



Source laser picoseconde à haute cadence dans l'ultraviolet

Sébastien Forget

► To cite this version:

Sébastien Forget. Source laser picoseconde à haute cadence dans l'ultraviolet. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2003. Français. $\langle$ NNT : $\rangle$. $\langle$ tel-00004272 $\rangle$

HAL Id: tel-00004272

<https://pastel.hal.science/tel-00004272v1>

Submitted on 21 Jan 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization



UNIVERSITÉ PARIS XI
UFR scientifique d'Orsay



THÈSE

Présentée pour obtenir

**Le grade de
Docteur en Sciences
de l'Université Paris-Sud**

Par

Sébastien FORGET

Source laser picoseconde à haute cadence dans l'ultraviolet

Soutenue le 20 Novembre 2003 devant la commission d'examen

M. Alain BARTHELEMY	(Rapporteur)
M. Richard MONCORGE	(Rapporteur)
M. François BALEMBOIS	
M. Jean-Jacques CLAIR	(Président)
M. Jean-Philippe FEVE	
M. Patrick GEORGES	(Directeur de thèse)

Table des matières

<i>Introduction</i>	<i>1</i>
CHAPITRE I : Etat de l'art des source laser ultraviolettes	5
<u>I. LES LASERS A GAZ</u>	8
I.1. LASERS A EXCIMERES	8
I.2. LASERS A AZOTE	9
I.3. LASERS A ARGON	9
I.4. LASERS A VAPEUR DE CUIVRE	11
<u>II. LES LASERS A COLORANTS</u>	12
<u>III. LES LASERS A SEMI-CONDUCTEURS</u>	14
III.1. SYSTEMES BASES SUR DES DIODES CONTINUES OU QUASI- CONTINUES	15
III.2. SYSTEMES BASES SUR DES DIODES LASER IMPULSIONNELLES	15
III.3. SYSTEMES ACCORDABLES	16
<u>IV. LES LASERS SOLIDES</u>	20
IV.1. LASERS A LONGUEUR D'ONDE FIXE	20
IV.1.1. SOURCES CONTINUES	21
IV.1.2. LES LASERS A MODES VERROUILLES EN PHASE	22
IV.1.3. LES LASERS DECLENCHEES	24
IV.2. SYSTEMES LASERS ACCORDABLES	28
IV.2.1. MATERIAUX LASER EMETTANT DIRECTEMENT DANS L'UV	28
IV.2.2. GENERATION DES HARMONIQUES DU RAYONNEMENT DE LASERS ACCORDABLES	32
A. LE LASER SAPHIR DOPE AU TITANE	32
B. LE LASER « CHROME LISAF »	36
IV.2.3. UTILISATION D'EFFETS NON LINEAIRES	37
<u>V. PISTES VERS UNE SOURCE LASER IMPULSIONNELLE PICOSECONDE ACCORDABLE DANS L'UV ET FONCTIONNANT AUTOUR DE 1 MHZ</u>	43
V.1. LA SOURCE	44
V.1.1. DECALAGE RAMAN	44
V.1.2. LASER CONTINU MODULE	45
V.1.3. DIODE IMPULSIONNELLE AMPLIFIEE	45
V.1.4. LASER IMPULSIONNEL	46
V.2. L'AMPLIFICATION	48
V.3. LA CONVERSION DE FREQUENCE	48
V.4. STRUCTURE CHOISIE	49

CHAPITRE II : La source laser 53

I. MICROLASER ULTRA-COURT DECLENCHE PASSIVEMENT **54**

I.1. PRINCIPE	54
I.2. QUELQUES ELEMENTS DE THEORIE...	57
I.2.1. DUREE DES IMPULSIONS	58
I.2.2. CADENCE DES IMPULSIONS	60
I.2.3. CHOIX DES PARAMETRES	62
I.3. CONFIGURATION EXPERIMENTALE	63
I.3.1. LE MICROLASER	63
I.3.2. LA POMPE	64
I.4. RESULTATS EXPERIMENTAUX	66
I.4.1. CADENCE DU MICROLASER	66
I.4.2. DUREE DES IMPULSIONS PRODUITES PAR LE MICROLASER	69
I.4.3. ÉNERGIE DES IMPULSIONS	71
I.4.4. QUALITE SPECTRALE ET SPATIALE DU FAISCEAU ISSU DU MICROLASER	72
I.4.5. CONCLUSION	73

II. LASER A VERROUILLAGE DE MODES A CAVITE GEANTE **76**

II.1. PRINCIPE	76
II.2. DIMENSIONNEMENT THEORIQUE	82
II.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX	84
II.4. CONCLUSION	90

III. CONCLUSIONS SUR LA SOURCE **92**

CHAPITRE III : L'amplificateur 93

I. ETAT DE L'ART DES AMPLIFICATEURS SOLIDES **95**

II. ENTREZ DANS LA 3^{IEME} DIMENSION... **102**

II.1. PRINCIPE DE L'ARCHITECTURE DE L'AMPLIFICATEUR 3D	103
II.1.1. ARCHITECTURE	103
II.1.2. CHOIX DU CRISTAL	104
II.2. L'AMPLIFICATEUR 3D A BASE DE CRISTAUX DE Nd :YAG	106
II.2.1. PRINCIPE	106
II.2.2. RESULTATS	109
II.2.3. CONCLUSION	116
II.3. L'AMPLIFICATEUR 3D Nd :YVO₄	117
II.3.1. PRINCIPE	117
II.3.2. RESULTATS	121
II.3.3. TRANSFERT DE TECHNOLOGIE VERS JDS UNIPHASE	128

II.3.4.	APPLICATION DE L'AMPLIFICATEUR 3D A UNE AUTRE SOURCE	130
II.3.5.	AMPLIFICATION DU MICROLASER HAUTE CADENCE	132
CHAPITRE IV : Processus non-linéaires		139

I. QUELQUES RAPPELS D'OPTIQUE NON-LINEAIRE... **140**

I.1.	LA POLARISATION NON-LINEAIRE	140
I.2.	L'EQUATION D'ONDE	143
I.3.	LA GENERATION DE SECOND HARMONIQUE	144
I.4.	AMPLIFICATION ET GENERATION PARAMETRIQUE OPTIQUE	146
I.5.	L'ACCORD DE PHASE	150
I.6.	LE QUASI ACCORD DE PHASE	153
I.6.1.	CADRE THEORIQUE	153
I.6.2.	ASPECTS TECHNOLOGIQUES DU QAP	155
I.6.3.	AVANTAGES ET INCONVENIENTS	157
I.6.4.	LES CRISTAUX DISPONIBLES	159

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX **162**

II.1.	GENERATION D'HARMONIQUES	162
II.1.1.	À PARTIR DU LASER JDS UNIPHASE AMPLIFIE	162
II.1.2.	À PARTIR DU MICROLASER A 1 MHZ AMPLIFIE	166
II.2.	ACCORDABILITE EN LONGUEUR D'ONDE	169
II.2.1.	GENERATION ET AMPLIFICATION PARAMETRIQUE OPTIQUE	169
II.2.2.	ETUDE PRELIMINAIRE	175
II.2.3.	APPLICATION A LA SOURCE A HAUTE CADENCE	184
II.3.	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES : VERS L'ULTRAVIOLET ACCORDABLE	189

Conclusion générale 191

ANNEXES 195

Le temps de fluorescence – Techniques de mesure et applications biomédicales	195
Revue des propriétés optiques de quelques cristaux non-linéaires	203
Influence de la cadence sur l'équation de Frantz et Nodvik	205

BIBLIOGRAPHIE 209

Résumé

Remerciements

Publications de l'auteur

Introduction générale



Depuis l'invention du laser en 1960, toutes les thèses dans le domaine commencent par « *depuis l'invention du laser en 1960* ». Je ne ferais donc pas exception à cette règle. J'aurais pourtant voulu commencer par une entrée en matière plus grandiose : je pensais par exemple à quelque chose comme « *de tout temps les hommes rêvaient de lasers ultraviolets accordables produisant des impulsions picosecondes à haute cadence* ». Mais la rigueur scientifique m'oblige à rejeter cette affirmation pour le moins sujette à controverse.

Il n'en reste pas moins vrai que la lumière ultraviolette en général possède des caractéristiques originales ayant motivé de nombreuses études depuis deux siècles et deux ans. La première mise en évidence de l'existence de rayonnement ultraviolet est en effet due à Johann W. Ritter, qui remarqua en 1801 leur action photochimique sur les sels d'argent. Pendant presque un siècle, les études de ce « nouveau » rayonnement furent néanmoins limitées à l'UV proche (la limite extrême de 183 nm étant atteinte par G.G.Stokes en 1862) : c'est en 1893 que V.Schumann ouvrit la voie vers l'UV lointain en identifiant et en supprimant les obstacles que constituaient l'absorption du quartz et de l'air à ces longueurs d'ondes.

La lumière ultraviolette intrigue : on ne peut ni la voir (contrairement à la remarquablement bien nommée partie visible du spectre), ni sentir sa chaleur sur notre peau (contrairement aux rayonnements infrarouges). Et pourtant elle agit ! Les coups de soleil sont un exemple de son activité maligne, ce qui conduit certains à considérer comme dangereuse toute exposition aux rayons UV. Cela fait pourtant exactement un siècle cette année que le Danois Niels Ryberg Finsen a reçu le prix Nobel de Médecine (1903) pour avoir réussi à traiter avec de la lumière ultraviolette les lésions de la peau causées par la tuberculose. Emboîtant son pas, les médecins élèveront la lumière UV au rang de principal traitement pour soigner un certain nombre de maladies infectieuses jusqu'à l'invention de la pénicilline en 1938 : les huiles naturelles produites par la peau suite à une exposition aux UV sont en effet capables de tuer certaines bactéries [Stevens 37]. Certaines études sérieuses [Lieberman 91] font état d'un nombre impressionnant d'avantages relatifs à l'exposition aux UV A et B¹ : par exemple, une exposition régulière aux UV permettrait d'abaisser la pression sanguine, de réduire le cholestérol [Altschul 53], d'augmenter l'efficacité cardiaque, de traiter le psoriasis [Lohmeier 96] ou encore d'augmenter le niveau des hormones sexuelles (!) [Das Gupta 67]...

Mais laissons là la médecine pour se rapprocher insidieusement du sujet de cette thèse en se posant la question suivante : que peuvent apporter les lasers ultraviolets que les lampes ou le soleil ne puissent pas fournir ?

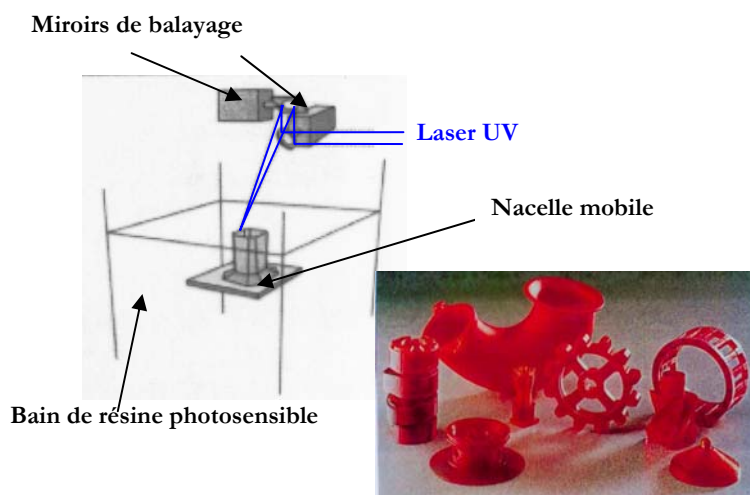
Il est en effet indéniable que la recherche autour des sources laser ultraviolettes connaît depuis quelques années un développement croissant. Si les premières études concernant les lasers UV dans les années 60 se plaçaient résolument dans la mouvance « j'essaie de faire laser tous les matériaux qui me passent sous la main et si en plus ça fait des jolies couleurs ... », les recherches ont depuis longtemps passé ce cap pour ne s'intéresser qu'à des sources susceptibles de répondre à des besoins concrets. Un certain nombre de ces besoins sont parfaitement satisfaits par les lampes UV (je pense ici en particulier à l'industrie du bronzage, première consommatrice de rayonnement UV, et de loin). D'autres ne peuvent se passer des caractéristiques exceptionnelles de la lumière laser. Quelles sont donc ces applications capables de drainer l'engouement observé

¹ Pour ce qui est des UV C, ils sont exclusivement nocifs, et notamment catalyseurs de nombreux mélanomes.

dans la recherche actuelle pour les sources lasers UV ? La réponse est simple : les études fondamentales permettant de mieux comprendre la subtile alchimie du vivant d'une part (la mode est aux mots en bio- : biotechnologies, biophotonique...), et les trucs qui rapportent des sous (beaucoup de sous) d'autre part. De façon plus concrète, la recherche en photobiologie et l'industrie du traitement des matériaux par laser constituent donc deux des principaux moteurs tirant les études de nouvelles sources ultraviolettes.

Le nombre de sources UV développées depuis plusieurs années est impressionnant : cependant, au-delà de leur couleur, chaque source produit un rayonnement qui lui est propre : certaines sont continues, d'autres impulsionnelles, et parmi ces dernières il existe toute une palette de régimes de fonctionnement, caractérisés par le taux de répétition des impulsions produites et leur durée. A partir de ces deux paramètres il est possible de parcourir toute une gamme de puissances afin que chaque application trouve sa source idéale.

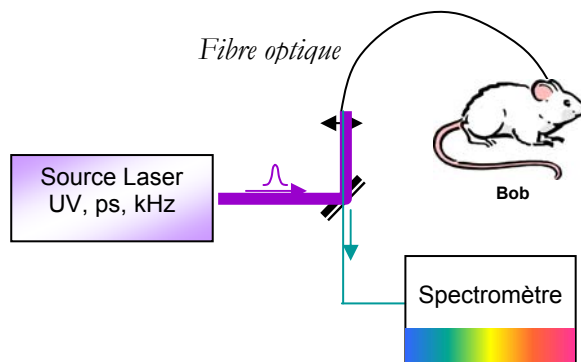
Le domaine du traitement des matériaux utilise des lasers ultraviolets car quasiment tous les matériaux absorbent dans cette gamme de longueur d'onde. C'est le cas par exemple pour le marquage de produits ou de câbles. Un faisceau ultraviolet permet également d'avoir une grande précision : le faisceau au point de focalisation peut avoir un diamètre extrêmement faible (de l'ordre de la longueur d'onde, soit quelques centaines de nanomètres). Cette propriété est très utile pour la réparation de circuits imprimés par exemple. Un autre avantage de l'UV concerne les actions photochimiques : photoablation pour faire des trous très précis dans des polymères ou photopolymérisation pour réaliser des maquettes d'objets en trois dimensions comme illustré ci-contre (prototypage rapide). Dans de nombreux cas, il faut disposer d'impulsions courtes, à haute cadence (plusieurs kHz, pour augmenter la rapidité du processus), et de forte puissance moyenne dans l'UV (plusieurs centaines de milliwatts).



Stéréolithographie par photopolymérisation : principe et exemple de réalisation

Le propos est quelque peu différent pour la photobiologie, et plus particulièrement la spectroscopie de fluorescence résolue en temps. Le principe de ces expériences est d'étudier spatialement, spectralement et temporellement (voir l'annexe I pour plus de détails) le signal de fluorescence émis par une molécule soumise à un rayonnement – le plus souvent bleu ou ultraviolet. Chaque molécule est réceptive à une longueur d'onde donnée : il faut donc une source par molécule, à moins de pouvoir accorder la fréquence de la source laser. Cette source doit émettre des impulsions très courtes (de l'ordre de cent picosecondes ou moins), et avoir une cadence importante afin d'autoriser une acquisition rapide du signal. Cette cadence doit être la plus élevée possible dans les limites de ce que la chaîne de traitement du signal constitutive de telles expériences peut accepter : en effet, un nombre d'impulsion par seconde trop important peut induire des dysfonctionnements (comme par exemple la non-prise en compte d'un événement de fluorescence, ou la prise en compte dans une fenêtre temporelle adjacente). Il

existe donc un taux de répétition optimal, que l'on peut évaluer entre 1 et 5 MHz. D'autre part, certaines molécules présentent un temps de fluorescence long (plus de 10 ns) : il faut pour les étudier proprement avoir un écart entre deux impulsions consécutives largement supérieur à ce temps, ce qui impose une cadence réduite au laser source (typiquement 5 MHz). Enfin la source laser devant être utilisable par des non-spécialistes il est indispensable qu'elle soit simple, robuste et compacte.



Exemple d'étude « in-vivo » sur Bob le rat. Cette expérience réalisée au laboratoire TSI de St-Etienne visait à étudier une molécule (NADH) intervenant dans le cycle énergétique des cellules.

C'est dans l'esprit de réaliser une source répondant à l'ensemble de ces critères que s'est déroulé ce travail de thèse. Mais replaçons en quelques mots cette étude dans son contexte : dans le cadre d'un Contrat Plan Etat Region, le projet POLA a vu le jour il y'a quelques années sur le site de l'Université Paris-Sud. Qu'est ce que POLA me direz-vous ? Il s'agit d'un POle LAser dont l'une des composantes (appelée « centre laser ») a pour objectif de réaliser des sources lumineuses pour servir la biologie. A côté d'expériences de microscopie de fluorescence à deux photons, les biologistes partenaires (Laboratoire de Photophysique Moléculaire, Laboratoire de Chimie Physique) réalisent des expériences de spectroscopie de fluorescence résolue en temps : ils sont donc friands de sources laser UV picosecondes à haute cadence, compactes qui plus est, pour pouvoir manipuler tranquillement chez eux² plutôt que sur des synchrotrons (l'Homme de science est souvent pantouflard).

Dans ce cadre, notre laboratoire s'est donné pour ambition de réaliser une telle source en se basant sur les compétences accumulées dans ce domaine par le passé (via le programme Ultimatech du CNRS en particulier). Nous avons donc tiré parti des récents développements en matière de diodes laser, de cristaux lasers et non-linéaires et d'absorbant saturables pour explorer cette région spectro-temporelle où la main de l'homme n'a pas encore posé le pied. Et si cette région est restée vierge, c'est que son accès est assez délicat, pour autant que l'on exige un degré de simplicité compatible avec les applications visées. Tout d'abord la cadence recherchée (autour de 1 MHz) est tout sauf standard : les lasers déclenchés fonctionnent à quelques dizaines de kHz, et les lasers à modes bloqués à quelques dizaines de MHz. Entre les deux, c'est le désert de Gobi. De plus ces lasers ne sont capables d'être efficaces que dans l'infrarouge (proche certes, mais infrarouge quand même) : il faut donc pouvoir les colorer, puis à nouveau passer la barre du visible pour les rendre ultraviolets. Cette opération est dispendieuse en énergie : il faut par conséquent disposer d'une forte puissance initiale, ce qui rajoute une contrainte à notre source. Enfin il est souhaitable de trouver un peu de place pour insérer un élément accordable ici ou là.

L'architecture résultant de ces considérations ressemble peu ou prou à la suivante : un laser fournira les impulsions à la cadence et avec la durée adéquates, puis un ou plusieurs

² Ou plutôt dans le « centre de photonique biomédicale » qui sera prochainement implanté sur le campus d'Orsay et qui constituera une sorte d'Eden technologique où les biologistes pourront venir s'ébrouer gaiement au milieu de nombre d'appareils de mesure et de sources indispensables à la réalisation de leurs expériences. Enfin j'idéalise peut être un peu là...

amplificateurs porteront l'énergie à un niveau suffisamment élevé pour autoriser par la suite une efficace conversion de fréquence de l'infrarouge vers l'ultraviolet. Les aspects temporels et énergétiques se trouvent ainsi découplés, ce qui permet de rendre le travail d'optimisation plus aisé. Un certain nombre de concepts s'imposent d'eux même : ainsi le laser initial comme l'amplificateur seront pompés par diodes, ce système étant sans égal tant du point de vue de l'efficacité que de la compacité. D'autre part, toutes les techniques mises en œuvre seront passives afin de limiter au maximum la complexité du système final : aucun asservissement, aucune électronique de commande ne trouvera grâce à nos yeux.

Le plan de ce mémoire suivra à peu de choses près la structure sus-décrite. On commencera par un état de l'art non exhaustif des sources laser ultraviolettes, qui permettra en particulier de donner quelques ordres de grandeurs utiles, avant de décliner notre source en trois parties : le laser initial sera l'objet du chapitre II, l'amplification du chapitre III, et enfin les différents étages de conversion de fréquence seront passés en revue dans le chapitre IV. Nous nous sommes cependant autorisé une petite digression dans ce cheminement linéaire au moment d'aborder le chapitre traitant de l'amplification : les résultats obtenus ayant fortement intéressé un partenaire industriel, nous avons appliqué notre amplificateur à une source de plus basse cadence (visant des applications de traitement de matériaux dont nous avons dit un mot plus haut), parallèlement à notre étude « haute cadence ». Enfin nous concluons sur les résultats obtenus et donnerons quelques pistes pour le futur.

CHAPITRE 1 : Etat de l'art des sources laser ultraviolettes

Introduction

La région ultraviolette³ du spectre électromagnétique est l'objet d'études extrêmement vivaces depuis plusieurs décennies. En effet, comme nous l'avons vu, les applications dans ce domaine spectral sont multiples, s'étendant du secteur biomédical au traitement des matériaux et de la recherche fondamentale à l'industrie de masse. Par conséquent, dès l'apparition des premiers lasers, de nombreux travaux ont eu pour objectif de les convertir du visible ou de l'infrarouge vers l'ultraviolet, tandis que d'autres travaillaient à la mise au point de lasers émettant directement dans les longueurs d'onde sub-visibles.

Commençons par passer très rapidement sur une façon particulièrement intéressante de produire un rayonnement laser ultraviolet – mais largement « en marge » de notre sujet car basée sur un principe physique très différent du laser classique. Il s'agit du Laser à Électrons Libres (LEL, dont la première démonstration fut effectuée par J. Madey à Stanford (USA) en 1978). Un LEL est une source de lumière cohérente [Ortega 96] capable de produire de fortes puissances crêtes dans un large domaine spectral [Couprie 93, 02]. Il se distingue des lasers traditionnels tels que lasers solides, à gaz ou à colorants par l'originalité de son milieu amplificateur : il s'agit d'un faisceau d'électrons relativistes produit par un accélérateur de particules circulant dans une structure magnétique périodique (« onduleur »). A l'intérieur de cet onduleur les électrons acquièrent une vitesse transverse sinusoïdale permettant, par le couplage avec l'onde électromagnétique, une amplification laser. À la différence d'un laser traditionnel dont la longueur d'onde est fixée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur, la longueur d'onde d'un LEL varie de façon continue avec le champ magnétique de l'onduleur et l'énergie des électrons. À cette accordabilité exceptionnelle (essentiellement dans l'infrarouge au départ, elle s'étend depuis peu au domaine UV et VUV [Colson 01][Den Hartog 02]) s'ajoute la possibilité de produire de fortes puissances crêtes et des impulsions sub-picosecondes, ainsi que de faire varier la cadence de répétition. Ces caractéristiques en font (avec son cousin le rayonnement synchrotron, qu'on peut considérer comme un rayonnement « spontané », par opposition au rayonnement « stimulé » que constitue le LEL) un outil très prisé des biologistes ou des physiciens du solide. Cependant, étant par nature reliés à des accélérateurs (synchrotrons le plus souvent, par exemple super-ACO à Orsay), ces outils ne peuvent être classés dans la même catégorie que des lasers « de laboratoire ». Ils sont pour le moins peu disponibles, et nécessitent de planifier des expériences de façon très précise lorsqu'un « temps de faisceau » de quelques jours est obtenu...

Dans l'état de l'art (non exhaustif) qui va suivre, nous ne traiterons pas de ces lasers à électrons libres pour nous focaliser sur les recherches effectuées en matière de lasers traditionnels émettant dans l'ultraviolet, en mettant en particulier l'accent sur les lasers solides pompés par diodes (voir encadré).

Ces derniers se sont en effet imposés depuis plus d'une décennie à la fois comme solution de remplacement efficace d'un certain nombre de lasers à gaz ou à colorants et comme sources nouvelles ouvrant sur des champs d'applications jusqu'ici inexplorés. La recherche dans le

³ Il est d'usage de distinguer les différentes régions du spectre ultraviolet en « UV » (de 190 nm à 400 nm) et « VUV » ou « ultraviolet du vide » entre 105 et 190 nm, pour signifier que ces radiations sont absorbées dans l'air. Nous nous intéresserons ici plus spécifiquement au domaine ultraviolet « classique ».

domaine suit essentiellement trois axes : le premier consiste à élargir le champ des longueurs d'ondes disponibles dans l'UV (que ce soit en visant de nouvelles longueurs d'onde originales ou en recherchant une large accordabilité pour couvrir toute une partie du spectre avec une unique source), le second à obtenir des caractéristiques temporelles (durées d'impulsion, cadence) nouvelles, et le dernier à augmenter les puissances et les efficacités disponibles dans l'ultraviolet.

Pour ce faire, des recherches sont menées parallèlement sur les architectures lasers (oscillateurs et amplificateurs), les phénomènes non-linéaires mis en jeu, et les matériaux permettant les conversions de fréquence idoines. Aux trois axes précités – qui s'entrecroisent souvent – s'ajoute une recherche quasi-constante de simplicité et de compacité afin de rendre les sources réalisées facilement utilisables.

Nous avons choisi d'ordonner cet état de l'art des sources ultraviolettes en fonction du milieu amplificateur utilisé : la première partie traitera donc des sources UV basées sur des lasers à gaz, la deuxième des lasers à colorants, la troisième des lasers à semi-conducteurs et enfin la dernière des lasers à milieu amplificateur solide. Pour terminer, nous déterminerons à la lumière de notre état de l'art quelles sont les différentes solutions envisageables pour réaliser une source ultraviolette accordable et produisant des impulsions courtes à haute cadence - qui constitue l'objectif de ce travail de thèse.

Pompage par diode laser

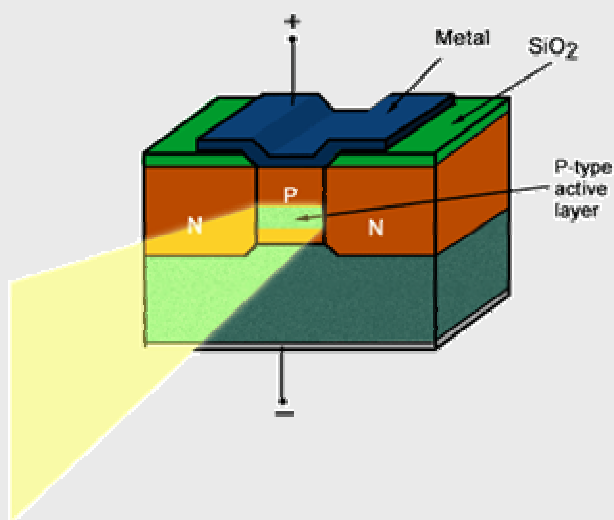
L'arrivée à maturité technologique des diodes laser de puissance, vers la fin des années 80 [Streifer 88] a incontestablement ouvert une nouvelle ère pour les lasers solides. Il n'est pas question de traiter ici de façon approfondie la physique des diodes lasers (on pourra se reporter par exemple à [Rosencher 98] ou [Agrawal 93]) mais simplement de rappeler quelques éléments permettant de mieux appréhender les progrès engendrés par ces composants.

Le premier avantage des diodes lasers tient à leur rendement électrique-optique (jusqu'à 50% [Botez 96] quand un laser Argon ne dépasse pas quelques fractions de pourcent) qui, associé à une durée de vie importante (plus de 10000 heures) et à l'absence de besoins d'entretien en font des sources de pompage extrêmement économiques.

Le deuxième intérêt de ces composants est leur spectre d'émission étroit (quelques nanomètres) comparé aux lampes flash: toute la puissance est ainsi concentrée aux longueurs d'onde correspondant aux pics d'absorption des matériaux lasers, ce qui entraîne une efficacité accrue. Il est cependant à noter que pour les lasers industriels de puissance, les lampes flash règnent encore en maîtresses sur le marché du fait du coût encore très élevé des diodes puissantes.

Le dernier avantage tient évidemment en leur petite taille, qui rend possible la réalisation de systèmes compacts, voire miniaturisés.

Néanmoins chaque médaille a son revers, et les diodes laser ne sont pas parfaites : en particulier, elles émettent des faisceaux de mauvaise qualité spatiale : l'émission est en effet fortement divergente, asymétrique et non limitée par la diffraction dans la direction parallèle à la jonction de la diode. Ces caractéristiques impliquent la mise en œuvre de systèmes de remise en forme des faisceaux parfois complexes afin d'assurer un bon transfert de l'énergie du faisceau de pompe vers le laser. Cet inconvénient est désormais atténué – pour l'utilisateur – par l'arrivée sur le marché de diodes laser fibrées de haute brillance, permettant de disposer d'un faisceau uniforme et de symétrie de révolution.



*Diode laser sans remise en forme (faisceau elliptique et divergeant) à gauche.
Barrette de diode laser remise en forme pour pouvoir être injectée dans une fibre optique (à droite).*

I. Les lasers à gaz

Les lasers à gaz furent historiquement les premiers lasers émettant dans l'ultraviolet. En effet ils possèdent des raies aux longueurs d'ondes infra-visibles et possèdent des propriétés (fort gain, pompage électrique, puissance de sortie, coût...) les rendant particulièrement intéressants pour de nombreuses applications industrielles.

I.1. Lasers à excimères

A ce jour, le laser UV le plus utilisé dans l'industrie est le laser dit « excimère » (abréviation de l'anglais « *excited dimers* » car les molécules mises en jeu comportent seulement deux atomes et n'existent qu'à l'état excité). Le principe est le suivant : une molécule composée de deux atomes de gaz rare ne peut être stable (existence d'un état lié) que suite à une forte excitation énergétique ionisant les atomes. L'état lié alors créé constitue le « niveau haut » du laser (de durée de vie très courte, quelques nanosecondes), tandis que l'état fondamental est par nature toujours dépeuplé puisque les atomes se dissocient alors : l'inversion de population est donc réalisée dès qu'une molécule est créée. L'émission laser se fait entre deux niveaux moléculaires électroniques, ce qui correspond à une longueur d'onde ultraviolette. Le laser excimère fut inventé en 1970 en URSS par Basov, Danylchev et Popov [Basov 70] à partir d'un gaz de Xenon (Xe_2) à basse température pompé par un faisceau d'électrons : la longueur d'onde d'émission était alors de 172 nm. Par la suite, de nombreux autres lasers excimères ont été développés, couvrant quasiment l'intégralité du spectre UV (voir tableau I.1).

Laser excimère ⁴	ArCl	ArF	KrF	XeF	KrCl	XeCl	XeBr
Longueur d'onde (nm)	175	193	248, 275	351, 353, 460	222, 240	308, 351	282, 300

Tableau I.1 : quelques lasers excimères classiques et leurs longueurs d'onde d'émission.

Les lasers excimères émettent des impulsions d'une durée variable entre la picoseconde et la microseconde, et peuvent atteindre des puissances moyennes de plusieurs centaines de Watts. C'est par conséquent un outil extrêmement utilisé pour toutes les applications de découpe, de marquage ou pour la photolithographie. Une application relativement récente et très prometteuse est l'utilisation en ophtalmologie de lasers excimères pour corriger la myopie⁵. Cependant, ces lasers sont complexes, encombrants et coûteux (plusieurs dizaines de milliers d'euros). De plus, le gaz utilisé est généralement très toxique, rendant sa maintenance dangereuse. Pour toutes ces raisons, il est souvent intéressant de trouver des solutions alternatives à ces lasers.

⁴ On devrait plutôt dire « exciplexe », puisque ici deux atomes différents sont utilisés. L'usage a gardé excimère.

⁵ On peut en particulier citer le désormais très répandu système LASIK (LASer In situ Keratomileusis) [LASIK]

I.2. Lasers à Azote

Les lasers à azote sont capables d'émettre dans l'ultraviolet (337,1 nm) des impulsions courtes à des taux de répétition de quelques dizaines de Hertz. Le pompage (par décharge électrique) permet d'exciter les molécules de diazote N_2 . Le gain extrêmement important présenté par ces lasers leur permet de fournir une énergie conséquente mais la cadence est limitée à environ 200 Hz. Bien que ces lasers soient peu efficaces (environ 0,1% de rendement) et encombrants, ils permettent d'atteindre de fortes puissances directement dans l'UV, et sont à ce titre largement utilisés dans l'industrie et la recherche pour le pompage des lasers à colorant, les études de fluorescence, la photochimie ou le séquençage de l'ADN. Les caractéristiques typiques de ces lasers commerciaux sont résumées dans le tableau suivant :

Modèle	Energie (μ J)	Durée des impulsions	Cadence
VSL-337 (Spectra Physics)	75	4 ns	0 – 100
Picolite (Multi Lasers)	20 – 200	50 – 500 ps	1 -100
MNL 800 (LaserTechnik Berlin)	500	800 ps	10 - 30

Tableau I.2 : propriétés de quelques lasers à azote commerciaux.

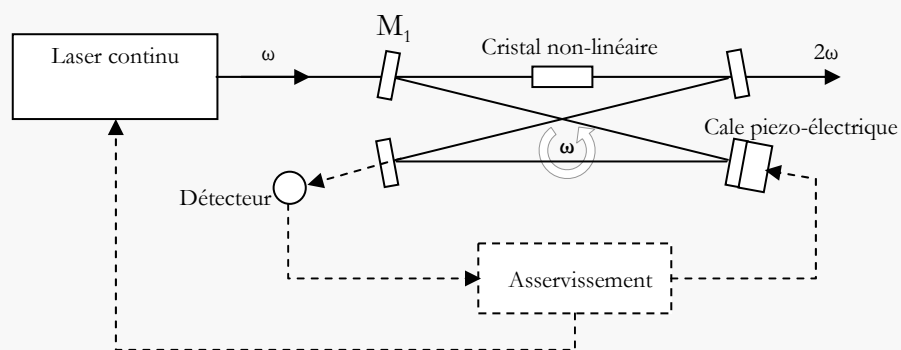
I.3. Lasers à Argon

D'autres gaz que l'azote peuvent être utilisés pour générer un rayonnement ultraviolet : les lasers à argon ionisé par exemple possèdent des raies d'émission à 351 et 364 nm, alors que la classique raie à 514 nm peut être doublée en fréquence pour atteindre 257 nm [Bergquist 82] [Taira 92]. On peut également utiliser la raie à 488 nm et la doubler, et ainsi générer un rayonnement à 244 nm (on peut citer par exemple le système Fred[®] vendu par Coherent). Ces lasers sont simples, peu chers, et permettent d'obtenir un rayonnement continu puissant avec une excellente qualité spatiale. Plusieurs Watts d'ultraviolet sont ainsi disponibles pour peu qu'on utilise un système de gestion des effets thermiques soigné : en effet, comme tous les lasers à gaz le laser à argon est peu efficace (environ 0,1%) et nécessite par conséquent un système de refroidissement performant : ce sont souvent des systèmes à eau peu pratiques, même s'il existe maintenant des laser argon refroidis par air plus compacts – mais aussi moins puissants - que leurs prédécesseurs (BeamLok[®] de SpectraPhysics par exemple). Les applications des lasers « visibles » à argon sont nombreuses, du pompage d'autres lasers (comme les lasers à base de cristaux de saphir dopés au titane) à la création de spectacles et shows lasers où leurs couleurs bleues-vertes font le bonheur des petits et des grands (on peut également obtenir du rouge en utilisant un laser à Krypton).

Au niveau de l'ultraviolet, force est de constater que les raies à 351 et 364 nm de l'argon ne sont pas les plus efficaces : il est donc assez tentant d'utiliser les raies visibles les plus performantes à 514 et 488 nm et de les doubler en fréquence pour obtenir de nouvelles longueurs d'onde dans l'UV. Ce dernier cas est particulièrement intéressant puisqu'il permet d'atteindre 244 nm, longueur d'onde à laquelle il est possible de photoinscrire des réseaux de Bragg dans les fibres optiques. Cependant le rayonnement fourni par le laser argon est continu, ce qui interdit toute conversion de fréquence efficace dans des cristaux non-linéaires par simple passage (l'efficacité est en effet directement proportionnelle à la puissance crête de l'onde fondamentale, comme nous le verrons en détails au chapitre IV). Il est possible de contourner ce problème en mettant en place une cavité résonante autour du cristal non-linéaire afin d'augmenter la puissance vue par ce dernier (voir encadré).

Le doublement de fréquence extra-cavité

Pour les lasers de faible puissance crête comme les lasers continus, le doublement de fréquence par simple passage dans un cristal non linéaire conduit à des rendements extrêmement médiocres. Une solution classiquement mise en œuvre pour contourner ce problème est l'utilisation d'une cavité externe résonante [Brieger 81] [Adams 92] [Bourzeix 93]. Une telle cavité permet d'augmenter la puissance vue par le cristal non linéaire d'un facteur inversement proportionnel aux pertes de la cavité résonnante [Ashkin 66] pouvant atteindre plusieurs dizaines. Pour que l'efficacité soit maximale, il faut répondre à un certain nombre de conditions strictes sur le facteur de réflexion du coupleur d'entrée M_1 de la cavité (condition « d'adaptation » spécifiant que $R(M_1)$ doit être égal à 1-(pertes de la cavité)) et sur la longueur de celle-ci : on place pour cela un des miroirs sur une cale piézo-électrique afin de réaliser un asservissement actif de la longueur de la cavité, de façon à ce que cette dernière soit résonante à la longueur d'onde d'injection. Les principales techniques d'asservissement sont dites de Hänsch-Couillaud [Hänsch 80] et de Pound-Drever [Drever 83]. L'ensemble de ces contraintes (qualité des traitements dichroïques des miroirs pour limiter les pertes, électronique rapide pour asservir efficacement la cavité etc.) rend relativement complexe l'utilisation de tels systèmes.



Bien que cet artifice complique considérablement le système, il est mis en œuvre commercialement par Spectra Physics qui propose un laser à argon doublé dans une cavité de ce type (modèle i-train 244[®]) fournissant 100 mW de puissance moyenne à 244 nm.

I.4. Lasers à vapeur de cuivre

Le laser à vapeur de cuivre présente un rendement bien plus élevé (plus de 1%) que ses congénères gazeux et émet dans le visible simultanément à 510,6 et 578,2 nm des impulsions courtes (25 ns) à haute cadence (typiquement 10 kHz) avec une puissance moyenne de plusieurs dizaines de watts. Ce rayonnement visible peut être doublé pour obtenir des longueurs d'ondes ultraviolettes (255 et 289 nm), et présente ainsi une alternative intéressante aux lasers excimères pour un certain nombre d'applications telles que le micro-usinage.

Comme les autres lasers à gaz, le laser à vapeur de cuivre est entré dans une phase « industrielle » et peu de recherches sont effectuées sur cette source laser. On peut cependant noter que récemment une puissance moyenne record à 255 nm de 15 W à 12 kHz a été obtenue [Trickett 98] [Brown 01] par doublement⁶ d'un laser à vapeur de cuivre amplifié dans une configuration de type MOPA (« Master Oscillator Power Amplifier »), correspondant à un rendement de conversion approchant les 30 %. La qualité spatiale des faisceaux UV obtenus laisse cependant à désirer, les lasers à vapeur de cuivre n'étant pas limités par la diffraction (les M^2 mesurés sont de l'ordre de 30 [Huot 02]).

Les lasers à gaz ont dominé le marché pendant des décennies, et sont encore bien installés dans un certain nombre de domaines (les lasers CO₂ s'accaparent encore plus de 50% du marché dans le domaine de l'usinage par exemple). A l'heure actuelle, leur coût relativement faible (ce point ne concerne cependant pas les lasers à excimères), leur forte implantation sur de nombreux marchés et la prudence des industriels vis-à-vis de nouveaux produits permettent à ces lasers de garder une place au soleil.

Cependant leurs inconvénients intrinsèques (encombrement, efficacité faible, maintenance contraignante...) les rendent peu adaptables à l'évolution de leur milieu naturel (miniaturisation, simplicité d'entretien...) : on peut donc penser que l'arrivée à maturité et les progrès « météoritiques » des lasers solides pompés par diodes vont conduire – progressivement – à l'extinction de cette espèce dans les prochaines décennies.

⁶ Un peu de vocabulaire : on voit encore souvent employé le terme impropre de « doublage » de fréquence : ce dernier signifie pourtant « duplication à l'identique » et n'est donc pas adapté à la génération de second harmonique, qui induit une « multiplication par deux » de la fréquence, ou encore « doublement ».

II. Les lasers à colorants

Les lasers à colorant partagent un certain nombre d'inconvénients avec les lasers à gaz : ils sont encombrants, peu pratiques d'emploi, et nécessitent un entretien très régulier (notamment le remplacement du colorant). Cependant ils présentent un avantage considérable dont ils furent les seuls à pouvoir s'enorgueillir jusqu'à la fin des années 80 : ce type de laser est *largement accordable dans le visible* (et donc dans l'ultraviolet par simple doublement de fréquence). C'est essentiellement sur cette propriété extraordinaire pour un laser – et mettant à mal sa solide réputation de monochromatisme – que les lasers à colorant ont bâti leur succès.

En effet, certaines applications telles que la spectroscopie atmosphérique par lidar requièrent des sources visibles ou ultraviolettes accordables, car de nombreux constituants atmosphériques (ozone, dioxyde de soufre, toluène...) présentent des bandes d'absorption dans ces domaines spectraux : une source accordable permet de détecter facilement et rapidement la présence de ces gaz en faisant continûment varier la longueur d'onde de la source. De la même façon, certaines études de photobiologie que nous avons déjà évoquées (spectroscopie de fluorescence résolue en temps [Couprie 94]) nécessitent des sources ultraviolettes d'impulsions courtes pour sonder l'évolution temporelle de molécules d'intérêt biologique au cours de processus cognitifs par exemple [Gagniet 97] : une source accordable permettra de pouvoir sonder différentes molécules sans changer de laser. Enfin si les lasers à colorants sont accordables, c'est bien sûr parce qu'ils possèdent un large spectre d'émission : une conséquence directe de ce spectre étendu est de rendre possible la génération d'impulsions ultra-courtes (femtosecondes) avec de telles sources. Avant l'avènement des lasers solides, les lasers à colorant (première démonstration en 1965 dans les laboratoires d'IBM par Peter P. Sorokin et J. R. Lankard) étaient par conséquent très populaires : ils présentaient les qualités pour atteindre l'ultraviolet (par simple doublement, du fait de leur émission dans la bande visible du spectre), pour réaliser des sources accordables (leur spectre s'étend sur plusieurs dizaines de nanomètres et il est très facile de changer de milieu amplificateur – du fait de sa nature liquide – et donc de couvrir une gamme spectrale très étendue) ou à impulsions ultra brèves (pour la même raison) [Georges 89].

Un grand nombre de réalisations ont donc été publiées dans les années 70 et 80, avec divers colorants⁷ [Johnston 88] [Hirth 77], diverses sources de pompage (laser à Argon [Johnston 88], laser à vapeur de cuivre [Koprnikov 94], laser à Azote [Dunning 73, 74], laser à Rubis [Hamadani 71], laser Nd:verre doublé [Dinev 72]...), et divers cristaux non-linéaires (BBO, LiIO₃, RDP, ADA, KDP...) dans différentes configurations (doublement de fréquence bien sûr, mais aussi triplement [Koprnikov 94] ou somme de fréquence [Dinev 72][Gustaffson 88]. Les accordabilités obtenues couvrent souvent plusieurs dizaines de nanomètres et les puissances moyennes sont faibles (quelques milliwatts). La majorité de ces systèmes fournit un rayonnement continu.

Cependant, la maintenance de ces lasers à colorant est rendue pénible par la nécessité de renouveler régulièrement le milieu amplificateur (les colorants se dégradent rapidement) et le caractère toxique des liquides employés. De plus ces sources sont généralement pompées par des lasers à gaz (Argon par exemple) ce qui les rend encombrantes et peu efficaces. Elles restent cependant utilisées dans le milieu industriel : Quantel vient de mettre sur le marché un laser à colorant (TDL90 pompé par un laser Nd:YAG doublé « YASMIN® ») fonctionnant à 120 Hz, et

⁷ La rodamine 6G est la plus populaire : elle permet d'atteindre une accordabilité entre 280 et 315 nm environ [Ferguson 76, 77].

fournissant à 560 nm une puissance moyenne de 6 W. Les sources à base de lasers à colorants sont également étudiées en recherche car elles constituent un moyen simple d'obtenir une large accordabilité.

Parmi les travaux les plus récents on peut citer la réalisation de sources ultraviolettes continues par doublement de fréquence de lasers à colorants (rodamine 6G) [Rehse 02] [Madsen 02]. Ces derniers, pompés respectivement par laser Nd:YAG doublé et par laser Argon, produisent un peu moins d'un Watt en continu autour de 580 nm. Cependant, la puissance crête correspondante (égale à la puissance moyenne dans le cas des lasers continus) est trop faible pour permettre une conversion de fréquence efficace par simple passage dans un cristal non linéaire. Ce problème, rencontré par toutes les sources laser continues de puissance modérée, peut être résolu de deux façons assez similaires dans l'esprit, à savoir en réalisant le doublement de fréquence *dans* la cavité laser pour bénéficier du champ électrique bien plus fort (typiquement 10 à 100 fois) qui y règne, ou comme on l'a déjà vu en réalisant une cavité *externe* dans laquelle on place le cristal non linéaire. C'est cette dernière solution qui a été retenue ici permettant d'atteindre environ 100 mW de rayonnement ultraviolet autour de 290 nm.

En 1997, Chandra *et al.* [Chandra 97] ont réalisé une source basée sur un laser à colorant « moderne », c'est-à-dire s'affranchissant des défauts que constituent le pompage par un laser à gaz et le caractère liquide du milieu amplificateur : ils ont obtenu une accordabilité de 10 nm (entre 284 et 294 nm) en utilisant un colorant solide (plastique dopé par du pyrrométhène) et un pompage par un laser Nd:YAG doublé en fréquence (la cadence est de 10 Hz et la durée des impulsions de 8 ns). La génération de second harmonique par un cristal de CLBO permet d'atteindre une puissance moyenne de 440 mW dans l'ultraviolet. Bien qu'intéressante, cette démarche reste marginale (les lasers à colorant dans leur ensemble sont de moins en moins utilisés⁸, payant en cela leur toxicité et leur courte durée de vie) et l'écrasante majorité des sources accordables développées actuellement sont basées sur des lasers solides pompés par diodes.

⁸ Pour le plus grand plaisir des expérimentateurs: « Les lasers à colorants, mais c'est de la m.... » Patrick Georges, communication privée, un jour au café.

III. Les lasers à semi-conducteurs

Les qualités intrinsèques des diodes laser⁹ en font des candidates de choix pour réaliser des sources ultra-compactes, fiables et efficaces en termes de rendement électrique-optique. Ceci est particulièrement vrai dans le domaine ultraviolet où une des applications essentielles, à savoir la spectroscopie, requiert souvent des dispositifs portables : elle est par conséquent friande de sources compactes et robustes. Deux voies sont principalement étudiées pour réaliser des sources UV à base de diodes laser : la première consiste à travailler directement sur la structure de la diode et la nature des matériaux employés (nitrure de gallium) pour créer une diode émettant directement dans l'ultraviolet, tandis que la seconde utilise les diodes actuelles, extrêmement efficaces dans le proche infrarouge, pour atteindre l'UV par conversion de fréquence.

La première approche est particulièrement prometteuse : le premier système commercial de diode laser ultraviolette a été mis sur le marché en 2002 par la société IBH, et est basé sur une diode laser à 375 nm mise au point par la compagnie Nichia au Japon. Récemment (janvier 2003) la société Point-source a lancé une diode produisant 1 mW TEM₀₀ à 370 nm (<http://www.point-source.com>). Bien que leur longueur d'onde sorte légèrement du cadre défini de l'ultraviolet, on peut également signaler les fameuses diodes bleues développées par Nakamura (pour Nichia à l'époque) et qui promettent de révolutionner le monde du stockage d'information. Il existe aussi des diodes lasers impulsives (déclenchées par le gain) produisant des impulsions courtes dans l'UV à une cadence de répétition ajustable (par exemple les diodes laser LDH de la société Picoquant fournissent des impulsions de quelques dizaines de picosecondes à 375 nm, avec cependant une énergie de moins de 5 nJ par impulsion...).

