de 3 W et pour une concentration en Rh 700 de 10^{-3} Mole/l,

nous avons obtenu en continu 800 mW sur les deux faisceaux de sortie à 750 nm et une courbe d'accord en longueur d'onde allant de 690 à 805 nm représentée sur la figure 54.

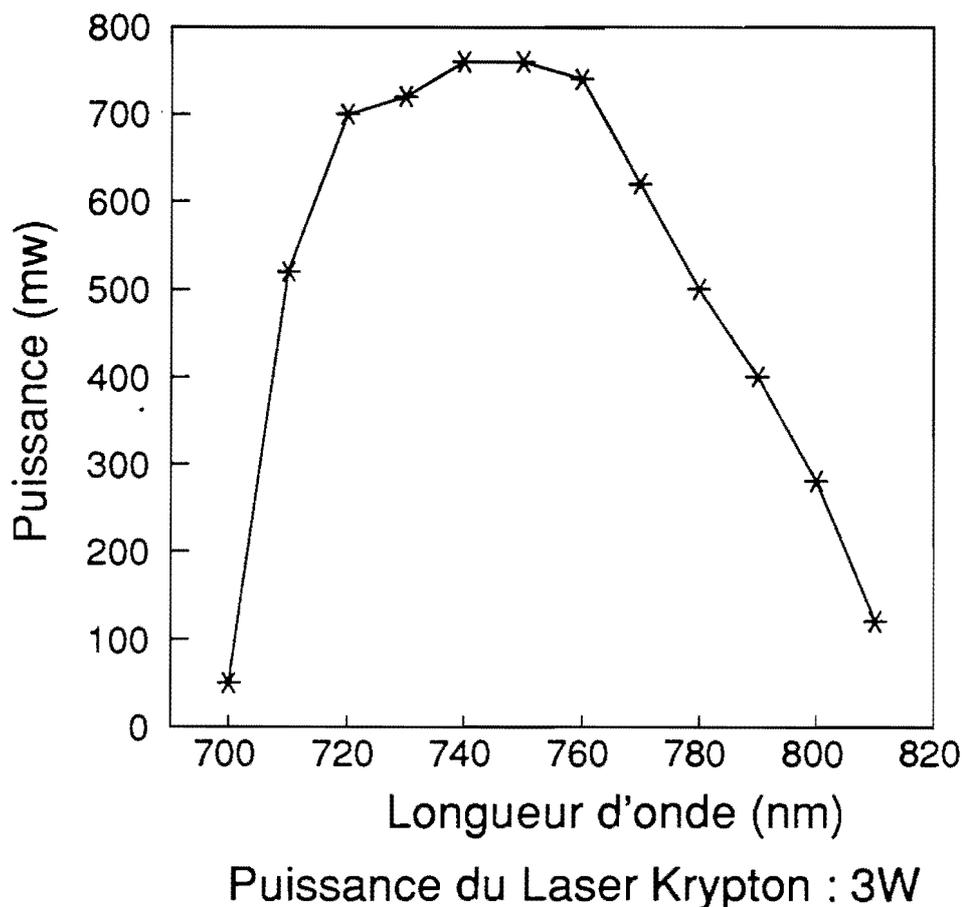


Figure 54 : Courbe d'accord en continu du laser avec la Rh 700 (puissance de pompe du laser Krypton : 3 W , toutes raies rouges)

L'efficacité de la Rh 700 pompée par un laser Krypton continu est donc comparable à celle de la Rh6G pompée par un laser à Argon continu. Signalons que la cavité n'étant pas destinée à produire de la puissance en continu, la transmission du miroir de sortie n'était pas optimisée. Il est donc certainement possible d'obtenir encore plus de puissance en adaptant la transmission du miroir de sortie.

Le premier absorbant saturable que nous avons testé est le DDI (1,1' diéthyl-2-2'-dicarbocyanine iodide). Son coefficient d'extinction est de $20 \cdot 10^4 \text{ Mole}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ au maximum de son absorption située à 730 nm [figure 55]. L'absorbant saturable est dans un premier temps dissous dans du propylène carbonate pour former une solution mère concentrée qui est ensuite dissoute dans de l'éthylène glycol.

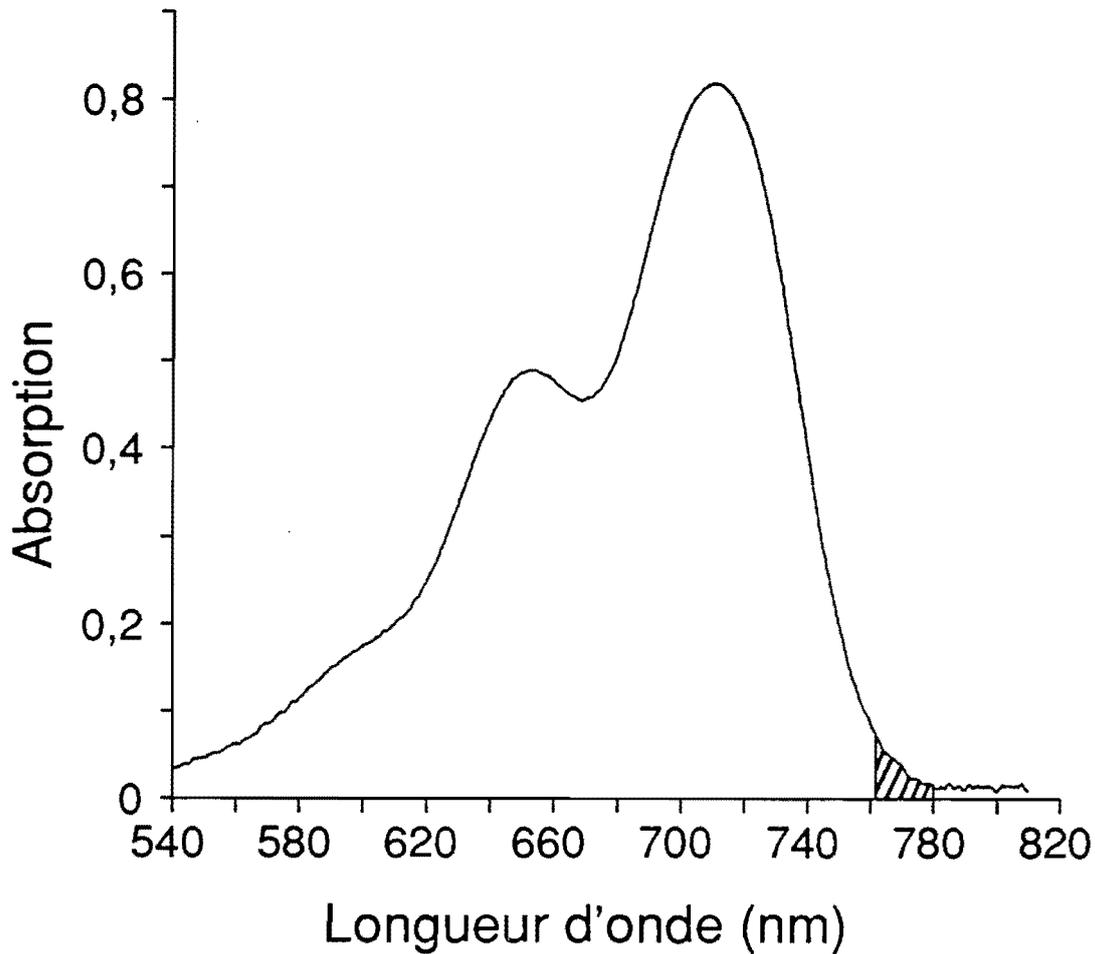


Figure 55 : Spectre d'absorption du DDI dans l'éthylène glycol . La partie hachurée représente la zone dans laquelle les impulsions de moins de 40 fs ont été obtenues.

Lorsque l'on opère en régime impulsionnel, la longueur d'onde d'émission du laser se déplace vers 775 nm même avec des concentrations en absorbant saturable assez faibles (10^{-5} Mole/l). Vers 775 nm, le gain de la Rh700 est encore très élevé alors que l'absorption du DDI est très faible car on se situe à la limite supérieure de sa courbe d'absorption. Nous avons donc utilisé des concentrations en DDI assez élevées, de l'ordre de 10^{-3} Mole/l, pour obtenir des seuils de laser de pompe de 3W environ et un verrouillage de modes efficace.

La distance D entre les prismes de notre ligne dispersive qui était de 300 mm pour la configuration Rh6G/DODCI (voir Chapitre I) a été portée à 380 mm dans cette nouvelle configuration pour observer un régime de fonctionnement stable [85]. En effet lorsque la longueur

d'onde augmente, il faut compenser la diminution de la dispersion de vitesse de groupe ϕ'' introduite par les prismes en augmentant la distance D . La figure 56 représente ϕ'' en fonction de la longueur d'onde pour un système de quatre prismes en silice. Cette évolution de ϕ'' est directement reliée à la diminution de la dispersion de la silice utilisée quand on s'éloigne de sa bande d'absorption. La figure 56 montre également que la dispersion d'ordre trois ϕ''' (dérivée de la courbe) diminue lorsque la longueur d'onde augmente. Ceci est intéressant car on sait que la dispersion d'ordre trois des prismes est une des limitations des performances des lasers femtosecondes.

