Comment caractériser un train d'impulsions femtosecondes ?

Les premiers lasers créés étaient des lasers impulsionnels dont les durées temporelles des impulsions variaient entre la milliseconde et la nanoseconde. Pour caractériser ces impulsions, la photodiode permettait de mesurer la durée temporelle des impulsions et le spectromètre leur largeur spectrale. Cependant, pour la mesure des durées de l'ordre de la centaine de femtosecondes, les instruments électroniques sont inadaptés. En effet, les temps de réponse des composants électroniques sont trop longs devant la durée temporelle à mesurer. A titre d'exemple, l'InGaAs (Indium-Gallium-Arsenic), matériau semi-conducteur couramment utilisé dans les photodiodes, permet de mesurer des impulsions avec une durée temporelle de l'ordre de 10 ps. C'est la raison pour laquelle la caractérisation d'impulsion femtoseconde a nécessité des systèmes optiques plus complexes. Une des premières caractérisations optiques utilisées est l'autocorrélation grâce à un interféromètre de Michelson.

3.4.1- L'autocorrélation

Il existe deux types d'autocorrélation : les autocorrélations « intensimétrique » et interférométrique. Nous ne développerons dans la suite que l'autocorrélation intensimétrique, car cette méthode est celle que nous avons utilisée.

1) Principe de l'autocorrélation du second ordre

Le principe consiste à faire interférer un signal avec une réplique de lui-même décalée dans le temps par un retard τ et de mesurer le recouvrement temporel entre l'impulsion et sa réplique grâce à un effet non-linéaire. Cet effet non-linéaire peut être le doublage de fréquence ou de l'absorption à deux photons par exemple. Le principe de l'autocorrélation intensimétrique est alors représenté sur la *Figure 3.16*.



Figure 3.16: Principe de fonctionnement d'une autocorrélation

Le signal alors mesuré $C(\tau)$ est le produit de convolution entre le champ du signal E(t) et celui de sa réplique décalée temporellement $E(t-\tau)$ et s'écrit de la manière suivante :

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t)|^2 |E(t-\tau)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) J(t-\tau) d\tau$$
(3.30)

où I(t) et $I(t-\tau)$ représentent les intensités de l'impulsion non-retardée et de celle retardée d'un temps τ . En regardant la formule (3.30), nous remarquons de suite que le signal mesuré est le produit des modules des champs E(t) et $E(t-\tau)$. Le terme en exponentiel imaginaire contenant la phase de l'impulsion disparaît, il est en conséquence impossible de mesurer dans ces conditions la phase de l'impulsion laser. L'autocorrélation ne donne aucune information au sujet d'un potentiel chirp (ou dérive de fréquence) de l'impulsion. Il n'y a pas unicité de la solution. Pourtant l'information sur la phase permet de connaître des caractéristiques déterminantes de l'impulsion. En effet, si la phase spectrale n'est pas constante, les différentes composantes arrivent à des instants différents et donc la mesure tient compte de la dispersion. La mesure de la phase de l'impulsion se révèle être riche en information mais impossible à mesurer par une autocorrélation.

Ensuite, suivant la forme temporelle de l'impulsion caractérisée, on doit tenir compte d'un facteur de déconvolution, noté D, lors de la mesure de la durée temporelle. En effet, nous devons noter que $\Delta t_{mesurée} = D.\Delta t_{temporelle}$. Le facteur D vaut 1,41 dans le cas d'une impulsion gaussienne et 1,54 dans le cas d'une impulsion sécante hyperbolique. Il s'agit d'un second inconvénient de l'autocorrélation. En effet, pour mesurer la durée temporelle, il faut alors faire une hypothèse sur la forme de l'impulsion. Aucune mesure directe de la forme de l'impulsion ne peut être réalisée via cette méthode de caractérisation. De plus, l'autocorrelation est une fonction symétrique qui ne permet pas de mesurer les éventuelles dissymétries temporelles.

2) Montage expérimental

Le montage expérimental, basé sur un interféromètre de Michelson, est représenté *Figure 3.17*. Un train d'impulsions femtosecondes à caractériser est envoyé sur une lame séparatrice placée à 45 °.



Figure 3.17: Montage expérimental d'un autocorrélateur

Une partie de l'impulsion est réfléchie sur un coin de cube fixe, mais qui peut être cependant déplacé pour calibrer le montage grâce à une vis micrométrique. Par contre, l'autre partie de

l'impulsion est transmise sur un coin cube monté sur un pot vibrant qui permet d'introduire un retard $\tau(t)$ (lentement variable) par rapport à l'impulsion de l'autre bras. Le choix de coin cube nous permet de séparer spatialement l'impulsion non-retardée et celle retardée d'un temps τ . Les deux impulsions sont ensuite focalisées sur un cristal doubleur non-linéaire grâce à une lentille et le photodétecteur mesure alors la puissance de l'onde doublée en fréquence.

En résumé, cette méthode de caractérisation ne permet donc pas de faire une mesure complète de l'impulsion laser. En conclusion, il faut impérativement trouver une autre méthode capable de caractériser entièrement l'impulsion, durée temporelle, spectre et phase contrairement à l'autocorrélation. C'est la raison pour laquelle une mesure de type FROG a été construite durant ces travaux de thèse.