La seconde approche est plus mature : il existe en effet des diodes lasers performantes dans l'infrarouge ; pour atteindre l'ultraviolet, il est alors nécessaire de mettre en œuvre une série d'étages non-linéaires plus ou moins efficaces et plus ou moins simples. La théorie concernant ces effets non-linéaires est connue depuis des décennies (on en trouvera des exposés complets dans [Kleinman 72][Koechner 76][Shen 76] par exemple) et ne sera pas développée ici : on rappellera simplement que l'efficacité des conversions non linéaires est liée d'une part à la densité de puissance spatio-temporelle (en d'autres termes la puissance crête et la qualité de faisceau) et à la largeur spectrale [Eimerl 87] de la source de pompe, et d'autre part aux cristaux non-linéaires utilisés. Un large panel de cristaux est à la disposition des expérimentateurs, qui font leur choix en fonction des spécificités de leurs systèmes lasers. On résume dans l'annexe II les principales caractéristiques¹⁰ de quelques cristaux non-linéaires classiques que nous rencontrerons tout au long de cet état de l'art.

Le principal obstacle à surmonter pour ces systèmes « diode laser plus conversion de fréquence » réside dans la faible puissance émise par les diodes laser monomodes (quelques dizaines de mW) qui limite l'efficacité de conversion non linéaire. Les solutions pour contourner cette difficulté sont simples : on peut soit 1) augmenter la puissance par le biais d'amplificateurs et améliorer la conversion de fréquence en utilisant des cavités externes ou des matériaux à fort coefficient non linéaire soit 2) travailler sur la puissance crête en s'arrangeant pour que les diodes

⁹ Rappelons en effet à toutes fins utiles que compacité et efficacité sont les deux mamelles de la diode laser.

¹⁰ Pour des informations plus complètes (acceptance spectrale, angulaire, en température, angles d'accord de phase...) on pourra se reporter au logiciel SNLO développé par le laboratoire Sandia au USA et disponible *gratuitement* sur internet (<http://www.sandia.gov/imrl/XWEB1128/xxtal.htm>).

lasers produisent des impulsions courtes. De nombreuses recherches ont lieu autour de ces thèmes, et nous allons en passer quelques unes en revue.

III.1. Systèmes basés sur des diodes continues ou quasi-continues

Le développement rapide des amplificateurs à semi-conducteur permet de partiellement compenser la faible puissance crête des diodes laser continue en plaçant en série une diode laser et un amplificateur dans une structure type MOPA (pour Master Oscillator Power Amplifier, ou encore Oscillateur Maître et Amplificateur de Puissance). Un autre inconvénient des diodes laser est leur émission sur un spectre relativement large : on peut cependant obtenir une émission très affinée (soit typiquement moins de un MHz de large) en réalisant une cavité étendue (il s'agit de fermer la cavité par un réseau de diffraction en configuration de Littrow agissant comme un filtre spectral pour forcer l'oscillation sur le mode voulu) ou en asservissant la diode sur un interféromètre de Fabry-Perot de grande finesse [Schwedes 03].

Cependant, la puissance obtenue après amplification reste modeste (moins d'un Watt) et l'utilisation d'une cavité externe pour les étages de conversion de fréquence est nécessaire [Schwedes 03] [Zimmermann 95]. L'intérêt lié à la simplicité d'utilisation de la diode laser elle-même se trouve alors fortement dilué dans les divers asservissements et stabilisations électroniques qui rendent l'ensemble finalement assez complexe. Les puissances obtenues dans l'UV sont également assez faibles (1 mW à 231 nm [Schwedes 03] ou 2 mW à 243 nm [Zimmerman 95]).

Enfin on peut noter la démonstration par Mizuuchi *et al.* de la faisabilité du doublement en fréquence d'une diode laser rouge continue à 680 nm par simple passage dans un cristal de Tantalate de Lithium Périodiquement Polarisé (ppLT)¹¹ : le système est alors excessivement simple mais les performances sont - pour l'heure - anecdotiques (1 μ W à 340 nm pour 35 mW à 680 nm soit un rendement de 0,0028%) [Mizuuchi 96].

III.2. Systèmes basés sur des diodes laser impulsionnelles

Une solution évidente pour améliorer le rendement de conversion non-linéaire des systèmes laser à base de diodes est de travailler avec des diodes impulsionnelles afin d'augmenter la puissance crête de l'onde fondamentale. De plus, pour un certain nombre d'applications (notamment pour les études de fluorescence résolue en temps) il est important de disposer d'impulsions courtes (picosecondes). Uchiyama *et al.* ont montré qu'une diode laser affinée spectralement, fonctionnant en régime impulsionnel¹² et émettant à 690 nm peut être doublée en fréquence pour atteindre 345 nm [Uchiyama 97]. La cadence de la diode est de 500 MHz et la durée des impulsions de 68 ps. Aucun amplificateur n'étant utilisé, la puissance moyenne en sortie de diode n'est que de 10,5 mW, soit une puissance crête de 308 mW. Le doublement de fréquence par simple passage dans un cristal de LiIO₃ donne un rendement médiocre de 0,0014 %, ce qui n'est pas surprenant avec une puissance crête si faible.

¹¹ Nous reviendrons en détails au chapitre IV sur ce type de matériaux non-linéaires périodiquement polarisés (d'où le sigle « pp») pour le moins efficaces.

¹² Pour cela ils utilisent la technique dite de commutation par le gain ou « gain switching » [Ho 78][Ito 79]: on module le courant injecté dans la diode afin d'utiliser la première oscillation de relaxation de la diode laser, dont la durée est de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes.

Pour atteindre des rendements plus intéressants, il est indispensable de passer par des étages d'amplification puissants : Champert *et al.* proposent d'utiliser une structure originale (voir figure I.1) comprenant une diode laser commutée par le gain suivie d'un amplificateur à fibre et enfin d'étages non-linéaires efficaces basés sur des matériaux à quasi-accord de phase¹¹ [Champert 00].

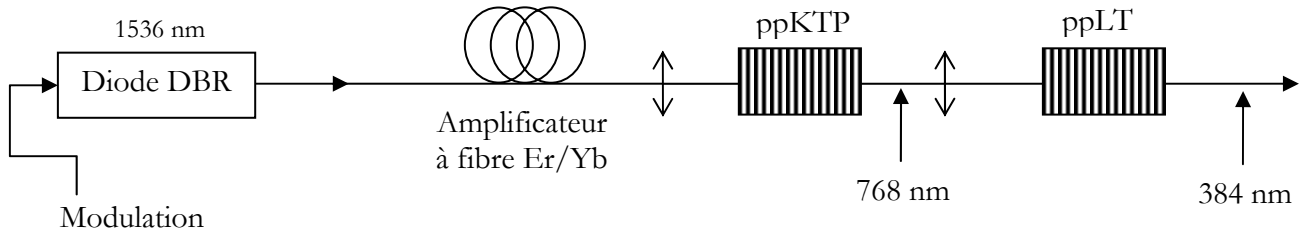


Figure I.1 : source UV picoseconde basée sur une diode laser (d'après [Champert 00]).

La source infrarouge utilisée consiste en une diode DBR (Distributed Bragg Reflector), donc spectralement fine, émettant à 1536 nm. Cette diode fonctionne en régime impulsionnel par commutation du gain et produit ainsi des impulsions de durée et de cadence variable en fonction du signal de modulation appliqué (de quelques picosecondes à la nanoseconde et de 1 à 25 MHz respectivement). La puissance moyenne fournie est de seulement 15 μ W. Cette puissance est portée à 650 mW (soit 300 W de puissance crête) via un amplificateur à fibre codopée Erbium/Ytterbium. Les étages de doublement (768 nm) et de quadruplement (384 nm) de fréquence utilisent des cristaux de ppKTP et ppLT respectivement et produisent des rendements d'environ 35% chacun.

Un autre pas vers la haute puissance est franchi par la même équipe en 2002 [Champert 02]; le principe est le même que celui décrit plus haut à quelques exceptions près : la diode DBR émet ici à 1060 nm et est modulée de façon externe par un modulateur électro-optique à base de niobate de lithium. Les impulsions ainsi créées (1,7 ns ; 5,5 MHz) sont amplifiées sans ménagement aucun par deux amplificateurs fibrés (dopés ytterbium) successifs pour porter la puissance moyenne de 31 μ W à 10 W. La puissance crête correspondante dépasse alors le kilowatt, ce qui permet d'obtenir un très bon rendement de conversion dans un cristal de ppKTP (54 %) pour générer 4,2 W de puissance moyenne à 530 nm. L'étage de doublement suivant ne peut être effectué avec du ppLT (sa zone de transparence ne s'étend pas jusqu'à 265 nm) : un cristal classique de BBO est donc utilisé et permet d'obtenir 86 mW de rayonnement UV (correspondant à un rendement de 2,2% pour la conversion 530 nm vers 265 nm).

III.3. Systèmes accordables

Une qualité des diodes lasers pour l'instant passée sous silence est leur potentielle accordabilité (sur quelques nanomètres du moins) : un certain nombre d'études utilisent cette propriété pour réaliser des sources ultraviolettes accordables, dont nous avons décrit l'intérêt quelques paragraphes plus haut.

Nous avons déjà dit que les diodes lasers présentent traditionnellement des puissances de sortie faibles, et on se retrouve pour les systèmes accordables comme pour les autres face au cruel dilemme consistant à choisir entre utiliser une cavité externe pour la conversion de fréquence ou faire fonctionner la diode laser (infrarouge) en régime impulsionnel pour augmenter la puissance

crête. Parmi les partisans de la première solution, Sayama *et al.* utilisent deux diodes lasers continues à 855 nm et 778 nm respectivement [Sayama 98]: la première est doublée en fréquence (dans une cavité résonante externe donc) puis le rayonnement résultant est sommé avec celui issu de la seconde diode dans une autre cavité résonante. Une puissance de 35 nW est générée autour de 276 nm avec une accordabilité réduite (1 nm). La puissance est faible et l'accordabilité anecdotique, mais cet exemple permet de démontrer que la vaste gamme de longueur d'onde couverte par les diodes laser permet en utilisant les bons effets non-linéaires d'obtenir *ad libitum* une longueur d'onde ultraviolette donnée, ce qui est capital pour un certain nombre d'applications spectroscopiques.

L'autre voie employée consiste donc à rendre la diode laser de départ impulsionnelle, puis à l'amplifier (car la puissance crête obtenue est encore trop faible). La première façon de faire est de travailler en régime de verrouillage de modes [Goldberg 95] : un ensemble formé d'une diode laser en cavité étendue et d'un amplificateur à semi-conducteur évasé (« tapered amplifier » pour nos amis anglo-saxons [Mehuys 93]) permet d'obtenir des impulsions de 26 ps en régime quasi continu (860 MHz) avec une puissance crête de 30 W. Le doublement puis le triplement de fréquence par simple passage dans des cristaux de KNbO_3 et de LBO respectivement conduit à 50 μW de puissance moyenne dans la fourchette de longueur d'onde 284-290 nm. Une variante de ce système est proposée par la même équipe [Kliner 97] [Koplow 98]: il s'agit alors d'injecter une diode laser en cavité étendue continue, monomode longitudinale et accordable (842 -868 nm), dans un amplificateur à semi-conducteur du même type que celui utilisé lors de l'expérience précédente (figure I.2). Ce dernier est commandé par des impulsions de courant avec un taux de répétition de 500 kHz. Le système permet de produire à cette cadence des impulsions de 200 ns avec une puissance crête de 3 kW. Le doublement et le quadruplement de fréquence sont classiques (KNbO_3 et BBO) et donnent accès à la bande de longueur d'onde comprise entre 211 et 217 nm. Bien que le fonctionnement impulsionnel permette de gagner 2 ordres de grandeur par rapport au régime continu, la puissance moyenne reste limitée à quelques dizaines de nW au mieux dans l'UV.

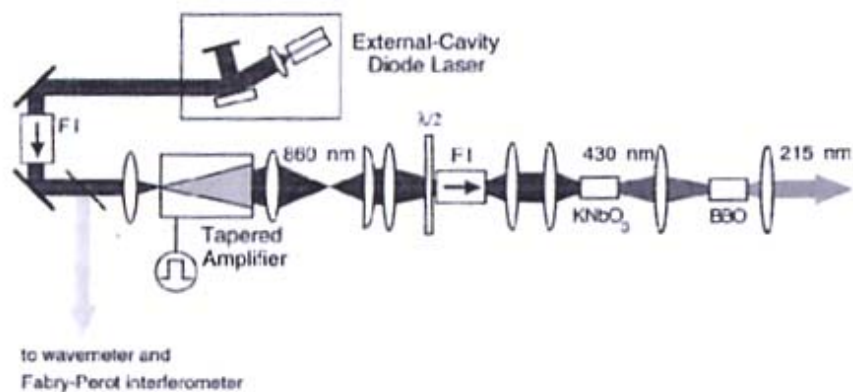


Figure I.2 : Diode laser en cavité externe amplifiée puis quadruplée en fréquence [Koplow 98].

Enfin le régime impulsionnel n'a pas pour seule utilité d'augmenter les rendements de conversion : certaines applications comme la fluorescence résolue en temps nécessitent un « vrai » fonctionnement impulsionnel, c'est-à-dire à des cadences de l'ordre de quelques MHz avec des impulsions courtes (picosecondes ou même femtosecondes). La solution dans ce cas est, comme déjà mentionné plus haut, d'utiliser des diodes « déclenchées par le gain ». Une telle diode en cavité étendue permet d'obtenir des impulsions de 200 ps à 100 kHz avec une plage

d'accordabilité entre 803 et 840 nm [Balembois 98]. Un amplificateur est cependant nécessaire car l'énergie de chaque impulsion est limitée à 20 pJ. Le Professeur Balembois et ses collègues utilisent pour cela un amplificateur régénératif Ti:Sa: en amplifiant une impulsion sur 10 (la cadence chute alors à 10 kHz, et la durée des impulsions est réduite à 70 ps en raison de la sélectivité spectrale de l'amplificateur) une énergie de 4,5 μ J par impulsion est atteinte. Cette énergie se transforme après génération du troisième harmonique en 1 μ J de rayonnement UV entre 268 et 280 nm.

Les diodes lasers réunissent un nombre assez considérable d'avantages : simplicité, robustesse, compacité, rendement... Un certain nombre de leurs inconvénients tendent à disparaître avec les progrès technologiques : les longueurs d'onde disponibles s'étendent maintenant à l'ultraviolet, et les puissances générées sont de plus en plus importantes. A ce sujet, et même si aucune réalisation dans l'ultraviolet n'a encore vu le jour – au meilleur de notre connaissance - il faut dire un mot des technologies actuellement émergentes que sont les OPSL (pour Optically Pumped Semiconductors Lasers ou Laser Semiconducteurs Pompés Optiquement, développés par la société Coherent) et les NECSEL (Novalux External Cavity SEMiconductor Lasers). Ces lasers – voir figure I.3 - sont tous deux basés sur une dérivation de diodes lasers à émission verticale (les VECSEL), la différence se trouvant essentiellement au niveau du pompage (optique pour les OPSL, électrique pour les NECSEL).

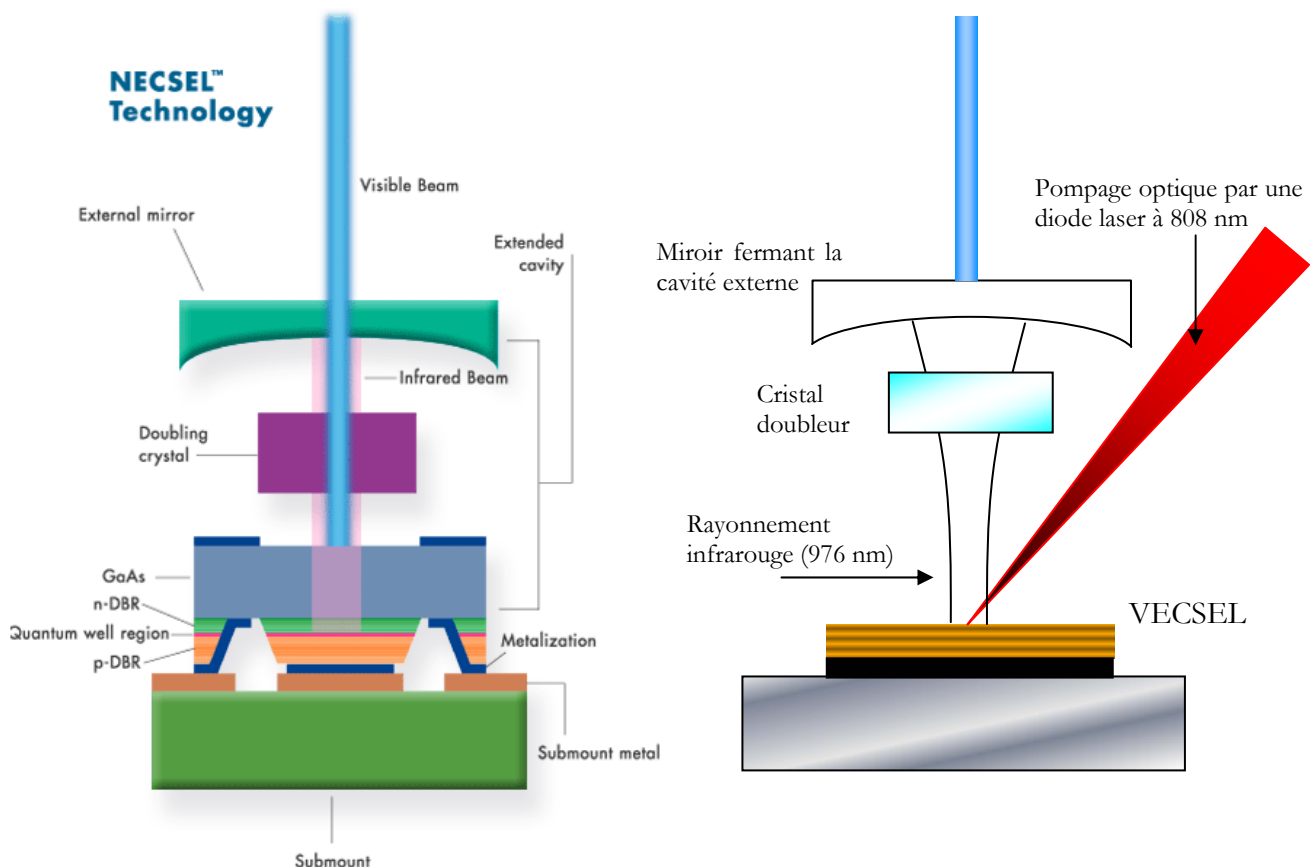


Figure I.3 : structures respectives d'un NECSEL (à gauche, figure tirée du site web de Novalux) et d'un OPSL (à droite).

La cavité externe permet de faire fonctionner ces lasers sur un seul mode longitudinal ; un cristal doubleur, dont l'identité n'est pas révélée par les constructeurs (c'est en fait actuellement du LBO, mais dont mon petit doigt me dit qu'il pourrait s'agir dans un futur proche de matériaux périodiquement polarisés...) peut être placé dans la cavité pour obtenir quelques dizaines de mW de rayonnement continu et monomode - à la fois spatialement et temporellement - dans le bleu¹³. La longueur d'onde finale peut être relativement aisément choisie en jouant sur la structure de la diode laser de départ : cependant la plupart des produits commerciaux comme le Sapphire^{®14} de Coherent, le laser Novalux, ou le Picarro[®] (dont la particularité est d'utiliser un processus de doublement externe à la cavité) émettent à une longueur d'onde de 488 nm. En effet la cible de ces sources est plus que bien définie : il s'agit de s'attaquer à l'important marché des lasers argon. Au vu des performances des OPSL et consorts (la consommation électrique est bien plus faible, l'encombrement est réduit de 90%, aucun système de refroidissement complexe n'est requis...), il y'a d'ailleurs fort à parier que le sort de ces derniers est à terme scellé...

Cependant dans le domaine des hautes puissances ou des larges accordabilités, les lasers à semi-conducteurs ne sont pas encore au niveau des meilleurs : nous allons maintenant décrire l'autre catégorie de laser ayant d'ors et déjà supplanté les lasers à gaz ou à colorants pour nombre d'applications, à savoir les lasers solides¹⁵.

¹³ Pour aller « plus profond » dans l'UV, il faut disposer de diodes émettant dans le rouge avant doublement. C'est possible lorsque le pompage est électrique, mais s'avère plus problématique dans le cas du pompage optique, par manque de diodes de puissance à des longueurs d'ondes inférieures à 670 nm.

¹⁴ Ce nom a sans nul doute été choisi pour évoquer la couleur azure des saphirs de joaillerie et ainsi illustrer le rayonnement bleu à 488 nm du laser : ce dernier n'a strictement rien à voir avec le saphir bien connu des laséristes, dont la couleur est bien plus terne...

¹⁵ On pourra objecter avec raison que les lasers à semi-conducteurs sont des lasers solides. Cependant leur type de fonctionnement est suffisamment différent pour que l'on puisse justifier la distinction artificielle effectuée ici.

IV. Les lasers solides

Depuis plus d'une décennie, les lasers solides pompés par diodes ont émergé comme des sources laser simples, compactes et fiables produisant des puissances moyennes importantes et capables de fonctionner dans toute une gamme de régimes temporels, que ce soit en termes de durée d'impulsion (du régime continu au régime femtoseconde) ou de taux de répétition. Les longueurs d'onde d'émission de ces lasers solides sont par contre quasiment exclusivement situées dans l'infrarouge proche. La voie royale pour créer un rayonnement ultraviolet est alors la génération d'harmoniques multiples (second harmonique pour atteindre le domaine visible, 3^{ième}, 4^{ième} ou 5^{ième} pour obtenir de l'ultraviolet) à partir d'un laser infrarouge efficace. Nous avons choisi d'organiser cette revue des systèmes lasers solides rayonnant dans l'ultraviolet en deux grandes catégories : d'une part les lasers à longueurs d'onde fixes, placés sous l'écrasante domination des harmoniques des lasers à base de matériaux dopés Néodyme, et d'autre part les lasers agiles en longueur d'onde, dont le plus auguste représentant est le laser saphir dopé au titane.

IV.1. Lasers à longueur d'onde fixe

Les cristaux dopés par l'ion néodyme Nd^{3+} occupent un rang de choix dans la plupart des sources laser mises au point depuis plus de 20 ans. Cet ion permet en effet une efficacité importante (c'est un système dit « 4 niveaux » efficace, c'est-à-dire avec une section efficace d'émission stimulée importante et un faible peuplement thermique du niveau bas de la transition laser), un seuil laser assez faible, et peut être inséré dans toute une batterie de matrices permettant de disposer d'un éventail de sources possédant des caractéristiques variées (longueurs d'ondes émises, propriétés thermomécaniques, efficacités laser...). La plus connue et la plus utilisée de ces matrices est le grenat d'yttrium et d'aluminium ou YAG (première démonstration d'un laser $\text{Nd}:\text{YAG}^{16}$ en 1964, et 1968 en pompage par diode), notamment en raison de ses excellentes propriétés thermiques et de sa grande qualité optique acquise grâce à de nombreuses années d'expérience dans le domaine de la croissance cristalline. D'autres matrices peuvent également être utilisées : YVO_4 , YLF, verres, aluminates (YAP), GdCOB ...

Un point commun important de tous les lasers dopés par l'ion néodyme est d'émettre principalement dans le proche infrarouge (typiquement autour de 1060 nm). Plusieurs étages consécutifs de conversion de fréquence sont alors utilisés pour atteindre le visible, puis l'ultraviolet.

Nous étudierons les différentes sources existantes en fonction de leur fonctionnement temporel, en commençant par les lasers continus avant de décrire les lasers impulsions (déclenchés et verrouillés en phase).

¹⁶ On suivra la notation classiquement en vigueur en désignant par $\text{X}:\text{ABC}$ un laser formé par un cristal ABC dopé par l'ion X.

IV.1.1. Sources continues

La génération de rayonnement continu à partir de sources infrarouges pose le problème du rendement de conversion à basse puissance crête. Comme nous l'avons vu précédemment, seule l'insertion du cristal non-linéaire dans une cavité - une cavité externe asservie ou dans la cavité laser elle-même - permet d'obtenir des rendements de conversion satisfaisants. Parmi les travaux les plus récents, on peut noter la réalisation d'une source à 266 nm combinant ces deux techniques [Kondo 98] : un laser Nd :YVO₄ continu émettant à 1064 nm est doublé en fréquence intracavité puis à nouveau doublé dans une cavité résonante externe (en utilisant un cristal de BBO) comme on peut le voir sur la figure I.4. Une puissance de 100 mW est ainsi obtenue à 266 nm pour une puissance de 500 mW à 532 nm, soit un rendement de 20 %.

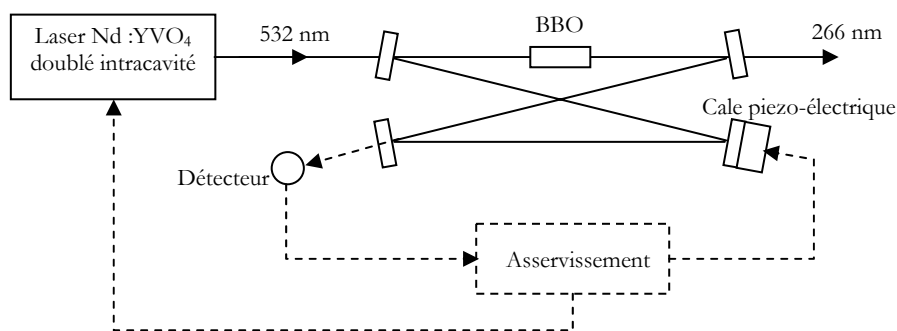


Figure I.4 : réalisation d'une source continue de rayonnement UV utilisant une cavité externe (d'après [Kondo 98]).

D'autres travaux [Zanger 99] conduisent à des puissances plus élevées (1,5 W à 266 nm avec un rendement de 30%) en simplifiant au maximum la cavité (donc en diminuant les pertes) ce qui permet de plus d'obtenir un produit commercialisable. C'est cette structure qui est utilisée - sous le nom Delta Concept® - dans le i-Train 244 (laser argon doublé en fréquence dont nous avons déjà parlé plus haut) de Spectra Physics ainsi que dans le Millenia UV, qui fournit par doublement d'un laser Nd:YVO₄ une puissance de 200 mW à 266 nm (figure I.5).

Pour ne pas faire de jaloux parmi les géants du laser, il faut mentionner également le laser Azure 266® de Coherent, qui permet avec une cavité externe très semblable de générer un rayonnement

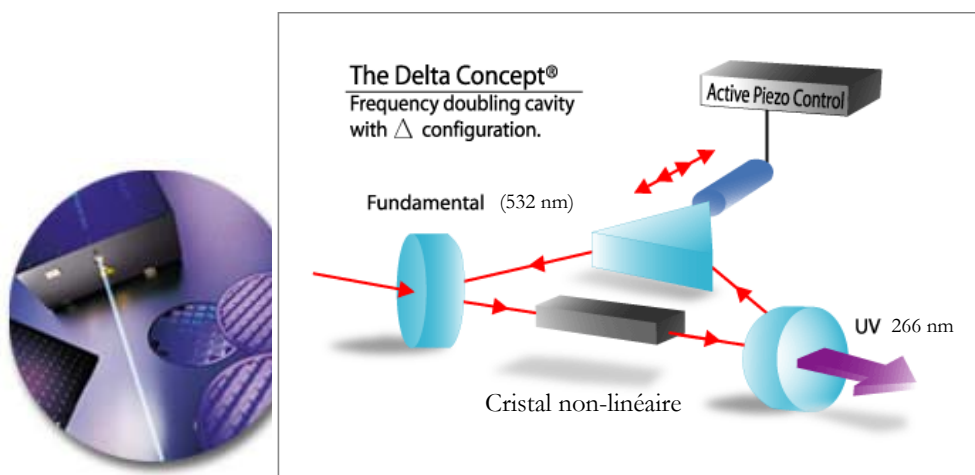


Figure I.5 : le Delta Concept® de Spectra Physics (figure prise sur le site www.spectraphysics.com) de Spectra Physics, d'après [Zanger 99].

à 266 nm. Au niveau industriel, les lasers solides UV tendent à remplacer rapidement les lasers à gaz utilisés jusqu'à maintenant. Il faut cependant noter que pour ces produits commerciaux, l'exigence en matière de répétabilité des performances ainsi que de durée de vie des systèmes oblige les lasers UV à posséder des systèmes automatiques (Sentinel® chez Coherent) pour contrôler la stabilité de pointé et maintenir la puissance constante : en effet, la tenue au flux des cristaux non-linéaires (BBO ou LBO) dans cette gamme spectrale est incertaine, et il est nécessaire de déplacer périodiquement le cristal afin qu'une zone « neuve » soit attaquée régulièrement par le faisceau laser. La complexité ainsi ajoutée (aucun système de ce type n'est nécessaire pour les lasers à gaz) ralentit quelque peu la prise de pouvoir des lasers solides UV, mais ne la remet pas en cause.

Après cette excursion dans le monde des lasers commerciaux, revenons à des systèmes « de laboratoire » :

L'architecture « cavité résonante externe » que nous avons décrite peut être également utilisée pour réaliser la génération du troisième harmonique à 355 nm [Kaneda 96] : on mélange alors dans un cristal de BBO (dans sa cavité externe asservie) une onde à 1064 nm et une autre à 532 nm obtenue par doublement de fréquence intracavité (avec un cristal de KTP). Ce processus appelé somme de fréquence fait intervenir deux ondes incidentes sur le cristal, et l'efficacité est reliée à l'intensité de ces ondes à 1064 nm et à 532 nm. La cavité externe réalisée se doit donc d'être doublement résonante à ces deux longueurs d'onde. Un tel dispositif permet d'obtenir une puissance de 220 mW à 355 nm avec un rendement de plus de 20% entre l'ultraviolet et la puissance totale incidente (1064 nm et 532 nm), au prix d'une complexité certaine au niveau de l'asservissement de la cavité externe.

De façon générale, et bien que les rendements obtenus soient satisfaisants, la complexité de mise en œuvre de la boucle de contre-réaction et la difficulté de réglage du système (alignement, tolérance faible sur la longueur de la cavité...) rendent de tels dispositifs assez peu populaires. Nous avons cependant vu que des systèmes commerciaux récents mettent en œuvre de telles structures. Si l'on veut malgré tout se passer de cavité externe asservie, une solution souvent envisagée est d'augmenter la puissance crête de la source afin d'augmenter l'efficacité de conversion non-linéaire et ainsi de pouvoir la réaliser par simple passage (sans cavité donc) dans un cristal. Pour cela, deux approches classiques peuvent être étudiées, conduisant à des durées d'impulsion et à des taux de répétition différents : le verrouillage de modes et le déclenchement.

IV.1.2. Les lasers à modes verrouillés en phase

Pour un certain nombre d'applications, les lasers à modes verrouillés en phase¹⁷ – dont nous décrirons succinctement le principe de fonctionnement au chapitre II – sont perçus comme quasiment continus du fait de leur cadence très élevée (souvent autour de la centaine de MHz). Cependant leur puissance crête est augmentée d'un facteur supérieur à 1000 par rapport à leur puissance moyenne¹⁸. Il devient ainsi possible de générer les harmoniques des rayonnements de tels lasers sans passer par des cavités externes résonnantes [Wall 02], avec par exemple des rendements de 40 % entre le second (527 nm) et le quatrième harmonique (263 nm) d'un laser Nd:YLF [Garcia 00]. Certains lasers commerciaux (le Vanguard® de Spectra Physics par exemple) permettent ainsi de disposer après doublement de fréquence par simple passage de 4W de puissance moyenne à 355 nm (la cadence est de 80 MHz, et la durée des impulsions de 10 ps) avec un faisceau limité par la diffraction.

Afin d'obtenir des rendements toujours plus importants entre l'infrarouge et l'ultraviolet, il est possible – mais bien plus compliqué – de combiner une source laser à verrouillage de modes et une cavité résonante externe [Tidwell 93]. La puissance crête élevée du laser source (Nd : YLF) permet de réaliser un doublement de fréquence efficace en simple passage dans un cristal de LBO. Ce dernier est placé à un des point de focalisation d'une cavité résonante à 527 nm, tandis que l'autre est occupé par un cristal de BBO générant le rayonnement ultraviolet (figure I.6). Les tolérances sur la finesse de la cavité, la stabilité du laser d'injection et son isolation sont plus larges du fait de la grande puissance crête circulant dans la cavité. Tidwell *et al.* ont ainsi généré 6,7 W à 263 nm avec un rendement de 45% entre l'infrarouge et l'ultraviolet. Il est cependant à

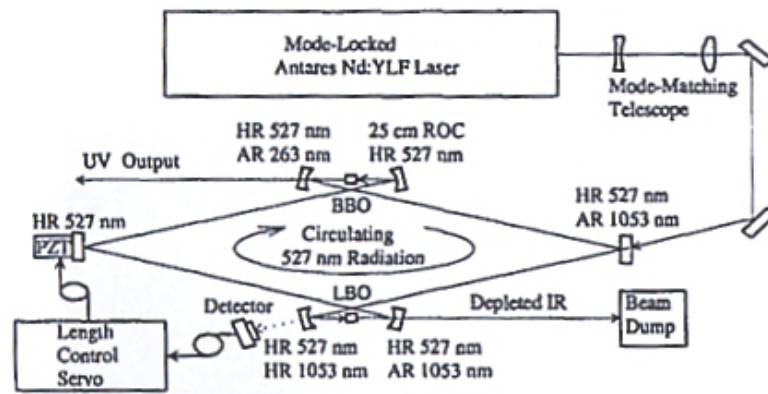


Figure I.6 : source laser à verrouillage de modes et conversion de fréquence dans une cavité externe [Tidwell 93].

noter que le système présenté souffrait de problèmes thermiques importants, et donc à une stabilité médiocre dans le temps. Le faisceau UV obtenu est également très dégradé spatialement.

Comme pour la génération d'harmoniques en régime continu, il est aussi possible d'essayer de produire un rayonnement UV par conversion de fréquence *intracavité* d'un laser à verrouillage de modes: cette solution présente l'avantage de s'affranchir de tout système d'asservissement électronique complexe. Cependant la mise en œuvre d'un tel système se heurte à

¹⁷ Le terme utilisé de façon quasi-exclusive dans la vraie vie des laséristes est le mot anglais « Mode-locked laser », souvent transformé assez sauvagement en « laser mode-loqué »... La traduction française correcte la plus satisfaisante semble être « laser à verrouillage de modes », ou « laser à modes verrouillés en phase ». On trouve aussi parfois « laser à modes bloqués », qui se rapproche phonétiquement du terme anglais mais n'est pas scientifiquement très rigoureux et sera donc évité dans ce mémoire.

¹⁸ ces deux puissances sont reliées par $P_c = P_m / (C \Delta t)$, où P_c et P_m sont respectivement la puissance crête et la puissance moyenne, C est la cadence et Δt est la durée des impulsions émises, de l'ordre de la dizaine de picosecondes pour un laser Nd:YAG à verrouillage de modes.

un écueil majeur. En effet, la présence d'un cristal doubleur dans la cavité laser introduit des pertes sur l'onde fondamentale qui augmentent avec le rendement de conversion, donc avec la puissance crête. Ce processus est complètement défavorable au fonctionnement en régime de verrouillage de modes du laser, dans lequel les pertes doivent être moins importantes en régime impulsif qu'en régime continu. La compétition entre ces deux effets conduit invariablement à des impulsions allongées temporellement, et par conséquent moins intéressantes pour générer ensuite le troisième ou le quatrième harmonique du laser infrarouge. Plusieurs solutions existent pour surmonter cette difficulté : on peut utiliser un absorbant saturable inséré dans un miroir de Bragg [Braun 96] pour verrouiller en phase les modes du laser, ou encore s'arranger pour maintenir l'efficacité de conversion à un niveau suffisamment bas [McKinnon 94]. Une autre solution proposée par Roissé *et al.* permet de générer intracavité le deuxième et le troisième

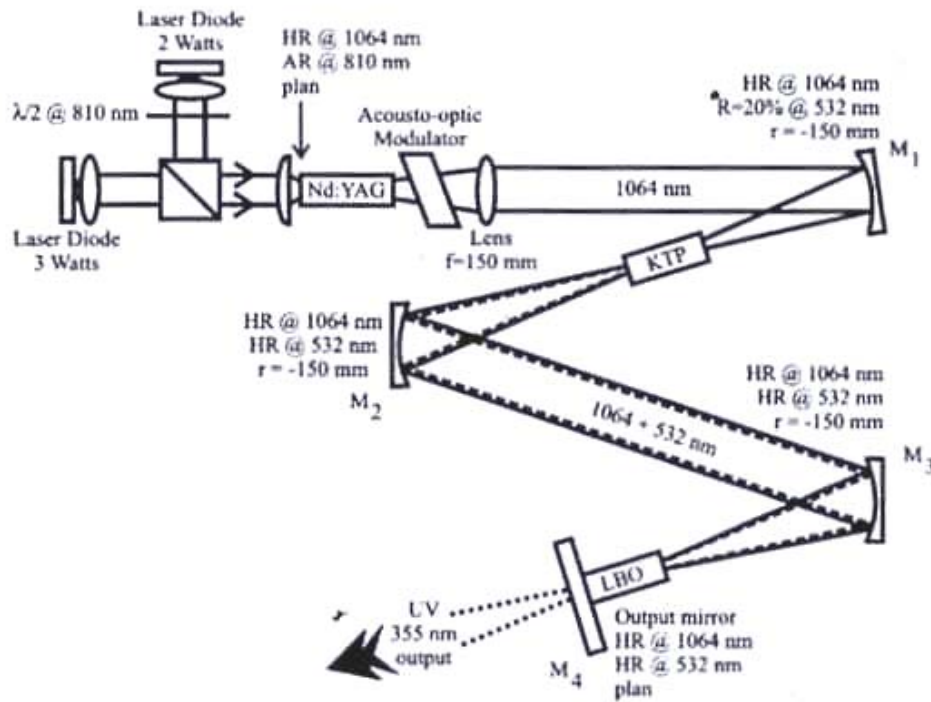


Figure I.7 : Génération de second et de troisième harmonique intracavité ([Roissé 99]).

harmonique d'un laser Nd :YAG [Roissé 99] en utilisant la reconversion du rayonnement doublé en rayonnement infrarouge lors de son deuxième passage dans le cristal de KTP (voir figure I.7). Le rayonnement doublé est ainsi confiné entre le cristal de KTP lui ayant donné naissance et le coupleur de sortie, et ne peut donc pas perturber la stabilité du verrouillage de modes (réalisé ici par un modulateur acousto-optique). Le rayonnement ultraviolet à 355 nm est ensuite obtenu en plaçant un cristal tripleur de LBO juste avant le miroir de sortie.

IV.1.3. Les lasers déclenchés

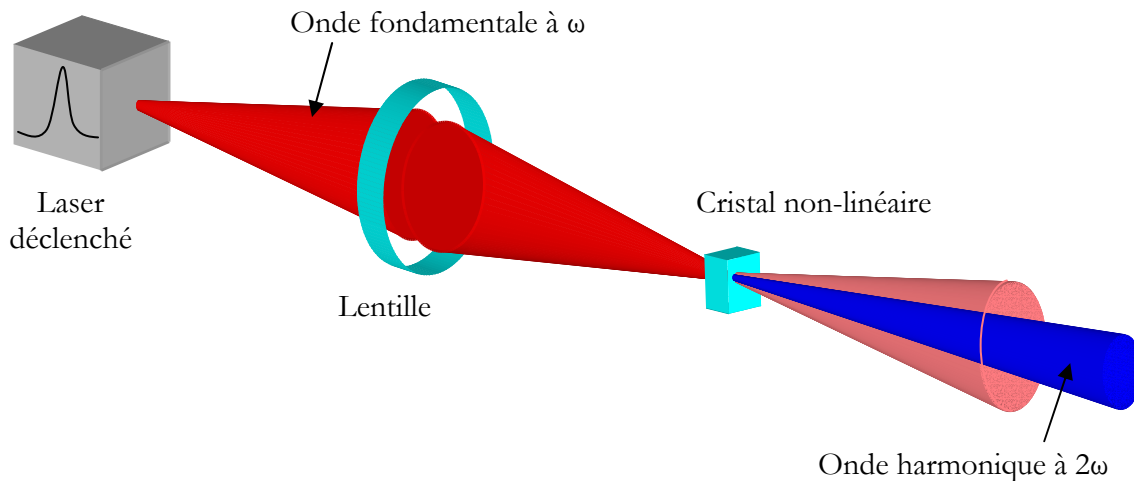


Figure I.8 : schéma de principe de doublement extra-cavité.

Les sources laser déclenchées (« Q-switched » en anglais, pour exprimer la commutation rapide du facteur de qualité Q de la cavité) constituent l'autre grande classe de lasers impulsifs (leur principe de fonctionnement sera également décrit au chapitre II). Un laser déclenché est constitué principalement d'un milieu amplificateur, d'une cavité et d'un dispositif permettant de moduler les pertes, ce dernier pouvant être actif (un modulateur acousto- ou électro-optique par exemple) ou passif (un absorbant saturable). De tels lasers fournissent des impulsions géantes de une à quelques centaines de nanosecondes de durée à des cadences de l'ordre de la dizaine de kilohertz, permettant ainsi d'atteindre des puissances crêtes suffisantes pour réaliser d'efficaces conversions en fréquence [Agnesi 98].

Lorsque le fonctionnement continu ou quasi-continu n'est pas requis, ce type de laser impulsif permet de générer un rayonnement UV de façon bien plus simple que les systèmes précédents, par simple passage dans un cristal non-linéaire sans passer par des cavités externes¹⁹. Les schémas utilisés sont donc ici particulièrement simples [Agnesi 98], puisque la sortie du laser déclenché doit tout simplement être focalisée dans un ou plusieurs cristaux non linéaire : on parle de conversion de fréquence *extracavité* (figure I.8).

Au niveau commercial, de nombreux lasers UV fonctionnent suivant ce principe. Le laser Inazuma[®] de Spectra Physics émettent une puissance de 8W à 355 nm par triplement de fréquence d'un laser Nd:YVO₄. Le Hippo[®] de la même société étend ce domaine à 266 nm (2W) alors que la série Avia[®] de Coherent présente sensiblement les mêmes performances. D'autres cristaux lasers sont également utilisés, tel le vénérable Nd:YAG (Navigator[®] chez Spectra Physics) ou très récemment le Nd:YLF (le Triton[®] toujours chez Spectra Physics) qui produit après triplement un rayonnement à 349 nm (la puissance est de 250 mW à une cadence maximale de 1 kHz).

Au niveau de la recherche « universitaire », on peut noter parmi les résultats les plus récents l'obtention de 3 W à 355 nm et 31 kHz avec un rendement de conversion (ω vers 3ω) de 30 % dans un cristal de CBO [Kitano 03], ainsi que la valeur record de 20 W à 266 nm à 10 kHz avec un rendement de 20 % (2ω vers 4ω) dans un cristal de CLBO [Kojima 00]. On voit à travers

¹⁹ Des dispositifs mixtes (laser déclenché + cavité externe) peuvent cependant être utilisés et augmentent encore le rendement de conversion tout en permettant de travailler avec des faisceaux plus gros et donc de limiter les effets thermiques détériorant habituellement la qualité des faisceaux [Knittel 97][Chang 02]. La longueur physique des impulsions nanosecondes (plusieurs dizaines de centimètres) permet également de ne pas se préoccuper de la longueur de la cavité externe, pour peu que celle-ci soit plus courte que l'étalement spatial de l'impulsion.

ces deux exemples que la recherche autour des lasers UV solides se concentre essentiellement autour de la mise au point de nouveaux cristaux non-linéaires, plus efficaces et surtout plus robustes afin de pouvoir produire une quantité importante de rayonnement sans fracture ou dégradation du faisceau. L'essentiel de cette recherche « matériaux » est regroupée en Asie.

Dans une approche plus compacte, Spiekermann *et al.* ont quadruplé un laser monomode longitudinal amplifié et atteint 485 mW à 20 kHz et à 266 nm avec un rendement de 22% (ω vers 4ω) [Spiekermann 01]. Le cinquième harmonique du Nd:YAG – obtenu par somme de fréquence entre l'onde fondamentale à 1064 nm et le quatrième harmonique à 266 nm – a aussi été généré avec des rendements légèrement inférieurs à 10% (entre ω et 5ω) [Masuda 97][Stamm 97].

Il est dans la famille des lasers déclenchés une catégorie très dynamique et particulièrement intéressante : les microlasers. En effet ces derniers permettent de satisfaire simultanément deux besoins essentiels : le raccourcissement de la durée des impulsions produites d'une part, et la réduction de la dimension des systèmes lasers ainsi que l'augmentation de leur robustesse en vue d'applications « dans la vraie vie », c'est-à-dire hors des laboratoires, d'autre part. Nous allons donc consacrer un paragraphe particulier à ce type de lasers.

Les microlasers

Dans le double but de réduire la durée des impulsions (ce qui permet à la fois d'augmenter la puissance crête et de répondre au cahier des charges imposé par certaines applications - biologiques par exemple - avides d'impulsions courtes) et de réaliser des systèmes toujours plus compacts, il est intéressant de réduire la longueur de la cavité au maximum : on réalise alors ce qu'on appelle un microlaser (ou « microchip laser »). John Zayhowski du Massachusetts Institute of Technology (MIT) de Boston réalise depuis plus de 10 ans [Zayhowski 91a, 91b, 92, 94, 96, 99, 00, 03, et j'en oublie sûrement) des microlasers en accolant un absorbant saturable (typiquement du YAG dopé avec l'ion Cr^{4+}) au matériau laser (Nd:YAG) et en déposant les miroirs de la cavité directement sur les faces des cristaux utilisés (voir figure I.9). Les cavités obtenues sont longues d'environ 1 mm et permettent de générer de façon entièrement passive des impulsions de moins d'une nanoseconde à des fréquences de répétition de quelques kHz.

Avec une telle source (440 ps, 10 kHz et une puissance moyenne de 80 mW), Zayhowski a démontré la génération des harmoniques 2, 3, 4 et 5 avec des rendements de conversion respectifs de 44 ; 3,75 ; 8,75 et 0,125% depuis l'onde fondamentale à 1064 nm [Zayhowski 96].

Des études similaires ont été menées en augmentant la puissance crête initiale par le biais d'amplificateurs. Kliner *et al.* utilisent un microlaser Nd:YAG déclenché passivement amplifié dans une fibre optique dopée Ytterbium. La puissance crête est augmentée d'un facteur 5 par rapport à [Zayhowski 96] et les rendements de conversion sont améliorés en conséquence (50 ; 12 ; 21,5 ; 5,6% pour les harmoniques 2, 3, 4 et 5 respectivement) [Kliner 02]. La taux de répétition des impulsions produites est cependant relativement bas (3,7 kHz). A cadence encore plus réduite (500 Hz), Zayhowski utilise un amplificateur solide pour atteindre des puissances crêtes dans l'infrarouge de 700 kW. Il obtient un rendement de conversion de 50% pour la génération de second harmonique.

De nombreuses applications sont cependant à la recherche de cadences beaucoup plus élevées. Druon *et al* [Druon 99] montrent qu'en augmentant la brillance de la diode laser de pompe il est possible d'augmenter la cadence de répétition pour atteindre 45 kHz. Après amplification des impulsions de 500 ps sont produites avec une puissance moyenne de 500 mW. Le rendement de conversion pour la génération de troisième harmonique est alors de 10%.

Depuis quelques années, un nouveau type de microlaser déclenché passivement s'impose

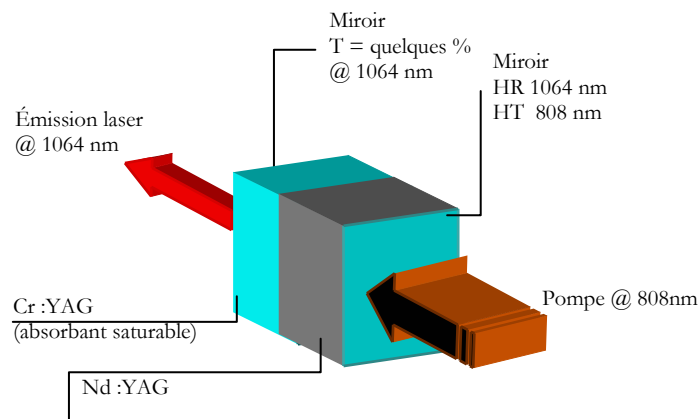


Figure I.9 : Schéma de principe d'un microlaser déclenché passivement.