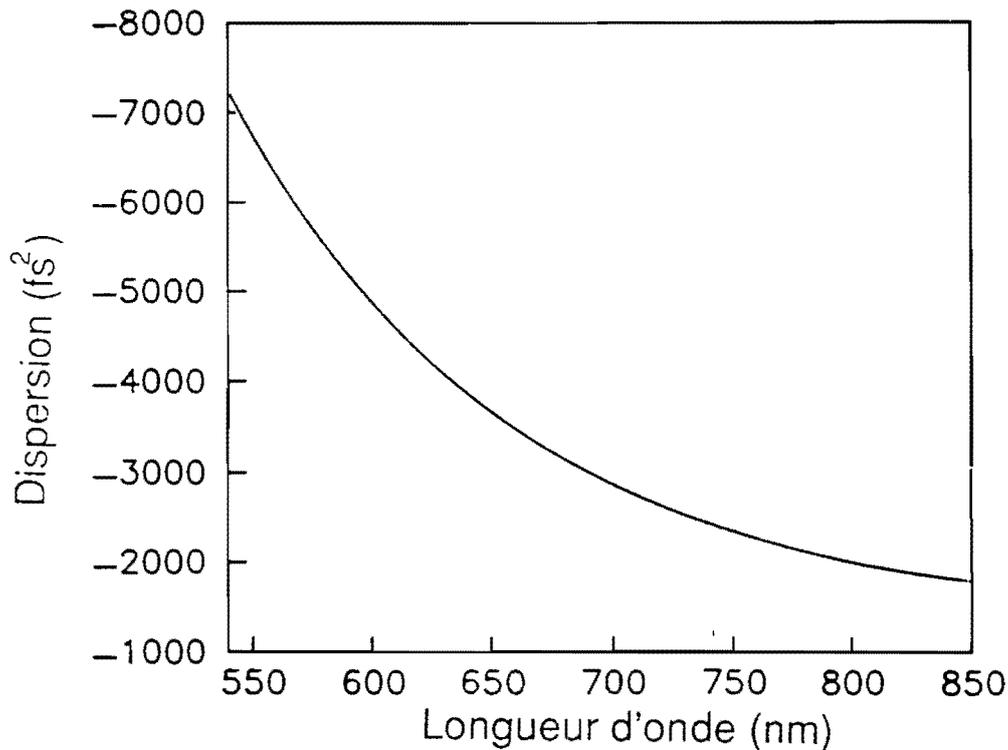


Figure 56 : Evolution de la dispersion d'ordre 2 introduite par un système de 4 prismes en silice en fonction de la longueur d'onde. La distance D entre les prismes est égale à 30 cm et l'épaisseur totale de verre traversée est de 10 mm.

Pour un excès de dispersion négative dans la cavité, le laser produit des impulsions stables, dont le spectre est dissymétrique. Ce comportement est similaire à celui du laser fonctionnant à 620 ou à 685 nm. Mais en ajustant la dispersion dans la cavité pour obtenir les impulsions les plus courtes possibles, on observe que leur spectre s'élargit et qu'il apparaît une bosse située du côté des basses longueurs d'ondes. Au fur et à mesure que la largeur temporelle des impulsions

diminue, cette bosse se translate vers les grandes longueurs d'onde et devient de plus en plus prépondérante [figure 57]. Parallèlement à cette évolution spectrale, la durée des impulsions passe par un minimum temporel puis augmente à nouveau. Cette évolution s'effectue sans changement brutal du régime de fonctionnement du laser et aucun comportement du type soliton d'ordre supérieur n'a été observé.

Les impulsions les plus courtes obtenues [86] ont une durée Δt égale à 36 fs en supposant un profil en sécante hyperbolique [figure 58]. Le spectre de ces impulsions est centré à 775 nm et présente un profil à deux bosses. La largeur du spectre à mi-hauteur $\Delta\lambda$ est égale à 18,5 nm ce qui conduit à un produit $\Delta t \Delta\nu = 0,333$. La puissance moyenne de chaque faisceau de sortie est de 10 mW environ pour une puissance du laser de pompe égale à 3,4 W (100 mW au dessus du seuil).

L'autocorrélation des impulsions présente des pieds importants si on la compare à une autocorrélation d'impulsions de 36 fs dont le profil est en sécante hyperbolique (courbe en pointillé sur la figure 58).

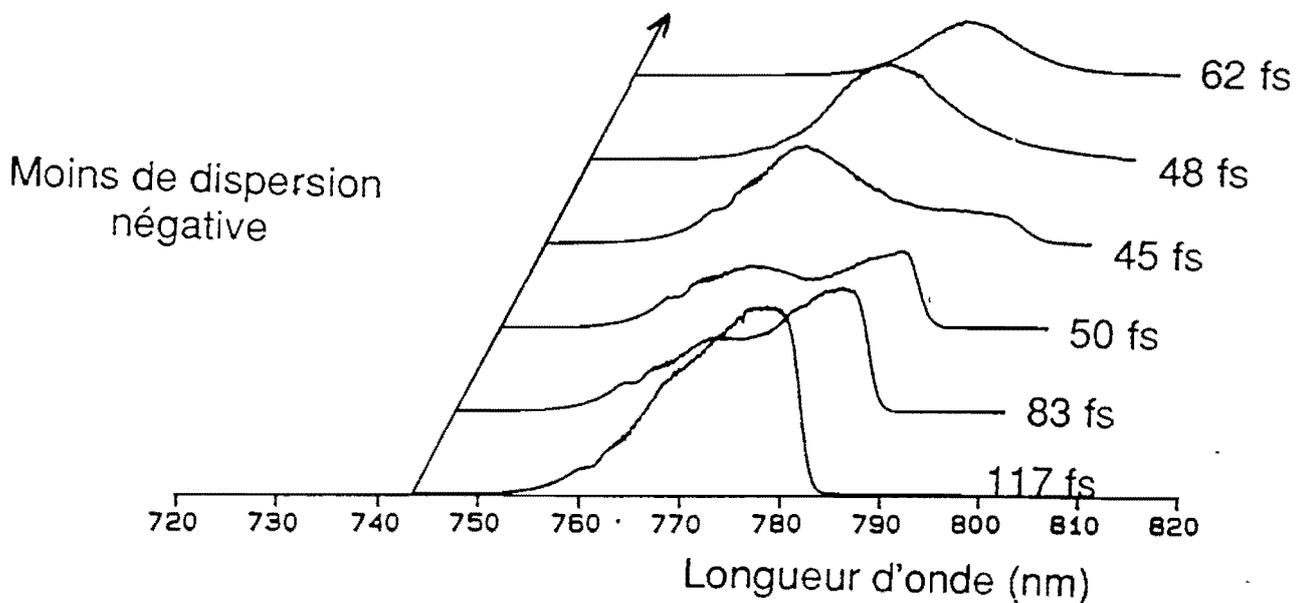


Figure 57 : Evolution du spectre des impulsions en fonction de la dispersion intracavité.

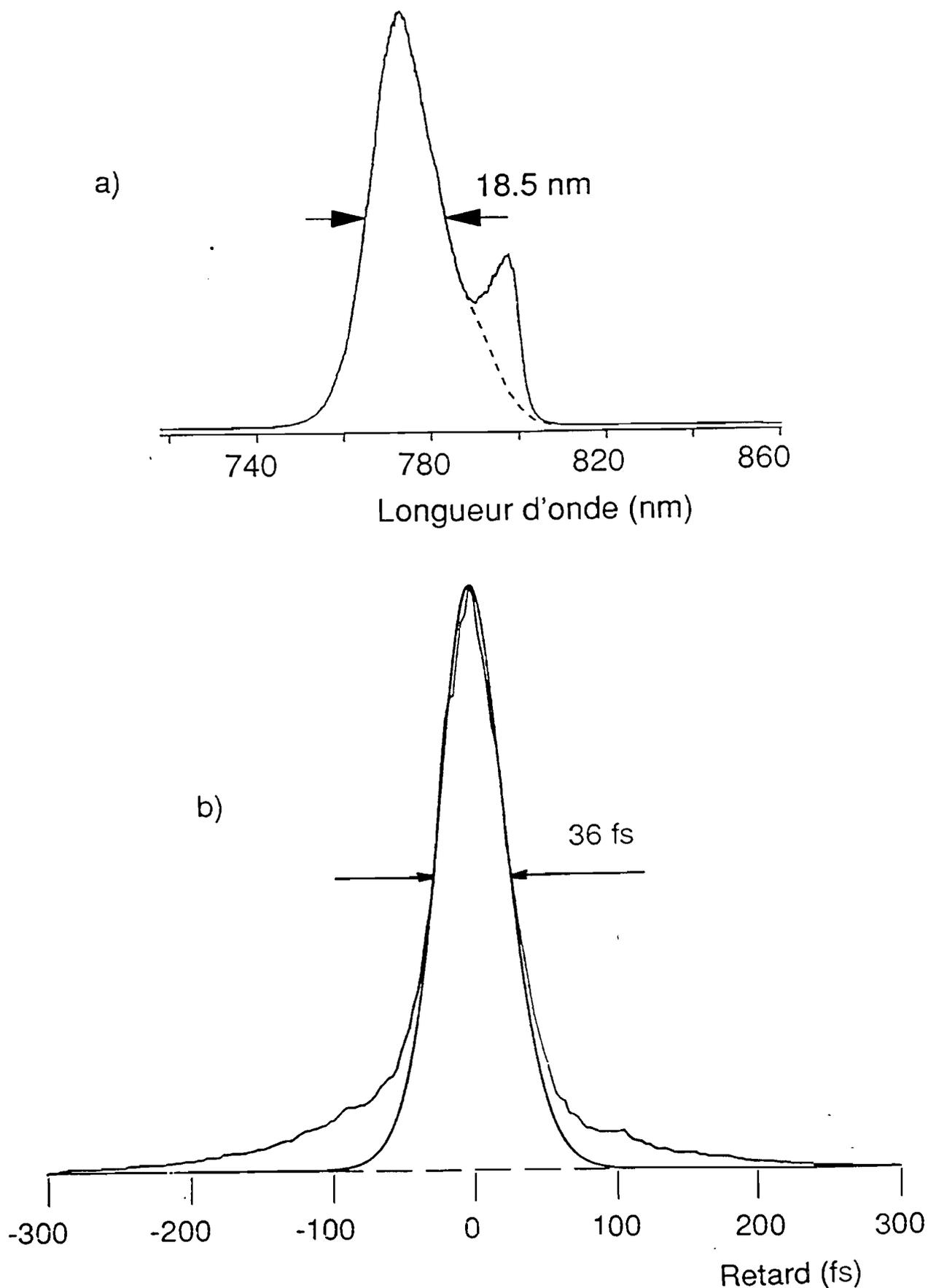


Figure 58 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions les plus courtes produites par le laser vers 775 nm. La courbe en pointillé correspond à la meilleure approximation de l'autocorrélation en supposant un profil en sécante hyperbolique.