3.4.2- Le FROG

La technique FROG pour « Frequency Resolved Optical Gating » a été inventée par Trebino dans les années 90 [Trebino 02]. Cette méthode de caractérisation indirecte permet non seulement de mesurer la durée temporelle de l'impulsion laser mais également sa phase. On en déduit donc le profil temporel réel de l'impulsion laser. En conclusion, elle permet une caractérisation complète de l'impulsion.

1) Principe du FROG

Le principe expérimental de la méthode consiste à filtrer le champ E(t) inconnu de l'impulsion à caractériser par une porte $g(t, \tau)$. Ensuite, il suffit de mesurer le champ ainsi filtré $E'(t, \tau)$. Le signal mesuré d'intensité $S(\omega, \tau)$, appelé trace FROG (*Figure 3.18*), s'exprime de la manière suivante :

$$S(\omega,\tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E'(t,\tau) dt \right|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} g(t,\tau) E(t,\tau) dt \right|^2$$
(3.31)

Nous remarquons que contrairement à l'expression (3.30), nous ne perdons pas l'information sur la phase de l'impulsion puisqu'il s'agit du module au carré de l'intégrale du champ et non l'intégrale du module au carré du champ.

Pour trouver alors le champ E(t), il convient de trouver le champ satisfaisant pour $E'(t, \tau)$. On part de la mesure de la trace FROG $S(\omega, \tau)$ pour reconstruire une trace FROG dite reconstruite $S'(\omega, \tau)$ similaire à la mesure $S(\omega, \tau)$ par une méthode itérative sur E(t) et ainsi mesurer la phase initialement inconnue (*Figure 3.18*) (voir encadré 3.2). On a alors deux contraintes pour résoudre le problème : il y a la contrainte de la forme de l'impulsion signal et la contrainte des données apportées par $S(\omega, \tau)$, puisque la trace FROG retrouvée doit être proche de celle mesurée.



<u>Figure 3.18:</u> Exemple de trace FROG reconstruite par méthode itérative sur E(t) à partir d'une trace mesurée

Encadré 3.2: La méthode itérative sur E(t), algorithme

L'algorithme mathématique utilisé pour retrouver les informations sur la phase inconnue est schématisé *Figure 3.19* et expliqué rapidement ci-après :

1) Débuter avec une valeur initiale de E(t)

2) Création de $E_{sig}(t, \tau) = E(t) \cdot g(t, \tau)$ à partir de E(t)

3) Passage de $E_{sig}(t, \tau)$ dans l'espace des fréquences par transformée de Fourier $E'_{sig}(\omega, \tau)$

4) Remplacement de l'amplitude mais en conservant la phase de $E'_{sig}(\omega, \tau)$ avec l'amplitude mesurée $I_{sig}(\omega, \tau)$. Le signal ainsi créé est $E''_{sig}(\omega, \tau)$.

5) Faire la transformé de Fourier inverse de $E''_{sig}(\omega, \tau)$ pour obtenir $E''_{sig}(t, \tau)$

6) Extraire de $E''_{sig}(\tau, t)$ la meilleure valeur de E(t)

7) Créer synthétiquement $E_{sig}(t, \tau)$ à partir de E(t)

8) Passage de $E_{sig}(t, \tau)$ dans l'espace des fréquences par transformée de Fourier $E'_{sig}(\omega, \tau)$

9) Comparer $|E'_{sig}(\omega, \tau)|^2$ à $I_{sig}(\omega, \tau)$ (généralement la différence RMS). Si l'erreur est petite alors la boucle peut être arrêtée.



Figure 3.19 : Algorithme FROG schématisé

2) Montage expérimental du SHG-FROG

La mesure expérimentale peut être aisément construite puisqu'il s'agit de remplacer le photodétecteur de l'autocorrélateur par un spectromètre (*Figure 3.20*). Il s'agit donc d'un autocorrélateur avec un spectromètre comme détecteur. On parle alors de méthode FROG par génération de seconde harmonique²⁹.



Figure 3.20: Montage expérimental de la mesure SHG-FROG

Dans cette configuration de montage, la porte $g(t, \tau)$ est alors une réplique de l'impulsion à caractériser retardée d'un temps τ , à savoir $E(t-\tau)$. Le champ ainsi filtré $E'(t, \tau)$ a pour expression :

$$E'(t,\tau) = E(t).E(t-\tau)$$
 (3.32)

Les données expérimentales obtenues par le spectromètre $S(\omega, \tau)$ sont représentées sous forme de trace FROG. Une projection verticale de la trace FROG reconstruite $S'(\omega, \tau)$ nous permet de remonter à la mesure du spectre à la fréquence 2. ω , alors qu'une projection horizontale de cette même trace permet d'obtenir l'autocorrélation de l'impulsion à caractériser

D'autres techniques ont été développées pour mesurer la phase d'une impulsion femtoseconde. Tout d'abord, il existe des méthodes utilisant une impulsion de référence comme la spectrométrie par transformée de Fourier ou l'interférométrie spectrale. Ensuite, les

²⁹ Il existe aussi d'autres méthodes FROG comme la méthode FROG par porte en polarisation, (cristal présentant une non-linéarité d'ordre 3), où dans cette configuration, le champ filtré $E(t, \tau)$ vaut $|E(t-\tau)|^2 \cdot E(t)$

techniques comme le SPIDER (« Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction ») [Iaconis 99] ou le SPIRIT (« SPectral Interferometry Resolved In Time ») [Lelek 07] sont deux méthodes ne demandant pas d'impulsion de référence pour mesurer la phase tout comme la méthode FROG. Ces autres méthodes ne sont pas détaillées car elles ne serviront pas à caractériser les impulsions laser des oscillateurs réalisés durant ces travaux de thèse.