[Braun 96, 97] dans la mouvance « plus de cadence avec des impulsions plus courtes » : il tire parti de l'apparition des absorbants saturables à semi-conducteurs (ou SESAM pour « SEMiconductor Saturable Absorber Mirrors) [Keller 94,96]. Ces derniers sont constitués d'un miroir de Bragg au dessus duquel on dépose une couche de matériau absorbant saturable (nous reviendrons au chapitre II sur ces dispositifs). Les pertes induites, la réflectivité du miroir de Bragg, l'absorption, bref tous les paramètres physiques du système peuvent être contrôlés au moment de sa fabrication, ce qui permet une grande souplesse d'utilisation : les SESAMs peuvent être utilisés pour réaliser des lasers déclenchés, à modes verrouillés en phase, où fonctionnant dans des régimes intermédiaires. Le SESAM faisant à la fois office de miroir et d'absorbant saturable, le cavités réalisées peuvent être très courtes. Couplés à un milieu amplificateur présentant un fort gain et un temps de fluorescence court comme le Nd:YVO₄ ces dispositifs permettent d'obtenir en régime déclenché des impulsions très brèves (56 ps) et des cadences élevées (85 kHz, et même 1 MHz avec des durées d'impulsions plus longues (500 ps)) [Braun 97]. Les puissances moyennes obtenues sont de l'ordre de quelques dizaines de mW et le faisceau n'est pas limité par la diffraction ($M^2 \approx 2.9$). Bien que très prometteurs car permettant de produire des impulsion

ultracourtes à des cadences très élevées et ce « à la demande » en fonction des applications visées, les microlasers à base de SESAMs n'ont pas été utilisés à ce jour pour générer de longueurs d'ondes visibles ou ultraviolettes.

Comme nous venons de le voir, il existe un nombre important de façons d'obtenir une longueur d'onde ultraviolette donnée, que ce soit en régime continu ou impulsif. Les longueurs d'ondes sont cependant fixées par le matériau laser de départ, souvent dopé avec l'ion Néodyme. De nombreuses applications telles que la spectroscopie atmosphérique par lidar requièrent cependant des sources ultraviolettes à des longueurs d'ondes différentes des classiques harmoniques des lasers dopés Néodyme [Mondelain 01], ou mieux encore largement accordables : en effet, de nombreux constituants atmosphériques (ozone, dioxyde de soufre, toluène...) présentent des bandes d'absorption dans l'ultraviolet (entre 220 nm et 330 nm) : une source accordable permet de détecter facilement et rapidement la présence de ces gaz en faisant continûment varier la longueur d'onde de la source. De la même façon, certaines études de photobiologie (spectroscopie de fluorescence résolue en temps [Couprie 94]) nécessitent des sources ultraviolettes d'impulsions courtes pour sonder l'évolution temporelle de molécules d'intérêt biologique au cours de processus cognitifs par exemple [Gaignet 97] : une source accordable permettra de pouvoir sonder différentes molécules sans changer de laser.

Il existe principalement trois façons de réaliser des lasers accordables dans l'ultraviolet : la première consiste à pomper avec un laser « encore plus » ultraviolet (de longueur d'onde fixe) un cristal laser susceptible d'émettre sur une large bande de fréquence dans l'UV, la deuxième à partir d'une source accordable infrarouge ou visible et de la convertir en fréquence, enfin la troisième à utiliser des effets non-linéaires plus complexes de type génération paramétrique optique ou effet Raman. Nous décrirons ici quelques réalisations basées sur ces trois principes²⁰.

IV.2. Systèmes lasers accordables

IV.2.1. Matériaux laser émettant directement dans l'UV

Le moyen le plus simple conceptuellement pour obtenir un rayonnement laser ultraviolet – sans prendre un rayonnement infrarouge et de le convertir en fréquence²¹ – est d'utiliser un milieu amplificateur ayant directement une transition laser dans le domaine spectral UV. Et de

²⁰ Une revue relativement complète des lasers UV solides accordable ainsi qu'une liste bibliographique étoffée pourra être trouvée dans [Ilev 02].

²¹ En fait nous verrons qu'il est difficile même ici d'éviter cette conversion, puisque la pompe se devant d'être ultraviolette est souvent constituée d'un laser solide infrarouge converti en fréquence...

tels matériaux existent : ce sont les ions terres rares trivalents tels que le Cérium (Ce^{3+}) – essentiellement – le Néodyme (Nd^{3+}), le Praséodyme (Pr^{3+})... Ces ions possèdent des transitions dipolaires électriques permises entre le niveau 4f et le niveau 5d, dont la position exacte dépend beaucoup de la matrice hôte utilisée, mais qui sont très larges spectralement (donc susceptible de fournir un rayonnement accordable) et se trouvent dans la région ultraviolette du spectre (par exemple entre 260 et 500 nm pour l'ion Ce^{3+} pour lequel les recherches les plus avancées ont été effectuées). Il n'est pas question ici de décrire les propriétés spectroscopiques de ces ions ni de faire une revue exhaustive des lasers de ce type développés depuis 25 ans (le lecteur intéressé pourra se reporter à [Joubert 03] ou à l'ouvrage *Ultraviolet spectroscopy and UV lasers* (P. Misra, M.A. Dubinskii eds, Dekker 2002), et en particulier aux chapitres 8 (Sarantopoulou *et al.*), 9 (Moncorgé) et 11 (Liu *et al.*) qui présentent un état de l'art complet des lasers UV à base d'ions trivalents dans des matrices fluorées. Les lasers de ce type présentent l'intérêt d'émettre dans une bande de longueur d'onde relativement étendue, ce qui en fait des sources accordables de premier choix. Le seul inconvénient *a priori* est que la longueur d'onde de pompe doit être très basse – ce qui a conduit à utiliser des lasers excimères [Ehrlich 80] comme pompe lors des premières démonstrations – mais nous avons vu qu'il était maintenant possible de fabriquer des lasers UV puissants par conversion en fréquence de lasers solides. On a représenté sur la figure I.10 les domaines spectraux d'émission et d'absorption des principaux matériaux laser dopés Cérium, ainsi que les longueurs d'onde des lasers de pompe susceptibles d'être utilisés. Nous allons maintenant décrire très brièvement quelques expériences récentes de lasers émettant directement dans l'UV basés sur l'ion Ce^{3+} .

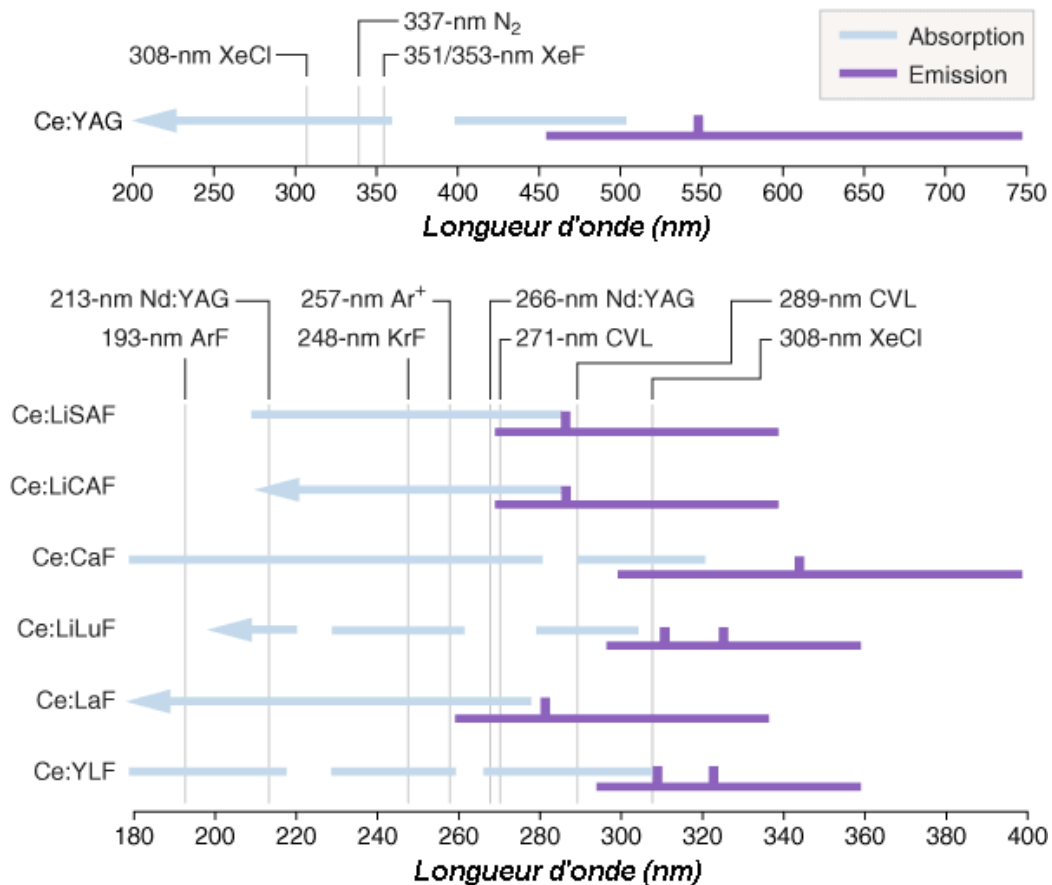


Figure I.10 : Domaines d'émission et d'absorption des principaux matériaux dopés Cerium (tiré de *Laser Focus World* (juin 2003) - D.Coutts et A.McGonigle.

L'ion Cérium a retrouvé depuis une dizaine d'années une seconde jeunesse en tant que matériau laser avec la découverte de nouvelles matrices, le LuLiF_4 ou LuLiF [Dubinskii 92], le LiCaAlF_6 ou LiCAF [Dubinskii 93] et le LiSrAlF_6 ou LiSAF [Pinto 94], permettant de surmonter les difficultés rencontrées précédemment – telles que l'absorption par les centres colorés ou les effets de solarisation. Les lasers $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ et $\text{Ce}:\text{LiSAF}$ couvrent la zone 275-335 nm environ et présentent l'avantage de pouvoir être pompés par les harmoniques d'un laser Néodyme (par exemple pour le $\text{Nd}:\text{YAG}$ le rayonnement à 4ω soit 266 nm ou à 5ω soit 213 nm).

Bien que le pompage « tout solide » soit à la mode, certaines expériences préfèrent utiliser un laser à vapeur de cuivre pour pomper les cristaux de $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ [McGonigle 99a] ou LiSAF [McGonigle 01]. Ce laser de pompe permet d'avoir une source impulsionnelle (la durée des impulsions est de 8 ns) de haute cadence (7 kHz) et puissante (2 W de puissance moyenne) à 271 nm²². En utilisant un cristal de $\text{Ce}:\text{LiCAF}$ une accordabilité entre 280 et 315 nm est obtenue, avec une puissance moyenne de 450 mW correspondant à un rapport entre la puissance laser et la puissance de pompe de 22 %. Un dispositif très semblable mais avec un cristal de $\text{Ce}:\text{LiSAF}$ (figure I.11) est utilisé par le même équipe : l'accordabilité obtenue est plus faible (285-295 nm) et

²² Cette longueur d'onde est obtenue par somme de fréquence des deux raies du laser à vapeur de cuivre (510,6 nm et 578,2 nm).

l'efficacité moindre (13 %). Enfin des études sur le cristal de Ce :LuLiF ont également été menées par la même équipe [McGonigle 99b].

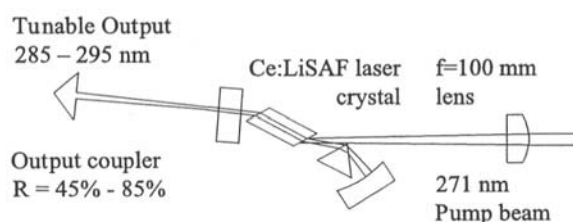


Figure I.11 : laser Ce :LiSAF pompé par un laser à vapeur de cuivre [McGonigle 01]. Le pompage se fait de façon « quasi-longitudinale » seulement du fait de la difficulté à réaliser des miroirs dichroïques HR 290 nm HT 271 nm.

Parmi les études utilisant comme source de pompage un laser Nd :YAG quadruplé en fréquence, Petersen [Petersen 97] de la société Spectra-Physics obtient un rendement global de l'infrarouge vers l'UV de 4,9 % : un laser Nd :YVO₄ impulsionnel (7,2 W, 20 kHz, 10 ns) quadruplé en fréquence pompe un cristal de Ce :LiCAF pour produire une puissance de 350 mW de rayonnement ultraviolet entre 289 et 312 nm. Il étend le système à la bande spectrale 228-240 nm en sommant la sortie de ce laser UV avec le rayonnement fondamental à 1064 nm qui n'a pas été converti en fréquence (le rendement global de 1064 nm à 230 nm est de 0,7 %). Un rendement un peu meilleur (6 % depuis 1064 nm jusqu'à la sortie du laser Ce :LiCAF) et une plage d'accordabilité légèrement plus étendue (280-315 nm) sont obtenus par Govorkov [Govorkov 98] avec un système équivalent mais à cadence réduite (1 kHz). Le Ce :LiCAF peut également être utilisé comme amplificateur et donner ainsi naissance à des systèmes de type MOPA (Master Oscillator Power Amplifier) comme celui présenté par Liu *et al.* [Liu 97].

Le cristal de Ce :LiLuF₄ a été lui aussi beaucoup étudié, mais son profil spectral d'absorption s'adapte mal au pompage par laser solide : il présente deux pics à 245 nm (ce qui correspond bien à la longueur d'onde émise par le laser excimère KrF, 248 nm) et 296 nm, mais aucun autour de 266 nm (voir figure I.10) : il ne peut donc pas être pompé par le quatrième harmonique d'un laser à matrice dopée Néodyme. Il existe cependant une absorption suffisante à 213 nm (même s'il ne s'agit pas d'un pic) pour que l'on puisse envisager un pompage par le cinquième harmonique d'un laser Nd :YAG ou Nd :YVO₄ : l'efficacité de conversion plus faible rend néanmoins cette solution non optimale. On peut également utiliser le pic d'absorption à 296 nm pour réaliser un laser tout solide : nous venons de voir que le laser Ce :LiCAF émet justement dans cette zone et peut lui être pompé par le quatrième harmonique d'un laser Néodyme. C'est ce que démontrent Rambaldi *et al.* [Rambaldi 98] en mettant en œuvre la cascade suivante : un laser Nd :YAG quadruplé pompe un laser Ce :LiCAF, qui lui-même pompe un laser Ce :LiLuF₄. L'émission laser est obtenue autour des deux pics d'émission de ce dernier (307,5-313,5 nm et 324-328,5 nm).

Il est clair que cette famille de cristaux constitue une façon élégante et efficace de réaliser un laser ultraviolet accordable. Cependant son étude en est encore à un stade de recherche assez amont, et les cadences obtenues sont relativement faibles : nous allons maintenant décrire une autre solution permettant d'atteindre l'accordabilité dans l'UV.

IV.2.2. Génération des harmoniques du rayonnement de lasers accordables

La façon la plus courante et la plus pratique de réaliser une source accordable dans l'ultraviolet est de tirer parti des bandes de gain exceptionnellement larges de certains cristaux dans l'infrarouge cette fois, en particulier – mais pas seulement – le Saphir dopé au Titane²³.

A. Le laser Saphir dopé au Titane

Depuis sa découverte [Moulton 86], l'ion de titane inséré dans une matrice de saphir ($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ ou plus simplement $\text{Ti}:\text{Sa}$) est le maître incontesté des cristaux pour lasers solides accordables en longueur d'onde [Steele 91]. Les plages d'absorption et d'émission du $\text{Ti}:\text{Sa}$ sont indiquées sur la I.12 ci-contre. On peut noter ici que la plage d'absorption du laser saphir dopé au titane se trouve essentiellement dans la partie bleue-verte du spectre électromagnétique, avec un pic autour de 500 nm, domaine de longueurs d'onde où il n'existe pas de diodes laser. Les concepteurs de lasers $\text{Ti}:\text{Sa}$ se voient donc obligés d'utiliser comme pompe des lasers auxiliaires (à Argon ou solides dopés néodyme puis doublés en fréquence) : la complexité, le rendement électrique-optique et l'encombrement souffrent de cette situation. Le laser saphir dopé au titane permet de générer un rayonnement infrarouge sur plus de 300 nm (de 680 nm à 1060 nm environ en utilisant plusieurs jeux de miroirs) et – même si ce n'est pas le sujet qui nous intéresse ici²⁴ – de produire des impulsions ultra-brèves (quelques femtosecondes). La plage d'émission du laser $\text{Ti}:\text{Sa}$ permet d'envisager par doublement et/ou triplement de fréquence d'obtenir une large accordabilité dans l'ultraviolet.

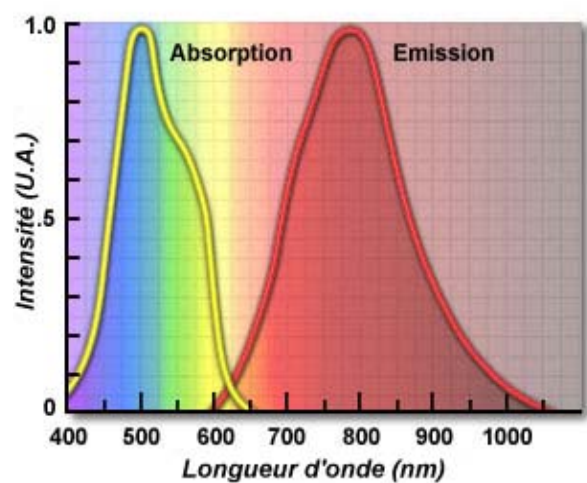


Figure I.12 : spectre d'absorption et d'émission typique d'un laser $\text{Ti}:\text{Sa}$.

Nous allons maintenant passer en revue quelques exemples de lasers accordables dans l'ultraviolet obtenus en régime continu ou impulsif à partir de lasers $\text{Ti}:\text{Sa}$.

²³ Le mot Saphir vient de l'hébreu « Sappir », signifiant « la chose la plus belle » - définition à laquelle nombre de laseristes peuvent souscrire - ou du grec « sappheiros », signifiant plus prosaïquement « pierre bleue ». Il est à noter que le saphir n'apparaît bleu que par la présence de petites quantités de fer et de titane susceptibles de se substituer à l'aluminium dans sa composition : si le titane est absent par exemple, on obtient un magnifique saphir jaune.

²⁴ Il existe cependant des expériences utilisant des lasers $\text{Ti}:\text{Sa}$ fonctionnant en régime dit « femtoseconde » pour générer un rayonnement ultraviolet accordable [Seifert 94][Chen 02]. Il s'agit cependant d'un domaine de fonctionnement trop différent pour être abordé dans cet état de l'art.

En régime continu

Un certain nombre d'études [Zhou 96] [Bourzeix 97] [Wang 98, 99] utilisent un laser Ti:Sa continu à longueur d'onde fixe pour générer de façon efficace un rayonnement ultraviolet par génération de second harmonique intracavité (400 nm), de second (410 nm) puis quatrième (205 nm) harmonique dans des cavités résonantes externes et par doublement (390 nm) dans un cristal de ppKTP respectivement. Le but de ces systèmes est de permettre, en choisissant la longueur d'onde de départ dans le large spectre infrarouge du Ti :Sa, d'obtenir une longueur d'onde définie dans l'UV pour des applications métrologiques nécessitant des longueurs d'ondes bien précises et différentes de celles classiquement accessibles par les lasers à gaz ou les harmoniques des lasers dopés néodyme.

Il est également possible d'utiliser toute une plage d'émission du laser Ti :Sa pour obtenir une accordabilité continue dans l'UV : Adams et Ferguson ont ainsi réalisé une source largement accordable (360 à 400 nm) par doublement de fréquence dans une cavité résonante externe d'un laser Ti :Sa en anneau [Adams 92]. Pour atteindre des longueurs d'ondes plus basses, Sayama *et al.* [Sayama 97] génèrent le troisième harmonique d'un laser Ti :Sa à 252 nm (correspondant à la longueur d'onde d'une transition du Silicium, utile pour les expériences de refroidissement par laser des atomes de silicium) : l'onde fondamentale et l'onde doublée (créée dans une cavité résonante externe via un cristal de LBO) sont envoyées dans un cristal de BBO pour générer par simple passage le troisième harmonique du Ti :Sa. L'accordabilité (de 252 à 267 nm) est obtenue en faisant varier la longueur d'onde du laser et en tournant en conséquence les cristaux de LBO et de BBO pour maintenir l'accord de phase. Le processus de triplement par simple passage en continu est très peu efficace, et les puissances générées sont donc extrêmement faibles (8 nW à 252 nm). L'accordabilité est quant à elle limitée par le laser Ti :Sa utilisé (qui émet pour cette expérience de 740 nm à 810 nm seulement, en raison du jeu de miroirs utilisé).

Comme on l'a déjà noté précédemment, la production de rayonnement continu à basse longueur d'onde se heurte à la redoutablement faible efficacité des processus de conversion non-linéaires à basse puissance crête. Une solution simple pour augmenter les rendements de conversion consiste - comme déjà vu avec les lasers Néodyme - à faire fonctionner le laser « fondamental » en régime impulsif.

En régime impulsif

La première idée consiste là encore à synchroniser les modes du laser Ti :Sa pour le faire fonctionner en régime de verrouillage de modes : on obtient ainsi des impulsions très courtes (de quelques picosecondes à quelques femtosecondes) à une cadence élevée (plusieurs dizaines de MHz). Cette configuration a été étudiée très tôt après la mise au point des premiers lasers Ti :Sa à modes verrouillés en phase [Curley 91] : des impulsions de 1,6 ps à une cadence de 122 MHz sont doublées (couvrant ainsi une plage allant de 370 à 410 nm) dans une cavité externe avec un rendement maximal de 34% (ω vers 2ω) dans un cristal de LiIO_3 . L'usage d'une cavité externe soulevant comme toujours des objections liées à la complexité du système à mettre en œuvre, une expérience comparable mais bien plus simple (la cadence des impulsions est diminuée – 82 MHz – ce qui permet d'avoir une puissance crête suffisante pour se passer de cavité externe) est décrite quelques mois plus tard [Nebel 91]. Le rendement obtenu pour la génération de second harmonique est excellent (autour de 30 %) et permet de générer plus de 100 mW de puissance moyenne entre 260 et 280 nm (3ω) et environ 10 mW entre 205 et 215 nm (4ω).

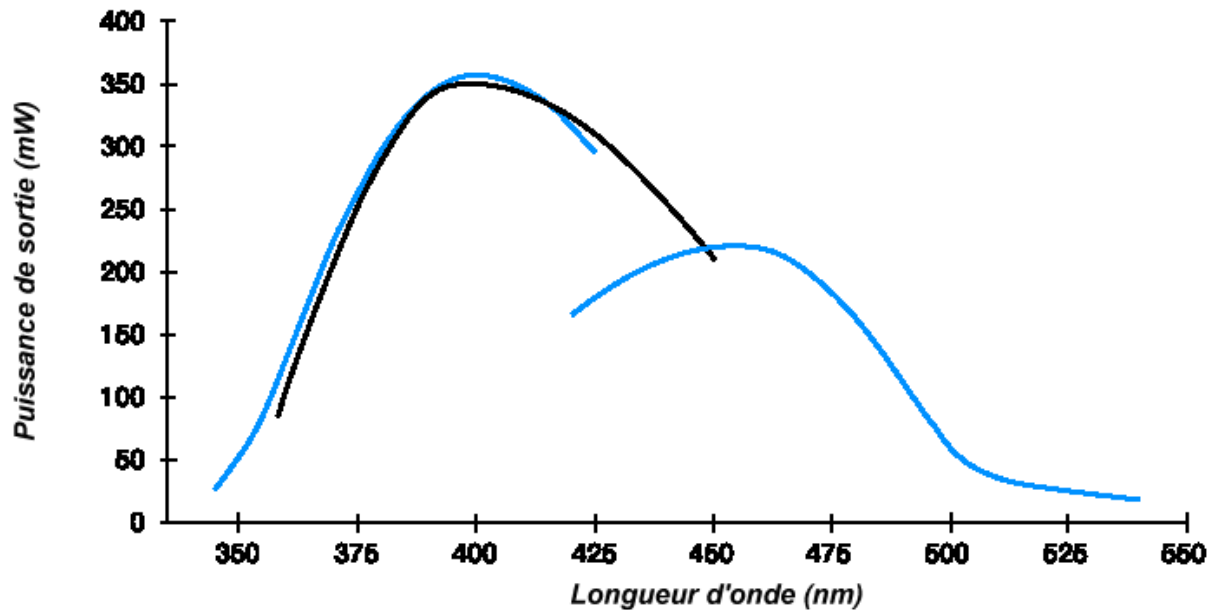


Figure I.13: gammes spectrales de fonctionnement - avec trois jeux de miroirs différents pour le laser « fondamental » - des lasers Ti :Sa (Tsunami® de Spectra Physics, d'après leur documentation commerciale).

Les lasers Ti:Sa commerciaux verrouillés en phase utilisent ensuite le doublage extracavité pour produire des impulsions de quelques picosecondes à une cadence de 80 MHz (voir les performances dans l'UV et le visible des laser Ti :Sa de Spectra Physics sur la figure I.13)

Une autre approche permettant de rendre un laser Ti :Sa impulsionnel est de le pomper avec un laser lui-même impulsionnel, et d'opérer en régime de commutation par le gain. Comme la bande d'absorption du titane se trouve dans la région verte du spectre électromagnétique (voir figure I.12), le laser Nd :YAG doublé (532 nm) est une source de pompage de choix, ce qui est une bonne nouvelle dans notre cas puisqu'on sait très bien rendre impulsionnel une telle source (par commutation des pertes - ou « Q-switching » - par exemple). On peut ainsi facilement réaliser des impulsions « vertes » de quelques nanosecondes de durée à une cadence de quelques kilohertz, ce qui représente un facteur de gain en puissance crête de plusieurs milliers voire de plusieurs millions. En effet deux régimes de fonctionnement distincts peuvent être mis en œuvre pour rendre le laser Nd :YAG de pompe impulsionnel : le régime basse cadence (quelques Hz) et le régime haute cadence (quelques kHz). Comme la durée des impulsions reste globalement du même ordre de grandeur dans les deux cas, il apparaît clairement que les lasers basse cadence vont permettre d'atteindre des puissance crêtes mille fois plus importantes. Avec un laser de pompe fonctionnant à 25 Hz et produisant des impulsions d'énergie supérieure à 100 mJ, un rendement de conversion (ω vers 2ω) de 30 % est rapporté, correspondant à un rendement global (pompe à 532 nm vers 2ω) de 7 % [Shripko 91] (voir figure I.14).

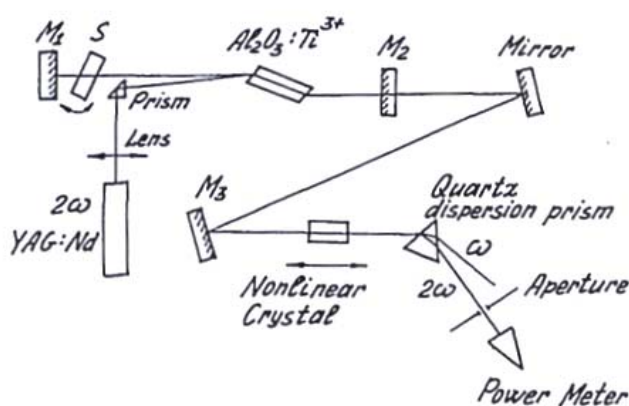


Figure I.14 : laser Ti :Sa pompé par laser Nd :YAG impulsionnel et doublé par simple passage dans un cristal de LiB_3O_5 [Shripko 91].

Encore plus puissant est le dispositif décrit par Kachynski *et al.* [Kachynski 03] qui couple un laser Nd:YAG basse cadence (10 Hz, 9 ns, 300 mJ) pour pomper un laser Ti:Sa et un amplificateur pour obtenir finalement des impulsions de 100 mJ entre 685 et 960 nm (cette large accordabilité étant obtenue avec trois jeux de miroirs de réflexion spectrale adaptée). Avec un tel monstre (la puissance crête atteint alors 11 MW) des rendements de conversion de 45 % (ω vers 2ω), 9 % (ω vers 3ω) et 3 % (ω vers 4ω) ont été rapportés, correspondant à des domaines spectraux très étendus (345 – 480 nm, 230 – 320 nm et 188,5 – 240 nm respectivement).

Dans le domaine multi-kilohertz, les puissances crêtes sont encore trop faibles pour obtenir des rendements intéressants en simple passage [Huang 01], si bien qu'on a généralement recours au doublement [Poirier 93] voire au triplement [Mohamed 02] de fréquence *intracavité*.

Toutes ces méthodes permettent à partir de laser Ti :Sa de couvrir l'ensemble du spectre ultraviolet avec des rendements intéressants et une large gamme de durée d'impulsion (quelques picosecondes pour les lasers à verrouillage de modes, quelques nanosecondes pour les lasers pompés de façon impulsionnelle) et de cadence (plusieurs dizaines de mégahertz dans le premier cas, moins de 100 kHz dans le second).

Cependant, comme nous l'avons déjà vu, le laser Titane Saphir a - quand même - un point faible... En effet il doit être pompé dans le vert, le plus souvent par un laser Nd :YAG doublé, parois par un laser Argon, mais jamais directement par diodes : il n'existe pas de diode verte assez puissante. La conséquence pour les lasers Ti :Sa de ce « trou spectral » dans la technologie des lasers à semi-conducteurs est un encombrement trop important et un rendement électrique-optique trop bas. Bien sûr, un laser Ti :Sa peut être qualifié de « pompé par diode » lorsqu'il est pompé par un laser Nd :YAG lui-même pompé par diode, mais cet étage supplémentaire est un poids mort important pour de nombreuses applications. Comme pour les lasers à gaz ou les lasers à colorants des alternatives au Ti :Sa ont donc été développées afin de pouvoir bénéficier du pompage direct par diode laser.

B. Le laser « Chrome LiSAF »

L'ion chrome Cr^{3+} inséré dans une matrice de LiSrAlF_6 (Cr:LiSAF [Payne 89]) présente des qualités intéressantes pour être une alternative au laser Ti:Sa afin de générer un rayonnement accordable dans l'UV. Le Cr:LiSAF présente une accordabilité entre 820 nm à 880 nm et son pic d'absorption se trouve dans la zone rouge du spectre (vers 670 nm) où des diodes lasers relativement puissantes existent (InGaAlP). Balembois *et al.* ont réalisé une source basée sur un oscillateur Cr:LiSAF à verrouillage de modes (100 MHz, 80 ps) – voir figure I.15 – [Balembois 97a]. La puissance de sortie de cet oscillateur étant très faible (2 W en puissance crête), un amplificateur régénératif est utilisé pour atteindre une puissance crête de 50 kW (la cadence se trouve réduite à 10 kHz). Les étages de conversion de fréquence sont classiques : des cristaux de LBO sont utilisés pour le doublement et le triplement de fréquence et conduisent à un rendement de 3 % (ω vers 3ω) et à une plage d'accordabilité s'étendant de 274 à 290 nm. Il est cependant à noter que l'amplification ne peut être faite dans un cristal de Cr:LiSAF²⁵ car le gain petit signal dans ce cristal est très faible [Balembois 97b] : elle est donc réalisée via un amplificateur régénératif Ti:Sa, ce qui ramène le défaut précédent (pompage par un laser Nd doublé) sur le devant de la scène...

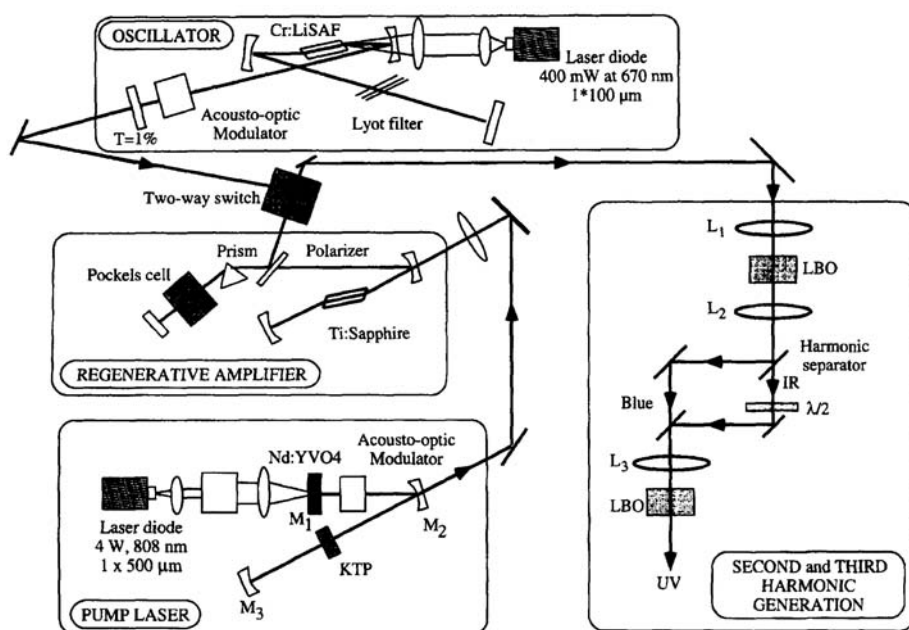


Figure I.15 : système laser Cr:LiSAF amplifié puis triplé en fréquence [Balembois 97a].

L'utilisation d'un laser accordable dans le proche infrarouge doublé en fréquence permet de générer de façon assez directe un rayonnement ultraviolet accordable. Cependant de tels systèmes sont de façon générale assez complexes : les laser Ti:Sa nécessitent un laser de pompe auxiliaire, tandis que les diodes rouges pour pomper les lasers Cr:LiSAF ne sont pas encore assez

²⁵ Très récemment, un amplificateur régénératif à base de Cr:LiSAF a été démontré avec une énergie par impulsion de 100 μJ et une cadence de 10 kHz [Mans 03] : tout espoir n'est donc pas perdu...

puissantes. De plus les accordabilités finalement obtenues sont évidemment réduites d'un facteur 2 entre l'infrarouge et l'UV du fait de la conversion de fréquence...

Nous allons maintenant passer à une troisième façon de générer un rayonnement accordable : il ne s'agit plus ici d'utiliser un laser agile en longueur d'onde dans l'ultraviolet ou l'infrarouge comme dans les deux cas précédents, mais de partir de sources à longueur d'onde fixe et de tirer parti des phénomènes non-linéaires à notre disposition pour obtenir l'accordabilité.

IV.2.3. Utilisation d'effets non linéaires

A. Génération Paramétrique Optique et Oscillation Paramétrique Optique

Quittons donc pour quelques temps le domaine des lasers accordables « purs » pour nous intéresser aux processus non-linéaires permettant de réaliser des sources globalement accordables à partir de lasers à longueurs d'onde fixes. Au premier rang de ces processus figure la Génération Paramétrique Optique (GPO) et son extension aux cavités résonantes l'Oscillateur Paramétrique Optique ou OPO. Nous donnerons quelques éléments très simples de théorie concernant la GPO au chapitre IV (ce processus sera utilisé par notre source laser), mais ne développerons pas ici la théorie générale des OPO [Giordmaine 65][Victori 01], le sujet étant trop vaste pour être traité en quelques lignes.

Les OPO permettent par rotation du cristal non-linéaire utilisé et/ou balayage de sa température de choisir l'accord de phase, c'est-à-dire de choisir la longueur d'onde de l'onde signal une fois fixée la longueur d'onde de pompe. L'accordabilité peut être extrêmement large, dépendant essentiellement de la longueur d'onde de pompe et des cristaux utilisés (zone de transparence et domaine de longueur d'onde où il existe un accord de phase pour une longueur d'onde de pompe fixée).

Pour réaliser un OPO accordable dans une plage de longueurs d'onde donnée, il est nécessaire de le pomper avec une onde de longueur d'onde plus courte: la loi de conservation de l'énergie impose en effet $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c$, où l'onde pompe (correspondant à l'onde incidente sur le cristal) est référencée par l'indice p et les deux ondes générées sont appelées signal (indice s) et complémentaire (indice c) avec par convention $\omega_s \geq \omega_c$. La conséquence directe de cet état de fait est qu'un OPO ultraviolet se doit d'être pompé par un laser « encore plus ultraviolet », c'est-à-dire de longueur d'onde plus courte. On voit immédiatement le problème posé puisque on s'est aperçu que les lasers UV puissants sont rares, en particulier si on décide de se passer des encombrants lasers à excimères. A cela s'ajoute la rareté et la faible efficacité des cristaux non-linéaires susceptibles d'être utilisés en dessous de 350 nm. La voie la plus souvent suivie consiste donc à réaliser un OPO efficace dans le proche infrarouge puis à le doubler en fréquence (intracavité pour augmenter l'efficacité de conversion). C'est la démarche suivie par exemple par Marshall *et al.* [Marshall 93] : un OPO basé sur un cristal de KDP pompé par le second harmonique d'un laser Nd :YAG déclenché (45 mJ, 10 ns) permet une accordabilité entre 760 et 1040 nm. Un cristal de BBO est inséré dans la cavité pour réaliser le doublement (figure I.16). Sa sensibilité angulaire est suffisante pour couvrir la zone 680-1100 nm et il est donc bien adapté pour obtenir des accordabilités ultra-larges. La zone de longueurs d'onde couverte va de l'UV proche au visible (380 nm à 520 nm) avec un rendement de conversion de l'infrarouge vers l'ultraviolet d'environ 5%.

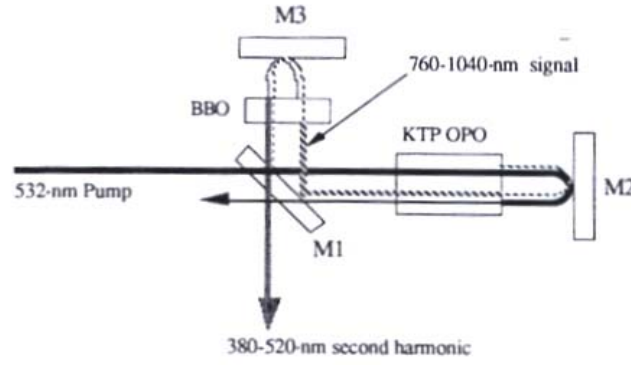


Figure I.16 : OPO (cristal de KTP) doublé intracavité dans un cristal de BBO [Marshall 93].

Pour atteindre des longueurs d'ondes plus basses, l'idée la plus simple à mettre en œuvre est de pomper le même genre d'OPO avec le troisième harmonique d'un laser Nd:YAG [Haub 93]. Une telle configuration engendre cependant une diminution de la puissance de pompe (la génération de troisième harmonique est moins efficace que la génération du second) et oblige à se priver du cristal de KTP, pourtant plus efficace que son collègue le BBO mais opaque à 355 nm. Fix *et al.* proposent d'utiliser la somme de fréquence pour abaisser la longueur d'onde d'un OPO pompé par un laser Nd:YAG doublé (400 mJ, 6,5 ns, 10 Hz) [Fix 98, 02] : un tel OPO (utilisant un cristal de KTP) produit un rayonnement accordable entre 700 et 830 nm (limité par les traitements utilisés pour les miroirs), lequel peut être sommé intracavité avec une partie du signal de pompe à 532 nm (figure I.17a). L'accordabilité résultante s'étend continûment de 302 à 324 nm avec un rendement de l'infrarouge vers l'UV de 5%. Suivant la même idée, ils utilisent le même OPO mais mélangent son rayonnement accordable (toujours de 700 à 830 nm, pompé par le même laser doublé à 532 nm) avec le troisième harmonique du laser Nd:YAG de pompe afin d'obtenir une accordabilité de 234 à 250 nm et un rendement de 3% (figure I.17b).

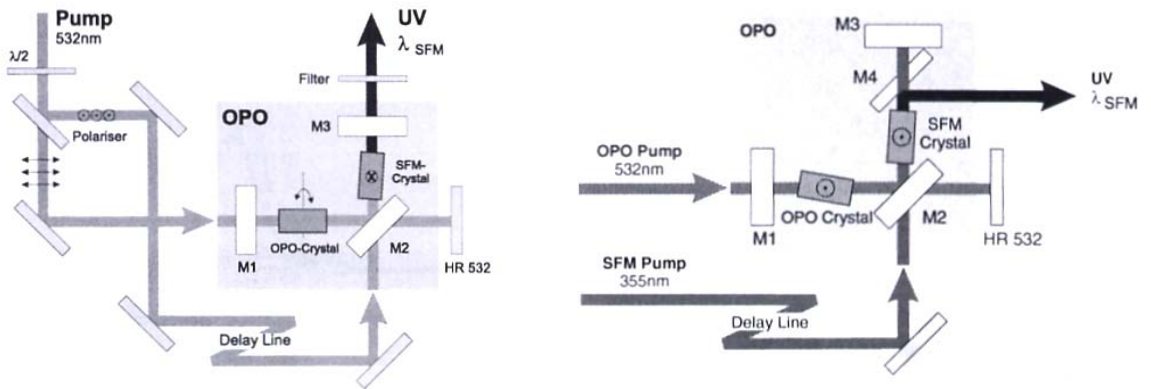


Figure I.17 : Configuration d'OPO avec somme de fréquence intracavité (a) $\omega_{\text{OPO}} + 2\omega_{\text{YAG}}$ (b) : $\omega_{\text{OPO}} + 3\omega_{\text{YAG}}$.

Enfin des progrès sont attendus en termes de rendement grâce à l'utilisation de matériaux à quasi-accord de phase comme milieu non-linéaire pour les OPO infrarouges [Baxter 00].

L'OPO s'annonce donc, de part sa large accordabilité et son rendement de conversion très convenable, comme un candidat de choix pour quiconque cherche à réaliser des sources accordables (quelque soit la longueur d'onde, et en particulier dans l'UV pour rester dans le domaine qui nous intéresse). Il y'a cependant un point capital à noter : tous les OPO présentés ici fonctionnent en régime nanoseconde (la durée des impulsions de pompe est de l'ordre de 10 ns – pour fixer les idées), c'est-à-dire que chaque impulsion à une étendue physique de 3 mètres. Cette étendue étant bien plus grande que la taille de la cavité résonante utilisée, les photons signal ont le temps d'effectuer un grand nombre d'allers-retours dans le résonateur pendant le passage de l'impulsion de pompe, ce qui permet d'obtenir une bonne efficacité et des profils spatiaux corrects. Lorsqu'on veut passer en régime picoseconde (disons moins de 100 ps), on constate que les impulsions ne s'étendent maintenant plus que sur 3 cm, ce qui est en général plus court que la longueur de la cavité. La conséquence est immédiate : si on veut une efficacité maximale, il faut que l'onde signal générée rencontre une onde pompe à chaque fois qu'elle passe dans le cristal non-linéaire, autrement dit il faut synchroniser la pompe et le signal... Cela donne lieu à des systèmes plus complexes (notamment au niveau électronique) et rend les OPO picosecondes bien plus délicats à réaliser que leurs acolytes nanosecondes [Byer 93][Bosenberg 95].

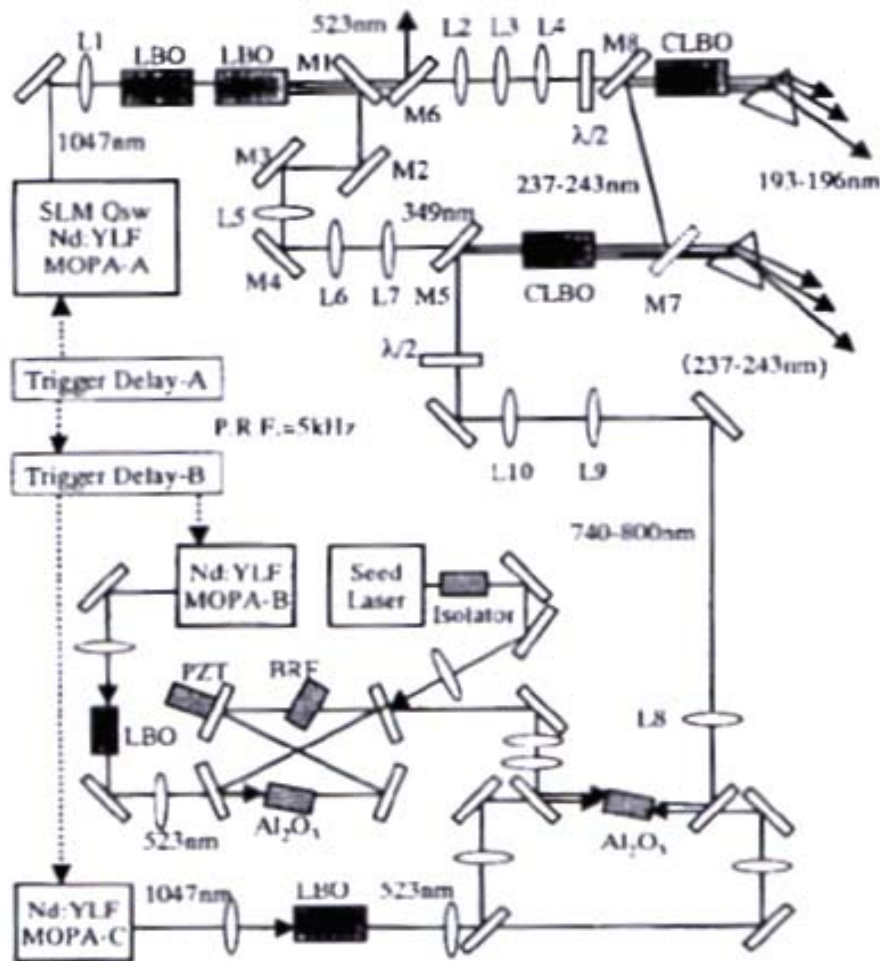
B. Mélange de fréquence

Je regrouperai sous ce qualificatif les sources laser présentant des scénarii d'accord de phase originaux, en particulier utilisant des mélanges de fréquences entre deux sources dont l'une au moins est accordable. Un exemple est donné par Mirov [Mirov 01] qui somme dans un cristal de CLBO un laser Alexandrite et un laser à centres colorés $\text{LiF}:\text{F}_2^{+*}$ [Yu 98]. Plus précisément, il utilise une partie du faisceau d'un laser Alexandrite (accordable de 720 à 800 nm, 25 Hz, 80 ns, 80 mJ) pour pomper un laser $\text{LiF}:\text{F}_2^{+*}$ (accordable de 800 à 1200 nm) tandis que le reste est triplé en fréquence. Ce rayonnement triplé (autour de 250 nm) et la sortie du laser $\text{LiF}:\text{F}_2^{+*}$ sont envoyés dans un cristal de CLBO pour réaliser la somme de ces deux fréquences selon le schéma ($1/250 + 1/1030 = 1/201$). Une accordabilité de quelques nanomètres est obtenue autour de 200 nm. Le rendement global (depuis le laser Alexandrite jusqu'au rayonnement UV) n'est pas précisé mais doit être au mieux de quelques pourcents.

Une autre structure, un peu plus « classique », consiste à sommer les fréquences d'un laser Nd:YAG doublé (532 nm) et d'un laser Ti:Sa (≈ 760 nm) pour arriver à une longueur d'onde résultante autour de 313 nm ($1/532 + 1/760 = 1/313$) [Schnitzler 02]. Les lasers utilisés ici étant continus, il est fait appel à la désormais classique cavité résonante (et même doublement résonante à 532 et 760 nm) externe pour augmenter le rendement de conversion (1% entre la puissance de la fréquence somme et la somme des puissances des deux lasers). La même architecture est utilisée avec une diode laser à cavité étendue (accordable sur 6 nm) en remplacement du Ti:Sa : le rendement de conversion diminue malgré l'utilisation d'un laser Nd:YAG trois fois plus puissant, mais le système gagne en simplicité et en compacité. Enfin, et même si on sort alors du cadre consacré aux lasers solides, on peut aussi mentionner que le mélange dans une cavité externe a également été réalisé avec un laser à Argon et un laser à colorant (LD 700) rouge selon l'égalité $1/363,8 + 1/731 = 1/243$, permettant de couvrir la bande spectrale de 243 à 247 nm [Couillaud 84].