Quand le laser fonctionne en régime impulsionnel et quelle que soit la largeur temporelle des impulsions, on observe quatre impulsions dans la cavité. Deux d'entre elles tournent dans un sens et les deux autres dans le sens inverse. Avec une photodiode rapide on s'aperçoit, que dans chaque faisceau de sortie, les deux impulsions ont la même énergie et sont séparées temporellement de 2,5ns [figure 59]. Cet intervalle de temps correspond à une distance parcourue égale au quart de la longueur de la cavité et également à la distance séparant le milieu amplificateur de l'absorbant saturable. La figure 60 simule l'évolution de ces quatre impulsions dans la cavité. Toutes les paires d'impulsions naissent obligatoirement dans l'absorbant saturable et s'y rencontrent à chaque tour de cavité. Nous prendrons comme origine de temps $T=0$, l'instant où les impulsions A_2 et B_2 se croisent dans l'absorbant saturable. Après 2,5 ns, les deux impulsions A_1 et B_1 se croisent également dans l'absorbant saturable alors que A_2 est amplifiée. Ensuite les impulsions A_1 et B_2 sont amplifiées avant que les impulsions A_2 et B_2 se croisent à nouveau dans l'absorbant saturable. On voit donc que les quatre impulsions arrivent dans le milieu amplificateur séparées de 2,5 ns. Le gain du milieu amplificateur est donc le même pour les quatre impulsions. De plus, le temps de recouvrement du gain dans la Rh700 étant inférieur à 2,5 ns, le gain est maximal. Quatre impulsions peuvent donc exister dans la cavité ce qui n'est pas le cas avec la Rh6G car son temps de recouvrement de gain est plus long.

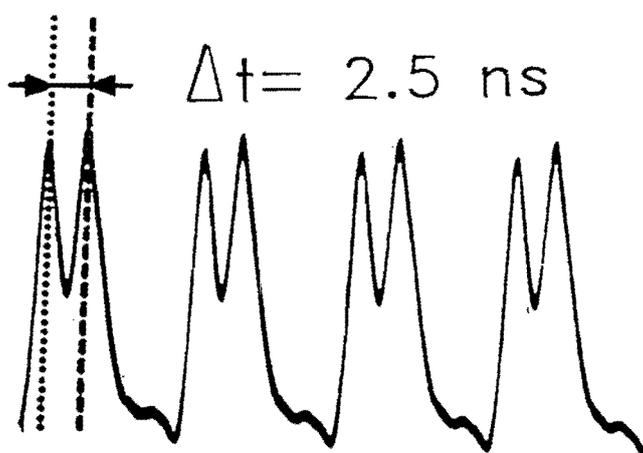


Figure 59 : Trace d'oscilloscope montrant le train des impulsions.

Les impulsions produites sont moins stables que celles obtenues précédemment à 620 et 685 nm. Le laser est en effet sensible aux fluctuations d'alignement de la cavité ou du laser Krypton car sa puissance doit être ajustée juste au dessus du seuil pour ne pas trop saturer l'absorbant saturable. Si l'on augmente la puissance du laser de pompe, le fonctionnement du laser devient chaotique. Nous allons donc étudier un autre absorbant saturable pour tenter d'améliorer la stabilité.

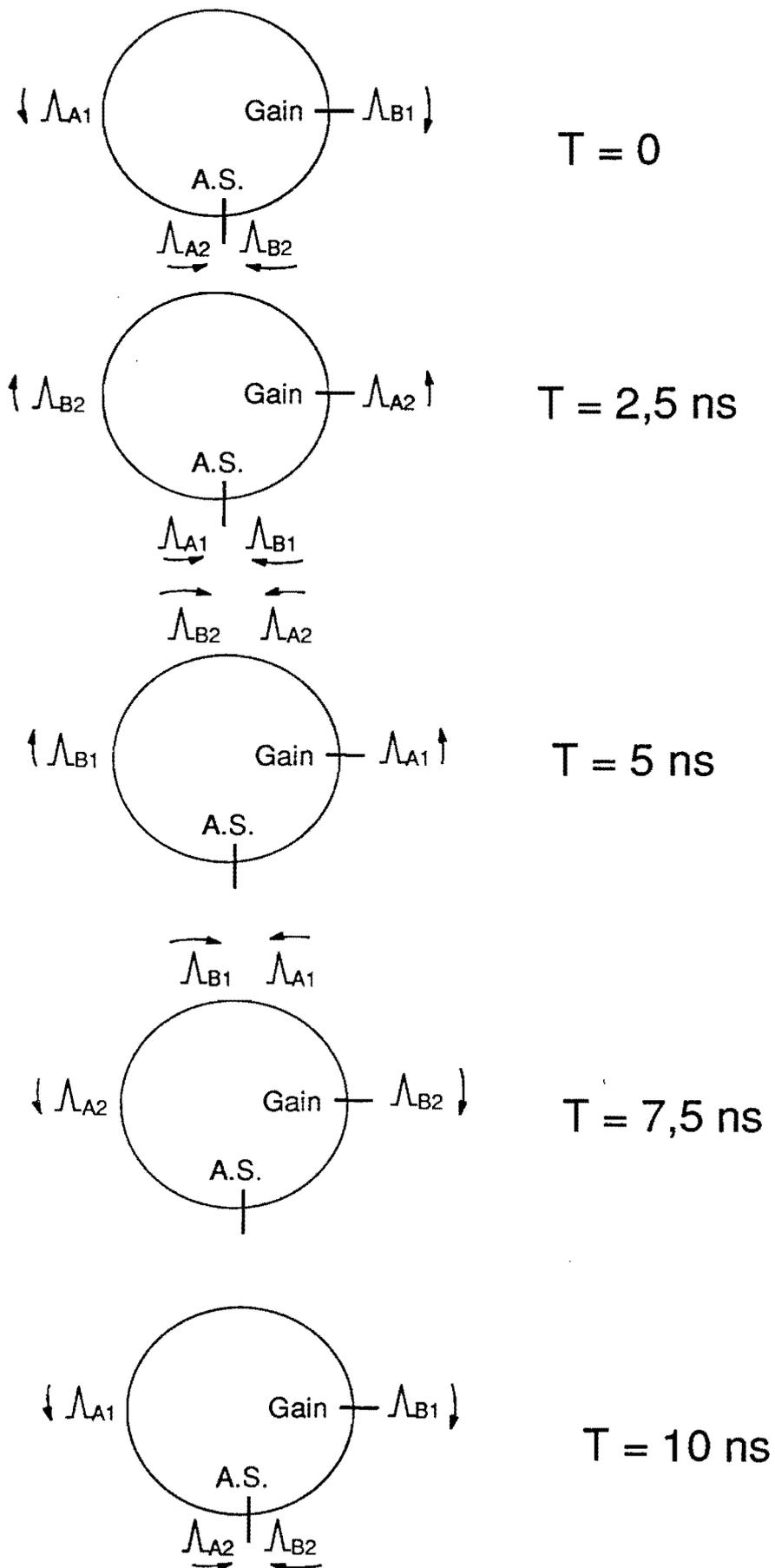


Figure 60 : Evolution des quatre impulsions dans la cavité.

III.3.2. Verrouillage de modes passif vers 800 nm

Pour améliorer les performances du laser nous avons testé un deuxième absorbant saturable : HITCI (1,1', 3, 3', 3' hexaméthylindotricarbocyanine iodide). Son absorption est décalée vers les grandes longueurs d'onde par rapport au DDI [figure 61] et devrait mieux convenir au spectre de fluorescence de la Rh700. Son coefficient d'extinction au maximum d'absorption est égal à $21,5 \cdot 10^4 \text{L.Mole}^{-1}\text{cm}^{-1}$. L'absorption de HITCI étant plus grande vers 780-800 nm, nous avons diminué la concentration en absorbant saturable ($\sim 10^{-4} \text{Mole/l}$) pour obtenir l'émission d'impulsions pour des puissances du laser pompe de l'ordre de 4 W.

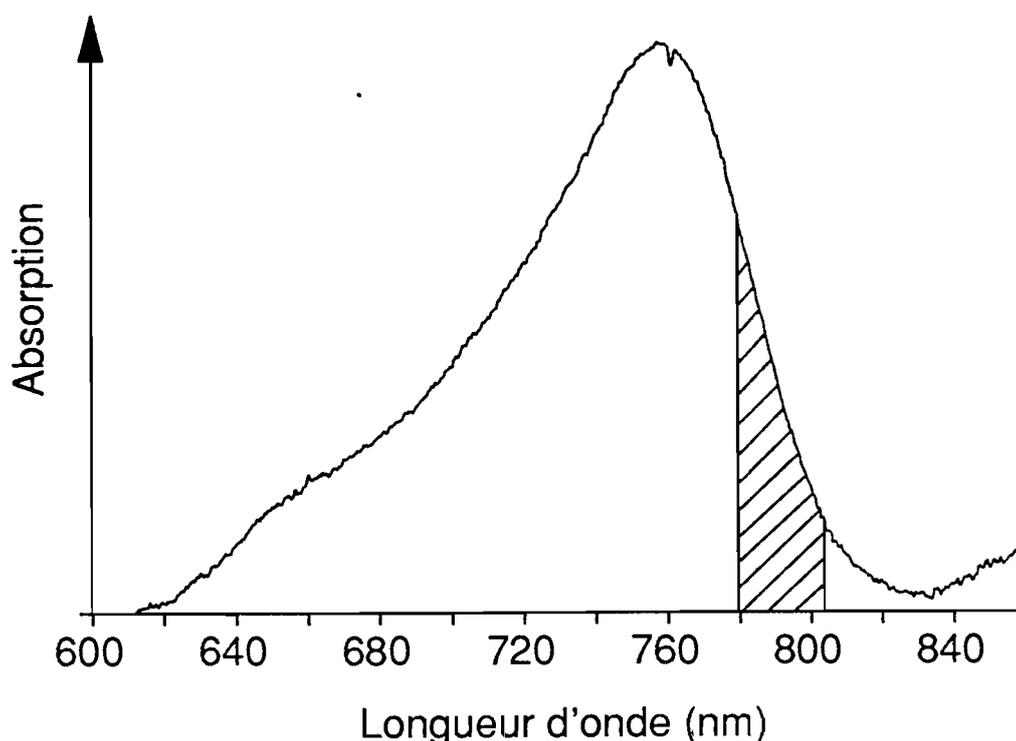


Figure 61 : Spectre d'absorption de HITCI dans l'éthylène glycol . La partie hachurée représente la zone dans laquelle les impulsions de 50 fs ont été obtenues.