3.5- Vers la puissance avec le cristal de CALGO

Maintenant, focalisons-nous sur les résultats expérimentaux obtenus pour des cavités laser femtosecondes à base d'un cristal Yb:CALGO pour produire de fortes puissances moyennes et des impulsions dont la durée temporelle est inférieure à 100 fs. Cette partie aura pour but de montrer chronologiquement les étapes progressives et technologiques apportées sur l'amélioration de l'architecture de la cavité laser femtoseconde. Les différents problèmes expérimentaux rencontrés seront évoqués et on présentera les solutions apportées pour chacun d'entre eux.

3.5.1- Oscillateur de génération 1

3.5.1.1- La cavité laser

L'architecture de la cavité laser est représentée *Figure 3.21*. Nous avons précisé précédemment que la cavité laser doit comporter trois blocs. Intéressons-nous bloc par bloc.



Figure 3.21: Cavité femtoseconde laser pour la génération 1

1) Le milieu amplificateur

Le milieu amplificateur est un cristal laser Yb(2%):CALGO d'une épaisseur de 2,5 mm. Le cristal laser possède un traitement antireflet sur ses faces pour un minimum de pertes. Le

cristal laser est monté sur un bloc de refroidissement à eau et entouré d'une fine feuille d'indium. Le cristal laser est directement pompé par une diode laser fibrée LIMO [LIMO] dont le diamètre de cœur vaut 200 μ m avec une ouverture numérique de 0,22. La diode laser fibrée délivre une puissance maximale de 15 W à la longueur d'onde de 980 nm. Le faisceau de pompe est collimaté puis focalisé sur le milieu amplificateur grâce à deux doublets de 60 mm de focale. La présence du miroir dichroïque, le miroir M₃, permet de pomper longitudinalement le cristal laser. En effet, le miroir dichroïque est hautement réfléchissant à la longueur d'onde de 1050 nm mais hautement transparent à la longueur d'onde de pompe. Le faisceau laser est focalisé dans le cristal laser grâce à deux miroirs concaves, les miroirs M₂ et M₄, avec un rayon de courbure de 300 mm. La taille du faisceau est ainsi de 200 μ m sur le cristal laser, calcul effectué grâce au logiciel LASCAD.

2) Le SESAM

Le temps de vie de l'état excité pour les cristaux dopés ytterbium est supérieur à la centaine de µs, le SESAM doit être choisi avec précaution [Hönninger 99] pour éviter tout phénomène de Q-Switch qui risquerait de brûler le SESAM en générant des impulsions très énergétiques. Pour l'optimisation, plusieurs SESAMs ont été testés, surtout des SESAMs provenant d'Amplitude Systèmes [Amplitude Systèmes] et de Batop [Batop]. Différentes focalisations ont également été testées en variant le rayon du faisceau laser entre typiquement 50 et 250 um afin d'ajuster la fluence incidente sur le SESAM. Les profondeurs de modulation varient entre 0,5 et 2 %. Les fluences de saturation sont supérieures à 120 μ J.cm⁻² pour les SESAMs d'Amplitude Systèmes et à 70 µJ.cm⁻² pour les SESAMs Batop. Aucune impulsion laser ne fut produite par un SESAM dont la profondeur de modulation ΔR valait 0.5%. Ensuite, en optant pour un ΔR de 1 % pour les SESAMs Batop, les régimes impulsionnels étaient instables, alors que un ΔR de 2 %, pour les SESAMs Batop et Amplitude Systèmes les régimes étaient multi-impulsionnels. En conclusion, le SESAM choisi est un SESAM d'Amplitude Systèmes fonctionnant à 1040 nm avec une profondeur de modulation de 1 % et une fluence de saturation supérieure à 120 µJ.cm⁻². Un miroir de focalisation, miroir M₁, de rayon de courbure de 300 mm permet de focaliser le faisceau laser sur le SESAM avec une taille de 82 µm.

3) La compensation de la dispersion du cristal laser.

Les miroirs GTIs, à savoir les miroirs M_5 et M_6 , ont donc été insérés comme deux miroirs dans la cavité laser. Les GTIs introduisent chacun à chaque réflexion du faisceau laser une dispersion négative de -550 fs² [Layertec]. Les deux miroirs GTIs doivent être associés par paire car ils ont des phases non plates qui se compensent mutuellement. Ne connaissant pas parfaitement la dispersion introduite par le cristal laser, différentes combinaisons de GTIs ont été testées pour mener à la décision finale de cette combinaison.

La plus haute puissance moyenne, correspondant à la meilleure efficacité laser, est associée au coupleur de sortie (M_7) avec une transmission de 5%.

3.5.1.2 – Résultats

Les impulsions femtosecondes ainsi générées sont centrées à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm. Le spectre est représenté *Figure 3.22 (a)*. On remarque un pic

secondaire dans le spectre dans les basses longueurs d'onde, à 1007 nm. Cette présence correspond à la longueur d'onde de coupure du miroir dichroïque. Dans cette région de longueurs d'onde, l'absorption et les dispersions d'ordres supérieurs peuvent être responsables d'un début de continuum, expliqué partie 3.2.2 dans le spectre. Des impulsions de 97 fs ont été mesurées grâce à l'autocorrélateur (en supposant une forme en sech²) (*Figure 3.22 (b)*). La puissance moyenne mesurée est de 530 mW pour une cadence de 68 MHz. Ceci correspond à une énergie par impulsion de 7,8 nJ et une puissance crête de 71 kW.