Dans le même style, on peut également mélanger un laser Ti:Sa avec le troisième harmonique cette fois d'un laser Néodyme. Finch *et al.* utilisent deux laser Nd:YLF déclenchés et amplifiés, l'un des deux après doublement de fréquence sert à pomper un laser Ti:Sa tandis que l'autre est triplé. Le faisceau issu du titane saphir (740-800 nm) et celui provenant du laser Nd:YLF triplé (349 nm) sont envoyés dans un cristal de CLBO et produisent par somme de fréquence un rayonnement accordable entre 237 et 243 nm [Finch 99]. Cette configuration

possède un prolongement vers les très fortes puissances [Sakuma 00]: la même équipe, ne reculant devant rien (voir figure I.18), utilise trois lasers Nd:YLF, chacun étant suivi d'un amplificateur pompé par diode avec des puissances de 80, 120 et 200 W respectivement. Le moins puissant des 3 sert après doublage à pomper un laser Ti:Sa, lequel est ensuite amplifié dans un autre cristal de Ti:Sa pompé par le deuxième laser Nd:YLF (également doublé) pour produire un rayonnement puissant (7 W, 14 ns, 5 kHz) autour de 760 nm. Le troisième laser Nd:YLF amplifié produit 38 W à 1047 nm. Il est triplé en fréquence avec un rendement record de 42 % (ω vers 3ω). Ce troisième harmonique est ensuite sommé avec le laser Ti:Sa dans un cristal de CLBO pour produire plus de 3W entre 237 et 243 nm. Enfin (ouf...), ce rayonnement est envoyé avec le reste du faisceau fondamental (1047 nm) provenant du troisième laser Nd:YLF dans un autre cristal de CLBO pour générer des longueurs d'onde comprises entre 193 et 196 nm (1,5 W)...



fondamentale d'un laser Nd:YAG (laser Nd:YAG dont le quatrième harmonique sert par ailleurs de pompe au laser Ce:LiCAF) [Pinto 97].

Enfin, des mélange de fréquences originaux sont réalisés au sein même de certains cristaux lasers : ainsi on peut observer de « l'auto-somme de fréquence » comme on observe parfois de « l'autodoublement » [Lucas-Leclin 00]. Par exemple un cristal de Nd:GdAl₃(BO₃)₄ (NGAB) pompé à 588 nm par un laser à colorant émet vers 1062 nm : on observe alors une émission entre 378 et 382 nm correspondant à la somme de fréquence entre la longueur d'onde laser et la longueur d'onde de pompe. Le rendement entre la pompe et le rayonnement ultraviolet est de 1,6 % [Brenier 00].

Les rendements de conversion obtenus avec l'ensemble de ces scénarii de mélange de fréquence sont souvent très faibles, et quand ce n'est pas le cas les structures utilisées sont globalement complexes. Ces architectures illustrent cependant bien la diversité des processus que l'on peut mettre en œuvre pour atteindre une longueur d'onde ultraviolette donnée.

C. Effet Raman

Une possibilité intéressante pour générer des longueurs d'ondes différentes des harmoniques du néodyme consiste à tirer parti du décalage Raman dans différents matériaux.

Il est par exemple possible [Papayannis 98] d'utiliser un laser Nd:YAG triplé de façon « classique » pour générer par effet Raman stimulé des longueurs d'ondes à 416 nm (raie Stokes 1), 503 nm (raie Stokes 2), 309 nm (raie Anti-Stokes 1) et 274 nm (raie Anti-Stokes 2) dans une cuve d'hydrogène ou de deutérium (dans ce dernier cas les longueurs d'ondes sont 450, 397, 321 et 293 nm). Les rendements atteignent 18 % pour les raies Stokes et 5 % pour les raies Anti-Stokes. Il est également possible de coupler effet Raman et génération d'harmonique classique pour atteindre des longueurs d'onde inhabituelles : par exemple, toujours en partant d'un laser Nd:YAG, on peut effectuer la série d'opérations suivantes [Barnes 99] : doublement par un cristal de KTP (532 nm) puis décalage Raman dans une cellule d'azote (607 nm) et à nouveau doublement par un cristal de BBO pour atteindre 304 nm. L'efficacité globale du système avoisine les 4 % (depuis l'infrarouge vers l'UV).

Enfin, des lasers Raman émettant dans le visible, donc susceptibles d'être doublés pour atteindre l'UV, ont également été mis au point [He 97] : un laser Nd:YAG doublé (532 nm) focalisé dans un cristal de Ba(NO₃)₂²⁶ placé dans une cavité résonante permet de créer des ondes à 563 (ordre Stokes 1) et 599 nm (ordre Stokes 2) avec un rendement de plus de 30 %.

²⁶ Pour donner un ordre de grandeur, le décalage Raman dans ce cristal est de 1047 cm⁻¹ (ce qui est plus de deux fois supérieur à celui de la silice), conduisant pour une pompe à 532 nm à un premier ordre Stokes décalé de 30 nm environ.

Bilan

Comme cet état de l'art l'a démontré, il existe de nombreuses façons de réaliser un laser ultraviolet : le choix de l'une ou l'autre des sources présentées peut se faire en fonction d'un nombre important de critères : le régime de fonctionnement temporel souhaité (continu, quasi-continu ou impulsionnel, et dans ce dernier cas à quelle cadence et avec quelle durée d'impulsion), la puissance voulue, le degré d'accordabilité recherché, la simplicité d'utilisation, le prix ou encore l'encombrement vont nous conduire vers les lasers à gaz, les lasers à semi-conducteurs ou encore une des nombreuses versions de lasers solides présentée.

Il semble cependant que de façon générale ces derniers tendent petit à petit à prendre le dessus sur l'ensemble des autres lasers. La variété de régimes de fonctionnement qu'ils sont susceptibles de couvrir est immense, et leur « pompabilité²⁷ » par diode les rend potentiellement plus compacts et efficaces que les lasers à gaz concurrents. Même si leur prix reste souvent supérieur (pour le moment) à celui de leurs compagnons gazeux, il ne fait aucun doute qu'ils représentent l'avenir ; c'est donc à partir de lasers solides pompés par diodes que nous allons tenter de réaliser notre objectif, dont l'état de l'art que nous venons d'effectuer confirme qu'il n'a encore jamais été atteint : mettre au point une source laser simple et compacte émettant dans l'ultraviolet des impulsions de quelques centaines de picosecondes (ou moins) de durée à une cadence autour de 1 MHz ...

²⁷ Ce néologisme est vraiment très laid... Désolé.

V. Pistes vers une source laser impulsionnelle picoseconde accordable dans l'UV et fonctionnant autour de 1 MHz

Après ce rapide – et non exhaustif – tour d'horizon des milles et une façons de réaliser un laser ultraviolet, revenons à des considérations plus spécifiques à notre étude. Comme nous l'avons exposé en guise d'introduction, la source que nous cherchons à réaliser se doit de réunir un certain nombre de caractéristiques. Rappelons-les brièvement :

- ✓ La source doit émettre dans l'ultraviolet, si possible à des longueurs d'onde différentes de celles des harmoniques du Néodyme (nos collègues biologistes ont ciblé 330 nm), et être accordable.
- ✓ La source doit émettre des impulsions courtes, de l'ordre de la centaine de picosecondes.
- ✓ Les impulsions doivent être émises à un taux de répétition voisin de 1 MHz.
- ✓ La source doit être simple (sans composant actif si possible) et compacte.
- ✓ La puissance moyenne dans l'ultraviolet peut être faible (1 mW est suffisant).

Un certain nombre de choix s'imposent naturellement à la vue de ce cahier des charges. Comme nous l'avons déjà dit, l'exigence de simplicité et de compacité nous amène par exemple à n'envisager que des systèmes lasers pompés par diodes. Ces dernières n'étant pour l'instant efficaces que dans certaines zones spectrales (en particulier autour de 808 et de 980 nm), il est impératif de partir d'un laser infrarouge comme première « brique » de notre source, et par suite d'employer des étages de conversion de fréquence pour abaisser la longueur d'onde jusqu'à l'ultraviolet. On se souviendra aussi que l'efficacité de conversion en fréquence est directement reliée à la puissance crête, et qu'on aura donc besoin de rayonnement infrarouge puissant, donc selon toute vraisemblance d'un amplificateur, pour pouvoir convertir efficacement nos longueurs d'onde vers l'UV : il n'est pas question en effet d'utiliser quelque cavité résonante asservie que ce soit si on veut conserver au système une certaine simplicité. Enfin il faudra trouver un moyen d'obtenir une accordabilité importante dans l'ultraviolet.

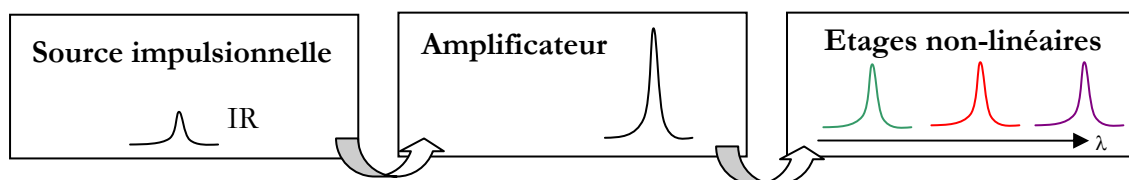


Figure I.19 : schéma (très) général de l'architecture à envisager.

A l'intérieur de ce canevas (schématisé sur la figure I.19) relativement figé, différentes solutions peuvent être imaginées pour satisfaire aux critères précédemment énoncés. Nous allons décrire ici ces solutions, aussi bien celles qui ont finalement été rejetées que celles qui ont été retenues et réalisées.

V.1. La source

Nous avons dit qu'un étage d'amplification sera probablement nécessaire : il apparaît alors assez rapidement que les seuls amplificateurs massifs efficaces se trouvent autour de 1064 nm, où on peut utiliser des cristaux dopés Néodyme. Cette constatation nous amène à décider de partir d'une source à 1064 nm.

V.1.1. Décalage Raman

Pour atteindre cette longueur d'onde de 1064 nm, on peut bien sûr comme nous le verrons plus loin partir d'une diode laser à 1064 nm. On se heurte alors à un écueil important : il existe très peu (nous verrons qu'il est malgré tout possible d'en trouver) de diodes lasers commercialement disponibles à cette longueur d'onde...

Une idée intéressante est de se servir des amplificateurs et des diodes développées pour les télécommunications (autour de 1,55 μm) : nous avons donc envisagé de partir d'une diode à 1,55 μm . L'effet Raman peut permettre de décaler cette longueur d'onde jusqu'à atteindre 1064 nm. Cependant le décalage « vers le bas » des longueurs d'ondes ou décalage Anti-Stokes est très peu efficace et ne peut décemment pas être utilisé sans une perte de puissance rédhibitoire. Le décalage « vers le haut » peut être envisagé en utilisant plusieurs étages Raman successifs afin d'atteindre 2,13 μm , puis générer le second harmonique pour finalement arriver à 1064 nm ; cette architecture est cependant clairement peu efficace et assez complexe à mettre en œuvre.

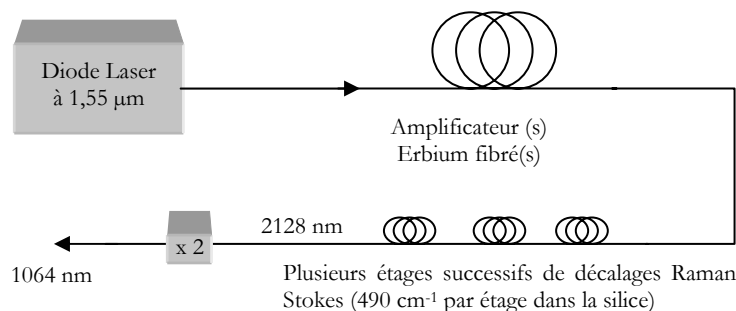


Figure I.20 : proposition de source à 1064 nm par décalage Raman.

Nous avons finalement choisi de nous passer d'étages de décalage Raman gourmands en énergie et de travailler dès le départ à 1064 nm.

V.1.2. Laser continu modulé

La source la plus simple à 1064 nm - étant donné le peu de disponibilité des diodes lasers – reste le laser Nd :YAG. On a donc pensé naturellement à associer un laser Nd :YAG continu à une modulation externe (via un modulateur électrooptique par exemple) pour mettre en forme temporellement le signal en y découpant des impulsions d'une centaine de picosecondes de long.

De tels modulateurs ultrarapides existent (la société Alénia propose par exemple des modulateurs en niobate de lithium capables de fonctionner à 20 GHz autour de 1060 nm) mais sont extrêmement coûteux (plus de 15000 euros pièce, sans l'alimentation électrique). De plus, notre système se voulant passif dans la mesure du possible nous n'avons pas étudié en détails cette voie pour le moment.

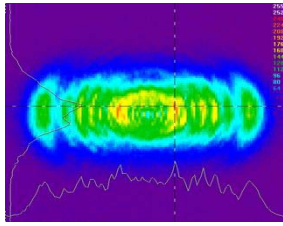
V.1.3. Diode impulsienne amplifiée

Il s'agit de la solution paraissant la plus adaptée. On veut utiliser une diode laser fonctionnant en régime de « commutation par le gain », permettant de générer à partir d'une impulsion électrique d'environ 200 picosecondes une oscillation de relaxation laser dont la durée peut être inférieure à 100 ps. Le taux de répétition des impulsions ainsi produites est ajustable jusqu'à plusieurs MHz. Le revers de la médaille est l'énergie contenue dans chaque impulsion, qui n'est que de quelques dizaines de picojoules au mieux. De plus, un nombre très limité de fabricants commercialise de tels systèmes. On peut néanmoins citer la diode PiLas^{®28} vendue par la société allemande Advanced Photonic Systems qui produit des impulsions de 50 ps à 1 MHz avec une énergie de quelques picojoules seulement (200 mW de puissance crête) et un spectre assez large (10 nm). La société Picoquant commercialise également le même type de diode²⁹.

La faible énergie de chaque impulsion rend nécessaire une amplification assez énorme si l'on se souvient que l'on a besoin d'une puissance crête importante dans l'infrarouge pour ne pas se trouver dépourvu lorsque le temps de la conversion en fréquence sera venu. Heureusement il existe maintenant des amplificateurs à fibre optique dopés Ytterbium (YDFA) très efficaces pour amplifier un faisceau à 1064 nm : il est courant de trouver des facteurs d'amplification de 20 dB. On peut donc imaginer injecter nos quelques picoJoules (disons 10 pour fixer les idées) issus d'une diode laser de type Pilas dans un préamplificateur YDFA de gain 20 dB : on se retrouve alors avec une énergie d'une nanojoule, ce qui correspond à une puissance crête de 20 W et une puissance moyenne de 1 mW. Un second amplificateur fibré est alors nécessaire pour atteindre quelques dizaines de mW (en puissance moyenne) et pouvoir utiliser un dernier amplificateur pour atteindre quelques kilowatts de puissance crête et attaquer avec confiance les étages non-linéaires.

²⁸ <http://www.advanced-photonics-systems.com/pilase.htm>

²⁹ Le prix de ces diodes est assez élevé, puisqu'il faut compter plus de 15000 euros pour l'ensemble diode et contrôleur.



Profil spatial de la diode
PiLas.

Il faut cependant tempérer ce scénario idyllique : tout d'abord les quelques picoJoules initiaux sont répartis sur le spectre étendu de la diode laser (10 nm)³⁰, et le filtrage spectral qui ne manquera pas de subvenir lors de l'amplification dans un cristal massif (de bande de gain typiquement inférieure au nm) va diminuer fortement la puissance finalement produite. Deuxièmement, le profil spatial émis par la diode laser est fortement elliptique et non limité par la diffraction (voir l'image ci-contre prise avec une camera CCD).

Il en résulte que lors de l'injection des quelques photons issus de la diode dans la fibre optique amplificatrice un certain nombre se perd en chemin. Ajoutons à cela les pertes induites par le passage des optiques et par l'isolateur optique indispensable pour éviter tout retour issu de l'amplificateur dans la diode laser, et nous arrivons à une énergie finalement injectée dans l'YDFA réellement réduite. Le fonctionnement de l'amplificateur à fibre s'en trouve un peu perturbé puisque le signal utile va se trouver « noyé » dans le large continuum d'émission spontanée amplifiée (ASE ou encore « Amplified Spontaneous Emission » pour nos amis d'outre manche) [Oron 99].

Bien que cette solution puisse être mise en œuvre dans un futur proche (en particulier s'il est possible de bénéficier d'une diode fibrée pour limiter les pertes d'insertion), elle semble assez coûteuse (deux YDFA sont nécessaires...) : aussi avons nous exploré d'autres pistes. En particulier, nous avons choisi d'abandonner la diode laser comme composant de départ pour partir de lasers pompés par diodes, ce qui nous assurera une puissance de départ plus confortable. Comme déjà mentionné, il existe pour simplifier deux façons de réaliser des impulsions avec un laser : il s'agit des régimes **déclenchés** (« Q-switch ») et à **verrouillage de modes** (« mode-lock »). Nous allons maintenant voir s'il est possible de satisfaire notre cahier des charges avec ces deux régimes.

V.1.4. Laser impulsif

Nous avons identifié une longueur d'onde de départ intéressante, à savoir 1064 nm. C'est évidemment un choix orienté par l'existence de matériaux lasers très efficaces et extensivement étudiés depuis des décennies, et dont le Nd:YAG et le Nd:YVO₄ sont les plus fameux fleurons. On connaît bien les ordres de grandeur « standard » des deux régimes de fonctionnement nommés dans le paragraphe précédent : un laser déclenché typique émet des impulsions nanosecondes à une cadence pouvant aller jusqu'à quelques dizaines de kilohertz, et un laser à verrouillage de modes produit des impulsions plus courtes (de l'ordre de la dizaine de picosecondes) à une cadence de plusieurs dizaines de MHz (typiquement 100 MHz). Pour ce dernier cas, il est possible de diminuer la cadence à 1 MHz en éjectant une impulsion sur 100 hors de la cavité (système dit « cavity dumped »). Cette éjection se faisant de manière active - par le biais d'un modulateur électro-optique par exemple - elle augmente considérablement la complexité du système et n'est donc pas envisageable pour notre système.

Il est donc clair qu'aucun de ces deux cas ne semble satisfaire à notre cahier des charges : il va falloir sortir des sentiers battus pour explorer des régimes de fonctionnement plus exotiques.

³⁰ Cette assertion est à mitiger : depuis peu il existe des diodes de ce type à réseau de Bragg distribué (DBR) permettant d'obtenir un spectre fin.

Il faut pour cela déterminer quels sont les paramètres qui permettent de faire varier les durées d'impulsion et les cadences pour nous ramener dans le giron de nos exigences :

Laser
déclenché

- ✓ La durée des impulsions Δt en régime déclenché est directement liée à la longueur de la cavité laser et aux pertes de cette dernière, puisqu'en première approximation [Szabo 65] Δt est proportionnelle au temps que met un photon pour faire un aller-retour dans la cavité. On peut donc diminuer la durée des impulsions en utilisant **une cavité courte**.
- ✓ La cadence d'un laser déclenché de longueur donnée est fixée par le temps que met le milieu à gain à se « recharger » après l'émission d'une impulsion. En d'autres termes, elle est déterminée par le temps que met l'inversion de population à se reconstruire, jusqu'à atteindre la valeur seuil pour laquelle l'impulsion est créée. Cette période de « stockage de l'énergie », sans effet laser, est beaucoup plus longue que la durée de l'impulsion, ce qui permet de négliger cette dernière. Pour obtenir une cadence élevée il faut donc utiliser un matériau présentant une section efficace d'absorption importante et travailler sur le pompage du laser. On peut en effet montrer au prix d'approximations raisonnables [Druon 99,00] que pour les matériaux dopés néodyme la cadence est directement proportionnelle à la brillance de la diode de pompe.

Laser à
verrouillage de
modes

- ✓ En ce qui concerne les lasers à verrouillage de modes, le taux de répétition est donné par $\tau_r = c/2L$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide et L est la longueur de la cavité. Pour des cavités de taille raisonnable (1 à 2 mètres), il apparaît que la cadence tourne autour des 100 MHz, mais elle peut être diminuée en utilisant **des cavités longues**.
- ✓ La durée des impulsions est elle proportionnelle à L/N , où N est le nombre de modes oscillant dans la cavité. Ce nombre est essentiellement relié à la largeur spectrale de la bande de gain du matériau utilisé et à la longueur de la cavité, à laquelle il est inversement proportionnel : une cavité longue impose un intervalle spectral entre deux modes consécutifs ($= c/2L$) court et permet donc à un grand nombre de modes d'osciller dans une bande de gain donnée. Finalement N est proportionnel à L et la durée des impulsions ne varie donc pas avec la longueur de la cavité. Pour un laser à base de cristaux dopés au Néodyme cette durée est de l'ordre de quelques picosecondes, ce qui est en accord avec nos contraintes temporelles.

Pour conclure sur ces considérations générales, il apparaît que le choix d'un laser impulsionnel permet de répondre au cahier des charges imposé par notre application. Cependant dans les deux configurations possibles (laser déclenché ou à verrouillage de modes) seules des longueurs de cavités « extrêmes » peuvent permettre d'atteindre nos objectifs : il faudra faire le choix des cavités « ultra-courtes » (nous verrons au chapitre suivant que cela signifie *quelques centaines de micromètres* !) ou celui des cavités « ultra-longues » (*plus de 100 mètres* !)...

V.2. L'amplification

Quel que soit le choix de la source infrarouge, il est probable qu'elle ne soit pas assez puissante pour atteindre les puissances crêtes nécessaires à d'efficaces conversions non-linéaires : un étage amplificateur est donc indispensable. Les géométries d'amplification de type fibrées peuvent être très efficaces à basse puissance, mais elles sont limitées au delà de un kW de puissance crête pour les configurations classiques à base de fibres monomodes : c'est environ à cette puissance que se situe le seuil d'effets non-linéaires parasites ici tels que l'effet Raman. De tels amplificateurs peuvent donc éventuellement servir de « préamplificateurs » mais ne peuvent remplacer l'usage d'une structure d'amplification de type « massive ». Il existe de nombreuses façons de réaliser des amplificateurs massifs : la configuration peut être « multipassage » ou « régénérative », le pompage être transverse ou longitudinal... Nous reviendrons en temps utiles (au chapitre III) sur les différents schémas décrits dans la littérature et préciserons notre choix final.

V.3. La conversion de fréquence

Enfin l'architecture des étages de conversion en fréquence comprendra obligatoirement trois étages distincts : deux étages de conversions de fréquence pour accéder à l'ultraviolet et un étage donnant accès à une large accordabilité. Ce dernier se devant, comme l'ensemble de la source, d'être simple, il sera constitué d'un dispositif à simple passage de type générateur ou amplificateur paramétrique optique. Cette exigence de simplicité nous fait rejeter une solution pourtant séduisante : l'Oscillateur Paramétrique Optique synchrone. Un tel dispositif permet en effet d'obtenir une accordabilité importante ainsi qu'une puissance de sortie élevée du fait du caractère résonant de sa structure. Par contre cet OPO doit convertir en fréquence des impulsions picosecondes : il est donc nécessaire comme nous l'avons vu de synchroniser chacune des impulsions de pompe avec les impulsions signal produites. Cette contrainte impose une structure électronique de synchronisation relativement complexe, ce qui nous a conduit à ne pas choisir cette solution dans l'immédiat.

On rappelle que notre objectif est d'atteindre 330 nm. On peut imaginer que la partie conversion de fréquence s'articule schématiquement de l'une des façons suivantes (les valeurs en italique indiquent un rayonnement accordable) :

- Choix 1 : 1064 nm $\rightarrow$ 1320 nm $\rightarrow$ 660 nm $\rightarrow$ 330 nm

On réalise un générateur paramétrique optique pompé par notre laser à 1064 nm, ce qui nous permet d'obtenir un rayonnement accordable autour de 1320 nm, que l'on quadruple en fréquence pour atteindre 330 nm.

- Choix 2 : 1064 nm $\rightarrow$ 532 nm $\rightarrow$ 660 nm $\rightarrow$ 330 nm

On commence par un étage de doublement de fréquence pour passer de l'infrarouge à 1064 nm au vert à 532 nm, puis un étage de génération paramétrique optique permet de passer du

vert à une longueur d'onde rouge accordable autour de 660 nm et un dernier étage de doublement permet d'atteindre l'ultraviolet à 330 nm.

- Choix 3 : $1064 \text{ nm} \rightarrow 532 \text{ nm} \rightarrow 870 \text{ nm} + 532 \text{ nm} \rightarrow 330 \text{ nm}$

On peut imaginer également de doubler notre rayonnement à 1064 nm, puis d'utiliser le faisceau vert à 532 nm pour pomper un générateur paramétrique optique fournissant un rayonnement accordable autour de 870 nm, lequel serait ensuite sommé en fréquence avec le 532 nm restant pour atteindre 330 nm.

Le choix 3 peut être immédiatement rejeté en raison de la trop faible accordabilité qu'il engendre : afin de pouvoir comparer, considérons qu'un générateur paramétrique fournisse une accordabilité de 50 nm^{31} : la structure 2 donne naissance à une accordabilité de 25 nm dans l'UV, alors que la structure 3 n'accorde que 7 nm de bande spectrale autour de 330 nm. La structure 1 est différente puisque le générateur paramétrique optique émet autour de 1320 nm : la plage d'accordabilité est donc réduite d'un facteur 4 pour atteindre l'UV, contre un facteur 2 pour la deuxième structure. De plus, l'onde complémentaire créée lors de la génération paramétrique optique se trouve aux alentours de $5,5 \mu\text{m}$ pour la structure 1 : nombre de matériaux non-linéaires ne sont plus transparents à de telles longueurs d'ondes, ce qui rend l'efficacité d'un tel processus douteuse. En conclusion, il paraît raisonnable de choisir la seconde option pour convertir notre faisceau infrarouge en faisceau ultraviolet.

Maintenant que nous avons un peu mieux délimité les diverses possibilités qui nous sont offertes, déterminons la structure de la source que nous allons réaliser.

V.4. Structure choisie

Afin de pouvoir faire nos choix en connaissance de cause, et en nous appuyant sur les données ressortant de l'état de l'art qui précède, il est indispensable de mettre quelques chiffres sur les dispositifs envisagés. Bien sûr il ne peut s'agir que d'ordres de grandeur étant donnée la diversité des systèmes rencontrés, mais ils vont permettre de fixer les idées et de resserrer un peu le champ de nos investigations en éliminant certaines configurations irréalistes.

Résumons nous : le schéma global que nous allons mettre en œuvre comporte trois blocs, à savoir la source, l'amplificateur et les étages de conversion de fréquence. Nous avons déjà choisi d'utiliser une source possédant les bonnes caractéristiques temporelles et une longueur d'onde de 1064 nm : celle-ci pourra être un microlaser déclenché à cavité ultracourte ou un laser à verrouillage de modes à cavité géante. Un étage d'amplification suivra, puis nous utiliserons comme énoncé précédemment une architecture de conversion de fréquence de type génération de second harmonique puis génération paramétrique optique puis à nouveau génération de second harmonique.

³¹ C'est une valeur qui semble ici parfaitement arbitraire. Cependant elle n'est pas prise au hasard, comme nous le verrons au chapitre IV.

La figure I.21 ci-dessous représente schématiquement le système.

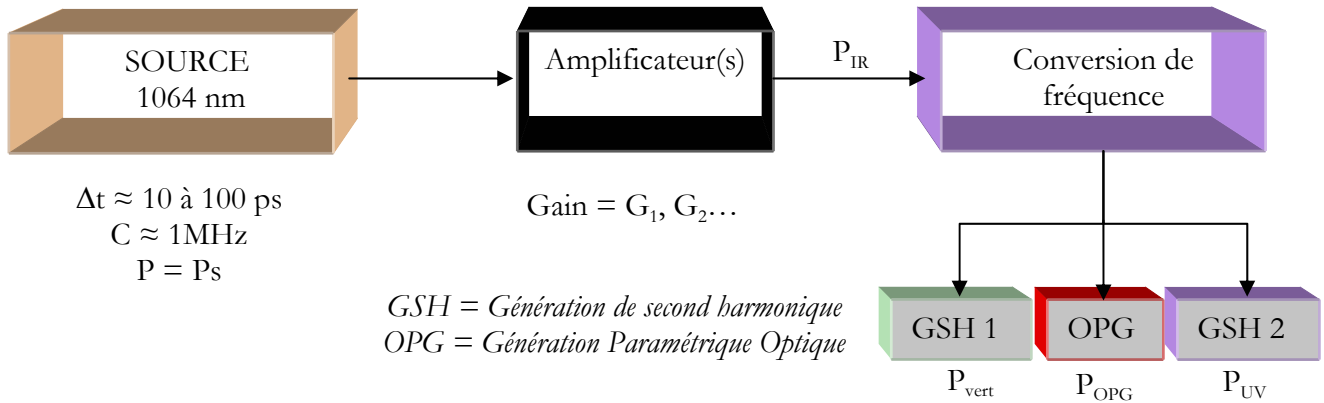


Figure I.21 : bloc-diagramme du système finalement choisi.

Il reste maintenant à dimensionner « à rebours » le système en termes de puissance. Nous savons que la puissance moyenne utile dans l'ultraviolet doit être de l'ordre du milliwatt. Quels sont les facteurs d'amplification nécessaires à chaque étape ?

On part donc de $P_{UV} = 1 \text{ mW}$ (on parlera ici toujours en puissance moyenne, sauf mention contraire, qui est la grandeur accessible directement à la mesure et donc la plus « parlante ». La puissance crête est obtenue par division de la puissance moyenne par le facteur $C \times \Delta t$ que nous considérerons comme constant³². On a donc besoin par exemple de 10 W de puissance crête dans l'UV). Nous avons vu que les efficacités de doublage en simple passage pour des puissances crêtes inférieures au kilowatt sont très faibles, de l'ordre de 2 % dans du BBO avec une puissance crête de pompe de 500 W par exemple [Champert 02]. Nous pouvons donc estimer que la puissance P_{OPG} en entrée du cristal GSH 2 se doit d'être supérieure à 50 mW. Le processus de génération paramétrique optique est lui aussi très peu efficace. Son rendement peut cependant être grandement amélioré par l'utilisation de cristaux à quasi-accord de phase de type niobate de lithium périodiquement polarisé (ppLN) comme on le verra au chapitre IV: des rendements $P_{\text{signal}}/P_{\text{pompe}}$ de 16 % dans l'infrarouge [Zayhowski 97] et de 13 % [Bäder 99] voir 20 % [Chiang 01] dans le visible avec une pompe à 532 nm ont été démontrés en utilisant des cristaux de ppLN. Il est à noter que ces expériences ont été menées à des puissances crêtes importantes (entre 6 et 70 kW). Il n'est cependant pas interdit d'être optimiste et l'on peut se baser sur une efficacité de conversion de l'ordre de 10 % si on utilise un cristal de ppLN. Cela nous amène donc à une puissance P_{vert} nécessaire de 500 mW. Enfin l'étage de doublement de fréquence permettant d'obtenir P_{vert} à partir de P_{IR} peut avoir un rendement de l'ordre de 40 %. On arrive finalement à une puissance infrarouge nécessaire de 1,25 W.

Ces considérations « avec les mains » s'entendent bien entendu pour des faisceaux limités par la diffraction. Si on tient compte des pertes lors du transport des faisceaux, des pertes par polarisation etc. on peut se donner raisonnablement comme base à atteindre 1,5 à 2 W dans l'infrarouge. L'ensemble de ces données est résumé dans le tableau suivant :

³² Nous verrons que ceci est faux puisque si la cadence ne varie pas, les durées d'impulsions sont elles réduites lors de chaque étage de conversion de fréquence. La prise en compte de ce raffinement est ici inutile puisque nous ne manipulons que des ordres de grandeur.

Elément du système	P moyenne en sortie de cet élément	P crête	Facteur de gain
Laser ps / MHz	10 mW	100 W	
Amplificateur solide	2 W	20 kW	X 200
GSH 1 (IR – vert)	800 mW	8 kW	X 0,4
OPG (vert – rouge)	80 mW	800 W	X 0,1
GSH 2 (rouge – UV)	1,6 mW	16 W	X 0,02

Tableau I.3 : dimensionnement de la source.

La puissance moyenne que l'on peut raisonnablement espérer de la source impulsionnelle, qu'il s'agisse d'un laser déclenché ou à verrouillage de modes, est de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de milliwatts : l'amplificateur utilisé doit donc produire un gain d'environ 200 (dans le cas le plus défavorable) pour atteindre nos 2 W de rayonnement infrarouge. Ce genre de gain peut être envisagé sereinement avec un amplificateur massif pompé par diode (éventuellement précédé d'un amplificateur fibré) comme nous le verrons au chapitre III.

La rapide étude dimensionnelle effectuée ci-dessus nous permet de nous lancer avec confiance dans la mise au point proprement dite de la source. Certains points importants ont été soulevés comme la présence indispensable d'un amplificateur efficace et la nécessité d'optimiser les conversions non-linéaires, par exemple en utilisant des matériaux à quasi-accord de phase. Le choix de la source initiale a également été réduit pour aboutir à deux possibilités qui vont maintenant être décrites en détails.

Introduction

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, deux solutions semblent se détacher du lot pour nous amener aux caractéristiques temporelles voulues : il s'agit de réaliser un laser impulsionnel qui peut être soit « déclenché » soit « à verrouillage de modes ». En choisissant avec soin un certain nombre de paramètres - comme par exemple la longueur de la cavité - on essaiera à partir de ces deux configurations de faire en sorte que la durée des impulsions produites soit de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes et le taux de répétition autour du mégahertz.

Ce chapitre sera donc divisé en deux parties décrivant respectivement l'étude et la réalisation d'un laser déclenché et d'un laser à verrouillage de modes. La démarche suivie sera semblable pour les deux parties. Je commencerais par une rapide étude théorique rappelant les principaux résultats obtenus dans la littérature, sans les redémontrer afin de ne pas alourdir le propos par des équations souvent indigestes³³. J'en profiterais pour souligner les paramètres physiques influents et préciser les choix qui ont été effectués. Dans un deuxième temps je décrirais l'architecture choisie pour l'expérience, puis les résultats expérimentaux. Enfin une rapide conclusion permettra de juger si les objectifs assignés à chacune des sources ont été atteints.

³³ Il n'est pas question ici de refaire - éventuellement moins bien - ce qui a été fait par d'autres à de nombreuses reprises. Le lecteur intéressé pourra se reporter aux références bibliographiques données pour obtenir les démonstrations rigoureuses de toutes les équations citées.

I. Microlaser ultra-court déclenché passivement

I.1. Principe

Une des techniques la plus courante pour rendre un laser impulsif est le déclenchement (également appelée « commutation des pertes ») ou « Q-switching ». Le principe, résumé par la figure II.1, peut être énoncé comme suit : des pertes sont volontairement introduites dans la cavité de façon à obtenir artificiellement un niveau de pertes P_1 élevé. Sous l'effet du pompage, l'inversion de population ΔN se construit peu à peu. L'effet laser ne peut cependant se produire car le gain reste inférieur au niveau de pertes. Si on attend suffisamment longtemps, ΔN atteint un état stationnaire (correspondant à l'inversion de population maximale susceptible d'être atteinte avec un matériau laser donné) ΔN_i . On diminue alors brusquement les pertes de la cavité : le niveau de pertes passe de P_1 à P_2 , et l'intensité laser – le démarrage se fait sur le bruit de fluorescence – se met à augmenter très rapidement (ΔN_i est à ce moment très supérieure à l'inversion de population correspondant au seuil d'oscillation laser) pour atteindre sa valeur maximale pour $\Delta N = \Delta N_s$. L'impulsion laser ainsi créée dépeuple le niveau supérieur de la transition laser, et ΔN diminue donc jusqu'à ce que le gain disponible soit inférieur au niveau de pertes P_2 , ce qui met fin à l'impulsion.

Une grande partie de l'énergie accumulée lors du pompage se libérant d'un seul coup, l'impulsion émise est extrêmement brève : la durée des impulsions ainsi produites dépend de la longueur de la cavité laser et des pertes dans cette cavité. On peut considérer de façon brutale que Δt est proportionnelle au temps de vie des photons dans la cavité, c'est à dire d'autant plus petite

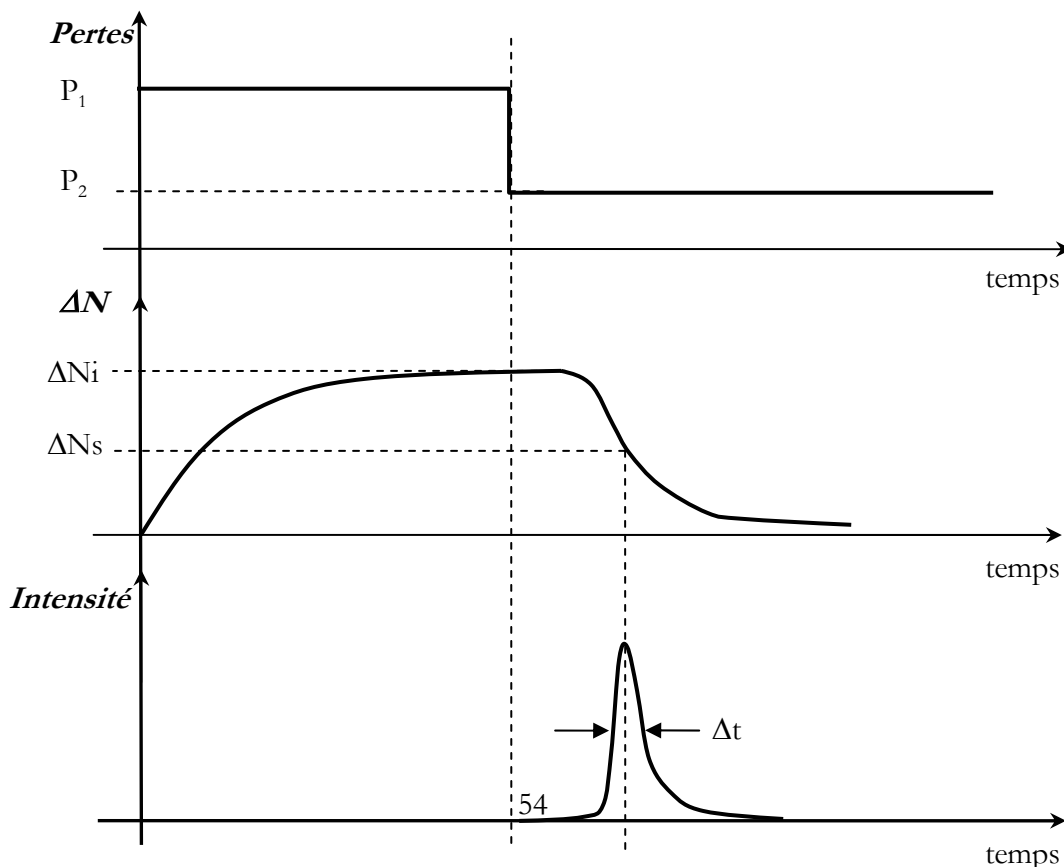


Figure II.1 : principe du laser déclenché par commutation des pertes.

que la cavité est courte et que les pertes (en pratique la transmission du miroir de sortie) sont importantes. L'ordre de grandeur habituel pour Δt est de une à quelques dizaines de nanosecondes, voire quelques centaines pour des lasers exhibant un gain faible (et nécessitant donc une transmission du miroir de sortie faible pour pouvoir osciller).

Il existe un grand nombre de techniques pour réaliser la commutation rapide des pertes de P_1 à P_2 que l'on peut classer en deux catégories : le déclenchement actif et le déclenchement passif. La première catégorie regroupe des techniques très diverses : la plus ancienne et la plus simple consiste à utiliser comme miroir de fond de cavité un miroir tournant à très grande vitesse angulaire. Les techniques actuelles utilisent des composants électro-optiques (une cellule de Pockels couplée à un polariseur permet de réaliser une « porte de polarisation » ouverte ou fermée selon la tension appliquée) ou acousto-optiques (la lumière est alors diffractée en dehors de la cavité) permettant de contrôler très précisément les paramètres de déclenchement. La seconde catégorie consiste à utiliser les propriétés non-linéaires de certains matériaux appelés *absorbants saturables* : ces derniers sont plus opaques si l'éclairement est faible que s'il est fort, ce qui permet d'obtenir des pertes importantes sans effet laser puis de les diminuer brutalement lorsque l'intensité de l'impulsion laser naissante atteint une valeur suffisante pour saturer l'absorbant saturable.

Les avantages de la technique « passive » sont évidents : elle permet en particulier de se passer de tout élément électronique actif dans la cavité et est de ce fait particulièrement simple et peu coûteuse. Côté inconvénients, il faut noter que la cadence du laser n'est pas contrôlée, et que la gigue temporelle entre deux impulsions successives est parfois importante. Pour préserver le côté passif de notre source, nous avons choisi de déclencher notre laser avec un absorbant saturable. Si on met de côté les solutions à base de colorants qui furent utilisées dans les premiers systèmes déclenchés passivement, peu pratiques d'emploi, le matériau absorbant saturable le plus utilisé pour réaliser des lasers déclenchés est le YAG dopé par l'ion Chrome ($\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$) [Zayhowski 94][Agnesi 98]. Les impulsions produites avec de tels dispositifs ont généralement des durées de quelques nanosecondes. Comme on a vu que cette valeur est directement proportionnelle au temps de vie des photons dans la cavité laser, donc à la longueur de cette dernière, on peut facilement réduire la durée des impulsions produites en réalisant des cavités ultracourtes. Pour ce faire, on accole l'absorbant saturable au milieu à gain pour réaliser ce qu'il est convenu d'appeler des micropuces lasers ou plus simplement des microlasers [Zayhowski 94, 99][Fulbert 98]. La longueur de la cavité est alors de l'ordre de 1 mm, ce qui permet d'atteindre des impulsions de quelques centaines de picosecondes [Zayhowski 96]³⁴. En contrepartie, l'énergie produite est assez faible et la cadence des impulsions est limitée à quelques dizaines de kilohertz [Druon 99].

Or si l'on peut facilement admettre de disposer d'une source de faible énergie - puisqu'on peut remédier à cet inconvénient sans trop de difficulté par l'adjonction d'un amplificateur (réalisation d'une structure de type MOPA) – il est par contre indispensable que la durée des impulsions produites et la cadence satisfassent au cahier des charges. Une solution récemment développée par l'équipe du professeur Keller à Zürich pour obtenir des impulsions ultra-courtes (moins de 100 ps) consiste à associer un cristal de vanadate d'yttrium dopé au néodyme ($\text{Nd}:\text{YVO}_4$) à un absorbant saturable à semi-conducteur [Braun 97] [Spühler 99]. En effet le cristal de $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ présente une forte section efficace d'absorption, ce qui permet d'utiliser des cristaux fins, et une durée de vie de l'état excité relativement courte (autour de 50 μs pour un cristal fortement dopé (plus de 2%), 100 μs sinon), ce qui le rend mieux adapté à la production

³⁴ Au niveau commercial, des lasers utilisant cette technologie produisent des impulsions d'environ 500 ps (PowerChip®, JDS Uniphase).

d'impulsions à cadence élevée que le Nd:YAG par exemple³⁵. L'absorbant saturable à semi-conducteur [Keller 96], que nous appellerons désormais par son nom de baptême « SESAM³⁶ », présente lui aussi les caractéristiques requises pour obtenir des impulsions courtes à haut taux de répétition comme nous allons le voir maintenant.

Un SESAM est constitué d'une couche d'absorbant saturable directement déposée sur un miroir formé d'une structure multicouche de matériaux semi-conducteurs, ce qui permet

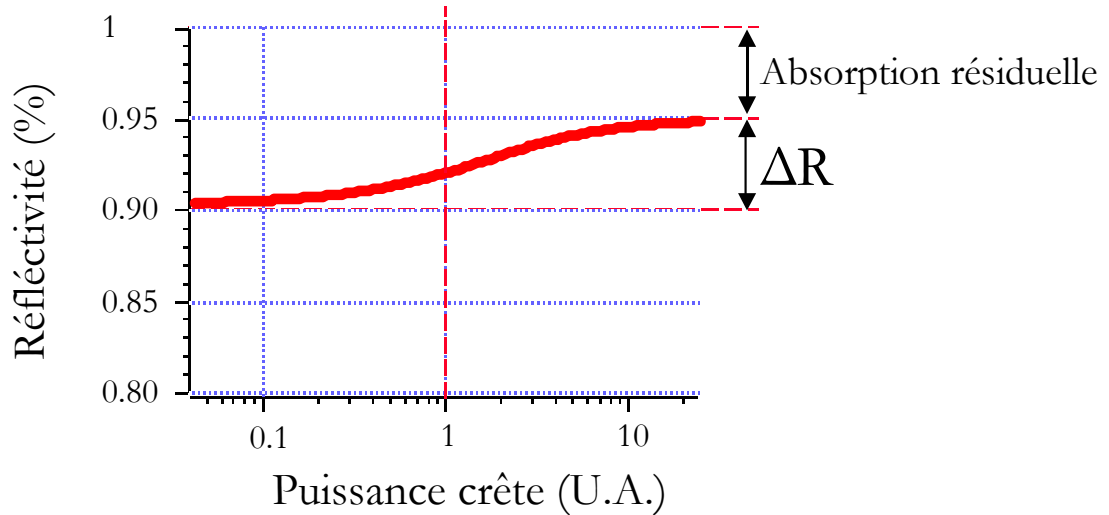


Figure II.2 : courbe de transmission typique d'un absorbant saturable.

d'obtenir un composant dont la réflectivité varie de façon non-linéaire avec l'intensité incidente (figure II.2). Plus précisément, la structure est décrite sur la figure II.3 : l'absorbant saturable semi-conducteur (composé de multipuits quantiques en InGaAs/GaAs) est déposé sur un miroir de Bragg³⁷ (de coefficient de réflexion très élevé ($>99\%$) à la longueur d'onde laser) et un traitement diélectrique chapeaute le tout. Ce dernier est un miroir dont la réflectivité permet de contrôler la quantité de lumière susceptible d'atteindre l'absorbant saturable. Elle peut varier de quelques pourcents (simple réflexion de Fresnel) à 95 % en fonction des applications visées [Keller 96].

Un des grand avantage des SESAMs est leur souplesse : en faisant varier l'épaisseur de l'absorbant saturable ou la réflectivité du miroir on peut choisir les paramètres tels que la quantité de pertes saturables et non-saturables, l'intensité de saturation ou le temps de réponse du composant. Une telle flexibilité permet d'utiliser ces composants à différentes longueurs d'ondes pour déclencher des lasers mais également pour réaliser des lasers à verrouillage de modes comme nous le verrons plus loin.

³⁵ On peut en effet montrer que la cadence d'un laser déclenché est essentiellement déterminée par la « capacité du milieu à gain à se recharger vite » : en d'autres termes, plus l'inversion de population se reconstruit rapidement après dépeuplement suite à la production d'une impulsion, plus la cadence est élevée : on a donc intérêt à avoir un temps de vie de l'état excité court si on cherche un taux de répétition élevé (voir par exemple l'équation II.3 plus loin).

³⁶ SEMiconductor Saturable Absorber Mirror.

³⁷ Il s'agit d'une succession de couches d'épaisseur quart d'onde avec alternance de matériaux semiconducteurs de bas indice et d'indice élevé (voir figure II.3). Les interférences entre les ondes réfléchies par ces différentes couches sont constructives ce qui permet d'obtenir un miroir de très fort coefficient de réflexion à une longueur d'onde donnée.

En plus de cette capacité à être définis en fonction de l'application visée, le SESAM présente l'avantage de faire office à la fois d'absorbant saturable et de miroir : on peut ainsi « économiser » la place occupée par un absorbant saturable de type cristal de $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ et ainsi obtenir des cavités ultra-courtes, de l'ordre de quelques centaines de micromètres de long : les durées d'impulsions peuvent ainsi être notablement réduites. Enfin, le temps de recouvrement (« recovery time » en anglais) des SESAMs est très court³⁸ (quelques dizaines de picosecondes contre plusieurs centaines de nanosecondes pour le $\text{Cr}:\text{YAG}$ par exemple) ce qui permet d'atteindre des taux de répétition plus élevés.