Dans une cavité similaire à la précédente, nous avons également observé la présence de quatre impulsions. Pour tenter d'éliminer ce comportement, nous avons d'une part réduit la longueur totale de la cavité (de 3 m à 2,16 m) pour diminuer l'intervalle de temps séparant les impulsions et se rapprocher de la valeur du temps de recouvrement du gain, estimé être entre 1,5 et 2 ns. Il faut noter que nous n'avons pas pu réduire davantage la longueur de la cavité à cause de l'encombrement du système de prismes.

D'autre part, la distance séparant l'absorbant saturable du milieu amplificateur (400 mm) est inférieure au quart (540 mm) de la longueur totale de la cavité courte. De ce fait, quatre impulsions ne peuvent pas coexister dans la cavité car alors elles ne verraient pas toutes le même gain et les moins amplifiées seraient éliminées par l'absorbant saturable. La figure 62 représente la configuration du laser avec la cavité courte dissymétrisée. En utilisant le calcul sur les cavités résonnantes en faisceaux gaussiens, nous avons redéfini les zones de stabilité de la cavité courte. Par rapport à la version longue, il faut éloigner les deux miroirs de la sous-cavité amplificatrice de 3mm environ.

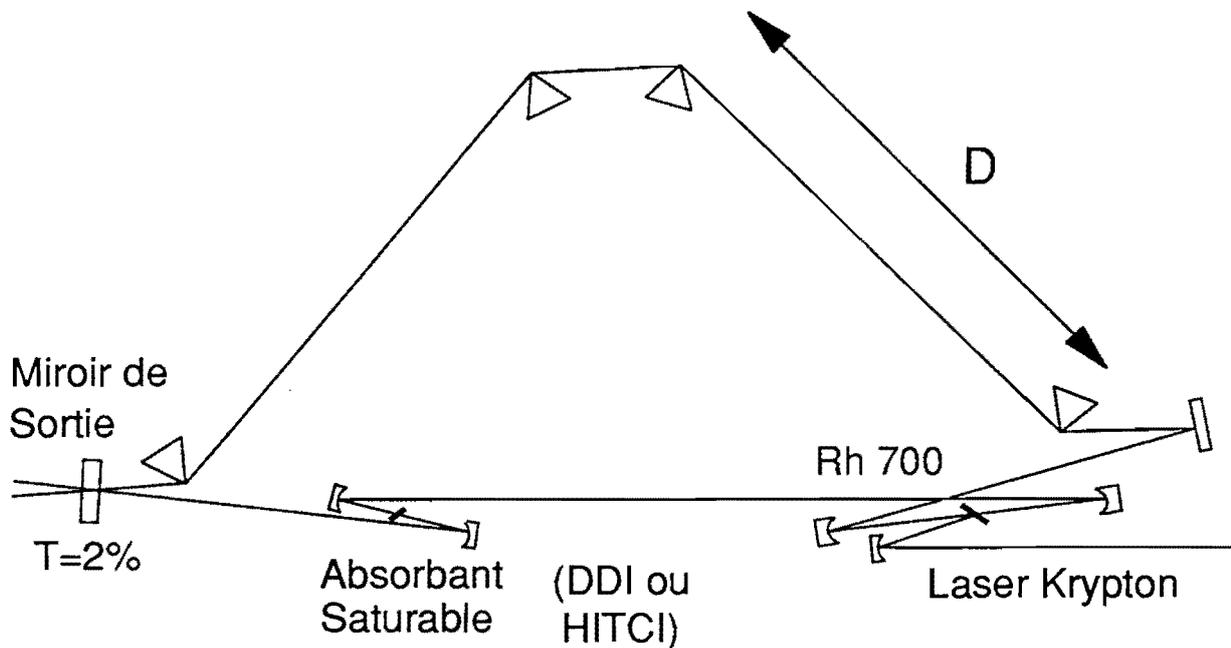


Figure 62 : Structure de la cavité courte dans la configuration infrarouge.

Dans ces conditions, la plage de puissance du laser de pompe pour laquelle le laser opère avec uniquement deux impulsions dans la cavité est de l'ordre de 300 mW au-dessus du seuil. En ajustant la dispersion de vitesse de groupe, le laser délivre régulièrement des impulsions inférieures à 100 fs.

Lorsque le jet d'absorbant saturable est dans le plan focal de la sous cavité M_4M_5 , le spectre des impulsions est très dissymétrique avec un front très raide vers les grandes longueurs d'onde et un front de descente beaucoup plus lent vers les basses longueurs d'onde [figure 63a]. L'autocorrélation des impulsions produites présente des pieds importants et ne correspond pas à une autocorrélation d'impulsions dont le profil temporel est en sécante hyperbolique comme le montre la figure 63b. D'autre part, il est très difficile de produire des impulsions inférieures à 100fs car alors le laser devient instable.

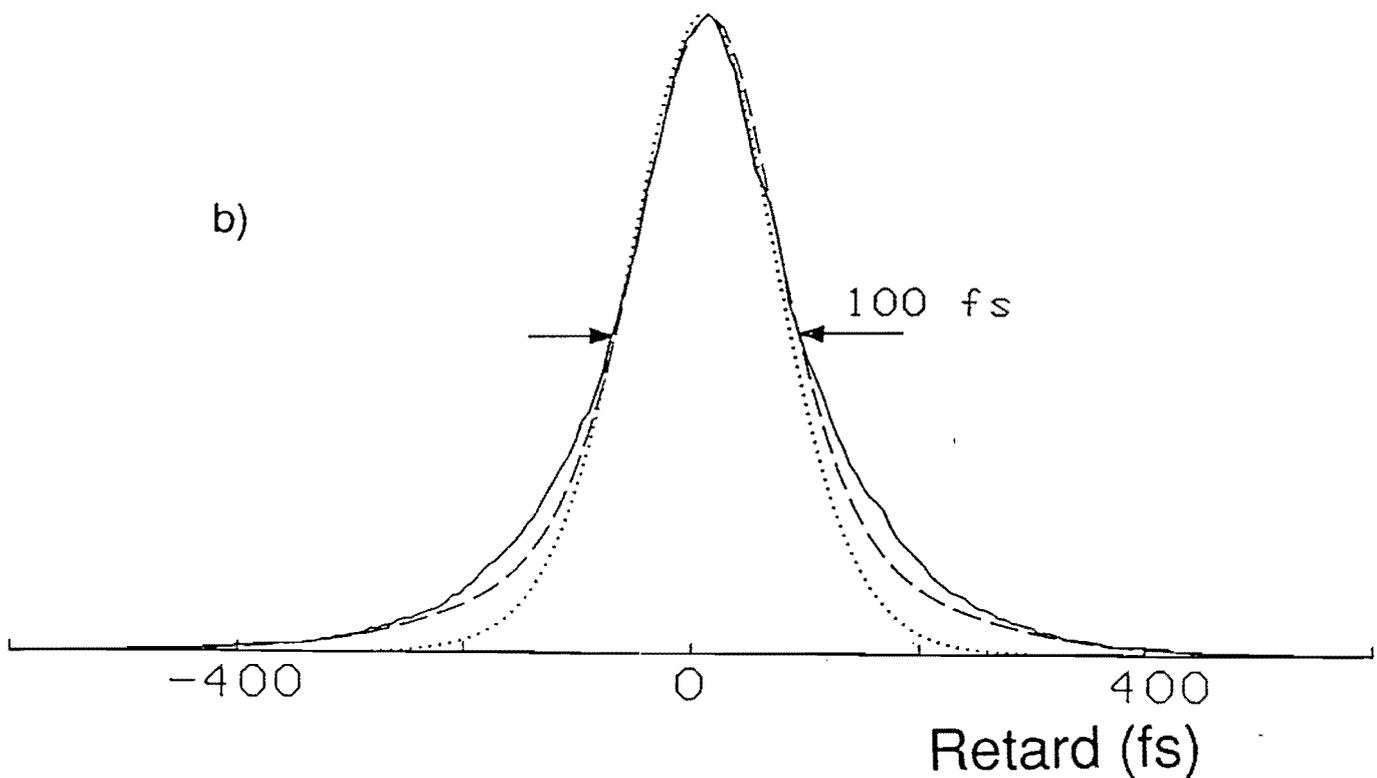
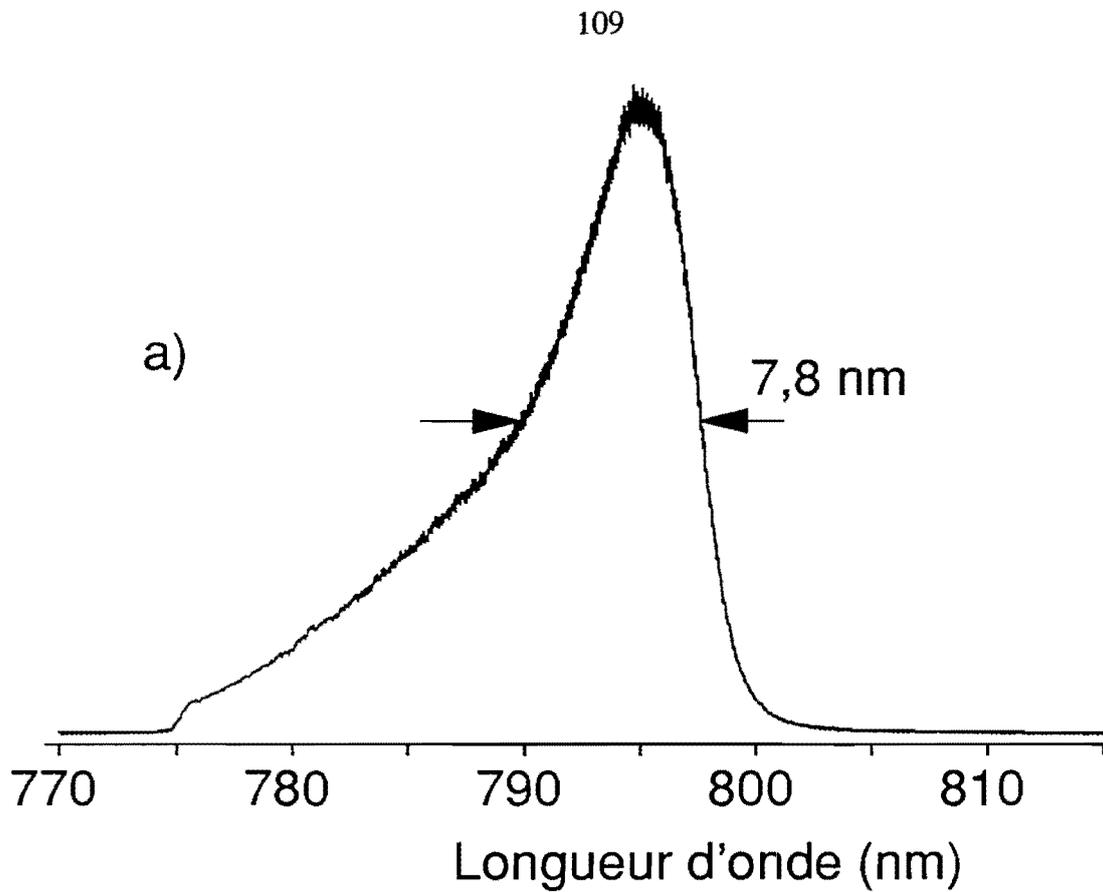