Figure 3.22: Spectre de l'impulsion laser femtoseconde (a) et son autocorrélation (b)

Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut respectivement 0,50 valeur bien supérieure comparée à la valeur de 0,315 en limite de Fourier. Les impulsions laser ne sont pas en limite de Fourier. Ceci signifie qu'il est encore possible de comprimer les impulsions laser en sortie de l'oscillateur. Peut-on alors introduire un système de post-compression en sortie de l'oscillateur ?

Pour pouvoir comprimer l'impulsion en sortie de l'oscillateur, une des solutions possibles est d'utiliser un système à prismes comme système de post-compression. Les prismes présentent l'avantage d'un ajustement continu de la dispersion pour compenser au mieux la dispersion résiduelle.

3.5.1.3- Evaluation de la dispersion à introduire

Avant de s'intéresser à la construction du système de post-compression, il est nécessaire d'évaluer la valeur de la dispersion négative à rajouter pour obtenir des impulsions en limite de Fourier. Pour cela, il suffit de reprendre l'équation (3.16) en écrivant la dispersion de vitesse de groupe en fonction de la durée temporelle obtenue de l'impulsion de Fourier en sortie de l'oscillateur Δt_0 et la durée temporelle de la même impulsion en limite de Fourier Δt_f . On obtient alors :

$$\phi_2 = \frac{\Delta t_f \cdot \sqrt{\Delta t_{i0} - \Delta t_f}}{4.\ln(2)}$$
(3.33)

Pour une impulsion centrée à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm, la durée temporelle minimale que l'on puisse atteindre est 62 fs. La dispersion de vitesse de groupe de

l'impulsion en sortie de l'oscillateur est de 132 fs². Il faut introduire donc -132 fs² pour recomprimer les impulsions en limite de Fourier.

3.5.1.4- Le système de post-compression

La cavité laser femtoseconde, inchangée, et son système de post-compression extracavité sont représentés *Figure 3.23*.

La post-compression s'effectue grâce à deux prismes en SF10 et un dièdre composé de deux miroirs à 45 ° hautement réfléchissants à la longueur d'onde laser. Les deux prismes sont séparés par une distance d.



Figure 3.23: Représentation du système de post-compression à prismes

3.5.1.5- Les résultats

Les prismes n'ayant aucune influence sur le spectre de l'impulsion laser, le spectre est toujours centré à 1049 nm avec une largeur spectrale de 18,8 nm (*Figure 3.24 (a)*). Par contre, les impulsions ont été comprimées pour obtenir des impulsions laser d'une durée de 66 fs au lieu des 97 fs initiales pour une distance d de 31 cm entre les deux prismes (*Figure 3.25 (b)*). Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut alors 0,34 proche de la limite de Fourier. La cadence étant toujours de 68 MHz, l'énergie par impulsion est de 6,5 nJ et la puissance crête de 68 kW.



Figure 3.24: Spectre (a) et l'autocorrélation (b) des impulsions 66 fs 480 mW

Malheureusement, la puissance moyenne en sortie du système de post-compression n'est que de 440 mW. Suite à l'introduction des prismes, la puissance moyenne chute de 16 % à cause des pertes dues aux prismes, sûrement dues à un problème de dépolarisation thermique (à confirmer). Il va falloir alors trouver une solution pour avoir directement en sortie de l'oscillateur des impulsions quasiment en limite de Fourier.

3.5.2- Oscillateur de génération 2

Le cristal laser n'est pas le seul composant dans la cavité laser à introduire de la dispersion positive. En effet, chaque réflexion du faisceau laser sur les miroirs présents dans la cavité laser (autres que les GTIs) introduit de la dispersion supplémentaire. Est-il alors possible de contrôler cette dispersion ? Existe-t-il des miroirs capables d'introduire peu de dispersion à chaque réflexion du faisceau laser sur ce miroir ?

3.5.2.1- Contrôle de la dispersion des différentes optiques

La technologie actuelle, permet de produire des miroirs, plans ou concaves, introduisant une dispersion inférieure à 20 fs² dès réflexion du faisceau laser sur ces miroirs.

Tous les miroirs de la cavité, excepté les miroirs GTIs et le miroir dichroïque, ont été remplacés par des miroirs avec un $\beta_2 < 20$ fs² [Layertec]. Sur la *Figure 3.25*, un exemple de miroir hautement réfléchissant entre 900 nm et 1100 nm (*a*) et introduisant une dispersion de vitesse de groupe inférieure à 20 fs² (*b*) est présenté.



<u>Figure 3.25:</u> Réflectivité (a) et dispersion de vitesse de groupe (b) d'un miroir plan ayant une réflectivité de 99,9% pour des longueurs d'onde comprises en $900 - 1100 \pm 10$ nm, $GVD < 20 fs^2$ [Layertec]

3.5.2.2- La cavité laser

La cavité laser femtoseconde est schématisée *Figure 3.26*. La cavité étant très semblable vis à vis de la cavité précédente, nous allons présenter les évolutions et les changements de cette cavité laser.