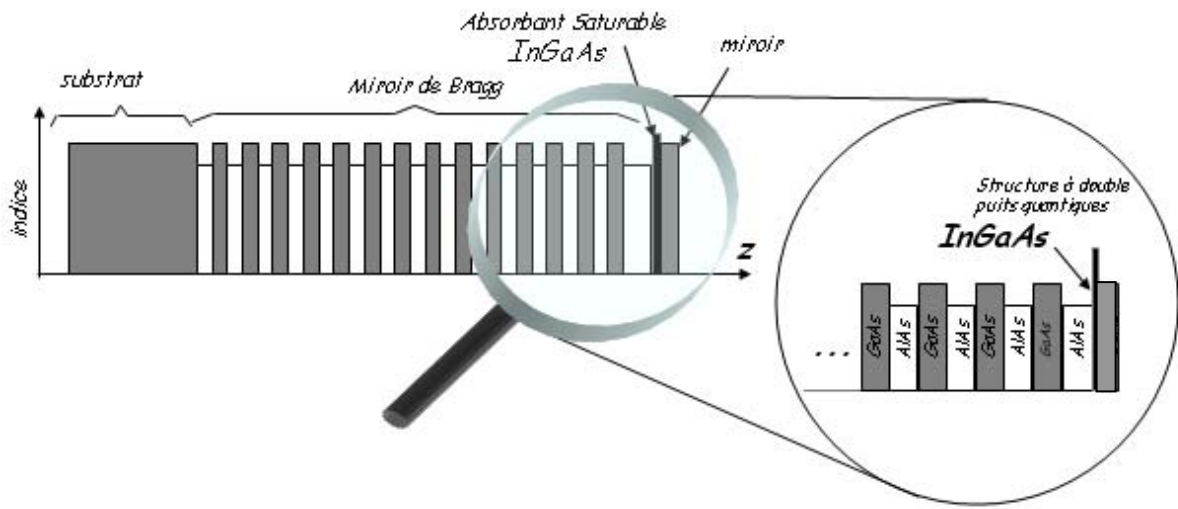


Figure II.3 : structure physique du SESAM.

I.2. Quelques éléments de théorie...

La théorie du déclenchement passif a été développée de façon extensive par de nombreux auteurs [Zayhowski 91b][Degnan 95], et ce depuis la petite enfance du laser [Szabo 65]. Elle fut plus récemment appliquée aux lasers déclenchés par SESAM [Keller 96][Spühler 99]. Les équations décrivant la durée des impulsions émises ainsi que leur cadence n'ont pas d'expression analytique simple dans le cas général. Cependant, au prix d'approximations parfois assez fortes on peut obtenir des expressions remarquablement simples, qui vont constituer des guides de choix pour évaluer l'influence des diverses grandeurs physiques mises en jeu et ainsi choisir le jeu de paramètres nous permettant d'atteindre nos objectifs.

³⁸ Les SESAMs sont élaborés à basse température, ce qui entraîne la formation de défauts permettant des recombinaisons rapides entre les porteurs.

I.2.1. Durée des impulsions

Si on suppose que la section efficace de l'absorbant saturable est très nettement supérieure à la section efficace de l'émission laser (ce qui est le cas avec les SESAMs puisque l'on a typiquement $\sigma_{\text{SESAM}} = 10^{-14} \text{ cm}^2$ et pour le Nd:YVO₄ $\sigma_{\text{Nd:YVO}_4} = 25 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$), on peut considérer que le mécanisme de commutation des pertes est quasi-instantané. Dans ce cas, il a été montré que la durée de l'impulsion Δt peut s'écrire [Zayhowski 91b, 94] :

$$\Delta t = \frac{S_p Tr}{\Delta R} \left[\frac{\delta(1+\delta)\eta}{\delta - \ln(1+\delta)} \right] \quad (\text{Eq. II.1})$$

Où :

- S_p est un facteur caractérisant la forme de l'impulsion ($S_p = 0,88$ pour une forme de type sécante hyperbolique au carré, et 0,94 pour une gaussienne).
- Tr est le temps que met un photon à parcourir la cavité ($Tr = 2Ln/c$, avec L la longueur de la cavité, n l'indice du milieu et c la vitesse de la lumière dans le vide).
- ΔR sont les pertes saturables (on suppose $\Delta R \ll 1$).
- $\delta = \Delta R / (T_{\text{out}} + P)$ avec T_{out} la transmission du coupleur de sortie et P les pertes non saturables (et toujours $T_{\text{out}} \ll 1$ et $P \ll 1$).
- η est l'efficacité d'extraction de l'énergie, donnée par la relation implicite suivante : $\eta(1+\delta) = -\ln(1-\eta)$.

Considérons à partir de cette formule les limites atteintes lorsque ΔR est beaucoup plus grand ou beaucoup plus petit que la somme des autres pertes ($T_{\text{out}} + P$), autrement dit si $\delta \ll 1$ ou $\delta \gg 1$:

Cas $\delta \ll 1$: les pertes saturables sont bien plus faibles que les autres pertes, en particulier que la transmission du miroir de sortie. On peut alors réécrire la formule implicite donnant η en remarquant que $\delta \ll 1$ implique $\eta \ll 1$ et en prenant le développement limité au premier ordre du membre de droite : $\eta(1+\delta) \approx \eta + \eta^2/2$ ce qui entraîne $\delta \approx \eta/2$.

On en déduit immédiatement :

$$\Delta t = \frac{S_p Tr}{\Delta R} \left[\frac{2\delta^2}{\delta - \left(\delta - \frac{\delta^2}{2} \right)} \right]$$

qui devient :

$$\Delta t = \frac{4S_p Tr}{\Delta R} \quad (\text{Eq. II.2})$$

Cette formule (avec $S_p = 0,88$ le plus souvent) est celle largement utilisée dans la littérature [Braun 96][Spühler 99][Häring 01] même quand l'approximation $\delta \ll 1$ n'est pas vérifiée... Il est vrai que la simplicité de cette expression permet de dimensionner rapidement les microlasers sans faire une erreur « trop » importante (si on applique cette expression avec $\delta=1$ par exemple, qui est un cas courant, on sous-estime tout de même la durée de l'impulsion d'environ 30 %).

Cas $\delta \gg 1$: les pertes saturables sont alors plus importantes que les autres pertes, en particulier que la transmission du miroir de sortie. On a alors $\eta \approx 1$ et il vient immédiatement :

$$\Delta t = \frac{S_p Tr}{T_{out} + P}$$

Il faut cependant noter qu'en pratique, la valeur de ΔR n'excède jamais 10%, si bien que l'on ne se trouve jamais en position d'appliquer cette formule.

Dans la plupart des cas réels la transmission du miroir de sortie vaut quelques pourcents de même que les pertes saturables ΔR : δ est donc proche de 1 et on doit appliquer la formule générale II.1. On s'aperçoit immédiatement en observant les expressions précédentes que **la durée des impulsions est dans tous les cas proportionnelle à la longueur de la cavité.** L'influence sur la durée des impulsions des pertes saturables ΔR et du coupleur de sortie T_{out} est illustrée par les courbes des figures II.4 et II.5. On note que la valeur de coefficient ΔR est prépondérante, et en particulier qu'un grand ΔR est nécessaire pour produire des impulsions très brèves (comme le sous-entend l'équation (II.2)). L'influence du coupleur de sortie est plus réduite, ce qui justifie *a posteriori* l'usage fréquent de la formule approchée II.2.

On remarque de façon générale sur ces courbes que pour obtenir des impulsions de durée très courte il faut réaliser une cavité de quelques dizaines de microns. N'oublions cependant pas qu'il est nécessaire d'absorber une quantité suffisante de rayonnement de pompe : comme on ne peut utiliser un dopage trop important (il est difficile de trouver dans le commerce des cristaux dopés à plus 3%), il faut utiliser un cristal suffisamment long : on note ici encore l'intérêt du choix du cristal de Nd:YVO_4 , qui possède une absorption à 808 nm environ cinq fois plus importante que le Nd:YAG , permettant ainsi d'utiliser des cristaux plus courts. Pour rester réaliste et assurer la solidité mécanique du cristal laser nous arrêtons notre choix sur une longueur de 200 μm , ce qui doit nous amener à des durées d'impulsions de 200 ps environ (pour un ΔR de 6%, voir courbe II.5) compatibles avec nos exigences. On remarque également que la formule II.1 ne fait intervenir la puissance de pompe à aucun moment : **la durée des impulsions est indépendante du pompage.**

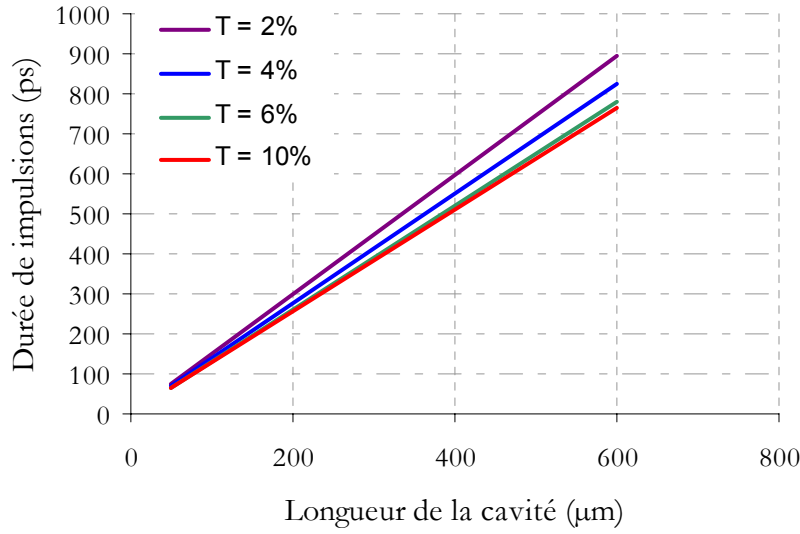


Figure II.4 : évolution théorique de la durée des impulsions avec la longueur de la cavité pour différents coupleurs de sortie. Les paramètres choisis pour cette simulation sont $\Delta R = 4\%$ et $P = 2\%$.

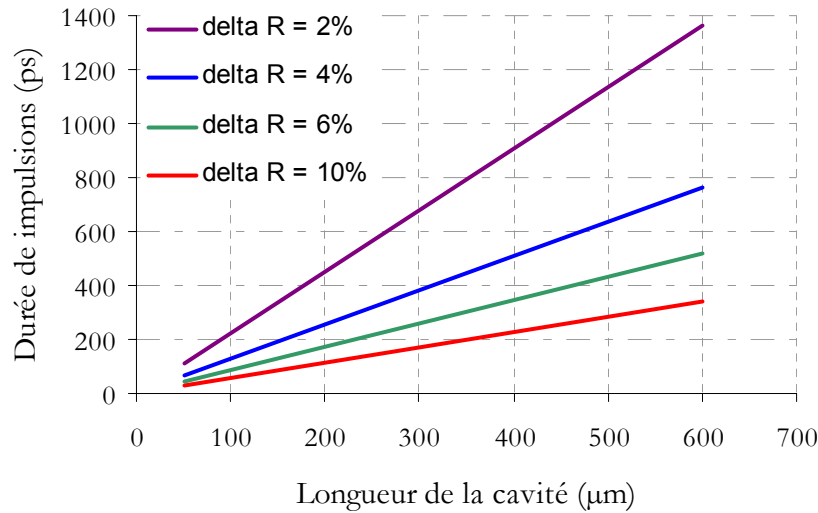


Figure II.5 : évolution théorique de la durée des impulsions avec la longueur de la cavité pour différentes valeurs des pertes saturables ΔR . Les paramètres choisis pour cette simulation sont $T = 10\%$ et $P = 2\%$.

I.2.2. Cadence des impulsions

En suivant le même modèle théorique que pour la durée des impulsions, on démontre [Spühler 99] que la cadence des impulsions produites peut être approximée par :

$$C = \frac{g_0 - (P + T_{out} + \Delta R)}{2 \tau \Delta R} \quad (Eq. II.3)$$

Où on définit g_0 comme le coefficient de gain petit signal par unité de longueur et τ est le temps de vie de l'état excité du milieu à gain.

La cadence est donc directement proportionnelle au gain petit signal, c'est-à-dire au pompage. Le taux de répétition va par conséquent augmenter linéairement avec la puissance de pompe et on peut atteindre des cadences de l'ordre du mégahertz pour des puissances de pompage de quelques centaines de milliwatts [Braun 97]. On peut évaluer le coefficient de gain petit signal à partir de la puissance de pompe (qui est le paramètre facilement accessible à la mesure) en écrivant :

$$g_0 = \sigma_L \Delta N_0$$

Où σ_L est la section efficace d'émission laser et ΔN_0 la densité d'atomes dans le niveau excité en régime petit signal. On peut ensuite écrire que le nombre d'atome « perdus » par unité de temps par émission spontanée doit être égal au nombre d'atomes portés au niveau excité par la pompe :

$$\frac{A L \Delta N_0}{\tau} = \frac{\eta_p P_p}{h \nu_p}$$

Avec A la surface du faisceau de pompe (considéré comme constant sur la longueur L du cristal), τ le temps de vie du niveau excité, η_p l'efficacité de pompage (on regroupe dans ce facteur le rendement quantique ainsi que d'éventuels facteurs caractérisant le recouvrement spatial et spectral [Druon 00]), P_p la puissance de pompe absorbée, h la constante de Planck et ν_p la fréquence de l'onde de pompe. On en déduit immédiatement la relation approchée suivante :

$$g_0 = \frac{\sigma_L \eta_p P_p \tau}{L A h \nu_p}$$

et par suite en injectant cette expression dans l'équation (II.3):

$$C = \frac{\frac{\sigma_L \eta_p P_p \tau}{L A h \nu_p} - (P + T_{out} + \Delta R)}{2 \tau \Delta R} \quad (Eq. II.4)$$

On peut donc évaluer quelle sera notre cadence pour un microlaser de Nd:YVO₄ (avec $\lambda_L = 1064$ nm, $\lambda_p = 808$ nm, $\eta_p = 0,6$, $\sigma_L = 25 \cdot 10^{-19}$ cm², $\tau = 50$ μ s³⁹). En prenant les valeurs de pertes déjà utilisées ($\Delta R = 4, 6$ ou 10% , $T_{out} = 10\%$, $P = 2\%$) et en focalisant notre faisceau de pompe sur une tache de rayon 60 μ m on peut tracer la courbe II.6.

³⁹ Ces valeurs sont issues des catalogues des fabricants de cristaux, par exemple CASIX. On trouvera une étude plus approfondie dans [Ermeneux 00].

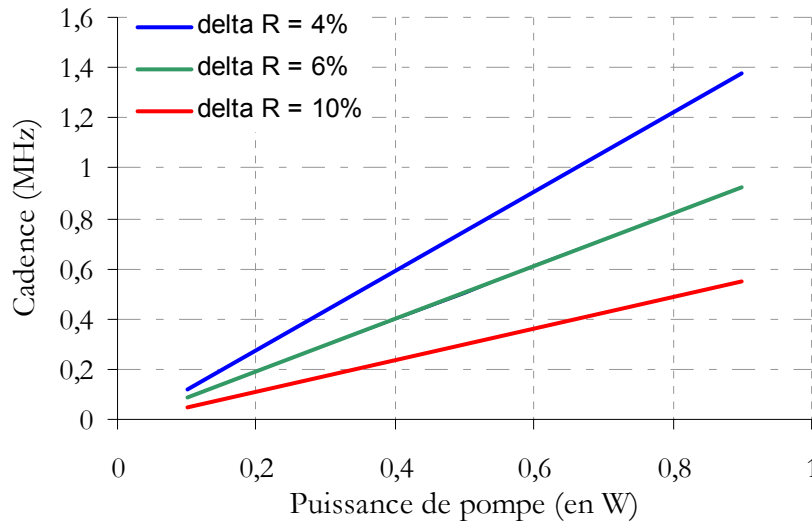


Figure II.6 : estimation de la cadence en fonction de la puissance de pompage du microlaser (voir texte pour les paramètres utilisés).

On s'aperçoit qu'il est possible d'atteindre la cadence recherchée avec une puissance de pompe raisonnable (inférieure au watt) pour peu que les pertes saturables ne soient pas trop importantes ($\Delta R < 10\%$).

I.2.3. Choix des paramètres

Nous avons vu dans l'étude théorique précédente que de nombreux paramètres sont susceptibles d'influencer la cadence et la durée des impulsions produites. Un facteur particulièrement sensible est la valeur des pertes saturables ΔR : elle doit être importante pour permettre d'obtenir des impulsions courtes, mais rester suffisamment faible pour donner accès à des taux de répétition élevés. Un autre point à ne pas négliger est d'ordre technologique: en effet il est difficile de faire croître avec succès des SESAMs de ΔR importants⁴⁰. Nous avons donc décidé de travailler avec des SESAM présentant des pertes saturables de 6%.

Nous pouvons définir la longueur de notre cavité laser pour obtenir des impulsions les plus courtes possibles. Le cristal laser devra cependant absorber suffisamment de rayonnement de pompe et être inséré mécaniquement entre le SESAM et un coupleur de sortie, ce qui nous oblige à ne pas considérer d'épaisseurs trop faibles, qui présenteraient des risques de bris trop important. Ceci nous amène à utiliser un cristal de 200 μm d'épaisseur. Ce cristal sera constitué d'une matrice de vanadate dopée par des ions néodyme ($\text{Nd}:\text{YVO}_4$), dont nous avons déjà vanté les qualités. Il est également possible d'optimiser les paramètres de pompage: en particulier on s'attachera à réaliser une pompe brillante (voir plus loin) pour augmenter le gain petit signal et ainsi obtenir une cadence de un mégahertz.

⁴⁰ Pour obtenir un grand ΔR il est nécessaire d'utiliser une grande épaisseur d'absorbant saturable, ce qui entraîne la création de défauts lors de la croissance en raison du désaccord de maille entre l'absorbant saturable et le substrat sur lequel il est déposé. Technologiquement, des valeurs de ΔR supérieures ou égales à 10% sont délicates à obtenir.

I.3. Configuration expérimentale

I.3.1. Le microlaser

Nous cherchons à réaliser une cavité la plus courte possible, c'est-à-dire de la taille du cristal laser puisque la pénétration dans le SESAM (quelques micromètres) peut être négligée. Pour cela, nous allons « prendre en sandwich » le cristal laser entre le SESAM d'une part (ce dernier est monté sur une pièce en cuivre pour optimiser l'évacuation de la chaleur) et un coupleur de sortie de transmission T_{out} d'autre part (voir figure II.7).

Il est à noter que lorsque le coupleur de sortie de transmission optimale aura été déterminé, il sera possible de travailler avec un miroir déposé directement sur le cristal, et ainsi de s'affranchir de la lame d'air nécessairement présente entre le cristal laser et le coupleur de sortie.

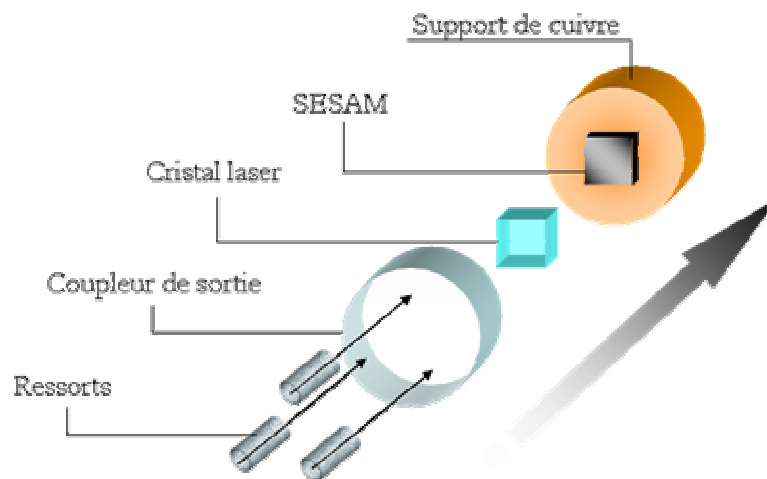


Figure II.7 : mise en place du microlaser. Le cristal est traité antireflet à 808 nm et 1064 nm sur ses deux faces. Le coupleur de sortie est traité antireflet à 808 nm et $T = 10\%$ à 1064 nm.

Les trois éléments sont maintenus en contact de façon mécanique par l'action de trois ressorts exerçant une pression sur le coupleur de sortie. En agissant indépendamment sur ces trois ressorts on peut ainsi contrôler l'angle entre le coupleur de sortie et le cristal et l'épaisseur de la lame d'air formée en observant les franges d'interférences en lumière blanche. Une fois le microlaser monté, on ne peut le pomper que via le coupleur de sortie. Le système de pompe sera décrit dans le paragraphe suivant. Afin de pouvoir extraire le faisceau laser qui se propage alors colinéairement à la pompe en sens inverse, on dispose sur le trajet du faisceau une lame séparatrice traitée de façon à avoir un coefficient de transmission élevé à la longueur d'onde de pompe (808 nm) et un coefficient de réflexion maximal (sous incidence de 45°) à la longueur d'onde laser (1064 nm). On peut ainsi extraire le faisceau perpendiculairement à l'axe du laser comme indiqué sur la figure II.8.

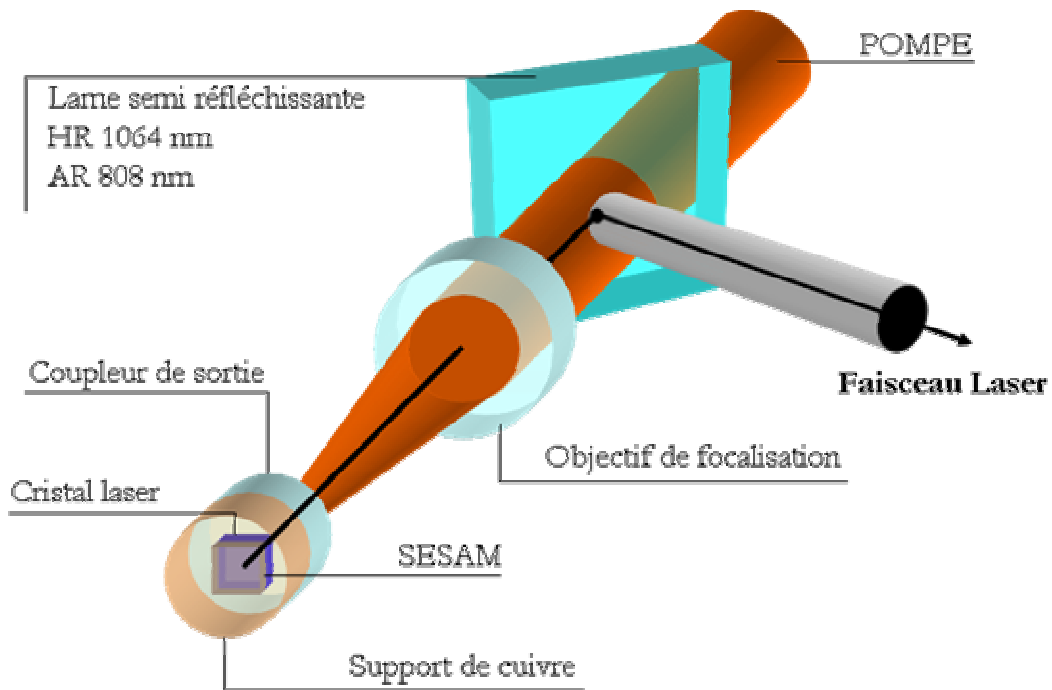


Figure II.8 : schéma de principe du microlaser pompé.

I.3.2. La pompe

Nous avons vu que la cadence du microlaser était en première approximation directement proportionnelle au gain petit signal, donc à la puissance de la pompe. Une étude plus fine [Druon 00] montre que le paramètre important n'est pas uniquement la puissance de pompe mais sa brillance⁴¹, définie par :

$$B = \frac{P}{\pi \left(\frac{\theta}{2} \right)^2 \pi r^2} \quad (\text{Eq. II.5})$$

où P est la puissance optique (en Watts), θ l'angle de divergence total du faisceau et r le rayon de la zone émettrice. B s'exprime donc en Watt par stéradian et par mètre carré.

Les diodes lasers fibrées permettant de bénéficier d'un faisceau circulaire et uniforme sans avoir à mettre en place tout un arsenal de lentilles cylindriques pour remettre en forme le faisceau : nous avons choisi par souci de simplicité d'utiliser une diode de ce type.

⁴¹ Le terme rigoureusement exact est « luminance », depuis que la CIE (Commission Internationale de l'Eclairage) l'a décidé en 1948 en refusant, probablement par souci de simplification, de traduire l'anglais « Brightness » par « brillance ». Cependant la luminance étant une grandeur *locale* par définition, on préfère en général braver la loi et utiliser le terme de brillance pour caractériser la puissance globale divisée par l'angle solide global et par la surface d'émission globale.

Nous avons cherché à obtenir une brillance importante. Il est bien sûr possible d'acheter une diode très brillante, mais en gardant à l'esprit que le système final doit être le moins cher et le plus compact possible, une « astuce » s'est imposée à nous : il faut d'abord se souvenir comme nous l'avons vu au chapitre I que la puissance de sortie du microlaser ne saurait dépasser quelques dizaines de milliwatts, et qu'il sera par conséquent impossible de faire l'économie d'un étage amplificateur. Ce dernier sera pompé par une diode laser puissante (autour de 20 W) afin d'amener l'énergie des impulsions à des hauteurs suffisantes pour pouvoir transformer efficacement notre infrarouge en ultraviolet. On peut alors quitter notre microlaser seul pour raisonner plus globalement en termes de système.

L'idée est alors de prélever une petite partie du faisceau de cette diode laser puissante pour pomper notre microlaser. La diode de pompe puissante dont nous parlons a les caractéristiques suivantes : une puissance de 20 W, une ouverture numérique de 0,2 et un diamètre de 200 μm , c'est-à-dire d'après l'équation (II.5) une brillance $B = 5.10^9 \text{ W sr}^{-1} \text{ m}^{-2}$. Supposons que l'on prélève 1/9ème de la surface du faisceau (correspondant à environ 1,5 W en tenant compte des pertes) : la divergence est conservée, la surface diminuée d'un facteur 9 et la puissance d'un facteur 13,3. D'après l'équation (II.5) la brillance est donc diminuée d'un facteur $13,3/9$ soit environ 1,5 : on arrive donc à $B = 3,33.10^9 \text{ W sr}^{-1} \text{ m}^{-2}$. La brillance obtenue est donc plus de six fois supérieure à la brillance des diodes utilisées jusqu'à maintenant pour de telles expériences [Braun 97]. De plus notre système permet d'économiser une diode laser – puisque la diode puissante de 20 W sera de toute façon utilisée pour pomper l'amplificateur – et d'augmenter de façon importante la compacité globale du système. La configuration de pompage est représentée sur la figure II.9.

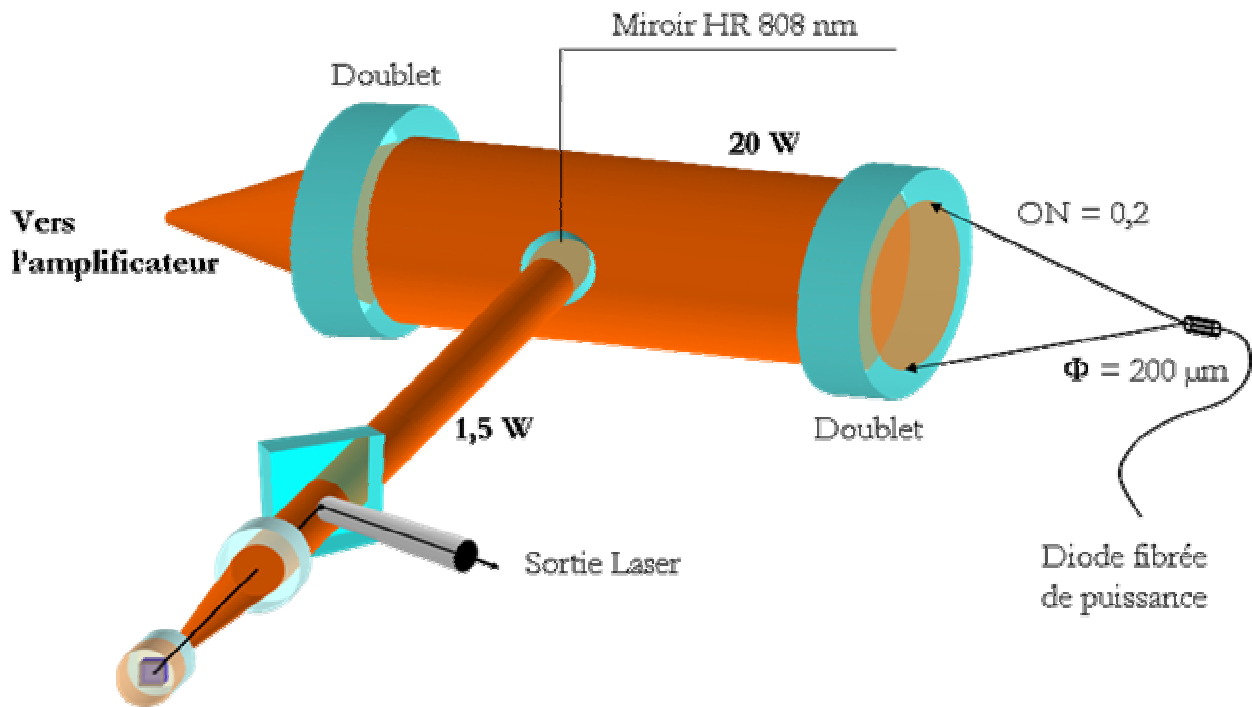


Figure II.9 : architecture globale du microlaser et de son système de pompage.

Forts de toutes ces considérations, nous allons maintenant passer en revue les résultats expérimentaux issus de la configuration retenue.

I.4. Résultats expérimentaux

Les caractéristiques du système mis en place sont résumées dans le tableau suivant :

Propriétés du microlaser à base de Nd :YVO ₄						Autres paramètres		
$\sigma_{\text{émission}}$ (cm ²)	Dopage (%)	L (μm)	τ (μs)	λ_1 (nm)	T _{out} (%)	ΔR (%)	P _{pompe} (W)	λ_p (nm)
$2,5 \cdot 10^{-18}$	2,5	200	50	1064	10	6	1	808

Tableau II.1 : principales caractéristiques du système utilisé.

Il est à noter que la plupart de ces paramètres ne sont connus qu'avec une incertitude assez importante : la section efficace d'émission σ est donnée à 10 % près au mieux, quant au dopage, il varie notablement en fonction des fabricants de cristaux. Nous avons choisi le dopage le plus élevé disponible afin que l'absorption soit suffisamment importante malgré la faible épaisseur du cristal : pour un dopage de 2,5%, l'absorption du Nd :YVO₄ peut être estimée à 80 cm⁻¹, ce qui correspond pour un cristal de 200 μm de long à une absorption de 80 % de la puissance de pompe. Le temps de vie de fluorescence vaut d'après la littérature 90 μs pour un dopage de 1%, 50 μs pour un dopage de 2% et aucune valeur n'est donnée pour un dopage de 2,5%. La puissance de pompe incidente sur le cristal est variable de 0 à 1W compte tenu de l'ensemble des pertes en ligne.

I.4.1. Cadence du microlaser

Le waist⁴² (systématiquement noté w dans la suite de ce mémoire) du faisceau de pompe dans le cristal laser peut être facilement ajusté du fait de la symétrie de révolution du faisceau de pompe : le rayonnement issu de la diode fibrée est collimaté par un doublet de 60 mm (voir figure II.9) avant d'être prélevé par le petit miroir plan puis focalisé dans le cristal par un objectif de microscope (représenté par une simple lentille sur la même figure par souci de légèreté). Nous avons testé deux objectifs de distances focales 43 mm et 23 mm respectivement pour vérifier les

⁴² Il existe une tension latente au sein de la communauté lasériste française sur l'emploi de cet anglicisme (tout du moins en ce qui concerne son utilisation dans les mémoires de thèse, son usage courant étant admis presque partout). De nombreuses traductions ont été proposées, chacune ayant en général les faveurs de son seul auteur et parfois de ses proches collaborateurs et de leurs familles. Citons en vrac : col, encolure, ceinture, gaine, gorge, taille, goulot, diabolito, pincement (ce dernier terme est employé dans les énoncés des problèmes des concours à l'entrée des grandes écoles, à l'exception de tout autre endroit!)... souvent associés à l'expression « rayon de... ». On pourrait aussi filer des métaphores plus géographiques et proposer « isthme » ou encore « détroit ». Dans ce mémoire, j'ai finalement choisi de ne pas ajouter une nouvelle espèce improbable à ce bestiaire et de me contenter du terme universellement compris « waist », au risque de me mettre à dos l'ensemble de l'Académie Française. Il faut vivre dangereusement.

prédictions du modèle théorique présenté précédemment. Rappelons la formule (II.4) donnant la cadence en fonction des différents paramètres du système :

$$C = \frac{\frac{2 \sigma_L \eta_p P_p \tau}{A h \nu_p} - (P + T_{out} + \Delta R)}{2 \tau \Delta R}$$

Il est facile de se convaincre numériquement que le second terme du numérateur est négligeable devant le premier pour des valeurs raisonnables de $A (= \pi w^2)$. On peut donc écrire que la cadence est à peu de choses près inversement proportionnelle à l'aire du faisceau de pompe dans le cristal : $C = \mathcal{K}/A$, où $\mathcal{K}$ est un facteur tenant compte de l'ensemble des paramètres autres que la dimension du faisceau. Le waist dans le cristal étant lui directement proportionnel à la distance focale f de la lentille de collimation, on a $C = \mathcal{K}'/f^2$ où $\mathcal{K}'$ est une nouvelle constante de proportionnalité. On s'attend donc à augmenter la cadence d'un facteur $(f_1/f_2)^2$ en passant d'une lentille de focalisation de focale f_1 à une lentille de focalisation de focale f_2 .

Dans notre cas, $f_1 = 43$ mm et $f_2 = 23$ mm et les cadences obtenues expérimentalement sont représentées sur la figure II.10. Les courbes théoriques sont tracées à partir de l'équation (II.4) avec les valeurs des paramètres définies dans le tableau II.1. Un objectif de distance focale f correspond à une taille de waist w dans le cristal laser de $w_{\text{diode fibrée}} \times f / f_{\text{doublet de collimation}}$, c'est-à-dire à $100 \mu\text{m} \times f/60$. Avec $f = 23$ mm et 43 mm on obtient $w = 38 \mu\text{m}$ et $72 \mu\text{m}$ respectivement.

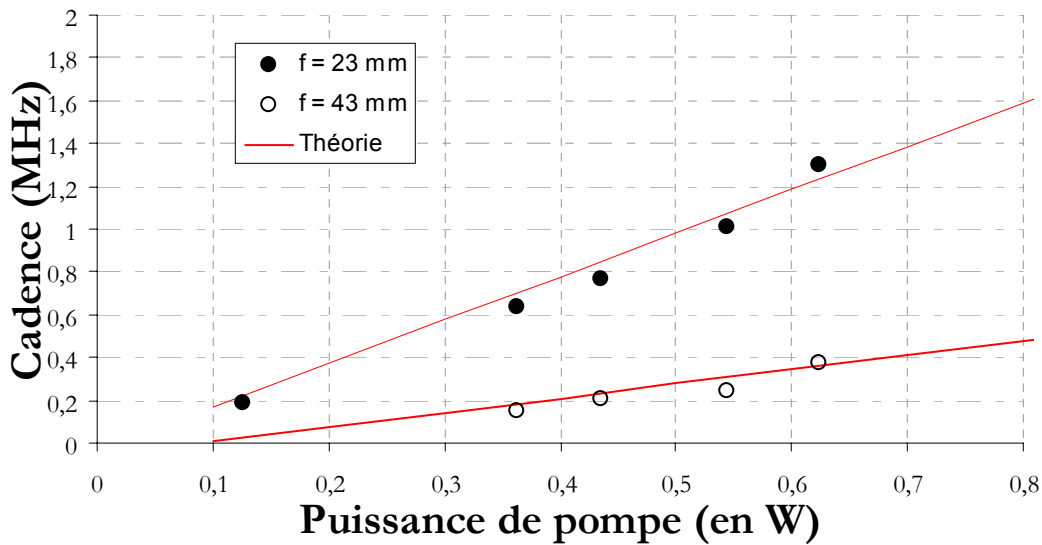


Figure II.10 : cadence du microlaser pour différentes focalisations. Les points représentent les valeurs expérimentales et les traits continus les valeurs théoriques données par l'équation II.4.

On observe que l'expérience et la théorie s'accordent convenablement : l'augmentation attendue de la cadence d'un facteur $(72/38)^2 = 3,6$ est globalement bien observée. Pour des puissances de pompe supérieures à 700 mW, la qualité de faisceau se dégrade sensiblement (voir plus loin). Dans l'absolu, il pourrait être intéressant de focaliser encore plus la pompe dans le cristal. Cependant, pour de banales mais capitales questions d'encombrement cela est impossible

(les frontales des objectifs de microscope utilisables sont alors trop courtes) sans revoir la mécanique de notre système, aussi nous contenterons nous de l'objectif de focalisation de distance focale 23 mm.

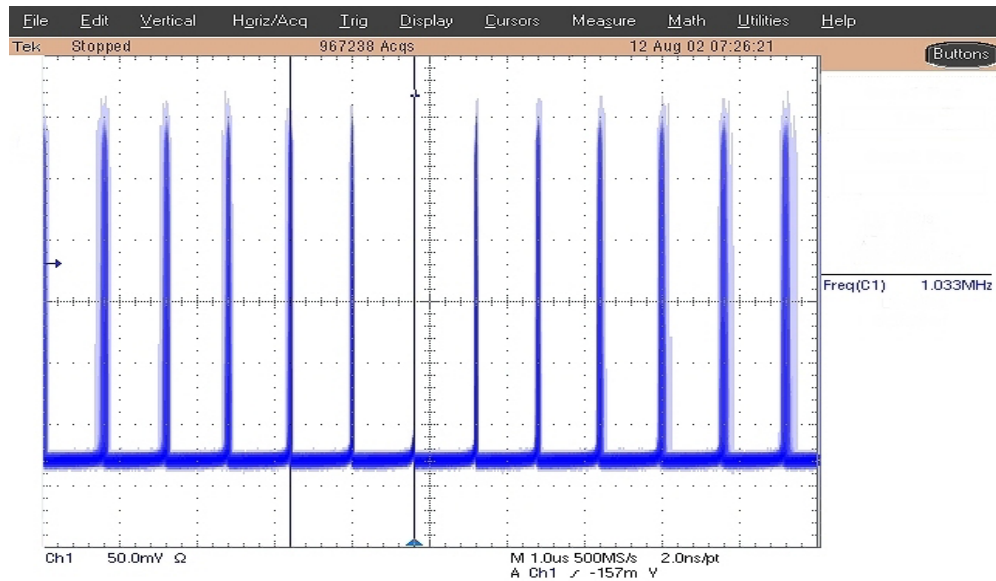


Figure II.11 : capture d'écran montrant un train d'impulsion à 1,033 MHz (oscilloscope Tektronix de bande passante 2,5 GHz).

Voyons maintenant un exemple de train d'impulsions obtenu à 1 MHz (figure II.11).

Un paramètre intéressant pour caractériser la stabilité est la gigue temporelle (« jitter » de l'autre côté de la manche) affichée par le microlaser, c'est-à-dire la mesure de la régularité de la cadence du microlaser. En effet, ce dernier étant déclenché passivement l'intervalle entre les impulsions créées n'est pas nécessairement exactement identique à chaque fois : l'impulsion « démarre » sur du bruit, qui fluctue donc comme tout bon bruit qui se respecte. Nous avons tracé l'histogramme correspondant à cette gigue sur la figure II.12 : la gigue temporelle mesurée est d'environ 22 ns, ce qui correspond à 2,2 % de la période du microlaser.

Nous obtenons donc un taux de répétition correspondant à nos attentes avec une stabilité acceptable : le contrat est pleinement rempli pour la clause « cadence ». Nous allons maintenant nous intéresser à la durée des impulsions produites.

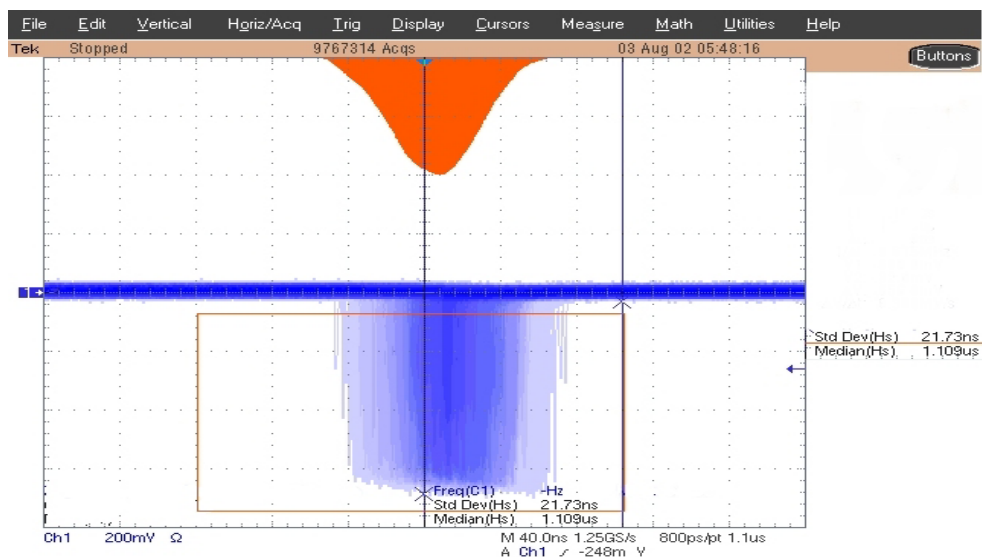


Figure II.12 : gigue temporelle du microlaser.

I.4.2. Durée des impulsions produites par le microlaser

Nous avons vu que la durée des impulsions émises par le microlaser, dans la limite des approximations utilisées pour notre modèle, ne dépendait que des niveaux de pertes (ΔR et T_{out}) et de la longueur du microlaser. En appliquant la formule approchée (équation (II.2)) on trouve $\Delta t = 153$ ps. Si on utilise la formule complète (équation. (II.1)) on obtient une valeur légèrement plus élevée de 173 ps.

Les durées d'impulsions mesurées expérimentalement (et déconvoluées de la fonction d'appareil⁴³) sont reportées sur la figure II.13.

On remarque immédiatement que, comme prévu, la durée des impulsions est pratiquement indépendante de la puissance de pompe. Par contre, il semble que les valeurs expérimentales soient très nettement au dessus (quasiment d'un facteur 2) de la valeur théorique. Il convient ici de s'interroger sur la méthode de mesure de la durée des impulsions : en effet, dans ce domaine de durées d'impulsions (quelques centaines de picosecondes) la mesure est délicate car on se trouve « en limite » des deux méthodes classiques⁴⁴. La première méthode serait

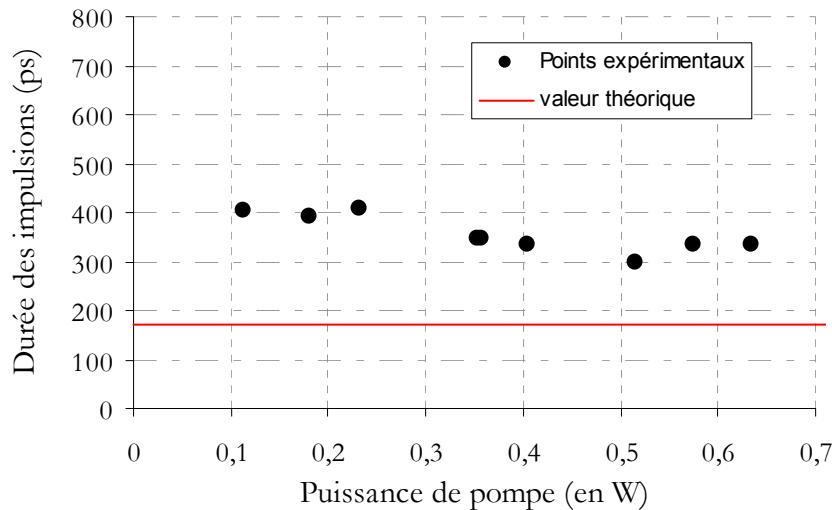


Figure II.13 : durée des impulsions produites par le microlaser utilisé. La droite théorique est obtenue à partir de l'équation II.1.

de réaliser une autocorrélation du signal. Cependant les autocorrélateurs sont généralement prévus pour mesurer des impulsions de quelques picosecondes : pour des impulsions cent fois plus longues un système permettant d'engendrer des décalages de plusieurs centimètres est nécessaire. De plus la mesure de la durée des impulsions dans une configuration donnée (par exemple pour une puissance incidente ou pour une orientation du microlaser) nécessite plusieurs dizaines de minutes, ce qui interdit tout contrôle « en direct ». Nous avons donc choisi – peut être à tort - de ne pas mettre en place un tel autocorrélateur au profit d'une solution plus rapide: la

⁴³ On utilise la formule $x = (X^2 - \Delta x^2)^{1/2}$ pour estimer la valeur vraie x d'une mesure X avec une fonction d'appareil Δx .

⁴⁴ Pour être exact, il existe également la caméra à balayage de fente qui permet de mesurer des durées d'impulsion de quelques picosecondes. Cependant son prix prohibitif place un tel appareillage hors de notre portée.

mesure directe par photodiode. Cette méthode nécessite un appareillage électronique (photodiode et oscilloscope) de bande passante très élevée. Notre système de mesure (oscilloscope de 2,5 GHz de bande passante et photodiode rapide de temps de montée 50 ps), bien que très performant, a une réponse percussionnelle⁴⁵ de 200 ps environ : bien que les valeurs données sur la figure II.13 résultent d'une déconvolution on voit qu'on atteint la limite de cette méthode de mesure et que la confiance accordée au résultat doit être tempérée.

Il faut également noter que le modèle utilisé ne tient pas compte d'un certain nombre de phénomènes physiques (comme par exemple le brûlage de trous dans l'espace, ou « spatial hole burning » pour les grand bretons, ou encore le préblanchiment éventuel de l'absorbant saturable), et que des incertitudes subsistent sur la longueur L de la cavité (on ne connaît pas l'épaisseur des deux lames d'air entourant le cristal laser), sur les pertes saturables (on doit ici faire confiance au fabricant du SESAM⁴⁶) et sur la forme de l'impulsion (le facteur S_p de l'équation (II.1) vaut 0,88 avec un profil en sécante hyperbolique au carré, et 0,94 avec un profil gaussien).

Au vu de notre cahier des charges, les impulsions obtenues semblent un peu trop longues : cependant en prenant un peu d'avance on peut anticiper une réduction importante de cette durée lors des différents étages non-linéaires que nous décrirons au chapitre IV (en théorie, un raccourcissement d'un facteur $\sqrt{2}$ est attendu pour le doublement de fréquence par exemple). On peut ainsi espérer atteindre dans l'ultraviolet des impulsions de moins de 200 ps de durée, ce

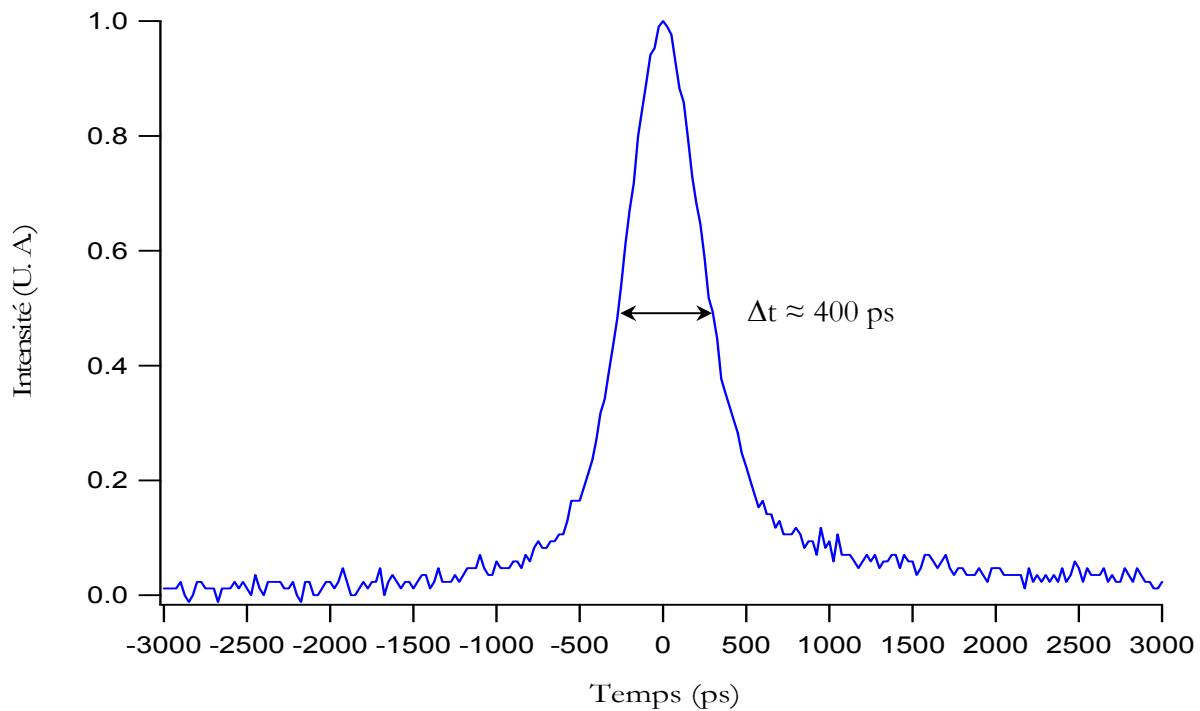


Figure II.14 : profil temporel d'une impulsion.

qui permet de satisfaire aux exigences du cahier des charges.