Figure 63 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions de 100 fs obtenues pour un jet d'absorbant saturable dans le plan focal de la sous cavité. La courbe en pointillé représente la meilleure approximation en supposant un profil temporel en secante hyperbolique, alors que la courbe en traits mixtes est obtenue en utilisant la transformée de fourier du spectre comme profil temporel.

En supposant que la phase des fréquences composant le spectre des impulsions est constante, nous avons appliqué une transformée de Fourier en spectre pour remonter au profil temporel des impulsions. Puis nous en avons déduit la fonction d'autocorrélation correspondante qui présente un bon accord avec l'autocorrélation expérimentale obtenue [figure 63 b]. En admettant que l'on puisse décrire le profil du spectre de l'impulsion par une exponentielle décroissante du type $f(x)=\exp(-x/a)$ si $x>0$ et $f(x) = 0$ si $x<0$ (ce qui n'est pas loin du spectre observé) le profil temporel de l'impulsion est alors une fonction Lorentzienne égale à : $1/(1 + at^2)$. C'est une fonction symétrique qui ressemble à une sécante hyperbolique mais qui décroît moins vite à l'infini [figure 64] ce qui explique le profil des autocorrélations obtenues expérimentalement.

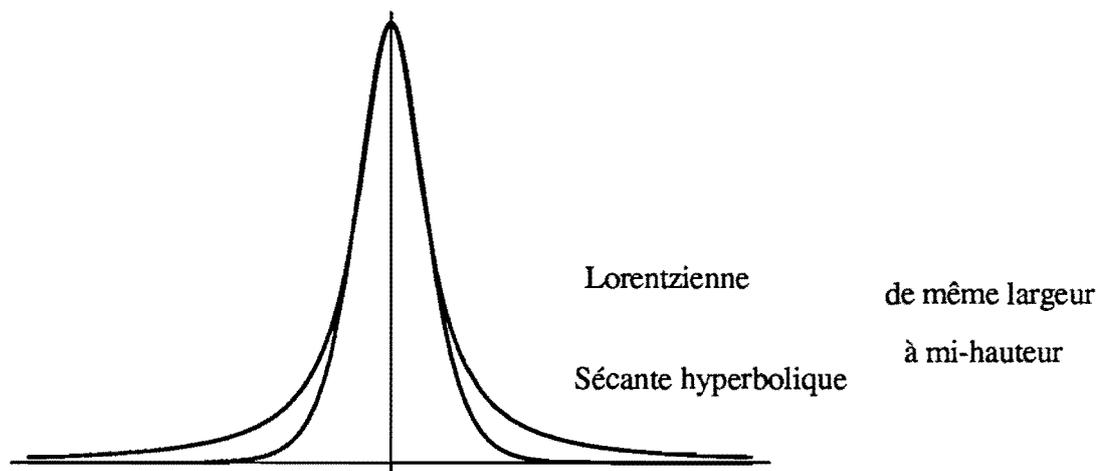


Figure 64 : Comparaison entre une lorentzienne et une secante hyperbolyque de même largeur à mi-hauteur.

Pour obtenir des impulsions plus courtes, il faut défocaliser le jet d'absorbant saturable pour translater le spectre des impulsions plus vers l'infrarouge. Dans ce cas, les impulsions les plus courtes obtenues [figure 65a] ont une durée Δt égale à 50 fs en supposant un profil temporel en sécante hyperbolique [87]. Le spectre de ces impulsions est centré à 800 nm et a une largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda$ égale à 14 nm [figure 65b]. Le spectre est plus symétrique que ceux obtenus à 620 nm. Le produit largeur temporelle, largeur spectrale $\Delta t \cdot \Delta\nu$ est égal à 0,328 et montre que le profil

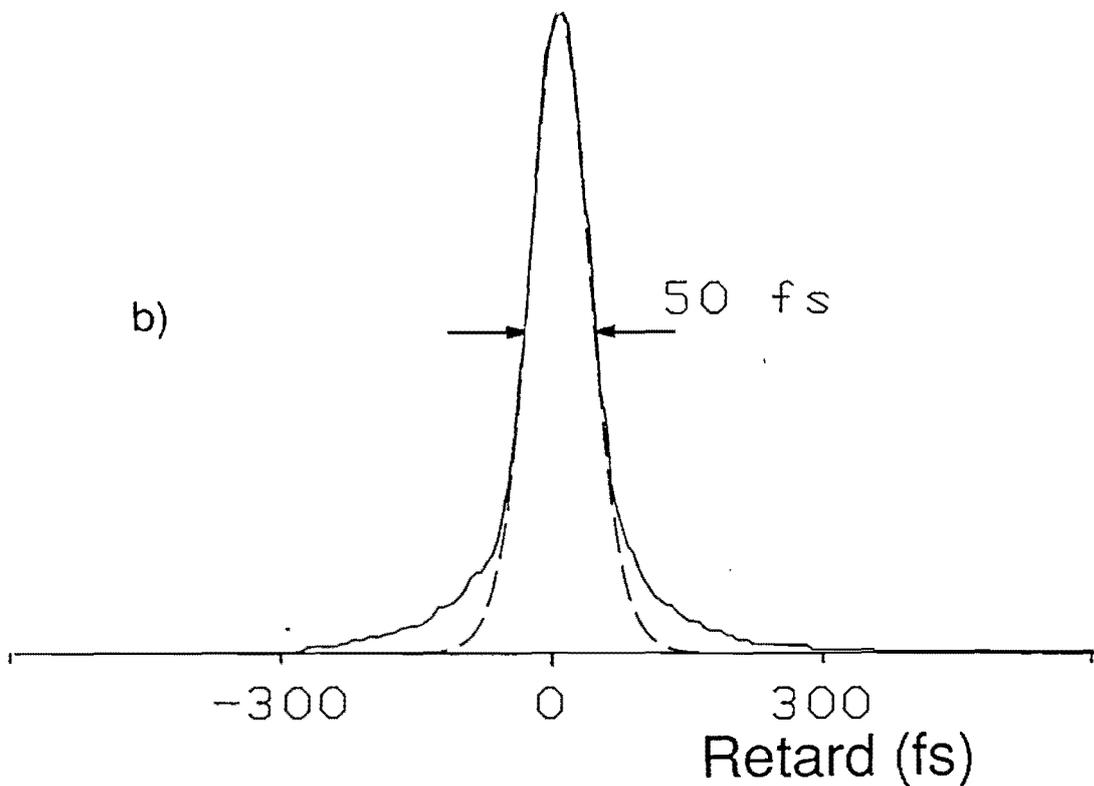
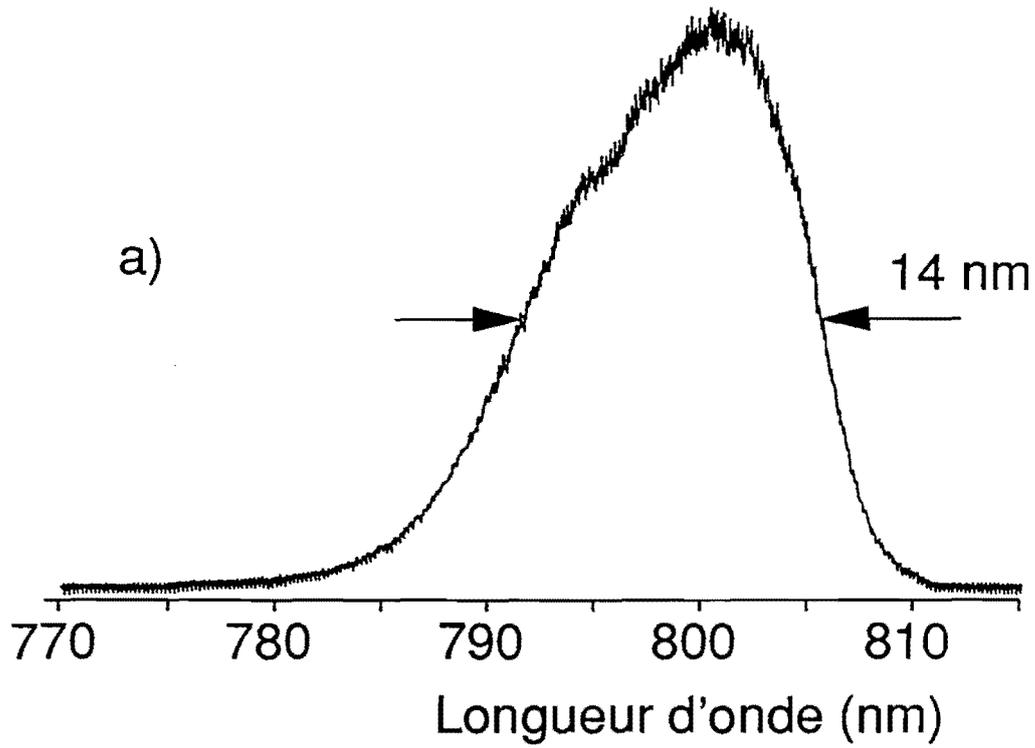