Figure 3.26: Cavité laser femtoseconde pour la génération 2

1) Le milieu amplificateur

Le milieu amplificateur reste le même cristal utilisé pour la cavité laser précédente. Cependant quelques modifications ont été faites par rapport à la première cavité laser. Tout d'abord la diode laser délivre une puissance maximale de 15 W à la longueur d'onde de 980 nm mais le diamètre de cœur de la fibre de sortie n'est plus de 200 µm mais de 100 µm ce qui permet d'obtenir un faisceau de pompe plus brillant. Etant donné que nous avons changé la taille de focalisation de la pompe aux alentours de 100 μ m, les miroirs de focalisation, miroir M₂-M₄, sur le cristal doivent être remplacés pour un bon recouvrement entre les faisceaux de pompe et de sonde. Des miroirs concaves avec un rayon de courbure de 200 mm ont été choisis de telle façon à avoir une taille de faisceau laser de 60 μ m au niveau du cristal. Le cristal laser absorbe environ 50 % de la puissance de pompe incidente. Ensuite, les doublets de focalisation ont été remplacés par des triplets de focalisation ayant chacun une focale de 76 mm. Les triplets introduisent moins d'aberrations sphériques que les doublets. Le choix des triplets s'est imposé car la taille du faisceau laser sur le cristal est deux plus petite que pour la cavité précédente. Finalement, le miroir dichroïque, miroir M₃, permettant de pomper longitudinalement le cristal laser a été gardé.

2) Le SESAM

Nous avons conservé le même SESAM que la cavité précédente. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour une taille du faisceau laser de 46 μ m sur le SESAM en utilisant un miroir concave, miroir M₁, avec un rayon de courbure de 300 mm.

L'optimisation de la cavité laser porte sur un miroir de sortie, miroir M_7 , ayant une transmission de 5%. La compensation de la dispersion négative consiste en la même combinaison des deux miroirs GTIs introduisant chacun -550 fs².

3.5.3.3- Résultats

Ne pouvant avoir accès à la valeur de la phase avec simplement l'autocorrélation et le spectromètre, une mesure de type "FROG" a été mise en place en parallèle de cette expérience. La technique FROG sera donc maintenant choisie systématiquement pour caractériser plus précisément les impulsions laser femtosecondes.

Pour obtenir un régime impulsionnel stable, la puissance de sortie doit être supérieure à 140 mW, correspondant à une puissance intracavité de 7 W. Le spectre mesuré indépendamment de la mesure FROG ainsi que le spectre et la phase spectrale issus de la trace FROG sont représentés *Figure 3.27*. Un bon accord est observé entre le spectre FROG et le spectre mesuré indépendamment. Le spectre est centré à la longueur d'onde de 1050 nm avec une largeur spectrale de 18,5 nm. Pour les mêmes raisons que précédemment, nous retrouvons le pic secondaire à 1007 nm [Boudeile 07].



Figure 3.27: Spectre de l'impulsion de 68 fs 520 mW

La trace FROG est représentée *Figure 3.28 (a)* ainsi que le profil temporel de l'impulsion. Le profil temporel (*Figure 3.28 (b)*) montre une impulsion avec une durée temporelle de 68 fs. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut 0,34 proche de la limite de Fourier. Finalement, une puissance moyenne de 520 mW a été mesurée pour une cadence de 105 MHz, soit une énergie par impulsion de 5 nJ et une puissance crête de 64 kW.



Figure 3.28: Trace FROG (a), profil temporel et la phase (b) de l'impulsion laser de 68 fs

Les valeurs des dérivées seconde, tierce et quatrième de la phase ont été mesurées à -33 fs², -3,05 10^{-41} s³ and 5,3 10^{-55} s⁴ respectivement. Ces valeurs sont dérivées d'un développement en série de Taylor autour de la longueur d'onde centrale de 1050 nm. La seconde dérivée de la phase correspondant naturellement à la dispersion de vitesse de groupe. Cette valeur est faible et donc le régime impulsionnel s'effectue proche du régime solitonique. L'insertion des miroirs à faible dispersion de vitesse de groupe nous a permis de supprimer efficacement la dispersion résiduelle intracavité. Maintenant, le terme cubique est prédominant dans les aberrations spectrales, mais il est très faible. La compensation cette dispersion d'ordre 3 pourrait être possible par l'utilisation de miroirs chirpés.

3.5.3- Oscillateur de génération 3

Pour encore augmenter la puissance crête des impulsions femtosecondes tout en sachant qu'il est difficile de réduire la durée des impulsions laser, nous avons exploré la solution qui consiste à baisser la cadence f_{rep} du laser donc augmenter la longueur L de la cavité.

3.5.3.1- La cavité laser

Le montage expérimental de la cavité laser est représenté *Figure 3.29*. Le banc de pompe, le SESAM, le cristal, les miroirs de focalisation (M_2 et M_4) du faisceau laser sur le cristal et le miroir dichroïque (M_3) sont inchangés par rapport à la cavité précédente. Le premier changement s'opère par le remplacement du miroir de focalisation du SESAM de R = 300 mm par un miroir de R = 800 mm (M_1). Ensuite, la compensation de dispersion est la combinaison de 3 miroirs GTI introduisant chacun une dispersion négative de -550 fs². La longueur de la cavité laser est maintenant de 5,55 m permettant une cadence de 27 MHz. Le coupleur de sortie (M_8) a une transmission de 5 %. Le régime impulsionnel est observé pour des énergies intracavité par impulsion comprises entre 0,3 et 0,5 µJ.