⁴⁵ Cette mesure a été effectuée avec un laser femtoseconde produisant des impulsions de moins de 100 fs.

⁴⁶ L'expérience nous a montré que la technologie de fabrication des SESAM est très délicate et modérément maîtrisée par la société (BATOP GmbH, ex-Wolfgang Richter Optoelectronics) chez laquelle nous nous sommes approvisionnés.

I.4.3. Énergie des impulsions

L'énergie des impulsions est obtenue en divisant la puissance moyenne mesurée par la cadence. Lorsque l'on augmente la puissance de pompe, on augmente la puissance moyenne et la cadence simultanément, ce qui fait que l'énergie reste globalement constante. En réalité l'énergie augmente avec la puissance de pompe (figure II.15) : ce phénomène est également observé par le groupe de Keller [Spühler 99], qui l'explique en émettant l'hypothèse selon laquelle la surface pompée devient légèrement plus importante lorsque la puissance de pompe augmente en raison des effets thermiques présents dans le microlaser : c'est alors la densité d'énergie qui reste constante.

Les énergies que nous obtenons sont relativement faibles, de l'ordre de 60 nJ (figure II.15). La puissance moyenne correspondante est de 60 mW et la puissance crête de 150 W. Cette valeur assez décevante (la théorie permet d'espérer plus de 200 nJ) peut être expliquée par la non-prise en compte d'effets parasites déjà mentionnés (hole burning spatial, effets thermiques...) et par le fait que notre microlaser n'est pas « fait pour » extraire beaucoup de puissance : en effet, les différents paramètres (choix du cristal, ΔR , T_{out} et $f_{\text{focalisation}}$ principalement) ont été choisis pour satisfaire à des conditions données sur le taux de répétition et sur la durée des impulsions. Pour

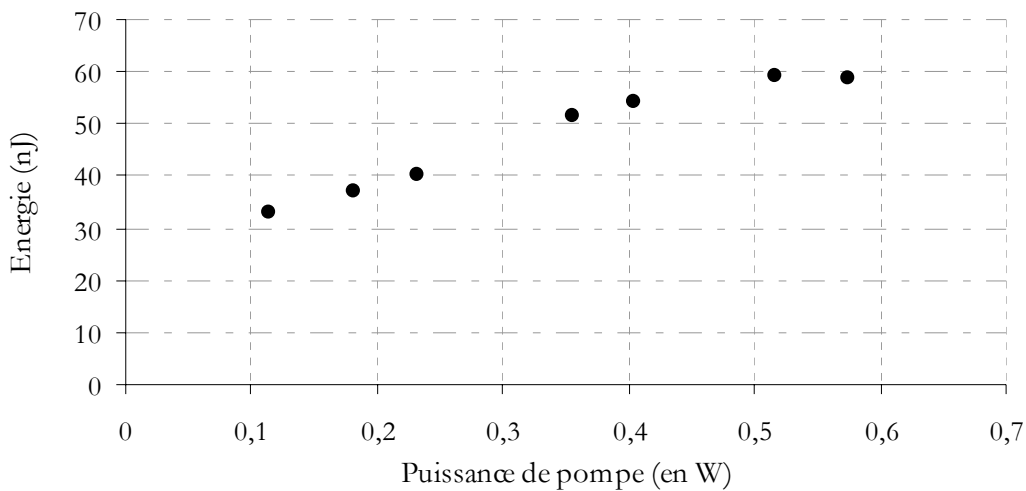


Figure II.15 : énergie des impulsions issues du microlaser.

optimiser l'énergie par impulsion, on peut montrer [Zayhowski 91b] qu'il faut utiliser un cristal de faible section efficace, utiliser un grand ΔR , et « pomper gros », c'est-à-dire augmenter la taille du faisceau de pompe dans le cristal. On se rend compte en observant la formule donnant la cadence (équation (II.4)) que ces trois conditions concourent à *diminuer* le taux de répétition du microlaser !

On sait par ailleurs (cf. Chapitre I) que même avec 200 nJ en sortie du microlaser – *i.e.* 200 mW de puissance moyenne à 1 MHz – on ne pourra pas se passer d'un étage amplificateur. On verra par la suite que ce dernier travaillera en régime saturé et sera donc très peu sensible à la puissance incidente : il n'est donc pas gênant pour nous de partir d'impulsions faiblement énergétiques.

I.4.4. Qualité spectrale et spatiale du faisceau issu du microlaser

Etant donné la longueur extrêmement faible du milieu amplificateur, l'écart spectral entre deux modes successifs de la cavité est de $c/2L = 750$ GHz, ou encore 2,83 nm. Cette valeur est très supérieure à la largeur de la courbe de gain du Nd:YVO₄ (généralement estimée à moins de 1 nm) : le microlaser est donc *monomode longitudinal*. Reste à déterminer s'il est également monomode transverse.

Pour des faisceaux d'allure gaussienne, le facteur M^2 est le paramètre généralement employé pour estimer la qualité spatiale d'un faisceau laser donné. Arrêtons nous quelques instants sur ce facteur. Le M^2 mesure « de combien de fois » le faisceau observé diverge plus qu'un faisceau gaussien parfait⁴⁷ (TEM₀₀) de même waist : on a $M^2 = \theta_{\text{mesuré}} / \theta_{\text{gaussien}}$ et comme $\theta_{\text{gaussien}} = \lambda / \pi w_0$ il vient $M^2 = \pi w_0 \theta_{\text{mesuré}} / \lambda$. Le calcul du M^2 revient donc à mesurer la divergence et le waist d'un faisceau donné. Ce paramètre est à prendre avec des pincettes, notamment en raison de la forte imprécision résultant de la méthode de mesure utilisée en pratique : il s'agit de mesurer la taille du waist à différentes positions via une caméra CCD dans notre cas. La précision de la mesure du waist est liée à la dimension des pixels de la caméra (13,5 μm) : dans l'écrasante majorité des cas pratiques le waist mesure une centaine de micromètres au foyer d'une lentille de focale raisonnable (moins d'un mètre) : on s'aperçoit alors que le M^2 ne peut être considéré que comme une indication et pas comme une mesure exacte de la qualité du faisceau. En particulier il est généralement illusoire de donner une valeur de M^2 avec deux chiffres après la virgule...

Nous avons mesuré le M^2 du faisceau issu du microlaser (figure II.16). Lorsque la puissance de pompe est faible, le faisceau de sortie est quasiment limité par la diffraction. Mais lorsque la puissance de pompe devient plus importante, le M^2 augmente jusqu'à valoir 2 à puissance de pompe maximale. La forme du faisceau souffre également comme on peut le voir sur la figure II.17. Cette dégradation s'explique par la présence d'effets thermiques dans le laser sous fort pompage : le cristal de Nd:YVO₄ n'est pas refroidi, et la chaleur s'évacue mal tant via le coupleur de sortie (en verre, donc de conductivité thermique très faible) que via le SESAM.

⁴⁷ Un tel faisceau de référence est dit « limité par la diffraction », ce qui amène à souvent écrire qu'un faisceau donné est « M^2 fois » limité par la diffraction.

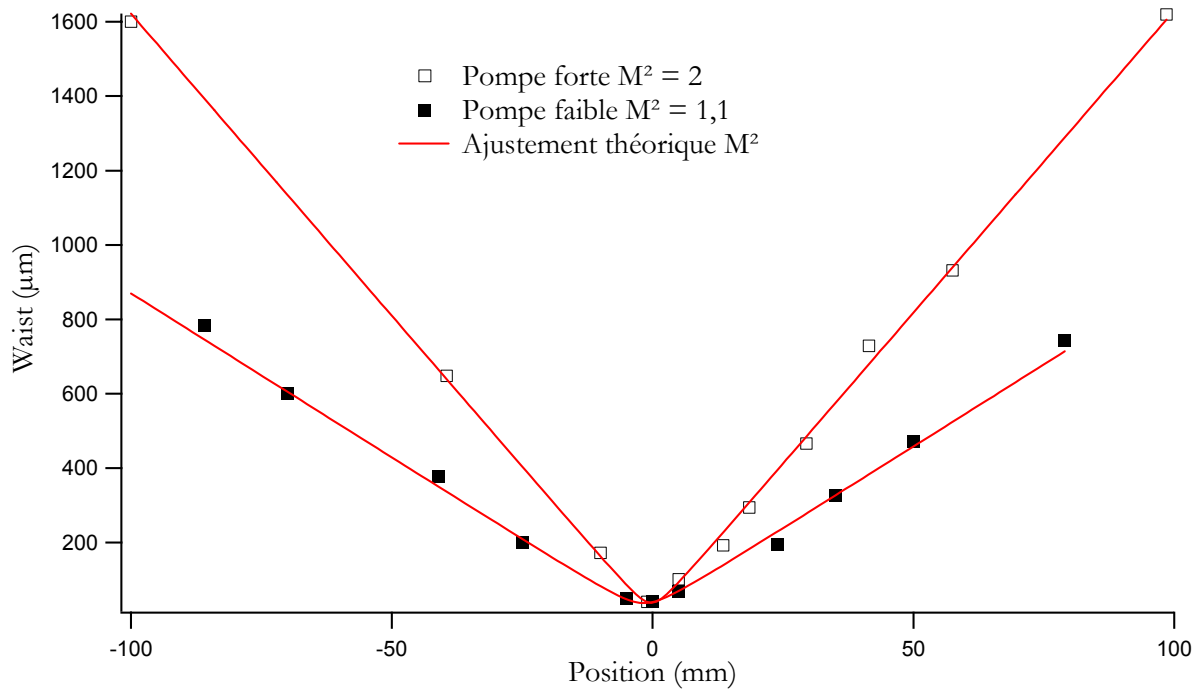


Figure II.16 : mesure du paramètre M^2 pour deux puissances de pompe différentes (Pompe forte = 700 mW, Pompe faible = 400 mW).

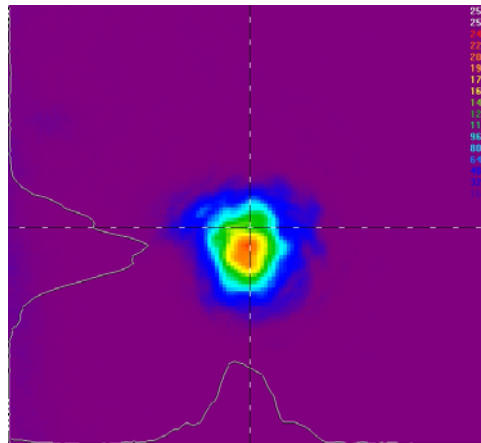


Figure II.17 : profil spatial du faisceau issu du microlaser sous fort pompage.

I.4.5. Conclusion

Résumons dans ce paragraphe l'ensemble des résultats obtenus avec notre microlaser :

- La cadence est variable avec la puissance de pompe entre 200 kHz et 1,3 MHz.
- La durée des impulsions est d'environ 400 ps.
- L'énergie est de 60 nJ par impulsion. La puissance crête est donc de 150 W.
- Le faisceau de sortie n'est pas limité par la diffraction ($M^2 \approx 2$).

Si on compare ces résultats avec le cahier des charges présenté dans le premier chapitre, on s'aperçoit que l'on satisfait pleinement à la condition sur la cadence, que les impulsions sont un peu longues mais acceptables (la conversion de fréquence entraînera une forte diminution de la durée des impulsions), que l'énergie est trop faible, et enfin que la qualité du faisceau est très moyenne, ce qui est susceptible de réduire fortement les rendements de conversion non linéaires. Le dernier point capital est la compacité : on peut observer sur la photo II.1 ci-dessous que le système n'occupe pas plus de quelques dizaines de cm^2 .

En conclusion, nous allons pouvoir utiliser ce microlaser pour mener à bien notre quête de rayonnement UV haute cadence si nous parvenons à améliorer les deux « points noirs » que sont la qualité de faisceau et la puissance : à suivre au chapitre III...

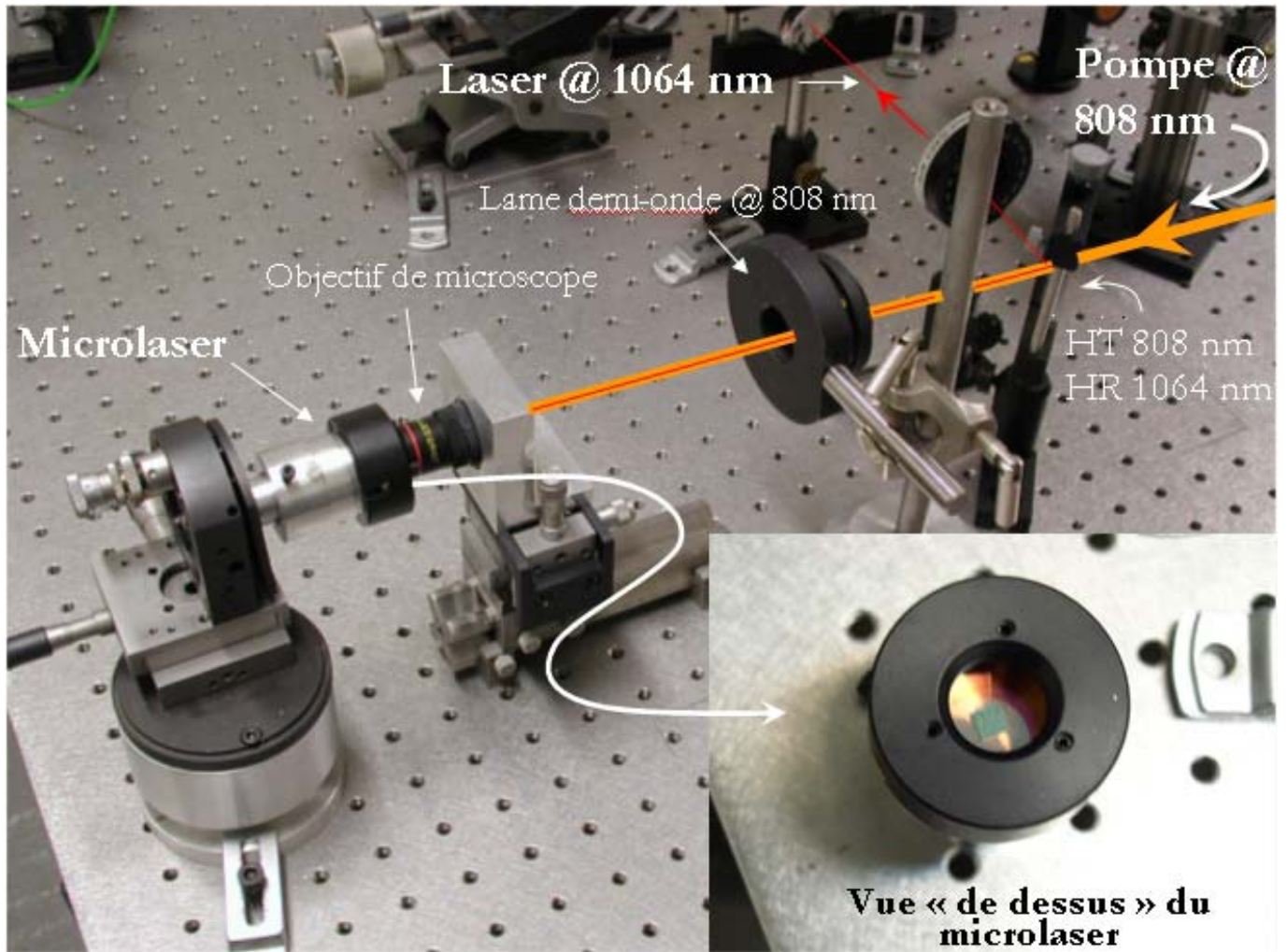


Photo II.1 : microlaser déclenché. En insert, une vue de face permet de distinguer le cristal posé sur le SESAM. Avec de bons yeux – et une version couleur – on distingue même les franges correspondant à la lame d'air entre les deux composants.

En attendant, nous allons nous intéresser à une autre source susceptible de produire des impulsions bien plus courtes (quelques picosecondes), plus énergétiques, à la bonne cadence et avec un faisceau limité par la diffraction. Nous allons maintenant étudier cet oiseau rare, j'ai nommé le laser à verrouillage de modes à cavité géante ou « l'hectolaser »...

II. Laser à verrouillage de modes à cavité géante

II.1. Principe

Les lasers à verrouillage de modes constituent l'autre grande famille de lasers impulsionnels. Ce régime de fonctionnement est totalement différent du régime déclenché. Nous allons en quelques mots décrire son principe.

Dans une cavité laser exempte de toute non-linéarité autre que le milieu laser lui-même, un pompage continu produit un rayonnement continu, affecté de fortes fluctuations dues principalement aux interférences entre les différents modes longitudinaux du laser ayant entre eux des relations de phase aléatoires.

La base du régime à verrouillage de mode consiste à contrôler parfaitement les phases de tous les modes susceptibles d'osciller dans une cavité laser donnée : en effet, si on arrive à maintenir constants dans le temps les déphasages entre modes on peut produire un train périodique d'impulsions avec une période directement proportionnelle à la longueur de la cavité laser et des impulsions très courtes (bien plus courtes que le temps d'aller-retour dans la cavité cette fois). Mais voyons ceci un peu plus en détails.

Le fonctionnement en verrouillage de modes nécessite qu'un grand nombre de modes oscillent dans la cavité⁴⁸. Ces modes sont décalés en fréquence de l'intermode de la cavité, soit $\Delta\nu = c/2L$ où L est la longueur de la cavité et c la vitesse de la lumière.

Ecrivons le champ électrique total en un point donné de la cavité laser :

$$E(t) = \sum_m E_m(t)$$

où la sommation s'étend sur N modes oscillants et $E_m(t)$ est le champ électrique associé au mode m qui s'écrit :

$$E_m(t) = \varepsilon_m e^{i(2\pi\nu_m t + \varphi_m)}$$

Avec ε_m l'amplitude du mode m , ν_m la fréquence sa fréquence ($\nu_m = m \times c/2L$) et φ_m sa phase.

Si on suppose pour simplifier que $\varepsilon_m = \varepsilon$ pour tout m (les résultats obtenus sont essentiellement les mêmes si on ne fait pas cette hypothèse, mais les calculs sont plus lourds) et qu'on arrive par un moyen quelconque⁴⁹ à faire en sorte que tous les modes soient en phase ($\varphi_m = \varphi$) on a alors :

$$E(t) = \varepsilon e^{i\varphi} \sum_{m_1}^{m_1+N-1} e^{\frac{i\pi m_1 c t}{L}}$$

ou encore après un simple changement de variable :

$$E(t) = \varepsilon e^{i\varphi} e^{\frac{i\pi m_1 c t}{L}} \sum_{k=0}^{N-1} e^{\frac{i\pi k c t}{L}}$$

⁴⁸ C'est pourquoi les lasers Ti:Sa, dont le milieu à gain possède une bande spectrale extrêmement large, sont utilisés extensivement en régime de modes bloqués pour produire des impulsions ultra courtes (femtosecondes). Néanmoins des milieux à bandes spectrales plus étroites, comme le Nd:YAG, peuvent également être utilisés dans ce mode de fonctionnement : les impulsions produites seront simplement plus longues (picosecondes).

⁴⁹ Comme pour les lasers déclenchés, on peut utiliser des systèmes actifs (modulateur acousto-optique par exemple) ou passifs (absorbants saturables) pour favoriser le fonctionnement impulsionnel.

on en déduit finalement :

$$E(t) = \mathcal{E} e^{i\varphi} e^{\frac{i\pi m_1 c t}{L}} \frac{e^{\frac{i N \pi c t}{2L}} \sin \frac{N \pi c t}{2L}}{e^{\frac{i \pi c t}{2L}} \sin \frac{\pi c t}{2L}}$$

comme la puissance moyenne du laser est proportionnelle à $E(t) E^*(t)$, on peut écrire que :

$$P(t) = P_0 \frac{\sin^2 \frac{N \pi c t}{2L}}{\sin^2 \frac{\pi c t}{2L}} \quad (Eq. II.6)$$

où P_0 est la puissance d'un seul mode.

On voit immédiatement avec cette expression que la puissance est émise sous forme d'un train d'impulsions de période $2L/c$ donc avec une cadence de $c/2L$. La durée des impulsions est approximativement donnée par l'écart entre la position du maximum de l'impulsion et la position du premier zéro : $\Delta t \approx 2L/cN$. Comme le nombre N de modes susceptibles d'osciller est sensiblement égal au rapport entre la largeur spectrale de la courbe de gain et l'écartement des modes ($N \approx \Delta\nu/(c/2L)$), il vient : $\Delta t \Delta\nu \approx 1^{50}$. On peut montrer de manière plus rigoureuse que pour des impulsions de forme gaussienne cette expression s'écrit $\Delta\nu \Delta t = 0,44$. Lorsque cette égalité est vérifiée, on dit que les impulsions sont « limitées par la transformée de Fourier ».

La durée des impulsions est donc inversement proportionnelle au nombre de modes capables d'osciller, c'est à dire à la largeur de la courbe de gain : si le milieu amplificateur est un cristal de saphir dopé au titane ($\Delta\nu \approx 100$ THz), on trouve $\Delta t \approx 4,4$ fs (il s'agit de la limite théorique que l'on peut atteindre). Si on utilise un milieu à bande plus étroite comme le Nd:YVO_4 ($\Delta\nu \approx 200$ GHz) on obtient $\Delta t \approx 2$ ps comme limite théorique. De nombreux phénomènes physiques malins (effets thermiques, dispersion, diffraction...) sont en mesure de nous éloigner de cette limite théorique, mais nous voyons que même si Δt est 10 fois supérieur à cette valeur les durées des impulsions susceptibles d'être produites par un laser Nd:YVO_4 à verrouillage de modes cadrent tout à fait avec nos objectifs. Reste à voir ce qu'il en est de la cadence...

Nous venons de voir que la cadence C vaut $c/2L$. Etant donné que la mode actuelle adoptée par la plupart des physiciens est de s'opposer formellement et par principe à toute variation de la vitesse de la lumière⁵¹, le seul paramètre sur lequel on peut agir à notre guise se trouve être la longueur L de la cavité laser. Pour des longueurs de cavités compatibles *a priori* avec une expérience de laboratoire (disons au maximum 5 mètres), on trouve une cadence supérieure à 30 MHz. Pour atteindre 1 MHz, il faut donc réaliser une cavité trente fois plus longue, c'est à dire de 150 mètres.

⁵⁰ Cette relation n'est rien d'autre qu'une manifestation du principe d'incertitude d'Heisenberg.

⁵¹ A. Einstein, « Sur l'électrodynamique des corps en mouvement », introduction, in *Annalen der Physik*, 4-17, 1905, pp. 891-921. Traduction française de M. Solovine. Paris, Gauthier-Villars, réédition 1965.

On peut imaginer plusieurs façons de réaliser une telle cavité géante. Une solution *a priori* séduisante est d'utiliser une bobine de fibre optique pour obtenir facilement un trajet de plusieurs centaines de mètres avec un encombrement réduit. Cependant la puissance crête atteinte par les impulsions dans un tel laser à cadence réduite est très supérieure au « seuil non-linéaire » des fibres optiques, c'est-à-dire au-delà duquel des effets non-linéaires gênants tel que l'effet Raman sont susceptibles d'apparaître. Une autre suggestion consiste à disposer des miroirs aux quatre coins de l'Institut d'Optique, mais cette solution pourtant attirante n'a pas reçu l'aval des autorités compétentes.

Enfin, ce type de cavité ultra-longue peut être réalisé par la mise en place d'un système de multipassages inséré dans la cavité permettant d'en augmenter la longueur sans trop faire varier son encombrement au sol. Cette technique est largement utilisée, en particulier pour réaliser des lignes à retard ou pour mesurer des absorptions faibles dans des cellules de gaz. Le principe de ces cavités multipassages a été exposé pour la première fois par Herriott et Kogelnik en 1965 [Herriott 65] : il s'agit de deux miroirs concaves placés en vis-à-vis et séparés par une distance donnée (voir figure II.18). Le faisceau est injecté (via un trou percé dans le miroir d'entrée) de façon à ce qu'il frappe le premier miroir ailleurs qu'en son centre. Le faisceau va alors parcourir un trajet entre les deux miroirs qui va faire décrire une ellipse aux points d'impact successifs sur ces derniers. Au bout d'un nombre de passages donné le faisceau est extrait via un autre trou dans le miroir de sortie. La propagation est comparable au passage dans un réseau périodique de lentilles et peut être décrite par le formalisme des matrices ABCD : le système est alors défini de façon à ce que le rayon de courbure complexe soit invariant par passage dans la cavité multipassage [Cho 99] et n'affecte donc pas la géométrie de la cavité, ce qui est particulièrement important pour les lasers femtosecondes basés sur le verrouillage de modes par effet Kerr. L'utilisation d'un tel système a conduit Cho et al. à des cadences de 15 MHz [Cho 99] puis 4 MHz [Cho 01] avec un laser Ti :Sa femtoseconde (voir figure II.18).

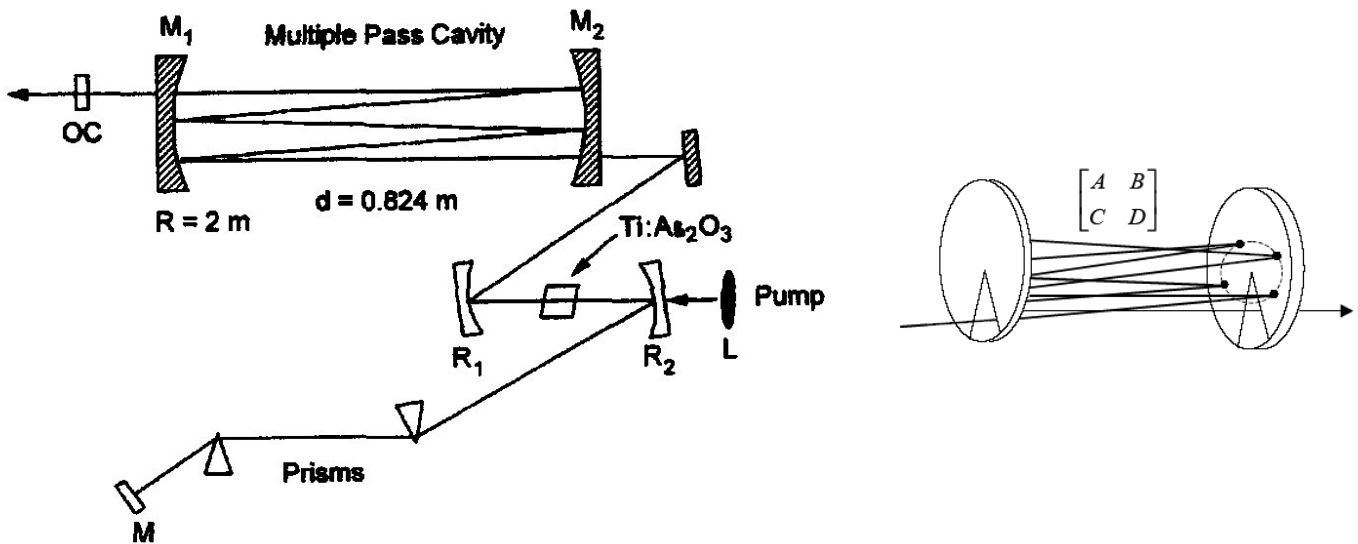


Figure II.18 : schéma de principe du laser femtoseconde basse cadence décrit par Cho et al. [Cho 99]. À droite on a représenté le principe général d'une cavité multipassage de type Herriott.

Nous avons mis au point⁵² une version plus élaborée de la cavité multipassage afin de pouvoir atteindre une cadence encore plus basse: il s'agit simplement de « replier » la cavité avec deux miroirs plans (voir figure II.19). Cette configuration permet d'augmenter de façon arbitraire

⁵² Cette mise au point doit énormément au doigté de Dimitris Papadopoulos, qui vint faire un séjour de 6 mois dans notre laboratoire dans le cadre du programme européen Marie Curie : qu'il en soit ici remercié !

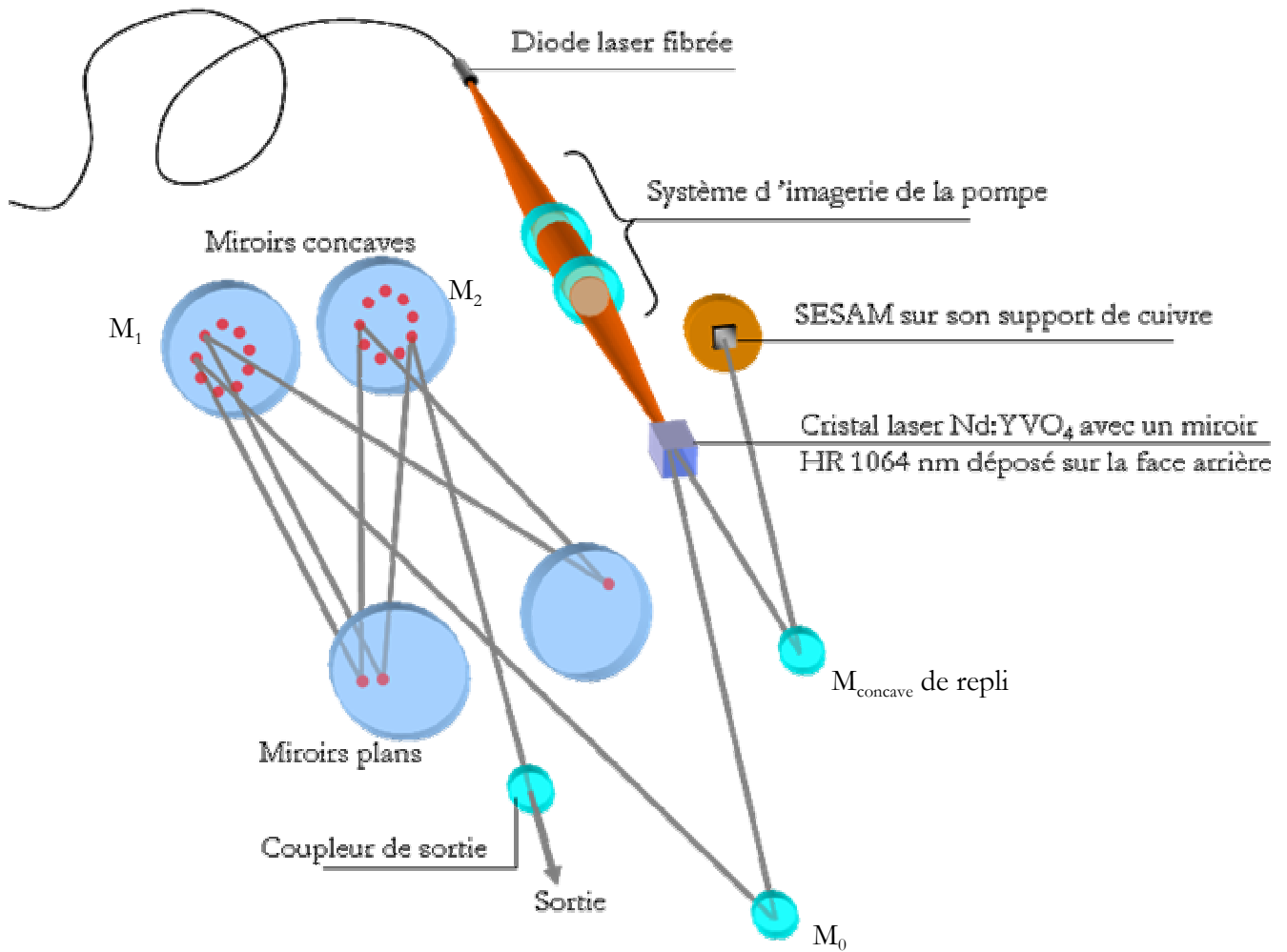


Figure II.19 : schéma de principe de notre laser à verrouillage de modes à cavité ultra-longue.

le nombre de passage en jouant sur l'orientation des miroirs plans, donnant ainsi une liberté inexistante avec une cavité « de type Herriott » classique (où le nombre de passage est fixé par la distance entre les miroirs et les conditions d'entrée du faisceau dans la cavité). La matrice ABCD globale n'est dans ce cas plus unitaire, mais on peut montrer en utilisant un logiciel de simulation de propagation de faisceau gaussien que les propriétés du faisceau ne sont pas trop changées après passage dans la cavité multipassage (figure II.20) : les tailles de faisceaux ne varient pas trop lorsqu'on ajoute des passages, la structure de propagation restant globalement périodique. Les points importants pour la stabilité de l'ensemble sont les rayons des faisceaux sur le SESAM et dans le cristal : on peut montrer que ces rayons augmentent avec le nombre de passage (on n'a pas une transformation unitaire), mais de façon très raisonnable comme on peut le voir sur la simulation représentée figure II.21.

Voyons de façon plus détaillée ce qui se passe dans notre cavité : le faisceau incident est collimaté (en pratique, on réalise un laser de cavité très courte qui sert de faisceau d'alignement pour la cavité finale) et injecté dans notre cavité multipassage. Le faisceau est focalisé par le premier miroir concave M_1 (de rayon de courbure 2 m) sur un des miroir plans (on ajuste la distance entre les deux miroirs à environ 1 m). Le faisceau est alors renvoyé sur le second miroir concave M_2 , puis est dirigé (collimaté) vers l'autre miroir plan... Et ainsi de suite.

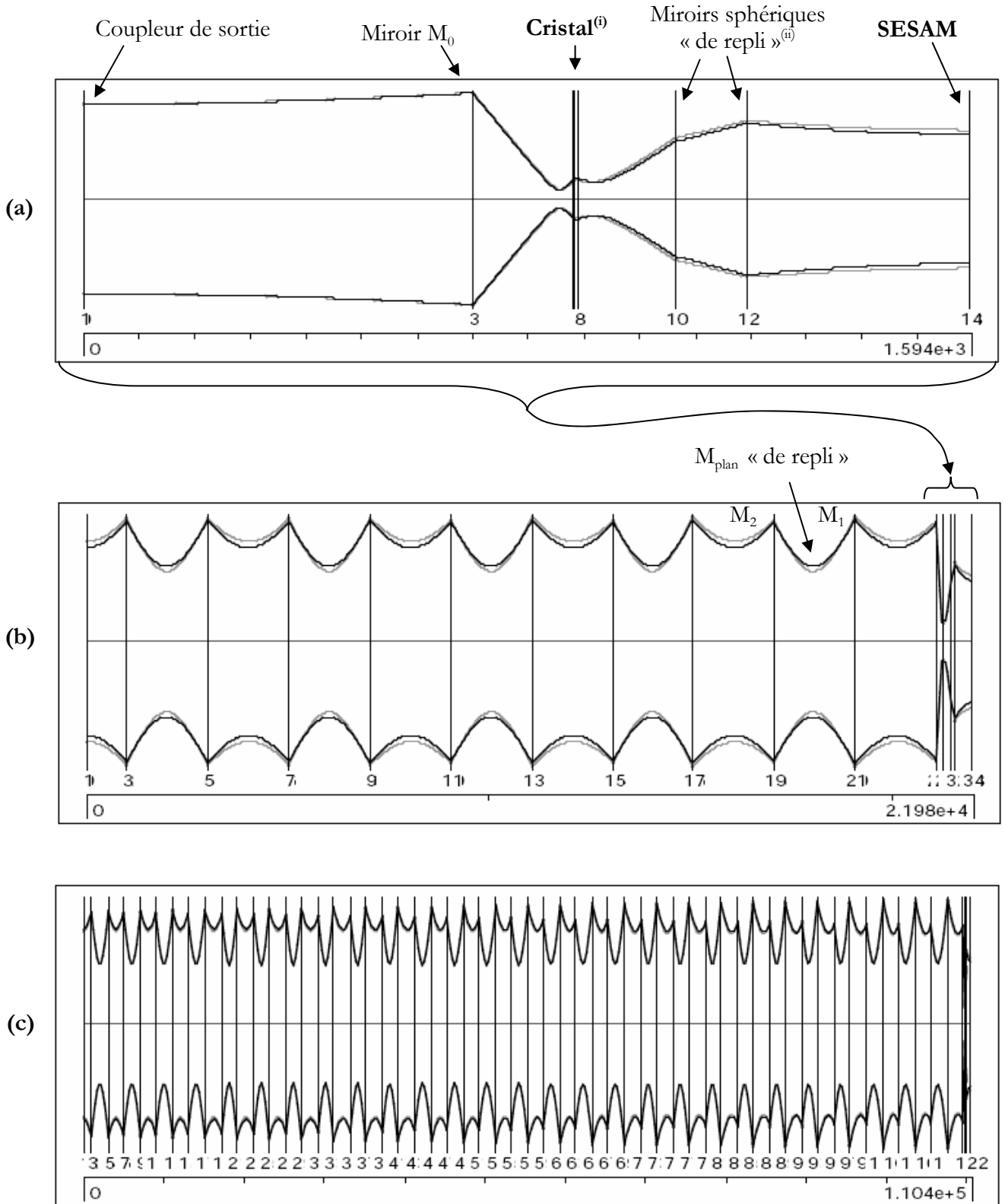


Figure II.20 : simulation (réalisée sur le logiciel Paraxia) de l'évolution de la géométrie du faisceau dans la cavité multipassage : (a) cavité courte (2m) – (b) cavité moyenne (21 m) – (c) cavité longue (110 m).

(i) une lentille thermique de 50 mm (mesurée expérimentalement) est placée au centre du cristal pour la simulation.
(ii) sur la figure II.19 on a représenté un seul de ces deux miroirs par souci de simplicité...

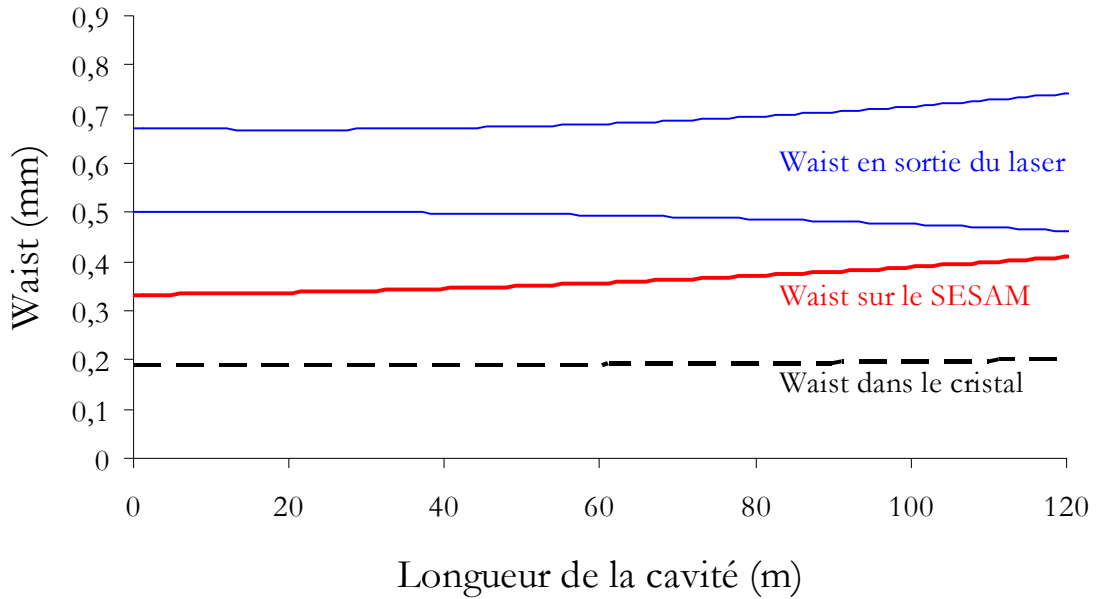


Figure II.21 : évolution des tailles des faisceaux en différents endroits de la cavité en fonction de la longueur de cette dernière.

Le faisceau de sortie est extrait entre les deux miroirs plans (à l'endroit où s'est faite l'entrée, voir figure II.19) : le waist du faisceau de sortie dépend de la provenance de la dernière réflexion sur les miroirs concaves. Ce waist vaut environ $500\ \mu\text{m}$ ou environ $700\ \mu\text{m}$ suivant que le faisceau de sortie vient de M_1 ou de M_2 respectivement (voir figure II.21) : expérimentalement, c'est le premier cas qui est généralement observé.

Le contrôle apporté par les miroirs plans permet de réaliser un nombre de passage arbitrairement grand en réinjectant le faisceau à chaque fois dans la cavité, et en multipliant ainsi les ellipses caractéristiques d'une cavité multipassage (voir photo II.2). La limite au nombre de passage est en théorie uniquement fixée par les pertes de la cavité. En effet, le nombre d'impacts total sur l'ensemble des miroirs dépasse largement la centaine : des miroirs de réflectivité la plus proche possible de 1 sont donc nécessaires (pour notre expérience la réflectivité spécifiée par le fabricant est supérieure à 99,9 % à $1064\ \text{nm}$). Dans le cas contraire, les pertes deviennent trop importantes au bout d'un certain nombre de passages pour permettre au laser de fonctionner.

On peut également remarquer que dans notre cas il n'est pas nécessaire de percer les

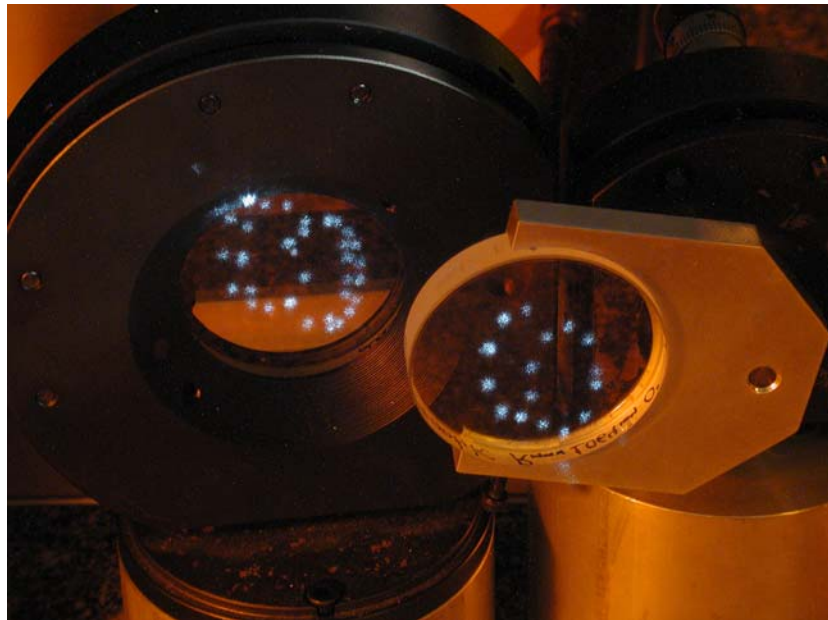


Photo II.2 : impacts en forme d'ellipse des différents trajets sur les miroirs concaves.

miroirs (ce qui est le cas pour les cavités de type Herriott, comme on peut le voir sur la figure II.18), puisque la sortie et l'entrée se font *entre* les miroirs plans (voir figure II.19).

II.2. Dimensionnement théorique

Le cristal utilisé dans notre système est un cristal de Nd :YVO₄ de 6 mm de long, dopé à 0,1% (ce qui permet d'absorber environ 90 % de la puissance de pompe). Le faible dopage utilisé permet de gérer au mieux les effets thermiques dans le cristal (nous reviendrons plus en détails sur ce point au chapitre III). Le pompage se fait via une diode fibrée fournissant jusqu'à 15 W à 808 nm, avec un diamètre de fibre de 400 µm et une ouverture numérique de 0,2. Le verrouillage des modes en phase est assuré – de façon passive - par un SESAM de pertes saturables $\Delta R = 6\%$. Ce dernier nous est fourni par la société allemande Batop GmbH.

Etant donné la faible cadence que nous cherchons à atteindre, nous allons fatalement avoir à faire à des puissances crêtes bien plus élevées que celles habituellement rencontrées pour de tels lasers. Il faut donc porter une attention spéciale au choix du SESAM et à la taille du faisceau sur ce dernier, afin que les conditions nécessaires au bon fonctionnement du verrouillage de modes soient satisfaites :

- Condition 1 : le régime doit se stabiliser à partir de l'amplification d'une fluctuation aléatoire du champ électrique.
- Condition 2 : le fonctionnement doit être du « verrouillage de modes continu » (« cw mode locking ») et non pas du « verrouillage de modes déclenché » (« Q-switching mode locking »). Dans ce dernier régime [Haus 76][Hönniger 99], parasite dans notre cas, le train d'impulsion issu du verrouillage de modes – cadence MHz – est contenu dans une enveloppe de type « régime déclenché » – cadence kHz.
- Condition 3 : l'intensité ne doit pas être trop importante sur le SESAM afin d'éviter tout comportement instable de type « impulsions multiples » (« multipulsing »), ainsi que tout dommage physique au SESAM.

De nombreuses études théoriques [Haus 75,76][Krausz 92, 93][Hönniger 99] ont permis de mettre à jour un certain nombre de relations permettant de quantifier ces conditions. Nous ne donnerons ici par souci de clarté que les résultats obtenus par ces équipes, en renvoyant le lecteur intéressé par les développements théoriques utilisés aux articles cités.

Krausz et al. ont montré [Krausz 91,92] que la condition 1 était vérifiée si :

$$q(E_p) > \frac{1}{\ln(N)} \frac{Tr}{\tau} \quad (Eq.II\ 7)$$

Où $q(E_p)$ représente les pertes (en termes d'énergie) introduites par l'absorbant saturable sur un aller et retour pour une énergie intracavité E_p donnée, Tr est le temps que met un photon pour faire un aller-retour dans la cavité, N est le nombre de modes oscillant initialement dans la cavité, et τ est un paramètre complexe - et difficilement accessible à la mesure - appelé « temps effectif de corrélation » et défini [Krausz 91] à un facteur π près par l'inverse de la bande passante à 3 dB du premier battement du laser ($\Delta\nu_{3dB}$ vaut de 1 à 10 kHz d'après les valeurs relevées dans la littérature).

Le facteur caractérisant le SESAM étant la quantité ΔR de pertes saturables, on peut essayer de réécrire la relation précédente en faisant apparaître ce terme [Hönniger 99]. Commençons par $q(E_p)$: au prix d'approximations raisonnables (on suppose en particulier que le temps de réponse de l'absorbant saturable est plus court que le temps de trajet d'un photon dans la cavité, ce qui est facilement vérifié pour les SESAMs en général et évidemment pour notre cavité !), on peut montrer que :

$$q(E_p) = q_0 \frac{F_{sat,S} A_{eff,S}}{E_p} \left[1 - \exp\left(-\frac{E_p}{F_{sat,S} A_{eff,S}}\right) \right] \quad (Eq.II.8)$$

où A_{eff} la surface effective du mode ($A_{eff} = \pi w^2$ où w est le waist du faisceau), $q_0 = q_p$ au seuil, c'est-à-dire pour $E_p = 0$, et, pour peu que ΔR soit beaucoup plus petit que 1 (ce qui est toujours notre cas), on peut écrire :

$$\Delta R = 1 - \exp(-q_0) \approx q_0 \quad (Eq.II.9)$$

F_{sat} est la densité d'énergie (appelée "fluence" en anglais) de saturation:

$$F_{sat} = \frac{h \nu}{m \sigma} \quad (Eq. II.10)$$

m est le nombre de passage dans le milieu amplificateur au cours d'un aller retour, h la constante de Planck, ν la fréquence et σ la section efficace d'émission.