Figure 65 : Spectre (a) et autocorrélation (b) des impulsions des impulsions les plus courtes produites par le laser vers 800 nm. La courbe en pointillé représente la meilleure approximation en supposant un profil temporel en secante hyperbolique.

temporel des impulsions est proche d'un profil en $1/ch^2 (t/t_0)$, comme le prouve également la comparaison avec l'autocorrélation d'une impulsion de 50 fs dont le profil est en sécante hyperbolique.

Les meilleures performances du laser ont donc été obtenues pour une position du jet d'absorbant saturable décalée par rapport au point focal, comme nous l'avions déjà observé aux autres longueurs d'onde étudiées. Il semble donc que ce comportement soit une caractéristique du verrouillage de modes passif et ne dépende pas des colorants utilisés. Dans ces conditions, la puissance de chaque faisceau de sortie est de 20 mW.

Nous avons donc montré qu'il était possible de produire des impulsions inférieures à 100 fs vers 800 nm par verrouillage de modes passif de la Rh700 [88]. Avec une cavité courte et HITCI comme absorbant saturable, nous sommes parvenus à une très bonne stabilité, comparable à celle des lasers femtosecondes opérant à 620 nm.

Ces résultats sont meilleurs que ceux obtenus par l'équipe de l'Imperial Collège [81, 82] avec la Rh700. Récemment, J.A.R. Williams et coll. [89] ont étudié le verrouillage de modes passif de la Rhodamine 800 dans une cavité linéaire en utilisant le néocyanine comme absorbant saturable. La très faible efficacité du mélange Rhodamine 800/Pyridine 1 excité par un laser à Argon (transfert d'énergie), a donné des performances assez faibles. Des impulsions de 260 fs à 814 nm ont été obtenues avec une puissance moyenne de 1 mW. Plus intéressants sont les derniers travaux présentés par W. Knox [90] au congrès CLEO 89. Il a utilisé une cavité en anneau contenant de la Rhodamine 800 comme milieu amplificateur et HITCI comme absorbant saturable. Le laser à colorant est excité par un laser continu à saphir dopé au titane (émettant vers 710 nm) lui-même pompé par un laser à Argon continu. Pour éviter un fonctionnement avec des impulsions multiples, la longueur de la cavité a été réduite à 1,8 m rendant impossible l'utilisation d'un système de prismes. Dans ces conditions, des impulsions de 100 fs à 820 nm ont été produites. Cette solution est très lourde et beaucoup plus complexe à utiliser que celle que nous avons développée et présentée dans ce chapitre.

Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter une application du laser femtoseconde infrarouge à la spectroscopie non linéaire des structures à puits quantiques GaAs / GaAlAs.

III.4 SPECTROSCOPIE NON LINEAIRE RESOLUE EN TEMPS DANS LES STRUCTURES A PUIITS QUANTIQUES GaAs/GaAlAs.

III.4.1 Introduction

L'utilisation d'une source d'impulsions femtosecondes dans l'infrarouge proche (800 nm), à haut taux de répétition (140 MHz), permet d'augmenter de façon spectaculaire la détectivité des expériences de spectroscopie non linéaire résolue dans le temps.

L'exemple que nous présentons ici concerne l'étude de la saturation d'absorption dans les structures à puits quantiques multiples GaAs /GaAlAs. Les structures étudiées sont fabriquées par le Laboratoire Central de Recherche de la société Thomson CSF. Elles sont destinées à la réalisation de modulateurs de lumière bidimensionnels [91]. La modulation de lumière peut être réalisée par commande électrique ou optique. Dans le cas de la commande optique (qui nous intéresse ici), un plasma dense d'électrons et de trous photoexcités modifie la structure de bande du semiconducteur et donc son spectre d'absorption. La longueur d'onde du laser femtoseconde infrarouge est située dans la zone d'absorption de GaAs, et permet donc d'étudier ces phénomènes de saturation.

III.4.2 Structures étudiées

Les structures étudiées sont constituées par un empilement périodique de couches de GaAs et GaAlAs. La concentration en Aluminium dans les couches de GaAlAs est de 0,28. L'épaisseur des couches de GaAs est de 8 nm et celle de GaAlAs est de 12 nm. Ces structures sont réalisées par la technique d'épitaxie par jet moléculaire. Le schéma de bandes de ces structures est présenté sur la figure 66 . Le confinement latéral des porteurs (dans la direction z) dans le puit de potentiel, permet d'observer les transitions excitoniques à température ambiante.

Ces transitions sont clairement visibles sur le spectre de transmission linéaire de l'échantillon montré sur la figure 67. La quantification des niveaux par le confinement du champ permet d'observer le premier niveau excitonique décomposé en deux pics. Ceux-ci correspondent, d'une part, aux transitions entre le niveau des trous lourds et la première sous bande de conduction ($\lambda=840$ nm) et, d'autre part, entre le niveau des trous légers et la première sous bande de conduction ($\lambda=830$ nm).

La deuxième transition excitonique est également visible sur le spectre vers 770 nm. Par contre les transitions associées aux trous lourds et légers ne sont pas résolues à température ambiante.

On observe enfin, dans la zone de transparence de GaAs, des franges d'interférences (par effet Fabry-Pérot) dues aux réflexions sur les faces d'entrée et de sortie de l'échantillon.

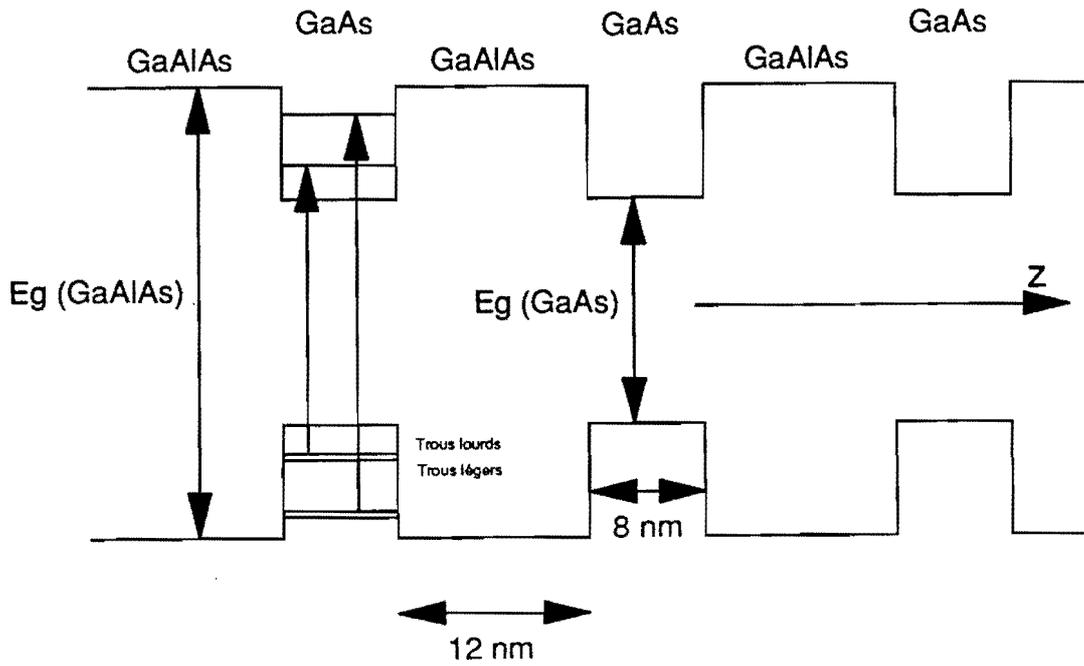


Figure 66 : Structure périodique des niveaux d'énergie dans un puit quantique.