Figure 3.29 : Cavité laser femtoseconde d'une longueur de 5 m.

3.5.4.2- Les résultats

La trace FROG de l'impulsion est représentée *Figure 3.30 (a)*. Le profil temporel, *Figure 3.30 (b)*, montre une impulsion avec une durée temporelle de 145 fs. La plus forte puissance obtenue est de 650 mW pour une cadence de 27 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 24 nJ. Le spectre, mesuré via la trace FROG, est montré *Figure 3.30 (c)*. Le spectre de l'impulsion est centré à 1043 nm avec une largeur spectrale de 15 nm. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut alors 0,6 et la trace FROG nous indique clairement une phase parabolique. Les impulsions ne sont pas en limite de Fourier, un étage de post-compression extracavité à prismes a permis de réduire les impulsions laser à une durée temporelle de 93 fs pour une puissance de 460 mW, correspondant à une énergie par impulsion de 17 nJ et une puissance crête de 161 kW.



<u>Figure 3.30 :</u> Trace FROG (a), profil temporel et phase de l'impulsion (b) et spectre et phase de l'impulsion (c)

3.5.4.3- Un laser bi-couleur

En modifiant légèrement le montage expérimental précédent, il est possible de générer un train de doubles impulsions. En effet, en augmentant la puissance intracavité (remplacement du coupleur de sortie M_8 de 5 % par un 2 %, *Figure 3.31*) et en modifiant la dispersion (remplacement d'un GTI -500 fs² par un GTI -250 fs² et remplacement du miroir plan M_6 par un GTI - 250 fs², *Figure 3.31*), le soliton se sépare naturellement en de multiples impulsions.



Figure 3.31 : Cavité laser femtoseconde bi-couleur

Ceci est potentiellement dû au spectre d'émission très atypique du cristal Yb:CALGO. Il est possible de générer alors des doubles impulsions avec des longueurs d'onde différentes. Il

s'agit à notre connaissance de la première démonstration d'un laser femtoseconde bi-couleur à base d'un cristal dopé ytterbium. La trace FROG est représentée *Figure 3.32 (a)* où on observe bien 4 pics. Le spectre présente une large bande spectrale de 30 nm (*Figure 3.3 (b*) et *Figure 3.3 (d*)). Le spectre peut être approximé grâce à deux Gaussiennes (*Figure 3.32 (b*)) : l'une centrée à 1040 nm avec une largeur spectrale de 21 nm et une autre centrée à 1057 nm avec une largeur spectrale de 10 nm et une amplitude plus faible (60 %). Même si la convergence de l'algorithme du logiciel FROG est faible, les durées temporelles ont été évaluées à 80 fs et 130 fs (*Figure 3.32 (c*)) respectivement avec une séparation entre impulsions de 200 fs. Les produits $\Delta v.\Delta t$ correspondant valent 0,45 et 0,35. Le régime bicouleur peut être expliqué par le gain constant et plat qui est inhomogène à cause de la contribution de deux sites cristallographiques différents Gd^{III} et Al^{III} du Yb:CALGO.



<u>Figure 3.32</u>: Trace FROG (a), Spectre expérimental (courbe bleue) fitté (courbe rose) de la double impulsion (b), profil temporel et phase de la double impulsion (c) et Spectre FROG et phase de la double impulsion

3.6- Vers la puissance avec le cristal CaF₂

D'après l'évaluation thermique du chapitre précédent, la fluorine dopée ytterbium apparaissait également comme un bon candidat pour le développement de nouvelles sources laser femtosecondes de puissance, en raison de sa large bande d'émission, malgré une plus faible résistance aux chocs thermiques.

3.6.1- La cavité laser

Le schéma de la cavité laser à base du cristal Yb: CaF_2 est représenté *Figure 3.33*. Les différentes composantes de la cavité sont détaillées ci-après :

1) Le milieu amplificateur :

Le milieu amplificateur est un cristal Yb(2,8%):CaF₂. Le cristal laser ne possède pas de traitement antireflet sur ses faces, on choisit en conséquence de le placer à angle de Brewster. Le cristal est monté sur un bloc de refroidissement à eau et entouré de graisse thermique. Le cristal laser est directement pompé par une diode laser fibrée Unique mode [JENOPTIK Laserdiode] dont le diamètre de cœur vaut 50 μ m avec une ouverture numérique de 0,22. La diode laser émet une puissance maximale de 7 W à la longueur d'onde de 980 nm. Le faisceau de pompe est collimaté puis focalisé sur le milieu amplificateur grâce à deux triplets de focale de 72 mm. Le waist du mode laser sur le cristal est ajusté à une taille de 40 x 30 μ m [calculé à l'aide du logiciel Paraxia] avec deux miroirs (M₂-M₃) de rayons de courbure de 100 mm, dont l'un est dichroïque (M₃) permettant ainsi de pomper longitudinalement le cristal.



Figure 3.33 : Cavité laser femtoseconde pour le cristal Yb:CaF₂

2) Le SESAM :

Les meilleures performances ont été obtenues pour un SESAM Batop [Batop] avec une profondeur de modulation de 0,5 % pour une longueur d'onde de 1045 nm. La fluence de saturation du SESAM est alors de 90 μ J.cm². Un miroir dont le rayon (M₁) de courbure vaut 300 mm a été utilisé pour focaliser le faisceau laser sur le SESAM avec une taille de 333 x 340 μ m [LASCAD].