Par conséquent on peut réécrire (II.7) en tenant compte de (II.8) et (II.9):

$$\Delta R \frac{F_{sat,S} A_{eff,S}}{E_p} \left[1 - \exp\left(-\frac{E_p}{F_{sat,S} A_{eff,S}}\right) \right] > \frac{1}{\ln(N)} \frac{Tr}{\tau} \quad (Eq.II.11)$$

La condition 2 a également été mise en équation par Hönniger *et al.* et conduit à la relation suivante pour l'énergie des impulsions [Hönniger 99] :

$$E_p > \sqrt{F_{sat,L} A_{eff,L} F_{sat,S} A_{eff,S} \Delta R} \quad (Eq.II.12)$$

Les indices L et S se réfèrent au laser et au SESAM respectivement.

Enfin la condition 3 impose [Spühler 00][Kärtner 98]

$$\frac{E_p}{F_{sat,S} A_{eff,S}} < 20 \quad (Eq.II.13)$$

Nous nous sommes donc attachés à réaliser une cavité laser permettant de réunir toutes ces conditions :

En injectant (II.13) dans (II.11) on obtient l'équation suivante :

$$\Delta R > 20 \frac{1}{\ln(N)} \frac{Tr}{\tau} \left[1 - \exp\left(-\frac{E_p}{F_{sat,S} A_{eff,S}}\right) \right]^{-1} \quad (Eq.II.14)$$

Les données en notre possession sont les suivantes : $N \approx \Delta\nu/(c/2L) \approx 110000$, $Tr \approx 1\mu s$ ($C \approx 1\text{MHz}$), $\tau \approx 30\mu s$, $F_{\text{sat,L}} = 20\text{ mJ/cm}^2$ (avec $m=4$, voir le schéma de l'expérience figure II.18), $F_{\text{sat,S}} = 70\mu\text{J/cm}^2$ (donnée fabricant) et E_p de l'ordre de quelques μJ (avec $C = 1\text{ MHz}$ et une puissance de sortie raisonnable - moins de 1 W - pour un coupleur de 10 %).

Le choix de ΔR et des tailles de faisceau à différents endroits de la cavité (dans le cristal et sur le SESAM) sont libres, et doivent satisfaire aux équations (II.12) et (II.14).

Nous avons choisi de réaliser un faisceau assez gros sur le SESAM (diamètre de $770\mu\text{m}$, $A_{\text{eff,S}} = 4,7 \cdot 10^{-3}\text{ cm}^2$) afin de ne pas le brûler, ce qui revient à prendre marge importante sur la condition 3: avec $E_p = 3\mu\text{J}$ on se trouve ainsi deux fois sous la valeur limite décrite par l'équation (II.13). Cette valeur de $A_{\text{eff,S}}$ permet également de satisfaire II.13 puisque l'application numérique correspondante implique $\Delta R > 5\%$. Si on prend $\Delta R = 6\%$ l'équation (II.12) est enfin aussi facilement vérifiée puisque on a alors numériquement $3 > 0,7$.

En vertu de ces estimations, et des produits disponibles sur le marché, nous envisageons donc de prendre un SESAM de pertes saturables égales à 6%.

II.3. Résultats expérimentaux

En faisant varier le nombre de passages dans la cavité nous avons obtenu des configurations stables pour des longueurs de cavité de 7,5 - 12,5 - 30 - 50 - 65 et 125 mètres, correspondant à des cadences respectives de 20, 12, 5, 3, 2,3 et enfin 1,2 MHz. Cette dernière cadence est à ma connaissance la plus basse jamais obtenue avec un laser à verrouillage de modes sans faire usage de processus actifs d'extraction d'impulsion de type « cavity dumping ». On a représenté à titre d'exemple sur la figure II.22 deux trains d'impulsions à 2,3 et 1,2 MHz.

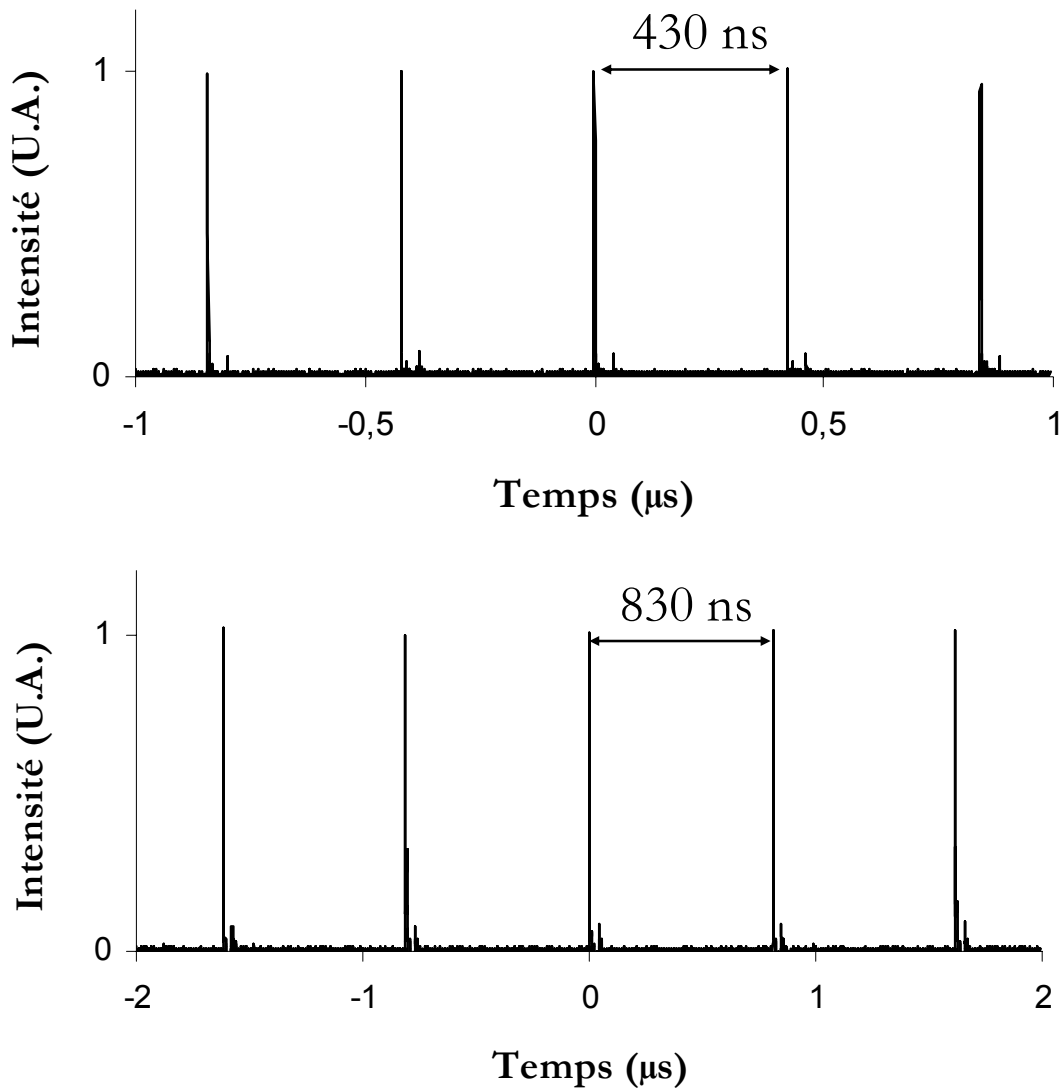


Figure II.22 : trains d'impulsion avec une cadence de 2,3 MHz (en haut) et 1,2 MHz (en bas).
Les petits pics au pied de chaque impulsion sont dus à la photodiode.

La stabilité du système dans cette configuration est excellente puisque le laser peut fonctionner de façon continue pendant plusieurs jours sans nécessiter de nouveau réglage⁵³.

La puissance moyenne obtenue en sortie du laser est de 470 mW (ce qui correspond à une énergie par impulsion en sortie de cavité de 0,39 μ J, en accord avec l'hypothèse faite lors du dimensionnement (équation II.14 en particulier). À des cadences aussi basses que 1,2 MHz, les pertes dans la cavité multipassage sont très importantes, ce qui explique la relative faiblesse de la puissance de sortie obtenue. À des cadences un peu plus élevées (2,3 MHz), donc avec un nombre d'impacts sur les miroirs réduit, on peut atteindre une puissance de sortie de 2,5 W (environ 1,1 μ J par impulsion).

⁵³ Il est cependant à noter qu'étant donné le très long parcours du faisceau laser dans l'air, la stabilité peut être affectée par de simples courants d'air dans la cavité. Nous avons donc placé cette dernière dans une boîte hermétique afin de stabiliser l'ensemble (voir photo II.3 à la fin de ce chapitre).

Nous sommes parvenus à faire fonctionner le système à des cadences encore plus basses (880 kHz et même 650 kHz) : cependant à ces taux de répétition la stabilité est plus aléatoire et on note sur la figure II.23 (représentant un train d'impulsion à 880 kHz) l'apparition d'impulsions parasites gênantes (« multipulsing ») entre deux impulsions normales.

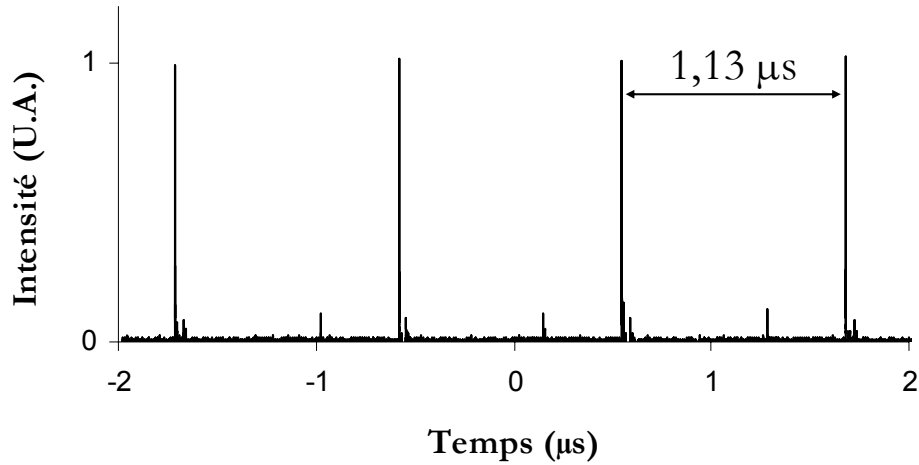


Figure II.23: train d'impulsions sub-MHz (880 kHz). Le régime de fonctionnement est peu stable et on note la présence de pics parasites entre les pics principaux.

La qualité spatiale du faisceau est excellente (le M^2 est représenté sur la figure II.24 et les profils spatiaux en champ proche et en champ lointain sur la figure II.25) puisqu'il est quasiment limité par la diffraction ($M^2 = 1,1$).

Intéressons nous maintenant à la durée des impulsions produites. Comme nous l'avons

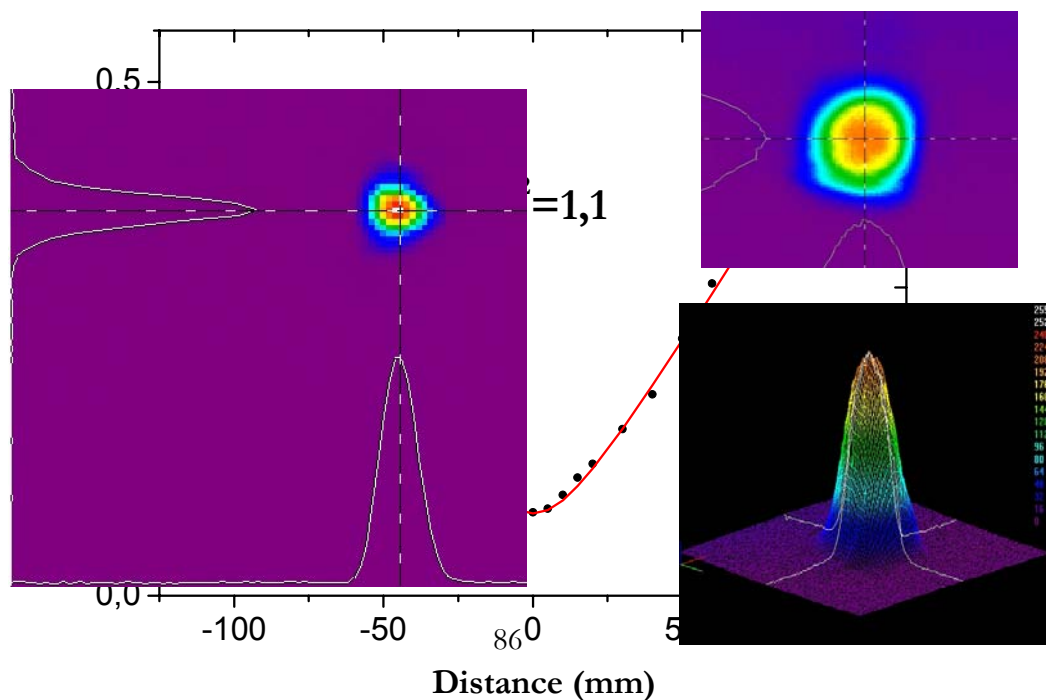


Figure II.25: Profil spatial collimaté en sortie du laser (à droite) et au foyer M^2 d'une lentille (à gauche).

souligné précédemment, il est impossible de mesurer la durée d'impulsions de quelques picosecondes avec une simple photodiode. Nous avons donc utilisé un autocorrélateur adapté à ces durées pour effectuer cette mesure (voir encadré pour le principe de la mesure). La courbe obtenue pour un train de cadence 1,2 MHz est représentée sur la figure II.26 : les impulsions ont une durée de 16,3 ps (en faisant l'hypothèse que l'impulsion a un profil gaussien⁵⁴). Le spectre du laser est représenté sur la figure II.27.

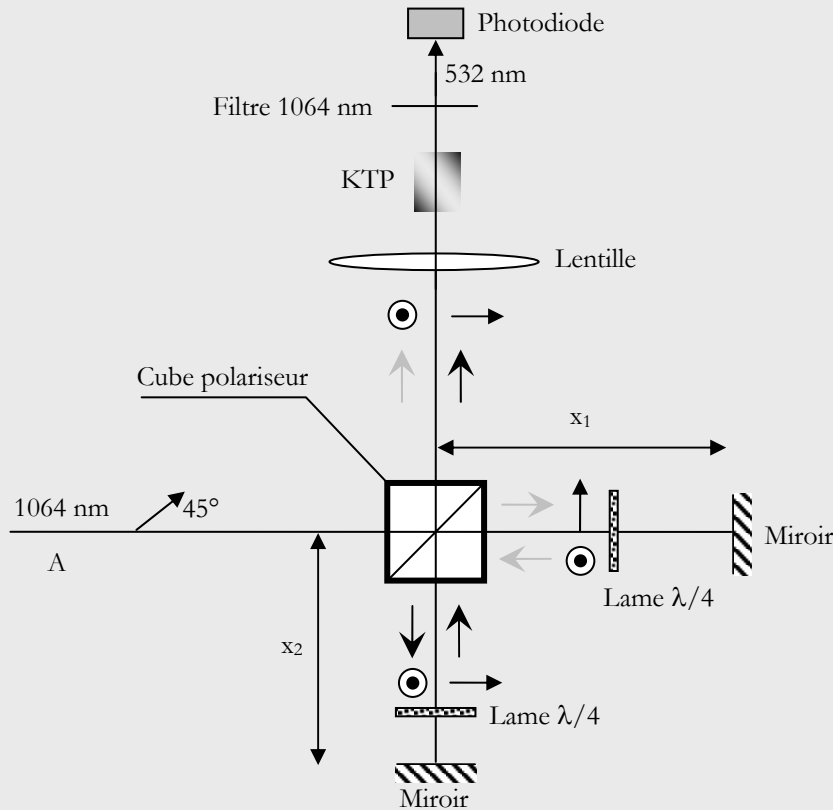
On s'aperçoit que les impulsions produites ne sont donc pas limitées par la transformée de Fourier : on a $\Delta t \Delta \nu \approx 2,2$, soit environ 5 fois la limite de Fourier si on considère des impulsions de profil gaussien. On peut émettre l'hypothèse suivante (qui demande encore à être vérifiée expérimentalement) : étant donné que l'intensité de nos impulsions dans le cristal laser est très importante du fait de la cadence réduite, il est possible que le spectre soit élargi par

automodulation de phase d'une quantité $\Delta \omega = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 \frac{\partial I}{\partial t} L$, où n_2 est le coefficient non-linéaire

responsable de l'effet Kerr, I l'intensité de l'impulsion, et L la longueur effective du cristal pour un aller-retour dans la cavité. On peut ensuite estimer que la dispersion (non compensée dans notre cavité) étant d'autant plus grande que le spectre est large elle conduit dans notre cas à des durées d'impulsions plus longues.

⁵⁴ Si on fait l'hypothèse d'un profil en sech^2 , on obtient $\Delta t \approx 13$ ps.

PRINCIPE DE L'AUTOCORRELATEUR



Le principe de l'autocorrélation consiste à transformer une information temporelle en une information spatiale plus facile à enregistrer. Une architecture de type Michelson est utilisée pour ce faire et couplée à un cristal non-linéaire doubleur de fréquence. Un exemple d'autocorrélateur est représenté sur la figure ci-dessus : l'impulsion à mesurer (de longueur d'onde 1064 nm) arrive en A avec une polarisation linéaire inclinée à 45 degrés (au besoin on utilise une lame demi-onde pour atteindre cet état de polarisation). Le cube séparateur sépare donc l'impulsion en deux : la composante polarisée dans le plan de la figure est transmise, l'autre réfléchi. On tourne ensuite chacune des polarisations de 90° par double passage dans 2 lames quart d'onde afin que les deux composantes (de même intensité et de polarisations orthogonales) se propagent à nouveau colinéairement. Il faut cependant noter qu'on a introduit entre elles une différence de marche $\delta = x_2 - x_1$ ajustable en déplaçant un des deux miroirs. On focalise alors ces deux impulsions dans un cristal de KTP ayant un accord de phase de type II : pour créer un photon à 532 nm il faut un photon à 1064 nm avec une polarisation ordinaire et un photon à 1064 nm avec une polarisation extraordinaire, c'est-à-dire la présence simultanée des deux ondes dans le cristal. Le cristal de KTP voit donc les intensités $I_1(t)$ et $I_2(t - \delta/c)$. L'intensité du rayonnement vert produit à l'instant t est proportionnelle au produit des intensités des deux faisceaux fondamentaux. Le signal observé par le détecteur (de temps de réponse trop lent pour distinguer les impulsions) est intégré sur la largeur τ de sa réponse impulsionnelle :

$$\langle I_{\text{vert}}(t) \rangle \propto \int_0^\tau I_1(t) I_2\left(t - \frac{\delta}{c}\right) dt$$

On reconnaît la fonction d'autocorrélation. Pour tracer cette fonction il suffit de faire varier δ . La largeur à mi-hauteur de l'impulsion est finalement donnée par la largeur à mi-hauteur de la fonction d'autocorrélation multipliée par un facteur dépendant du profil temporel de l'impulsion (par exemple $1/\sqrt{2}$ pour une fonction gaussienne).

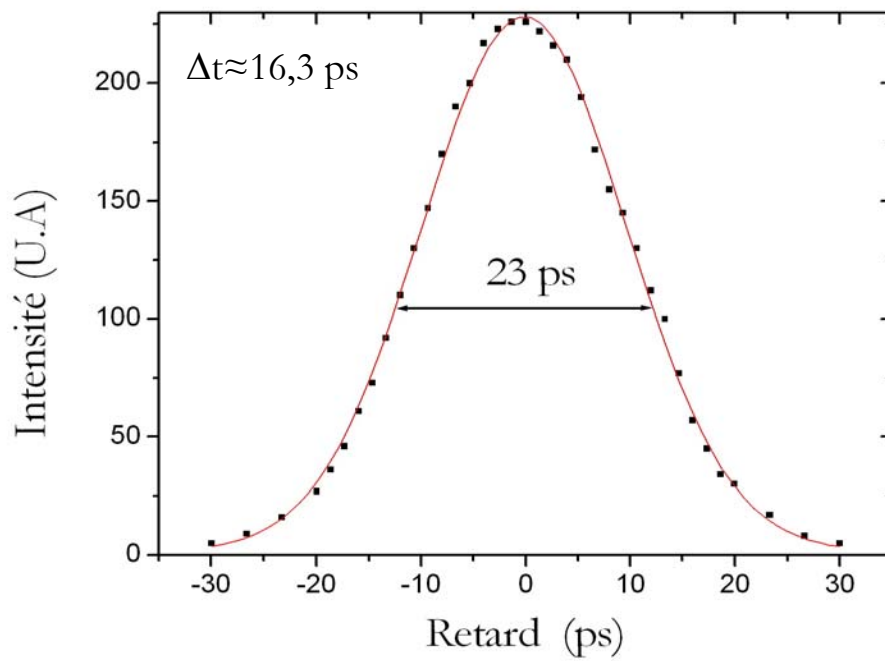


Figure II.26: autocorrélation des impulsions issus du laser à verrouillage de modes fonctionnant à une cadence de 1,2 MHz. La courbe en trait plein représente l'ajustement effectué en supposant un profil gaussien.

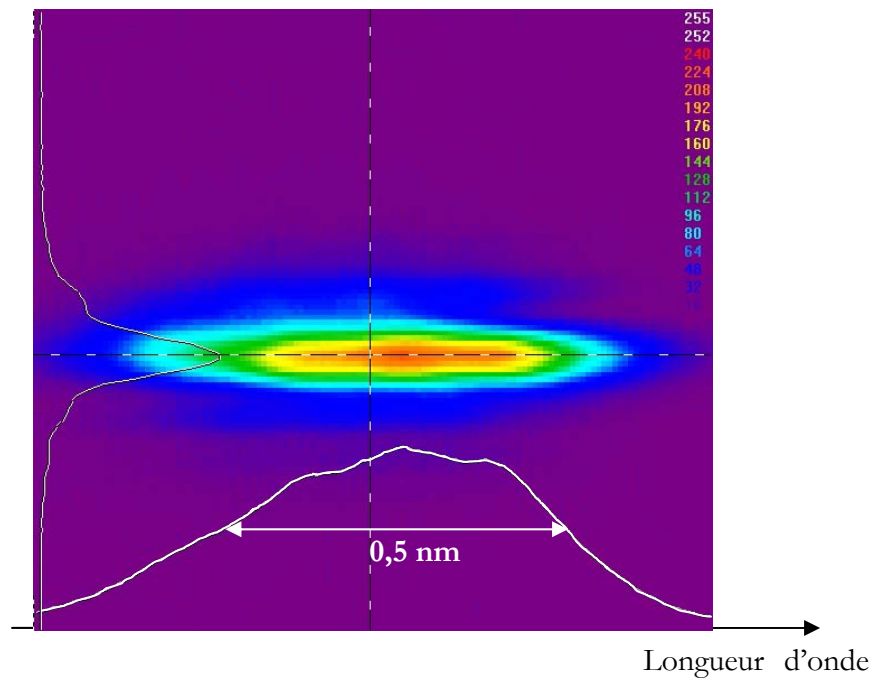


Figure II.27 : spectre du laser fonctionnant à 1,2 MHz.

II.4. Conclusion

Résumons les résultats obtenus avec le laser ultra-long à verrouillage de modes [Papadopoulos 03] :

- La cadence est variable mais de façon discrète (il faut rerégler le laser à chaque fois). Des configurations stables à 1,2 MHz et 2,3 MHz ont été obtenues.
- La durée des impulsions est d'environ 16 ps.
- L'énergie est de 390 nJ par impulsion à 1,2 MHz. La puissance crête est de 24 kW.
- Le faisceau de sortie est limité par la diffraction ($M^2 \approx 1$).

L'ensemble de ces caractéristiques semble satisfaire parfaitement au cahier des charges. Il faut cependant ajouter un bémol : la compacité du système est loin d'être optimale (voir la photo II.3 ci-dessous), et le nombre de composants mis en jeu augmente le coût de l'ensemble.

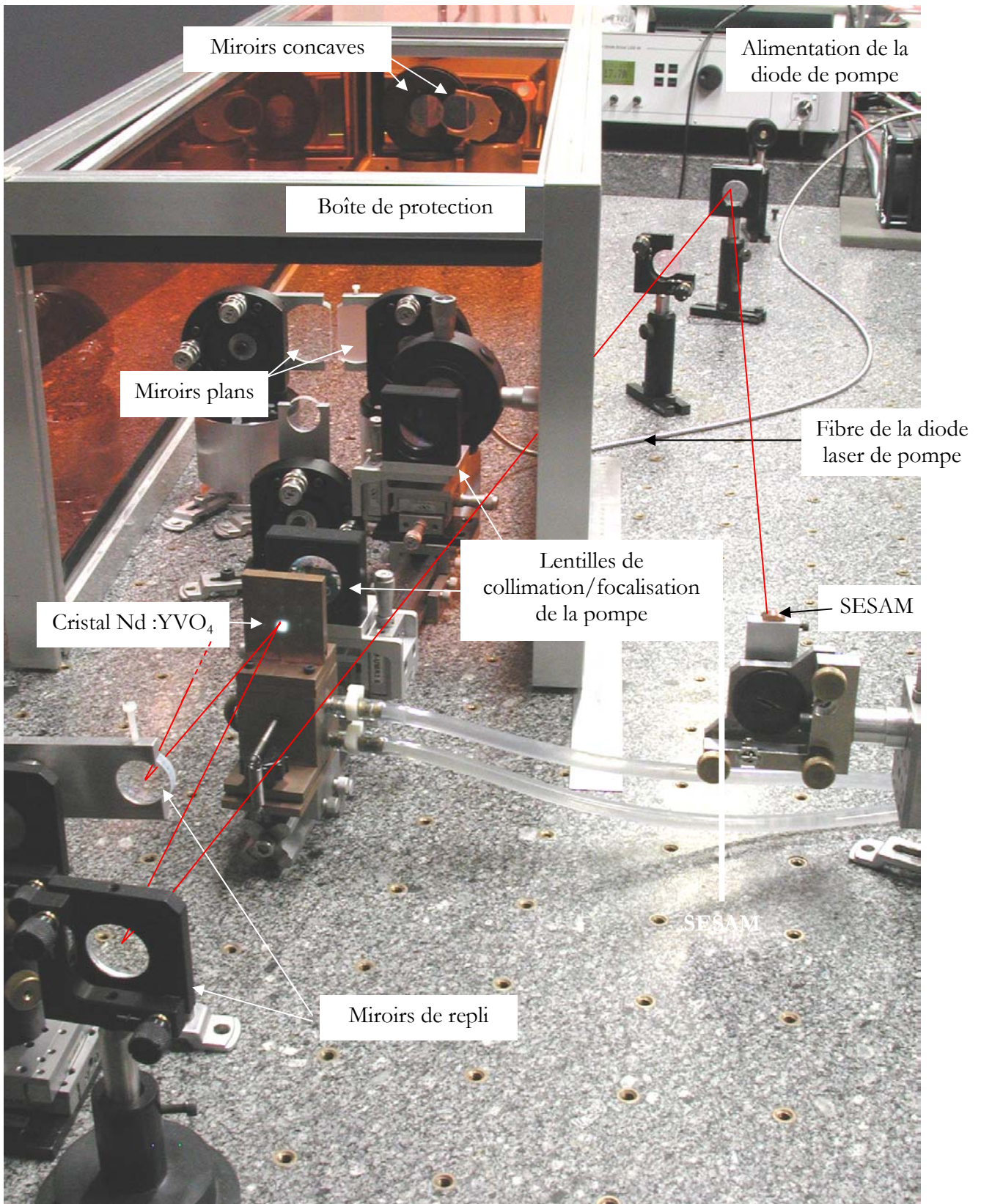


Photo II.3 : Ensemble du laser à modes bloqués. Les différents éléments sont décrits sur la photo et les trajets des faisceaux sont en rouge (on n'a pas représenté le parcours dans le multipassage – c'est-à-dire dans la boîte).

III. Conclusions sur la source

Nous avons réalisé et caractérisé deux types de sources pour répondre aux conditions imposées par notre application. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau suivant :

	Cahier des charges	Microlaser déclenché	Laser à verrouillage de modes	Avantage
Durée des impulsions	<300 ps	400 ps	16 ps	Verrouillage de modes
Cadence	Autour de 1 MHz	200 kHz à 1 MHz	1 ou 2 MHz	Égalité
Puissance crête	Le plus possible	150 W	24 ou 68 kW	Verrouillage de modes
Compacité	<i>idem</i>	excellente	moyenne	Déclenché
Simplicité/coût	<i>idem</i>	excellente	moyenne	Déclenché

Tableau II.2 : comparatif des deux lasers étudiés.

L'observation de ce tableau nous indique que les deux solutions présentent des avantages : au niveau des performances pures, la source à verrouillage de modes est clairement supérieure. Par contre elle souffre de sa relative complexité et de son encombrement (environ dix fois la taille du microlaser). Ce dernier point doit cependant être nuancé : la puissance crête obtenue avec le laser à verrouillage de modes est de 24 kW (soit la configuration suivante : $P_{\text{moyenne}} = 470 \text{ mW}$, $C = 1,2 \text{ MHz}$, $\Delta t = 16 \text{ ps}$). On se souvient que la puissance crête – qui est le paramètre important en vue de la conversion de fréquence - en sortie du microlaser (paragraphe I) était de 150 W. On a donc gagné un facteur 160 qui va peut être nous permettre de court-circuiter l'étage amplificateur : on pourra ainsi compenser la perte de compacité induite par la solution « laser à verrouillage de modes » par rapport à la solution « microlaser déclenché ».

Au final, les deux solutions présentent des avantages certains et nous avons donc décidé de les pousser toutes deux jusqu'à l'ultraviolet. Nous allons donc maintenant nous intéresser à l'amplificateur, indispensable pour augmenter la puissance du microlaser.

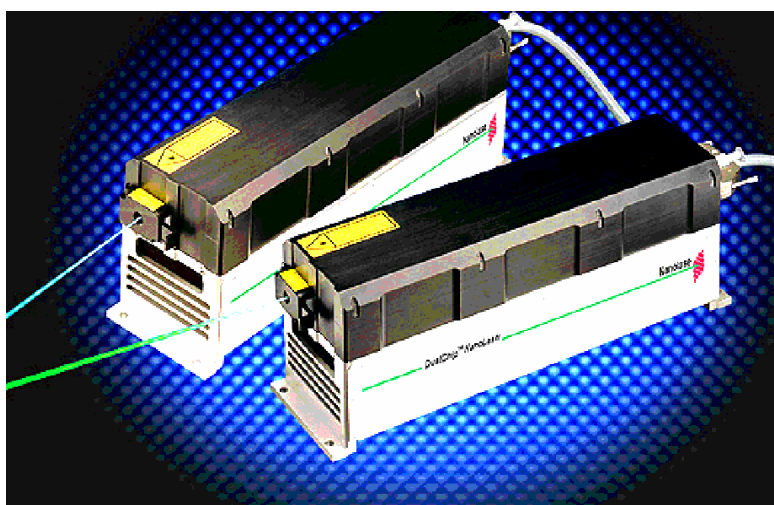
CHAPITRE 3 : L'amplificateur

Introduction

Comme nous l'avons vu, il est courant de découpler les caractéristiques temporelles et énergétiques d'un système laser en adjoignant un amplificateur de puissance à un oscillateur. On réalise alors une structure appelée MOPA (« Master Oscillator Power Amplifier ») : l'oscillateur fournit les caractéristiques souhaitées en termes de cadence, de durée d'impulsion et de qualité de faisceau tandis que le rôle de l'amplificateur est d'augmenter la puissance sans modifier – ou le moins possible – ces valeurs.

Je vais décrire dans cette partie l'amplificateur que nous avons développé. Son rôle est principalement de porter le microlaser Mégahertz à des puissances suffisantes pour réaliser d'efficaces conversions de fréquence. Cependant nous avons commencé pour des raisons basement matérielles par imaginer, mettre au point et tester notre amplificateur avec une source différente : un microlaser à plus basse cadence fourni par la société Nanolase⁵⁵, avec laquelle ELSA a déjà collaboré dans le passé de façon très fructueuse. Les résultats obtenus ont été si satisfaisants qu'un nouveau partenariat a été créé afin d'intégrer ce nouvel amplificateur dans des produits commerciaux. Nous avons donc poussé plus avant et dans une perspective différente l'étude de l'amplificateur avec cette source : le plan utilisé pour cette partie est naturellement le reflet de cette double approche. Nous commencerons par un rapide état de l'art des amplificateurs solides, puis nous développerons le principe de l'amplification et détaillerons les différentes architectures testées. Nous présenterons ensuite les performances obtenues en fonction de la source utilisée : d'une part un microlaser « basse cadence » Nanolase, avec pour objectif le transfert de technologie, et d'autre part le microlaser à 1 MHz décrit dans la partie précédente.

Mais commençons par faire quelques commentaires sur la nature de notre collaboration avec Nanolase. Il y'a quelques années, la thèse au laboratoire de Frédéric Druon [Druon 00] a permis de réaliser un système laser produisant des impulsions courtes (sub-nanosecondes) à une cadence de quelques dizaines de kilohertz à 355 nm. Ces travaux ont attiré l'attention de la société Nanolase, alors déjà positionnée sur le marché des microlasers, et ont donné lieu à un transfert de technologie complet⁵⁶ (voir photo



Le « DualChip », résultat de la collaboration ELSA-Nanolase

⁵⁵ Cette jeune pousse française a été rachetée depuis par le géant nord américain JDS Uniphase.

⁵⁶ Le système laser résultant est désormais commercialisé sous le nom « DualChip » par JDS Uniphase.

ci-contre). De nombreuses applications dans le domaine du traitement des matériaux utilisent des lasers ultraviolets car quasiment tous les matériaux absorbent dans cette gamme de longueur d'onde. C'est le cas pour le marquage de produits ou de câbles.

Un autre avantage de l'ultraviolet est sa résolution: le faisceau au point de focalisation peut avoir un diamètre extrêmement faible (jusqu'à 400 nm environ pour un faisceau à 355 nm). Une autre application concerne les actions photochimiques : photoablation pour faire des trous très précis dans des polymères ou photopolymérisation pour réaliser des maquettes d'objets en trois dimensions (prototypage rapide). Dans tous les cas, il faut disposer d'impulsions courtes, à haute cadence (rapidité), et de forte puissance moyenne dans l'UV (plusieurs centaines de milliwatts) : le besoin d'une source de type DualChip mais plus puissante (environ 600 mW d'UV sont visés) a été identifié par Nanolase. Pour conserver l'homogénéité de la gamme de produits déjà existants, le microlaser lui-même ne peut être changé : il faut donc travailler sur l'amplificateur afin d'atteindre les objectifs spécifiés, à savoir plus de 600 mW de rayonnement UV à 355 nm.

Nous partîmes 270 milliards de photons à bord d'une impulsion du port du microlaser, mais par un prompt renfort nous nous vîmes 21 billions en arrivant au cristal non-linéaire...

I. Etat de l'art des amplificateurs solides

L'objectif de ce paragraphe est de faire le point sur les amplificateurs solides publiés dans la littérature en régime continu ou en régime impulsionnel.

Commençons par dire un mot de ce dont on ne parlera pas : des amplifications ont par exemple déjà été étudiées dans des structures guidantes permettant d'augmenter la longueur d'interaction entre le faisceau de pompage et le faisceau de cavité : en structure planaire [Shophard 97], ou en fibre double cœur dopée par des ions néodyme [Rockat 99][Zawisha 99]. Cependant, ces amplificateurs de type guide d'onde ne sont pas adaptés pour des impulsions très brèves de fortes puissances crête à cause de la présence d'effets non linéaires indésirables : on se concentrera donc ici sur les amplificateurs dit « massifs », c'est-à-dire constitués de cristaux, et plus particulièrement de cristaux dopés Néodyme – quasiment les seuls efficaces pour amplifier des microlasers impulsionnels.

Dans tous les cas, les amplificateurs continus et impulsionnels ont beaucoup de points en commun. Ils peuvent fonctionner en général selon deux régimes : un régime « faible signal », de fort gain mais de faible rendement (dans le cas d'un pompage en régime continu, le rendement est défini comme la puissance moyenne en sortie divisée par la puissance de pompe) ou alors un régime « d'extraction » d'énergie, de faible gain mais de fort rendement.

Ces régimes de fonctionnement sont décrits de façon théorique par l'équation dite de Frantz et Nodvik [Frantz 63] :

$$E_f = E_{sat} \ln \left[1 + G \left(e^{\frac{E_i}{E_{sat}}} - 1 \right) \right] \quad (Eq.III.1)$$

où E_i et E_f sont les énergies de l'impulsion avant et après amplification, $E_{sat} = \frac{hcS}{\lambda\sigma}$ (avec S la section du faisceau considéré, c la vitesse de la lumière, h la constante de Planck, λ la longueur d'onde et σ la section efficace d'émission du matériau amplificateur considéré) et G est le gain. Si on considère une impulsion isolée (c'est-à-dire un taux de répétition faible), on peut prendre comme gain le gain petit signal $G = G_0 = e^{\sigma N_0 d}$ où N_0 est la densité de population de l'état excité et d la longueur du milieu amplificateur. *A contrario*, si la cadence est trop élevée pour pouvoir négliger l'influence de l'impulsion n sur l'amplification de l'impulsion $n+1$, le terme de gain est modifié comme on le montre en annexe III de ce mémoire.

On peut globalement résumer le comportement de l'amplification avec la figure III.1.

On a représenté sur cette figure les deux paramètres gain ($P_{\text{sortie}}/P_{\text{entrée}}$) et puissance extraite ($P_{\text{sortie}} - P_{\text{entrée}}$) en fonction de la puissance incidente de signal P_{in} . Pour des faibles puissances d'entrée (P_{01}) on obtient des puissances extraites faibles en valeur absolue mais des gains importants (par exemple $P_{01} = 1\mu\text{W}$, $P_1 = 1\text{ mW}$: on a extrait 1 mW seulement du milieu amplificateur mais le gain correspondant est $G_1 = 1000$). Par contre si la puissance incidente est

forte (P_{02}), alors le gain est faible mais la puissance extraite importante (par exemple $P_{02} = 1\text{W}$, $P_2 = 2\text{W}$: on a extrait 1W du milieu mais le gain G_2 n'est que de 2).

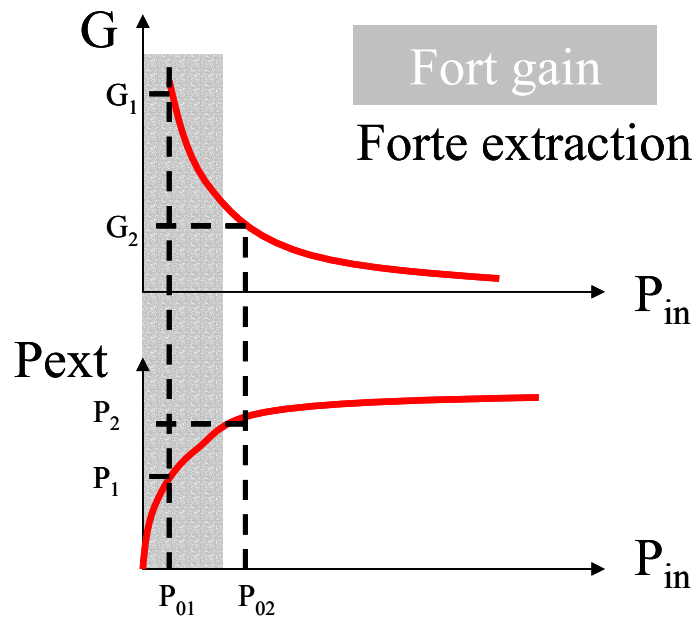


Figure III.1 : différents régimes de fonctionnement d'amplificateur laser.

Un amplificateur efficace doit être capable de réaliser un compromis entre les deux régimes : il doit amplifier le signal d'entrée correctement tout en assurant un bon rendement. Comme il est difficile d'optimiser à la fois le gain petit signal et l'extraction d'énergie, une solution efficace est de réaliser en quelque sorte plusieurs amplificateurs en un : le « premier » amplificateur, à fort gain, va permettre d'augmenter de façon importante l'énergie des impulsions incidentes (mais avec une énergie extraite du milieu à gain faible), tandis que le « deuxième » portera des impulsions d'énergie déjà respectable à un niveau encore supérieur mais avec un gain réduit. Une bonne mise en œuvre de ce principe permettant de satisfaire aux deux conditions est de réaliser un amplificateur à *plusieurs passages*. Dans les tous premiers passages, le signal est fortement amplifié. Dans les derniers, le signal extrait l'énergie stockée dans le cristal laser.

Une solution souvent utilisée pour réaliser de multiples passages dans un cristal laser est de placer ce dernier dans un résonateur comportant une « porte d'entrée » et une « porte de sortie » permettant d'extraire à intervalles réguliers et sélectionnés par l'utilisateur une impulsion. Dans de tels amplificateurs, appelés « *régénératifs* », on piège une impulsion dans la cavité via par exemple un polariseur et une cellule électro-optique (voir figure III.2) : en appliquant à cette dernière une tension adéquate, on la transforme en lame quart d'onde. La polarisation de l'impulsion est donc tournée de 90° après double passage dans la cellule de Pockels, et se propage dans la cavité. Il suffit alors de transformer la cellule de Pockels en lame onde durant le temps de trajet (« trajet 1 ») de l'impulsion pour la piéger dans la cavité. Après un nombre de passage arbitrairement choisi dans le milieu amplificateur (typiquement une centaine), on peut éjecter l'impulsion amplifiée suivant le même procédé.

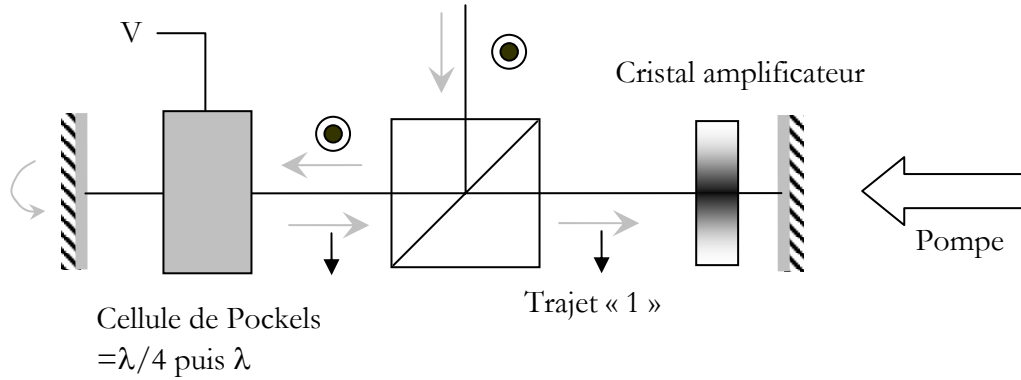


Figure III.2 : principe de l'injection d'une impulsion dans un amplificateur régénératif.

Nous n'envisagerons finalement pas ici le cas de ces amplificateurs régénératifs : la porte active (cellule de Pockels) qu'ils contiennent les rend coûteux et trop complexes pour notre système, qui doit rester entièrement passif. Ce type d'amplificateur est essentiellement utilisé dans des systèmes partant d'une énergie par impulsion très faible (comme les oscillateurs femtosecondes), où le nombre très important de passages permet une amplification efficace.

L'autre solution pour effectuer de nombreux passages dans un cristal amplificateur donné est d'utiliser des chemins différents pour chaque passage : on parle alors de « *multipassage géométrique* ». Avant de rentrer dans les détails de cette idée, disons un mot du pompage des amplificateurs solides.

Les amplificateurs solides, qu'ils soient régénératifs ou à multipassage géométrique, peuvent être classés en deux catégories en fonction de la façon dont ils sont pompés : le cristal servant à l'amplification peut comme pour un laser être pompé de façon longitudinale (la pompe se propage colinéairement au signal à amplifier) ou transverse. Ce point se révélera être un point clé pour notre amplificateur : il convient donc de préciser un peu les choses.

- Pompage transverse

Ce pompage consiste à envoyer de l'énergie dans le cristal de façon plus ou moins perpendiculaire au trajet du faisceau à amplifier. Il est uniquement utilisé avec des barrettes de diode laser éventuellement collimatées dans la direction perpendiculaire au plan de jonction.

Le pompage transverse peut être très performant en régime quasi-continu car la puissance crête délivrée par une barrette de diode laser est très importante dans ce cas (elle peut atteindre 100 W à 200 W). Par exemple, le gain obtenu avec un cristal de Nd:YVO₄ pompé par une barrette en régime quasi-continu est élevé (50 par double passage) tout en étant associé à un bon rendement de l'amplificateur (10%) [Bernard 94]. Des amplificateurs Nd:YAG de très forte puissance sont basés sur ce principe de pompage [Hirano 99]. Un double passage suffit à extraire l'énergie stockée avec un bon rendement (> 10%) tout en maintenant un gain important (de l'ordre de 10). Cependant, la cadence de fonctionnement peut difficilement dépasser le niveau du kilohertz à cause des problèmes thermiques dans les barrettes de diode laser. De plus, la zone de gain dans laquelle le faisceau à amplifier se propage est généralement inhomogène : en particulier il se forme une lentille thermique aberrante qui induit une déformation importante du profil spatial du faisceau signal.

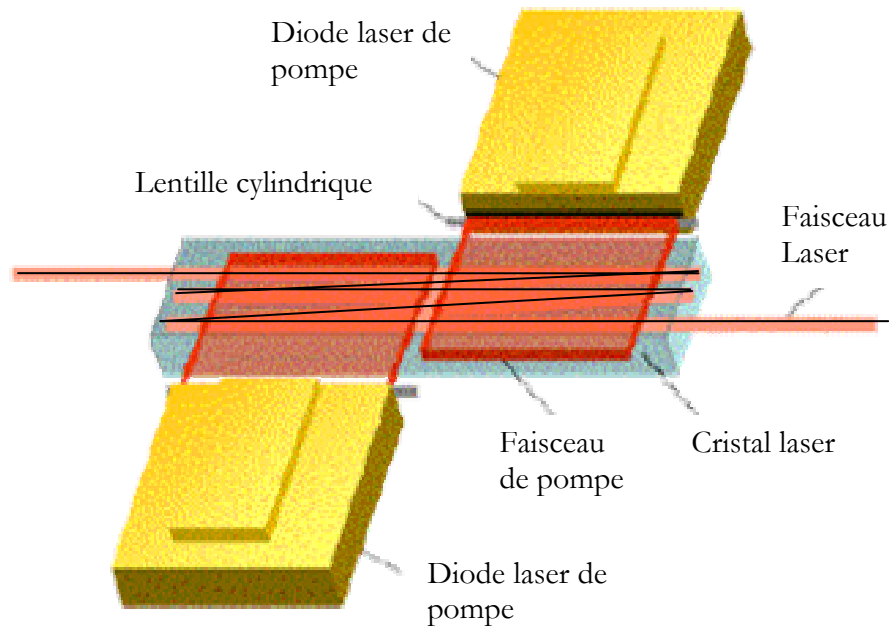


Figure III.3 : amplificateur multipassage développé par la société Q-peak.