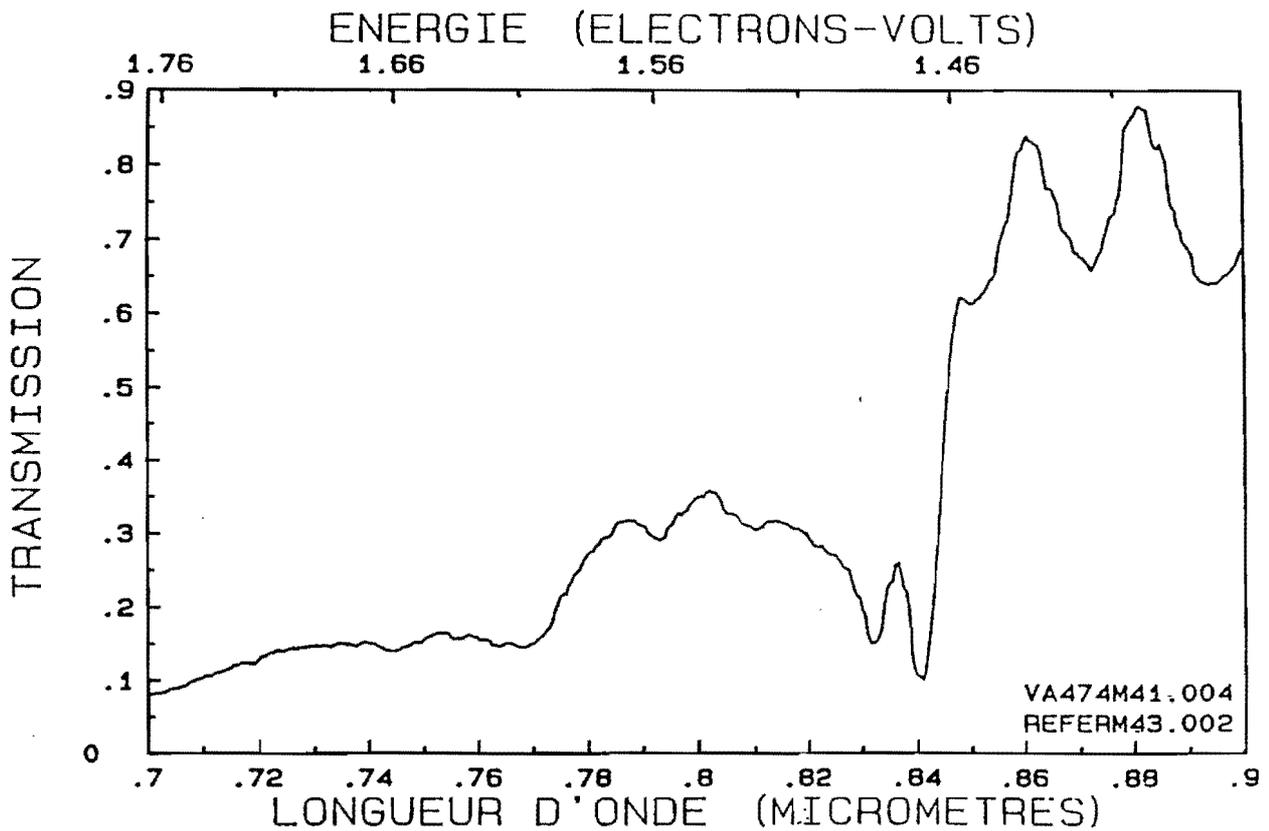


Figure 67 : Spectre d'absorption linéaire d'un puit quantique.

III.4.3 Rappels sur les origines des non linéarités optiques

Les non linéarités optiques dans les semiconducteurs peuvent être décomposées en deux grandes classes :

- non linéarités intrinsèques
- non linéarités extrinsèques.

Dans le cas des non linéarités intrinsèques, la longueur d'onde du faisceau optique est située dans la zone de transparence de l'échantillon. L'énergie des photons est donc inférieure à l'énergie de la bande interdite de GaAs. Il n'y a donc pas création de porteurs photoexcités dans la bande de conduction. Dans ce cas il n'y a pas d'échange d'énergie entre le faisceau optique et le semiconducteur. Les variations induites sur le spectre sont donc ultrarapides mais nécessitent des puissances de commande gigantesques. C'est le cas par exemple de l'effet Stark optique [92]. La puissance délivrée par l'oscillateur femtoseconde n'est pas suffisante pour engendrer ce type d'effet, il faut alors utiliser un système femtoseconde amplifié.

Au contraire, dans le cas des non linéarités extrinsèques la longueur d'onde du faisceau saturant est située dans la bande d'absorption du semi-conducteur. Il existe alors un échange d'énergie entre l'onde optique et l'échantillon, sous forme de création d'un plasma d'électrons dans la bande de conduction et de trous dans la bande de valence. Dans ce cas on peut espérer obtenir des puissances de commande plus faibles, mais les temps de réponse sont alors limités par les temps de relaxation des populations photoexcitées, en général assez longs [93].

Les effets de non linéarités extrinsèques peuvent être séparés en deux catégories [94] :

- les effets liés au remplissage de l'espace des phases,
- les effets liés aux interactions à N corps.

En régime d'excitation subpicoseconde, les effets liés à l'occupation de l'espace des phases se traduisent par une transparence photo-induite à la longueur d'onde de la pompe (hole burning) puis par une redistribution de l'énergie des porteurs qui relaxent vers le bas de la bande de conduction. Les transitions optiques deviennent alors impossibles au voisinage de la bande interdite, induisant une diminution de l'absorption.

L'excitation d'un plasma dense d'électrons et de trous induit (par interaction à N corps), d'une part, un écrantage de l'interaction excitonique et, d'autre part, une renormalisation de la bande interdite.

Aux fortes densités de puissance tous ces effets sont simultanément présents et difficilement discernables. Nous allons montrer comment expérimentalement , grâce à l'utilisation d'une source d'impulsions infrarouges à haut taux de répétition, nous avons pu isoler les cinétiques de ces différents effets.

Le montage expérimental est présenté sur la figure 68. On utilise comme montage de base l'autocorrélateur décrit précédemment (Chapitre I). Une densité sur la voie 1 permet de créer un faisceau sonde suffisamment peu intense pour tester l'effet créé par la pompe sans le perturber. Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés dans l'échantillon avec un objectif X20 sur un diamètre de 25 μm environ. Grâce au taux de répétition élevé du laser (140 MHz), il est possible de visualiser en temps réel, sur l'écran d'un oscilloscope, la cinétique de l'effet.

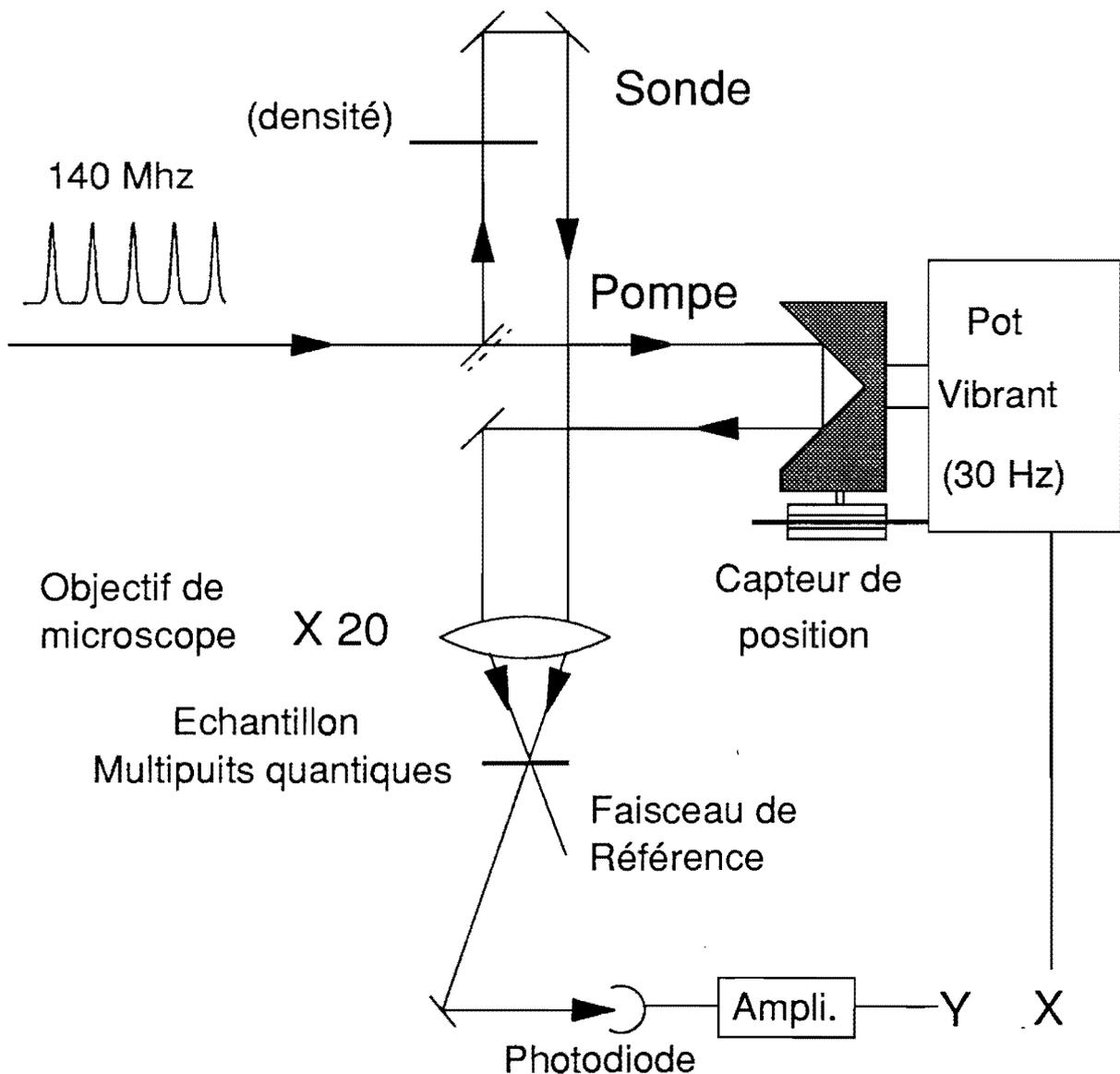


Figure 68 : Schéma du montage.