3) Compensation de la dispersion :

Contrairement au cristal de CALGO, le souhait est d'essayer de privilégier la durée des impulsions laser. Le choix le plus judicieux est donc d'opter pour un compresseur à prismes intracavité pour ajuster continument la dispersion positive de la cavité laser. Les prismes choisis sont deux prismes SF 10.

Les meilleures puissances de sortie ont été obtenues avec un coupleur de sortie (M_4) dont la transmission vaut 1,6 %.

3.6.2- Les résultats

Les impulsions générées pour une distance entre les prismes de 31 cm sont centrées sur une longueur d'onde centrale de 1053 nm et ont une largeur spectrale de 15 nm, comme le montre la *Figure 3.34 (a)*. Le régime impulsionnel est obtenu pour une puissance intracavité de 23,8 W. Le pic sur le sommet du spectre montre le début d'un phénomène de régime Q-Switch et met en avant l'instabilité du régime impulsionnel. Des impulsions de la forme sech² ont été mesurées grâce à l'autocorrélateur (en supposant une forme en sech²) pour une durée temporelle de 99 fs (*Figue 3.34 (b)*). Il s'agit des impulsions femtosecondes les plus courtes jamais obtenues par un oscillateur à base d'un cristal Yb:CaF₂. Dans ces conditions, la puissance moyenne de sortie est de 380 mW pour une cadence de 112 MHz. Donc l'énergie par impulsion est de 3,4 nJ correspondant à une puissance crête de 30 kW. Le produit $\Delta v.\Delta t$ vaut 0,4, proche de la limite de Fourier.



Figure 3.34 : Spectre de l'impulsion (a) et autocorrélation de l'impulsion (b)

3.7- Conclusions

3.7.1- Conclusions sur les oscillateurs à base de Yb:CALGO et de Yb:CaF $_2$

La *Figure 3.35* représente les meilleures performances des lasers femtosecondes à base de cristaux dopés ytterbium.

Le cristal Yb:CALGO a permis de générer des impulsions de 68 fs pour une puissance moyenne de 520 mW et une cadence de 105 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 5 nJ et une puissance crête de 64 kW. Les impulsions sont en limite de Fourier. Pour augmenter l'énergie par impulsion, nous avons réduit la cadence de l'oscillateur tout en conservant des impulsions sub-100 fs et de fortes puissances moyennes. En effet, des impulsions de 93 fs ont été obtenues pour une puissance crête passent à 17 nJ et 161 kW respectivement. Ces performances font partie des meilleurs résultats obtenus pour un laser solide à base de cristal dopé ytterbium pompé par diode laser.

Grâce à son excellente conductivité thermique et son spectre d'émission atypique, le Yb:CALGO est un cristal des plus intéressants. Tout d'abord, il détient le record des impulsions les plus courtes [Zaouter 06] avec des impulsions de 47 fs. Ensuite, grâce à ces travaux, nous avons démontré la possibilité d'associer avec ce cristal fortes puissances et impulsions sub-100 fs, parmi les meilleures performances pour un laser solide à base de cristaux dopés ytterbium. On peut aisément conclure que l'Yb:CALGO est un cristal prometteur pour de futurs développements qui pourraient déboucher sur un produit commercial.



<u>Figure 3.35:</u> Présentation de ces travaux comparés aux résultats du Yb:SYS [Druon 02], Yb:CaF₂ [Lucca 04], Yb:BOYS [Druon 02], Yb:verre [Hönninger 98], Yb:GdCOB [Druon 00],Yb:YVO₄ [Kisel 05], Yb:KYW [Klopp 02], Yb :Lu₂O₃ [Kuurosakawa 08], Yb :LSO et Yb :YSO [Thibault 06]

La large bande d'émission du cristal Yb:CaF₂ a permis la génération d'impulsions de 99 fs pour une puissance moyenne de 360 mW. A ce jour, il s'agit de la première démonstration d'impulsions sub-100 fs pour un cristal Yb:CaF₂.

Le cristal Yb: CaF_2 présente un potentiel intéressant car ce dernier peut être produit en très grande quantité. Cependant, il faut tenir compte de sa sensibilité aux chocs thermiques lors de toute expérience.

3.7.2- Perspectives

L'un des principaux inconvénients de la méthode par verrouillage par effet soliton est l'impossibilité d'utiliser au maximum la largeur de la bande spectrale d'émission du cristal laser pour celle de l'impulsion laser. Cette incapacité est due à la présence du SESAM et du miroir dichroïque de la cavité laser. En effet, le SESAM et le miroir dichroïque ont une bande spectrale plus étroite que le spectre d'émission du cristal. Pour rappel, la largeur spectrale de fluorescence du cristal Yb:CALGO est plus du double de la largeur spectrale de 18,8 nm mesurée de l'impulsion laser. Il en est de même pour le cristal Yb:CaF₂ avec un spectre d'émission de 70 nm et seulement un spectre des impulsions de 15 nm. Il faut donc trouver des solutions pour éliminer soit les miroirs dichroïques soit le SESAM.

3.7.2.1- Suppression du miroir dichroïque

1) Le pompage « hors-axe »

Une solution pour supprimer la présence du miroir dichroïque est d'utiliser un pompage longitudinal « hors-axe », dont le principe est représenté *Figure 3.36*.



Figure 3.36: Représentation d'une cavité laser avec un pompage « hors-axe »

Cependant, il faut impérativement garder un bon recouvrement entre les tailles de faisceaux laser et de pompe dans le cristal. Pour pouvoir s'assurer d'un bon recouvrement entre les deux faisceaux, l'épaisseur du cristal doit naturellement être diminuée avec l'inconvénient de devoir augmenter l'absorption intrinsèque du cristal et aussi les problèmes thermiques liés à un volume d'échauffement plus réduit.

2) La technologie « thin-disk »

Une autre perspective tout à fait intéressante pour obtenir de plus fortes puissances en régime femtoseconde est l'utilisation de la technologie « Thin-Disk », technologie apparue dans les années 90 [Giesen 94]. Le principe du « Thin-Disk » est représenté *Figure 3.37*.

Cette récente technologie joue sur la géométrie du milieu amplificateur. En effet, l'épaisseur du cristal doit être fortement inférieure au diamètre du faisceau laser. Cette petite épaisseur permet une évacuation de la chaleur par l'une des faces du cristal laser et non une évacuation transverse, comme c'était le cas dans nos configurations laser. La face du cristal refroidie par le bloc de refroidissement a un traitement pour permettre de réfléchir les longueurs d'onde de pompe et laser. Le cristal est appelé « miroir actif » (ou « active mirror ») puisqu'il joue non seulement le rôle de miroir mais également celui du milieu à gain. Ce miroir actif va servir de miroir de fond de cavité ou de miroir de repliement de cavité pour former l'oscillateur laser. Dans le cas du miroir de repliement, il y a un double passage dans le milieu à gain lors d'un

aller-retour dans la cavité laser, donc une augmentation du gain laser et une baisse du seuil laser. Cependant, l'épaisseur du milieu à gain rend inefficace l'absorption de la pompe avec un simple ou un double passage de la pompe sur le cristal. Pour pallier ce problème, la pompe effectue 8 à 16 doubles passages sur le milieu à gain.



Figure 3.37: Représentation de la technologie « thin-disk »

Le principal avantage de cette configuration est une baisse significative des effets thermiques et donc de la présence d'une faible lentille thermique, de peu de pertes par dépolarisation et surtout un pompage très fort de 100 W au kW. La qualité du faisceau s'en trouve améliorée et il est alors possible d'obtenir de fortes puissances moyennes. Le système de pompage pour un « thin-disk » est un pompage « hors-axe » et ne requiert en conséquence pas de miroir dichroïque.

Il existe des « thin disk » commerciaux délivrant jusqu'à 8 kW en régime continu pour une qualité de faisceau de 8 mm.mrad [Trumpf].

Cette technologie parait très intéressante pour des lasers femtosecondes délivrant de très fortes puissances de pompe. Grâce à des « mode-locked thin-disk lasers », des puissances moyennes de 45 W pour des impulsions de 791 fs ont déjà été démontrées récemment avec un cristal de YAG dopé ytterbium. La cadence du laser est de 4 MHz, correspondant à une énergie par impulsion de 11,3 μ J [Marschene 08]. Des impulsions de 370 fs ont été démontrées avec un cristal Yb:Lu₂O₃ avec une puissance moyenne de 20,5 W. La cadence de ce laser impulsionnel est de 65 MHz, ce qui correspond à une énergie par impulsion de 0,32 μ J et une puissance crête de 0,75 MW [Marschene 07].

Prochainement cette technologie sera testée sur les deux cristaux étudiés dans cette thèse.

3.7.2.2- Suppression du SESAM : régime KLM

Le deuxième élément limitant le spectre de l'impulsion est le SESAM. Il est possible de supprimer le SESAM en optant pour le verrouillage des modes par effet Kerr. Le verrouillage par effet Kerr se base sur l'auto-focalisation du faisceau laser par effet Kerr et donc par la présence d'un indice non-linéaire n_2 non négligeable en présence de fortes intensités. C'est la raison pour laquelle des mesures de n_2 ont été réalisées pour les cristaux Yb:CALGO, et Yb:CaF₂ par l'équipe Propriétés Optiques des Matériaux et Applications (POMA)³⁰ de l'Université d'Angers par la méthode de z-scan [Sheik-Bahae 89]. Les indices non-linéaires pour le Yb:CALGO, notés n_{2a} et n_{2c} car ce cristal est uniaxe, ont été mesurés à 11,5 ± 4 10⁻²⁰ et 13,5 \pm 5 10⁻²⁰ m².W⁻¹ respectivement. Ces valeurs intéressantes et suffisamment importantes permettraient d'opter pour le verrouillage des modes par effet Kerr et de réduire potentiellement la durée des impulsions laser. Pour augmenter les effets non-linéaires dans le cristal, ce régime requiert une taille de faisceau de pompe petite dans le cristal. L'utilisation de diode laser s'en trouve impossible. La puissance de pompe dans le régime KLM en est alors un facteur limitant pour générer de la puissance. De plus il y a des problèmes de régime Q-Switch dus à la durée de vie trop longue de l'état excité des cristaux dopés ytterbium. Pour le cristal Yb:CaF₂, l'indice non linéaire n'a pu être mesuré précisément car les mesures sont trop bruitées, traduisant une valeur assez faible de l'indice non-linéaire. Pour un cristal CaF2 non dopé, une valeur de 1,90 \pm 0,26 10⁻²⁰ m².W⁻¹a été mesurée pour l'indice de réfraction non-linéaire [Milan 77].

³⁰ Site web: http://www.univ-angers.fr/laboratoire.asp?ID=1