A la longueur d'onde de 800 nm, les porteurs (électrons) sont injectés uniquement dans la première sous bande de GaAs (voir figure 69), et hors résonance excitonique. L'effet visualisé par le faisceau sonde est la transparence photoinduite (par saturation de l'absorption) à la même longueur d'onde (800 nm).

En mesurant la cinétique de la saturation en fonction de la densité de puissance on peut isoler les différentes contributions aux phénomènes observés. Cette mesure est facile et relativement précise grâce à la bonne stabilité du laser. Les résultats expérimentaux pour différentes densités d'énergie de la pompe sont présentés sur la figure 70.

Dans le cas où la densité de puissance de pompe est forte, tous les effets précédemment évoqués sont présents simultanément et on observe uniquement une cinétique correspondant au temps de vie des porteurs dans l'état excité, c'est à dire plusieurs nanosecondes. L'effet est donc pratiquement constant sur la durée d'analyse de l'expérience (figures 70 a,b) car nous avons utilisé, pour réaliser ces expériences, un autocorrélateur qui est conçu pour mesurer des impulsions inférieures à 1 ps. Le domaine d'excursion du pot vibrant n'est donc pas suffisant pour analyser des cinétiques durant plus de quelques picosecondes.

Quand la densité de puissance diminue, donc quand le nombre de porteurs photoexcités diminue, les effets à N corps deviennent négligeables et on peut observer le remplissage de l'espace des phases. On peut alors mesurer le temps de thermalisation des porteurs vers le bas de la bande de conduction. On voit qu'à faible flux incident (10^{12} photons / cm^2), le temps de désexcitation vers le bas de la bande de conduction est d'environ 900 fs si l'on considère une décroissance mono-exponentielle (figure 70 d), ce qui n'est pas totalement assuré.

Si on considère généralement que le nombre de porteurs excités est environ égal à 1 % du nombre de photons incidents, il y a donc une densité de 10^{10} porteurs / cm^2 dans la bande de conduction. Nous avons donc réussi à étudier l'absorption induite dans ce type de structure dans le cas de faibles densités grâce au taux de répétition élevé du laser. En améliorant encore la détectivité de l'expérience (par utilisation d'une détection synchrone par exemple) nous pensons pouvoir mieux isoler les deux phénomènes d'interaction entre porteurs et de désexcitation vers le bas de la bande de conduction et pouvoir évaluer des cinétiques jusqu'alors non mesurées. En effet, jusqu'à présent, de telles expériences sont la plupart du temps réalisées à faible taux de répétition en isolant, dans un continuum produit par un système femtosecondes amplifiées, les impulsions infrarouges et nécessitent donc l'utilisation d'énergie plus élevée.

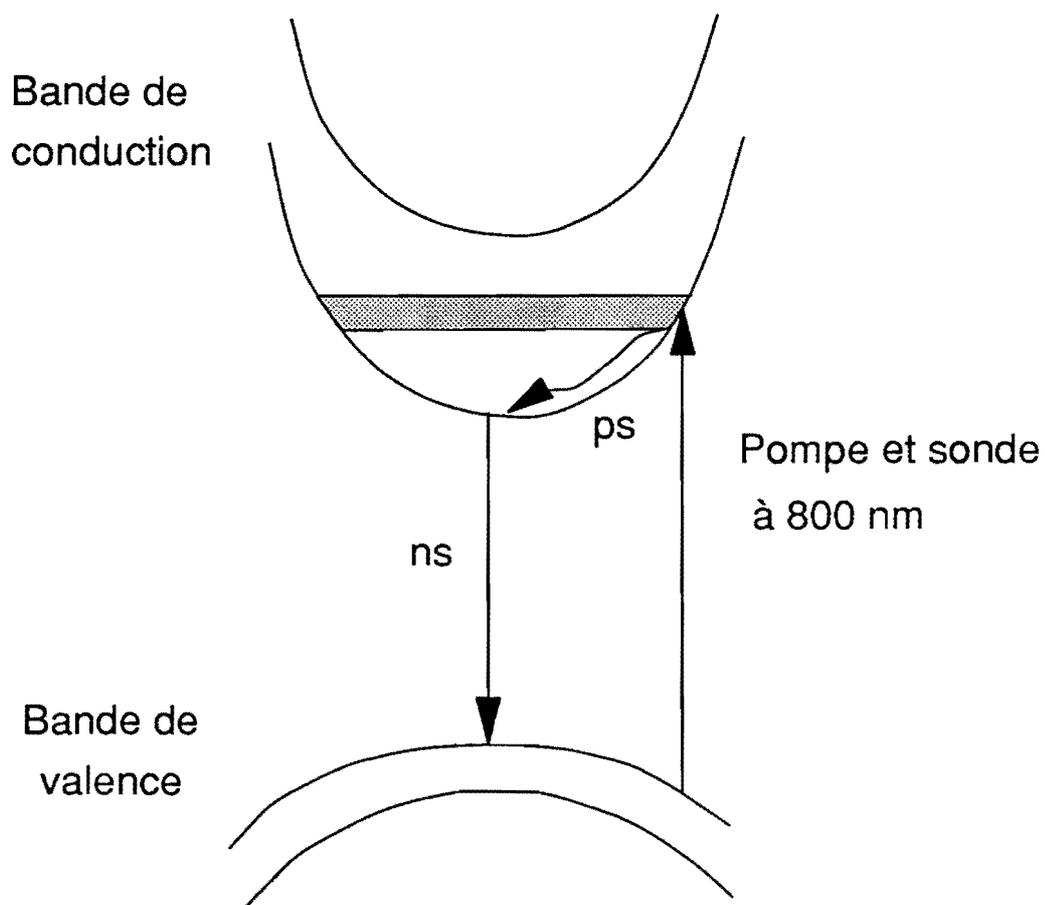


Figure 69 : Représentation schématique de l'évolution des porteurs dans la bande de conduction.

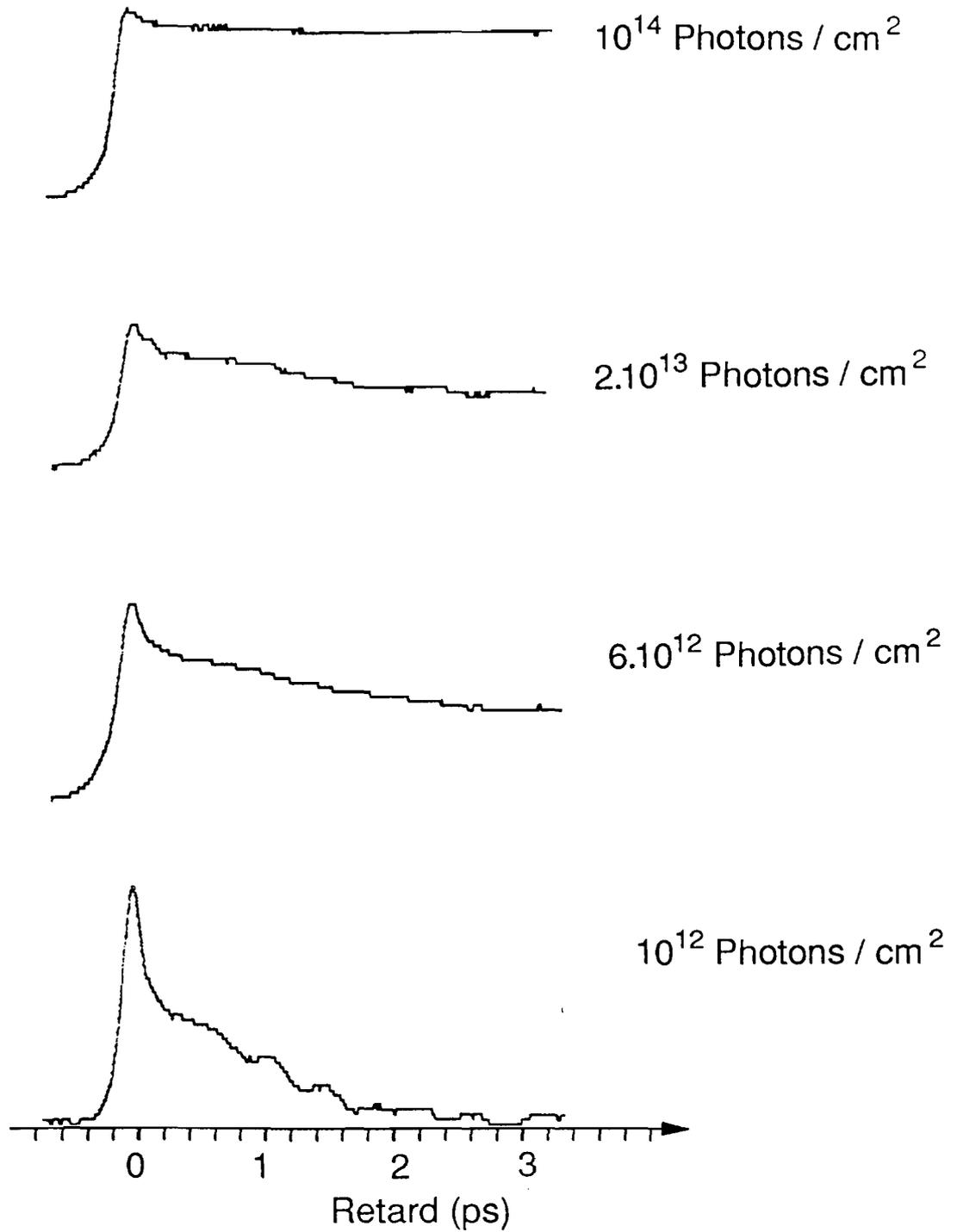


Figure 70 : Cinétiques de saturation d'absorption pour différentes énergies du faisceau pompe.