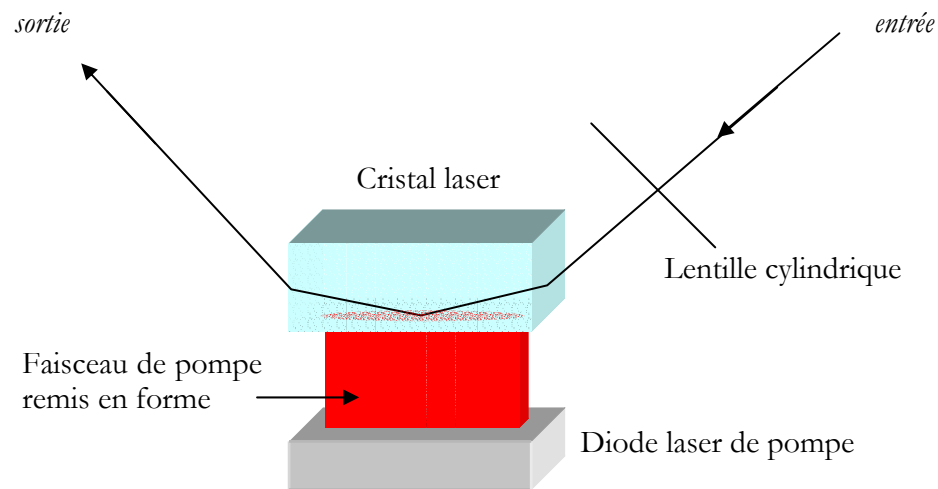


Figure III.4 : amplificateur solide pompé transversalement en incidence rasante. La diode laser de pompe est focalisée par une lentille cylindrique (non représentée sur le schéma) afin de former une zone de gain elliptique allongée dans le cristal. Le faisceau incident est rendu elliptique par une lentille cylindrique afin que le recouvrement entre la zone de pompe et la zone couverte par le signal soit optimal.

Dans le cas d'un pompage en régime continu, le gain est plus faible. Le faisceau à amplifier doit donc faire de nombreux passages (souvent plus de 10) dans le milieu amplificateur, ce qui implique des structures assez complexes. Les multiples passages sont effectués soit grâce à des miroirs externes [Larat 95] soit grâce à des "zig-zag" dans le milieu à gain [Coyle 91][Baer 92]

[Degnan 96][Snell 00][Isyanova 01] comme illustré sur la figure III.3. Les multiples passages sont dans un même plan, ce qui correspond bien à la géométrie du faisceau de pompage d'une barrette de diode laser collimatée dans la direction perpendiculaire au plan de la jonction. Des performances intéressantes ont été obtenues avec une configuration en "zig-zag" : gain de 17 (puissance d'entrée : 100 mW, puissance de sortie : 1,7 W) pour un rendement de l'amplificateur de 17% [Baer 92]. On peut également réaliser des amplificateurs plus simples à double passage en incidence rasante [Omatsu 01] comme représenté sur la figure III.4 : avec un cristal de Nd:YVO₄ et une puissance de pompe de plus de 20W, un gain en simple passage de plus de 450 a été démontré. Dans ce dernier exemple, et c'est souvent le cas en pompage transverse, la qualité de faisceau est cependant dégradée en raison de la répartition inhomogène du gain dans le milieu amplificateur.

Pompage longitudinal

Dans ce cas on pompe le milieu amplificateur à peu près colinéairement au faisceau signal. La pompe est focalisée dans le cristal sur une zone de quelques centaines de microns de diamètre typiquement, ce qui conduit à des densités de puissance de pompe bien supérieures à celles obtenues par pompage transverse. On utilise pour ce faire soit des diodes de pompage monorubans de forte brillance soit des barrettes de diodes laser remises en forme, et généralement fibrées pour bénéficier d'une symétrie de révolution. Le gain est donc plus important en pompage longitudinal. Il faut faire moins de passages qu'en pompage transverse pour extraire efficacement l'énergie stockée dans le cristal, et la qualité de faisceau est bien meilleure.

Le pompage transverse est surtout utilisé dans le domaine des très fortes puissances, où la qualité de faisceau n'est pas primordiale. Nous avons donc choisi de pomper notre amplificateur longitudinalement afin de bénéficier du fort gain dû au bon recouvrement des faisceaux pompe et signal et de ne pas dégrader spatialement notre faisceau.

Revenons maintenant à notre principe d'amplification multipassage géométrique : il s'agit de faire passer le faisceau signal plusieurs fois dans le milieu à gain, avec un parcours différent à chaque fois afin que le faisceau signal ne revienne pas sur lui-même : on peut ainsi l'extraire du système sans recours à aucun élément actif. Des amplificateurs très simples à deux passages ont déjà été mis en oeuvre [Friel 96][Druon 99]. Comme on l'a déjà signalé, ces systèmes ont alors deux modes de fonctionnement bien distincts : en régime "faible signal", les gains peuvent dépasser la centaine mais le rendement est mauvais, alors qu'en régime d'extraction (rendement supérieur à 20%), le gain est relativement faible, de l'ordre de 3 à 5. La seule solution connue dans la bibliographie pour réaliser un amplificateur qui ait à la fois un gain élevé et un rendement important est d'augmenter le nombre de passages dans le milieu à gain. Dans les premiers passages, le faisceau s'amplifie en régime "faible signal". Dans les derniers passages, le faisceau extrait l'énergie stockée dans le milieu laser. Le meilleur exemple est donné par Plaessmann et ses collègues [Plaessman 93]. Grâce à une structure comprenant deux miroirs et une lame de verre, le faisceau effectue 14 passages dans un cristal (Nd:YVO₄ ou Nd:YAG). Le gain total vaut 14 environ (puissance de sortie de 4,3 W pour une puissance d'entrée de 300 mW). Le rendement de l'amplificateur atteint 33 %. L'obtention d'un gain important associé à un rendement élevé se fait pourtant au prix d'un système rendu complexe par le grand nombre de passages (figure III.5).

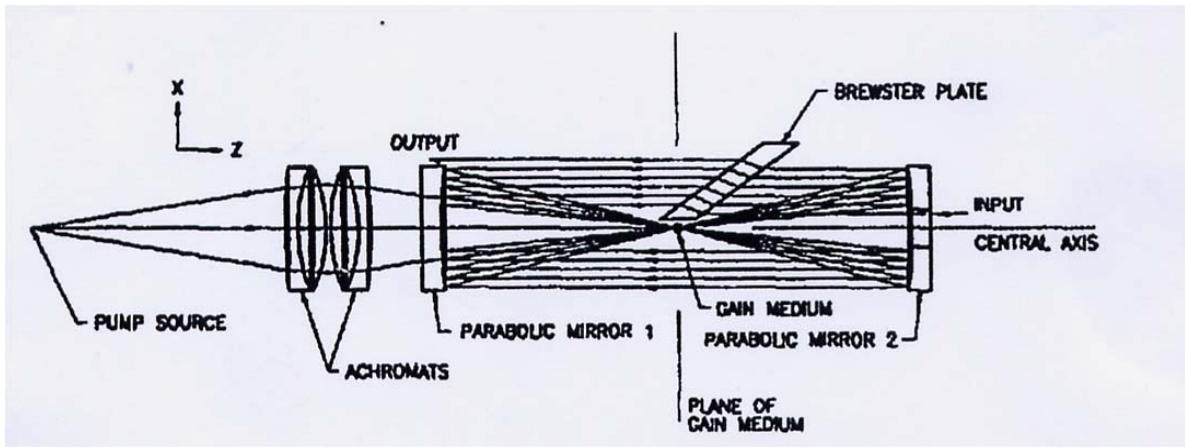


Figure III.5 : Configuration multipassage adoptée par Plaessman et al.

Il faut noter que les systèmes amplificateurs à multiples passages qui ont été mis au point jusqu'à présent ont presque toujours des structures planaires : le faisceau à amplifier se propage toujours dans un seul et même plan [Plaessman 93][Roissé 95][Roth 98]. Cette géométrie n'est pas optimale *a priori* car le faisceau de pompage évolue lui suivant les trois directions de l'espace (contrairement au cas du pompage transverse par une barrette de diode laser collimatée). Il y a donc un problème de recouvrement entre le faisceau de pompe et le faisceau à amplifier comme l'illustre la figure III.6.

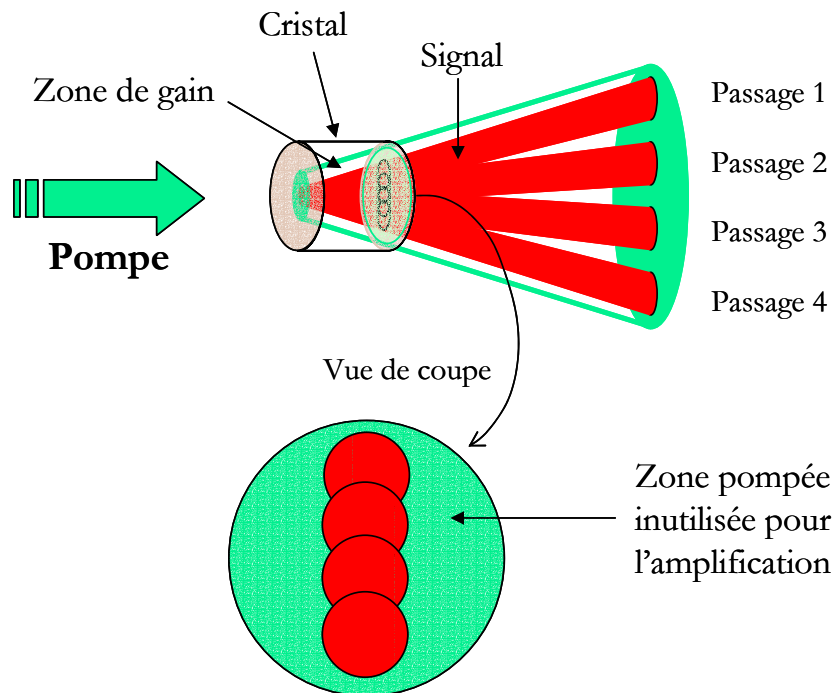


Figure III.6 : schéma classique d'amplification multipassage (4 ici) « planaire » en pompage longitudinal.

Ce problème a pour conséquence de réduire le gain disponible dans l'amplificateur et finalement d'augmenter le nombre de passages nécessaires pour obtenir une bonne extraction. (toute l'énergie de pompage qui n'est pas située dans le plan des faisceaux à amplifier est alors perdue comme on peut le voir sur la figure III.6).

Nous allons maintenant décrire la solution que nous avons mise en œuvre pour surmonter cet obstacle et réaliser un amplificateur multipassage efficace.

II. Entrez dans la 3^{ème} dimension...

Le pompage longitudinal implique la focalisation du faisceau de pompe dans le cristal amplificateur : la zone pompée où la population du milieu est inversée, qu'on appellera dorénavant « zone de gain », a donc une structure spatiale tridimensionnelle. Si on considère pour simplifier⁵⁷ une diode de pompe fibrée (donc délivrant un faisceau ayant une symétrie de révolution), on peut en première approximation considérer que la zone de gain est *conique*⁵⁸ (voir figure III.3). Il est alors évident que la meilleure solution pour couvrir complètement cette zone avec le faisceau amplificateur – et ainsi éviter d'inverser la population « pour rien » dans certaines régions de l'espace – est de faire parcourir à ce dernier l'ensemble du cône : il faut pour cela que les différents passages se répartissent harmonieusement dans les trois dimensions de l'espace, et que les angles faits par les différents faisceaux épousent l'ouverture numérique du faisceau de pompe. Un exemple de configuration « optimale » est représenté sur la figure III.7.

Reste maintenant à trouver un moyen simple de réaliser une telle géométrie...

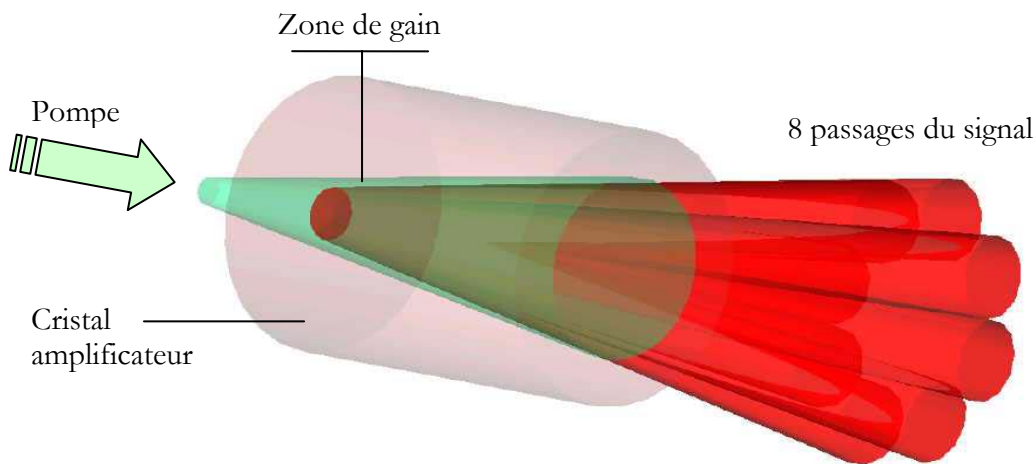


Figure III.7 : configuration optimale permettant de couvrir toute la zone de pompe avec 8 faisceaux.

⁵⁷ Le propos est *grosso modo* le même avec une diode laser nue, seule la forme de la zone de gain est alors différente.

⁵⁸ Compte tenu de la piètre qualité spatiale des faisceaux issus des diodes laser, le faisceau de pompe est rapidement divergent dans le milieu à gain car il est focalisé sur un diamètre en général de quelques centaines de microns.

II.1. Principe de l'architecture de l'amplificateur 3D

II.1.1. Architecture

La structure générale retenue pour réaliser l'amplificateur multipassage tridimensionnel est basée sur l'utilisation de différents plans d'incidence dans le cristal, comme illustré sur la figure III.8.

Considérons un faisceau incident à amplifier F . Ce faisceau est focalisé suivant le trajet F_1 dans le cristal amplificateur par une lentille L qu'il traverse *loin de son axe et parallèlement à celui-ci*. Il est ensuite réfléchi par un miroir placé juste derrière le milieu amplificateur et effectue ainsi un deuxième passage dans le cristal, avant de retourner vers la lentille (trajet F_2) : c'est le premier double passage, et il a lieu dans le plan (F_1F_2) . La distance entre la lentille et le miroir est à peu près égale à la distance focale de la lentille : le faisceau F_2 ressort donc de la lentille parallèle à l'axe de cette dernière. On place à cet endroit un élément réflecteur quelconque (dont je préfère pour l'instant tenir l'identité secrète pour maintenir un suspens que l'on peut sans hésitation qualifier d'insoutenable) qui translate le faisceau perpendiculairement à son axe de propagation tout en laissant sa direction inchangée. Le faisceau émergent F_3 est donc parallèle à l'axe de la lentille mais hors du plan (F_1F_2) . Un deuxième double passage est alors effectué identiquement au premier, mais cette fois dans le plan (F_3F_4) . L'ajout d'un second élément réflecteur permet d'ajouter un troisième double passage et ainsi de suite...

Le nombre de passages total n dans le cristal est donc égal à $2(N+1)$ où N est le nombre d'éléments réflecteurs mis en place. N est essentiellement limité par l'encombrement du système : appelons « ouverture numérique du signal » l'angle solide Ω du cône d'angle au sommet F_1MF_2 (cf. figure III.6); si on accepte d'utiliser une lentille (en fait un doublet pour limiter l'aberration de

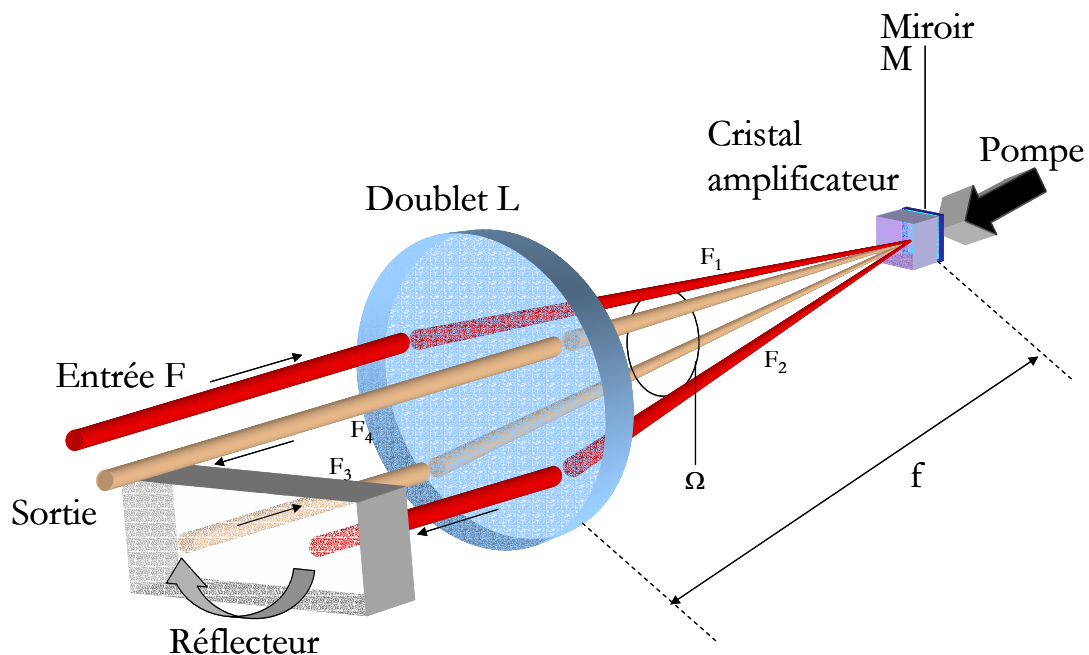


Figure III.8 : principe du multipassage géométrique 3D utilisé. Seuls 4 passages sont présentés sur cette figure (un seul élément réflecteur) pour simplifier la représentation.

sphéricité car on travaille loin de l'axe optique) de très grand diamètre et de très grande focale, on pourra mettre en place un grand nombre de réflecteurs tout en conservant une ouverture numérique du signal compatible avec celle de la pompe.

Les contours du système étant maintenant clairs, il nous reste à préciser les éléments qui vont le composer.

- Le doublet L : il sera traversé n fois par le faisceau amplifié, ce qui correspond à $2n$ interfaces air-verre ou verre-air. Il est par conséquent indispensable que ce doublet soit traité anti-reflets à la longueur d'onde signal (1064 nm dans notre cas).
- Le miroir : il sera traité HR à 1064 nm et HT à 808 nm, et sera plan (auquel cas il pourra être déposé directement sur le cristal) ou convexe pour éventuellement compenser la présence d'une lentille thermique.
- Les éléments réflecteurs : il peut s'agir de n'importe quel élément permettant de décaler le faisceau : lentille associée à un miroir plan situé à la distance focale, prisme, coins de cube... En pratique les systèmes que nous avons réalisés sont basés sur les deux derniers cités.
- Le cristal : comme nous l'avons déjà dit, seuls les cristaux dopés par l'ion néodyme sont compatibles avec le microlaser et susceptibles de constituer des amplificateurs efficaces. Nous utiliserons donc des cristaux de Nd:YAG ou de Nd:YVO₄. Nous allons maintenant discuter des avantages respectifs de ces cristaux.

II.1.2. Choix du cristal

Le premier matériau auquel on pense lorsqu'on veut amplifier un signal à 1064 nm est bien entendu le Nd:YAG, cristal le plus utilisé dans le monde des lasers, en raison de ses excellentes propriétés spectroscopiques et thermo-mécaniques. Depuis quelque années il est néanmoins concurrencé par le Nd:YVO₄ pour bien des applications. Etant donné que notre microlaser Mégahertz est justement constitué d'un cristal de Nd:YVO₄, le bon sens nous amène évidemment à porter une attention toute particulière à ce cristal.

Nous avons résumé dans le tableau suivant les principales caractéristiques des deux candidats :

	Nd :YAG	Nd :YVO ₄
Section efficace d'émission stimulée (10 ⁻¹⁹ cm ²)	2,8	25
Absorption autour de 808 nm (cm ⁻¹) - dopage de 1%	7,1	31,2
Largeur spectrale à mi-hauteur (nm)	0,8	1,3
Conductivité thermique (W/m/K) – non dopé	14	5,1
Longueur d'onde centrale d'émission (nm)	1064,14	1063,88
Temps de fluorescence (μs)	230	50
Anisotropie	non	forte
Indice de réfraction à 1064 nm	n = 1,82	n _o = 1,957 n _c = 2,165

Tableau III.1 : Comparaison des propriétés du Nd :YAG et du Nd :YVO₄ (orientation du cristal : axe *c* perpendiculaire à la propagation ; polarisation π).

Il apparaît immédiatement que le Nd :YAG présente l'avantage d'avoir une conductivité thermique importante – presque trois fois supérieure à celle du Nd :YVO₄ – et donc de produire des effets thermiques modérés. La section efficace, donc le gain, du Nd :YAG est cependant bien moins importante que celle du Nd :YVO₄ : un nombre de passage plus important sera nécessaire pour extraire au mieux l'énergie. On peut d'ailleurs quantifier facilement cet effet : en utilisant la modélisation classique de Frantz et Nodvik décrite plus haut, on peut tracer l'histogramme décrivant l'amplification d'une impulsion d'énergie *E* en fonction du nombre de passages dans le cristal amplificateur (figure III.9). On remarque qu'il suffit de quelques passages (4 à 5) pour extraire de façon optimale l'énergie stockée dans un cristal de Nd :YVO₄, alors que plus de 10 passages sont nécessaires pour faire de même avec un cristal de Nd :YAG. Dès lors l'intérêt d'utiliser un matériau à fort gain pour simplifier la structure du multipassage paraît évident.

Le Nd :YVO₄ ne présente cependant pas que des avantages : nous avons vu que sa mauvaise conductivité le rend vulnérable aux effets thermiques et aux dégradations de faisceau qui s'ensuivent. D'autre part, l'anisotropie de ce cristal est problématique : la lentille thermique créée sera selon toute probabilité aberrante, ce qui est très fâcheux (les désagréments dus à la biréfringence induite thermiquement seront par contre négligeables, ce qui n'est pas le cas avec un cristal isotrope comme le Nd :YAG). En tout état de cause, un contrôle rigoureux de l'état de polarisation des faisceaux est nécessaire pour optimiser l'amplification.

Nous avons réalisé des amplificateurs basés sur ces deux cristaux afin de pouvoir déterminer expérimentalement le plus apte pour notre application. Nous allons présenter dans les paragraphes suivants les différentes configurations expérimentales (la première avec un cristal de Nd :YAG, la seconde avec un cristal de Nd :YVO₄) mises en œuvre et les résultats obtenus.

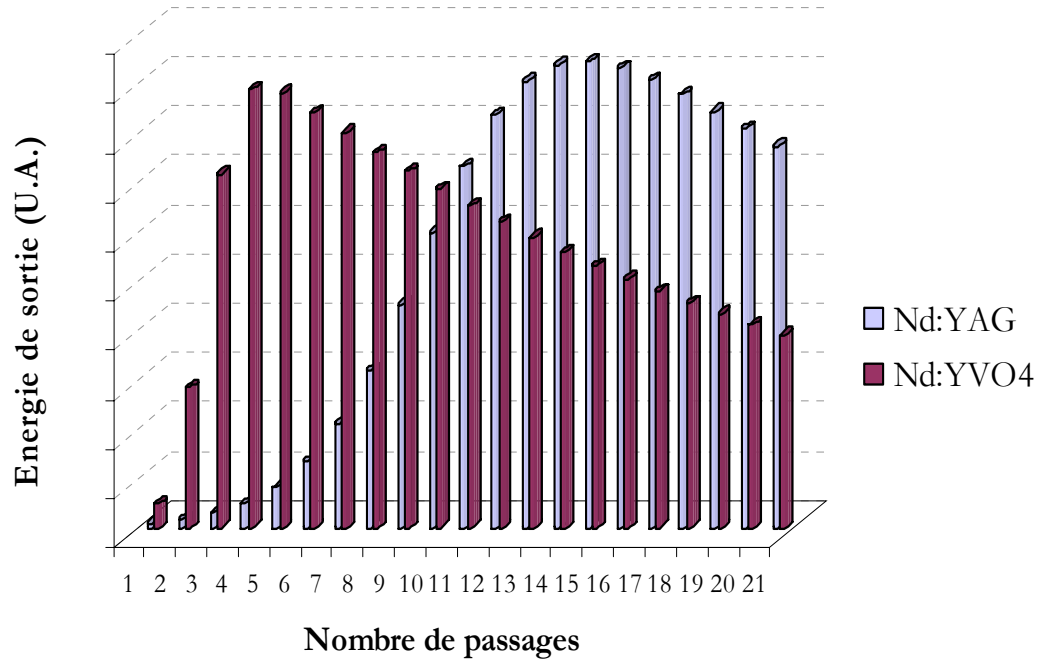


Figure III.9 : Simulation des performances des cristaux amplificateurs Nd :YAG et Nd :YVO₄ en fonction du nombre de passage en utilisant le modèle de Frantz-Nodvik ($E_{\text{incidente}} = 0,3 \mu\text{J}$, pertes passives entre chaque passage = 5%, waist signal = $120 \mu\text{m}$, gains petit signal mesurés expérimentalement : 1,9 pour le Nd :YAG et 9 pour le Nd :YVO₄).

II.2. L'amplificateur 3D à base de cristaux de Nd :YAG

II.2.1. Principe

Comme nous venons de le voir un nombre de passage important est requis pour extraire au mieux l'énergie stockée dans un cristal de Nd :YAG. Nous avons choisi d'utiliser une succession de prismes comme éléments réflecteurs afin de réaliser huit passages dans le cristal avec une structure compacte et simple. En effet, un simple prisme en toit possède la propriété de décaler spatialement un faisceau incident orthogonal à sa base en lui conservant sa direction.

Pour cela, nous avons mis à profit un système optique développé initialement dans le cadre d'études sur une autre architecture : le laser « disque mince » [Giesen 94][Erhart 00]. Le

principe de ce laser, inventé en 1994 par Giesen et ses amis à Stuttgart, est d'utiliser un cristal très fin collé sur une structure en cuivre (ce qui permet d'évacuer de façon extrêmement efficace la chaleur produite) et de faire passer la pompe plusieurs fois dans ce cristal afin de saturer l'absorption. Un système optique compact à base de prismes a été mis au point par la société Nanolase dans le cadre d'une licence d'exploitation accordée par l'université de Stuttgart pour cette technologie : nous avons donc détourné cet élément de son but premier en utilisant la structure à prismes pour faire faire plusieurs passages *au signal* comme on peut le voir sur la figure III.10.

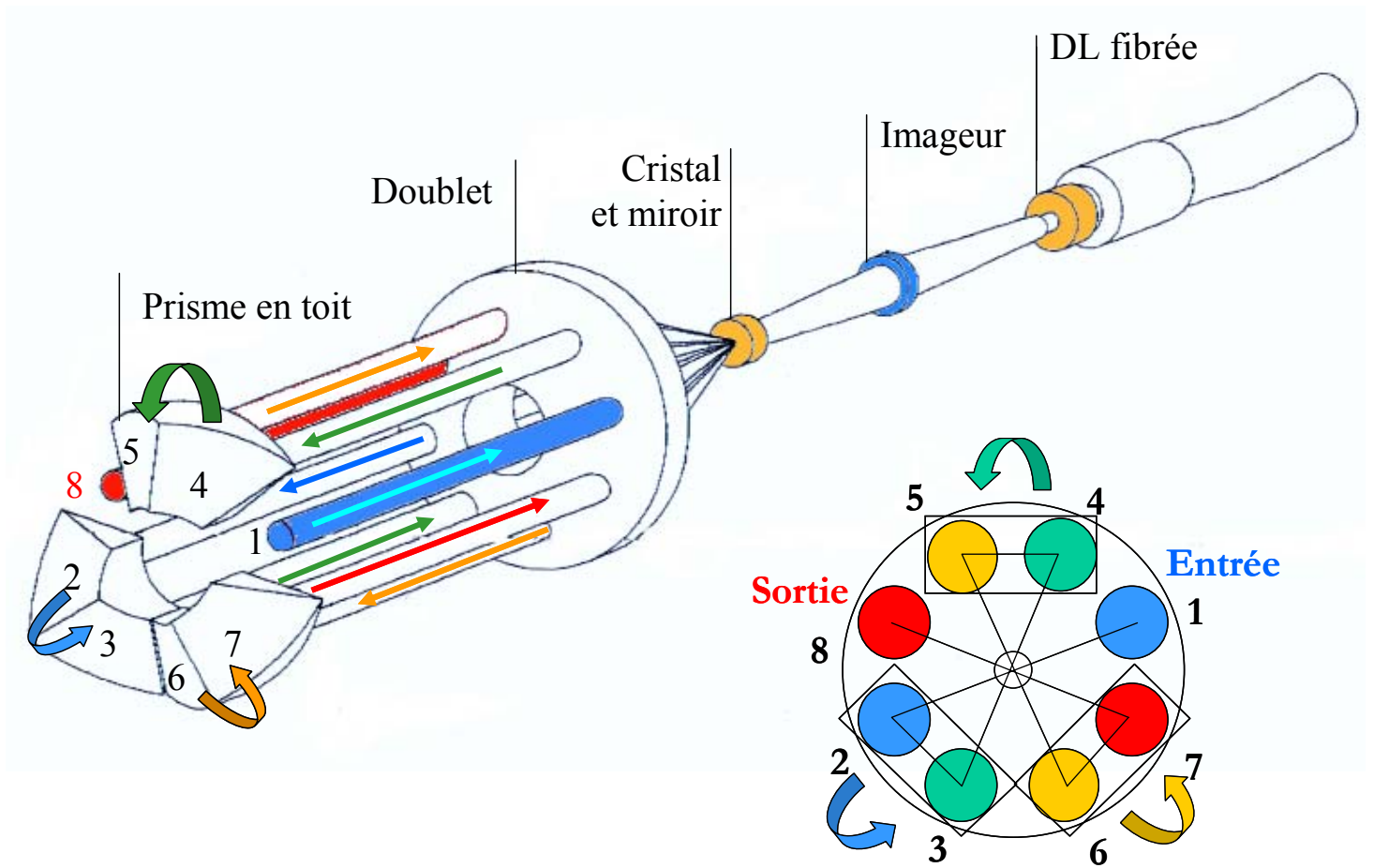


Figure III.10 : principe du système « octo-passage » à prismes : perspective et vue de coupe (par l'arrière). Le faisceau incident arrive en 1 (bleu), est réfléchi par le miroir situé derrière le cristal puis frappe le premier prisme (2) : il est alors décalé à la fois horizontalement et verticalement (3) puis recommence le même trajet mais dans d'autres plans (vert, puis orange, puis rouge).

En utilisant trois prismes, on parcourt quatre plans d'incidences différents (pour 8 passages) symbolisés sur la figure III.8 par les couleurs bleue (passages 1 et 2), verte (3 et 4), orange (5 et 6) et rouge (7 et 8). En positionnant les prismes de cette façon on répartit uniformément les 8 faisceaux dans l'espace suivant une symétrie de révolution, ce qui permet d'optimiser le recouvrement entre ces derniers et la zone de gain. Le système ayant été conçu dans un but industriel par la société Nanolase, il est compact et « monolithique » (photo III.1). De plus, il a été préaligné en usine avec une lunette autocollimatrice.

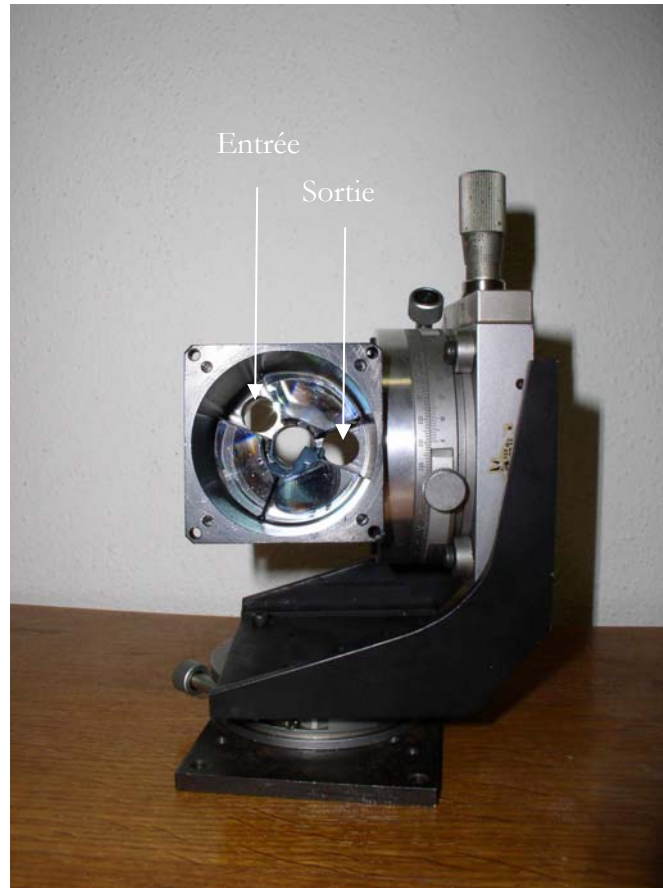


Photo III.1 : système à prismes Nanolase

Le laser de pompe utilisé pour cette expérience est une diode laser fibrée de marque OPC (maintenant Spectra Physics) de puissance maximale 13 W à 808 nm pour un diamètre de 250 μm et une ouverture numérique de 0,2. On utilise un système imageur constitué de deux doublets de focales 60 et 100 mm respectivement : le waist du faisceau de pompe dans le cristal est donc d'environ 200 μm et la divergence totale vaut $\sin \theta = 0,12$. En utilisant un doublet de distance focale 260 mm et de diamètre 50 mm (les faisceaux étant situés à 1 cm du bord de la lentille) pour focaliser les faisceaux dans le cristal, on obtient une ouverture numérique pour le signal de $\sin \theta' \approx 0,115$ compatible avec l'ouverture numérique de la pompe. Un système afocal situé entre le microlaser et l'amplificateur permet de choisir la taille du faisceau signal dans le cristal amplificateur. Dans la suite, on se placera toujours à $w \approx 110 \mu\text{m}$ dans le cristal.

Le cristal de Nd :YAG utilisé présente une concentration en néodyme de 1%, et est traité anti-reflet à 1064 nm sur les deux faces. Il est inséré dans une structure de cuivre refroidie par eau de façon à ce que les quatre faces du cristal soient en contact avec le cuivre. On améliore encore le transfert de chaleur en plaçant de petites feuilles d'indium (ce métal est un excellent conducteur, et de plus sa malléabilité nous autorise à l'ajuster parfaitement autour du cristal) sur chaque face [Forget 03].

Le laser utilisé pour fournir un signal à amplifier nous a été prêté par Nanolase. Il s'agit d'un microlaser « classique » (équivalent globalement au modèle microchip[®] de la gamme commerciale de JDS Uniphase), c'est-à-dire formé d'un cristal laser de Nd :YAG et d'un absorbant saturable (Cr^{4+} :YAG) passif soudés par diffusion. Ce laser produit des impulsions d'environ 700 ps à une cadence de 27 kHz. La puissance moyenne maximale est de l'ordre de 150

mW et le faisceau de sortie est polarisé linéairement et quasiment limité par la diffraction (on a mesuré un M^2 égal à 1,2).

II.2.2. Résultats

Avant de décrire les performances proprement dites de l'amplificateur, quelques mots sur la procédure de réglage. Les trois prismes sont fixés dans une monture comme on peut le voir sur la photo III.1 et préréglés: il est impossible de les orienter indépendamment les uns des autres. La solution consistant à utiliser des prismes indépendants pouvant chacun être réglés individuellement est de toute façon à rejeter en raison de l'accroissement de complexité et de coût qu'elle induit. De plus, on peut noter en observant par exemple la figure III.10 que l'espace disponible est limité : les faisceaux d'entrée et de sortie passent juste au bord des prismes, ce qui rend l'usage de tout élément de réglage problématique. L'ensemble des prismes peut cependant être orienté suivant les deux angles θ et φ et translaté suivant les directions verticale et horizontale. Le miroir situé derrière le cristal peut également être orienté dans ces deux directions.

L'alignement de l'ensemble n'est pas trivial au premier abord. Afin de simplifier cette étape nous avons dû mettre en place un système d'imagerie permettant d'observer la disposition des huit passages dans le cristal. Ce système est décrit sur la figure III.11 :

On a représenté les huit passages dans le cristal sous forme de quatre doubles passages correspondant chacun à un plan d'incidence donné (dans l'ordre en bleu, puis en jaune, en vert et enfin en rouge). Le miroir accolé au cristal est traité pour être « haute réflexion » à 1064 nm : cependant, une très petite quantité de ce signal est transmise malgré tout. Ces sont ces « fuites » que nous récupérons via un autre miroir HR 1064 nm placé dans le trajet du faisceau de pompe

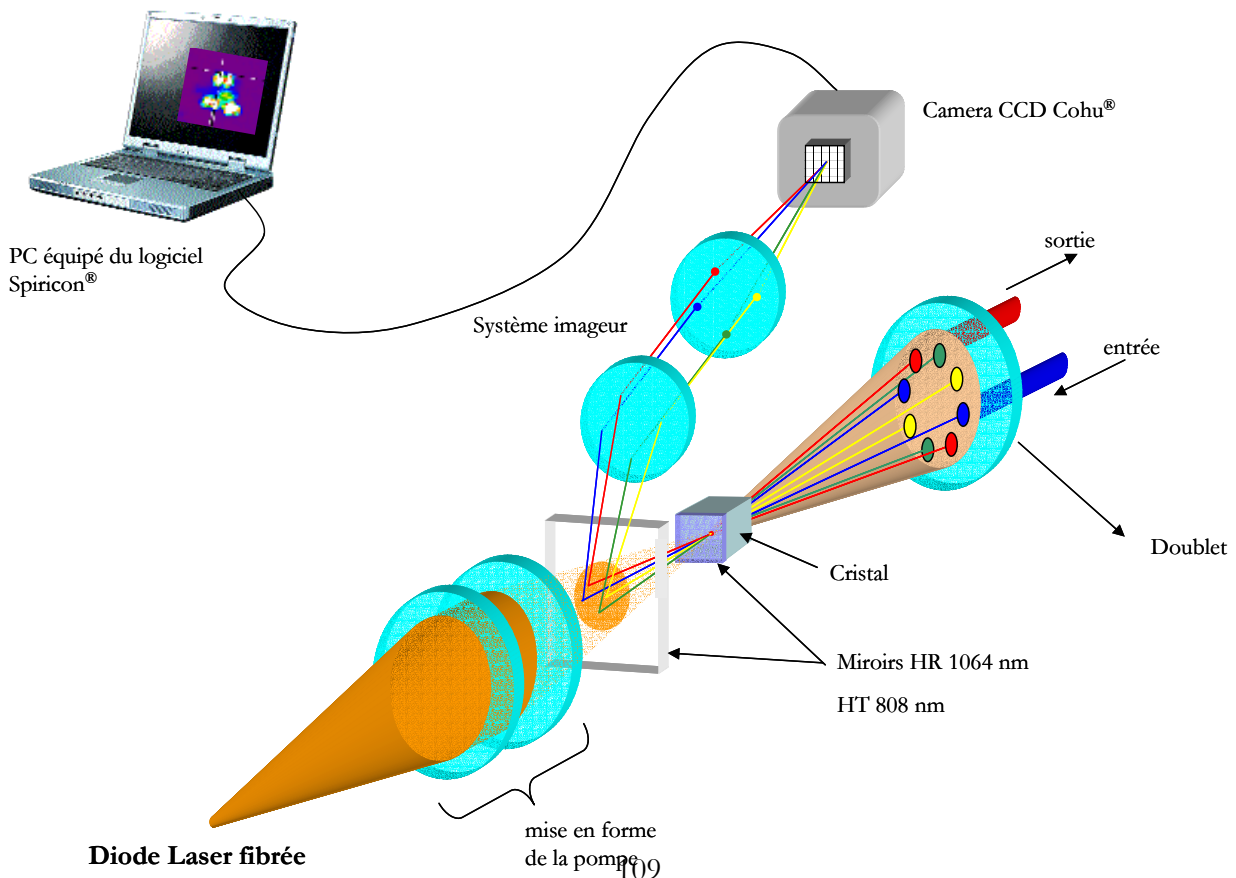


Figure III.11 : système d'imagerie permettant d'observer la position des faisceaux dans le cristal amplificateur.

(cette lame est bien entendu transparente à 808 nm). On image ensuite le cristal avec un grandissement donné par le rapport des distances focales des lentilles utilisées (environ $\times 3$ dans notre cas) sur une caméra CCD.

Chaque double passage donnant naissance à un point sur le miroir situé derrière le cristal, on observe donc quatre spots d'intensités différentes (le premier double passage étant le moins intense et le dernier le plus brillant bien entendu) comme on peut le voir sur la figure III.12 ci-dessous.

Le but du jeu est d'optimiser la position des quatre impacts les uns par rapport aux autres et par rapport à la position de la pompe (dont on peut visualiser la position via le rayonnement de fluorescence qu'elle engendre) de façon à maximiser la puissance de sortie.

Pour une puissance de pompe de 12 W incidente sur le cristal, correspondant à une puissance absorbée de 9 W (l'absorption de l'échantillon de Nd:YAG que nous utilisons n'est que de 75 %), on obtient au mieux 1,8 W de signal amplifié pour 150 mW injecté comme le montre la figure III.13. La qualité de faisceau est quant à elle déplorable : le signal amplifié est considérablement élargi au cours de l'amplification (figure III.14). Il est également dégradé

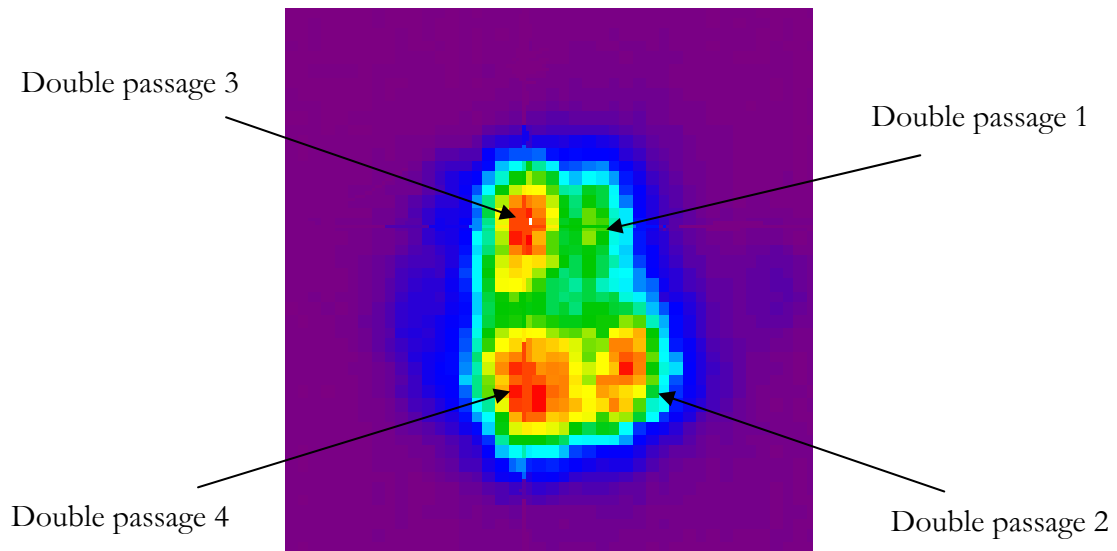


Figure III.12 : impacts des quatre double passages dans le cristal.

puisque le M^2 après huit passages est mesuré à 2,8.

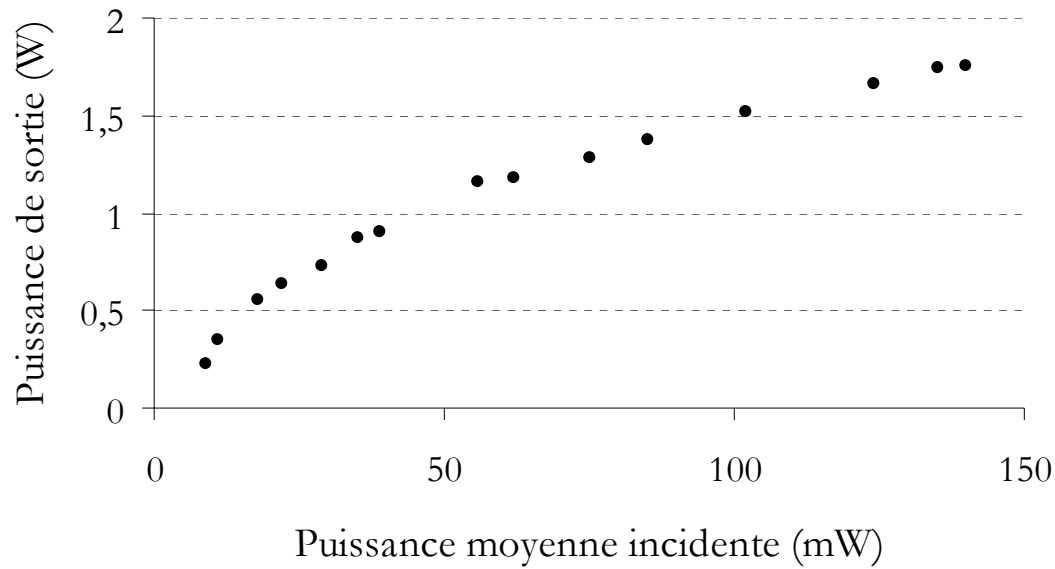


Figure III.13 : puissance de sortie en fonction de la puissance d'entrée.

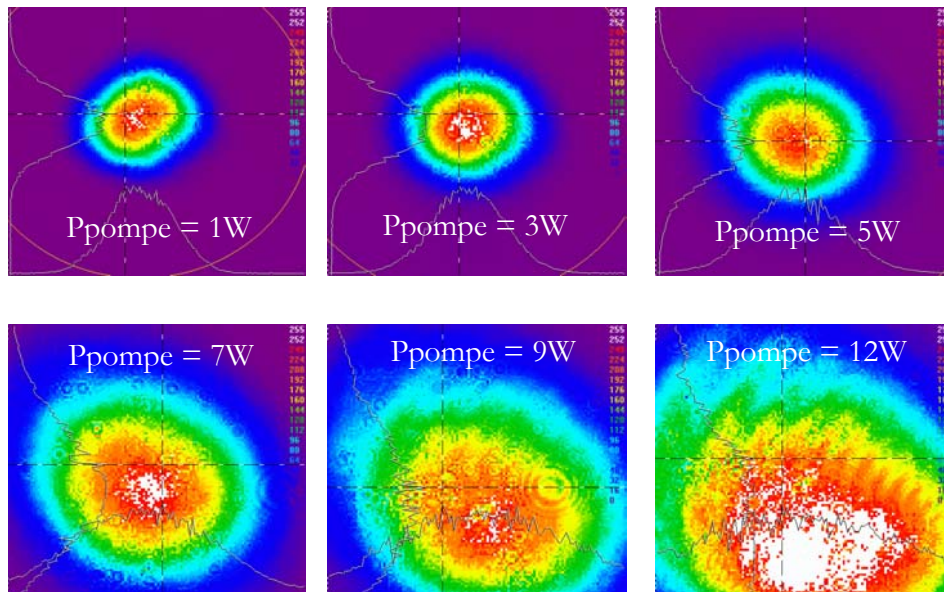


Figure III.14 : évolution du profil spatial en sortie de l'amplificateur.

Ces éléments laissent supposer qu'une forte lentille thermique est présente dans le cristal : elle conduit à une variation de la taille des faisceaux à chaque passage et dégrade à la fois l'efficacité de l'ensemble et la structure spatiale du signal amplifié. Nous avons mesuré la lentille créée dans le cristal de Nd :YAG par la méthode suivante : on place deux miroirs plans de part et d'autre du cristal pour réaliser un laser. On éloigne ensuite progressivement l'un des deux miroirs plans : la cavité est par nature instable (plan-plan) mais est stabilisée par la présence de la lentille thermique. On peut en première approximation estimer que l'ensemble miroir plan – cristal est équivalent à un miroir concave de rayon de courbure f (la distance focale de la lentille thermique).

En éloignant progressivement le second miroir on finit par atteindre la distance d à partir de laquelle la cavité n'est plus stable : on a alors simplement $d = f$. En effectuant cette mesure on trouve $f = 4,6$ cm. Il faut cependant faire attention : la lentille thermique en configuration « amplification » ne sera pas la même qu'en configuration « laser » : en effet, la présence de l'effet laser permet d'évacuer une partie de la charge thermique apportée par la pompe sous forme de rayonnement [Chenais 02]. On a donc seulement accès ici à un ordre de grandeur. De plus, la présence d'une lentille thermique « simple » ne fait *a priori* que changer la taille du faisceau et est « compensable » par exemple en remplaçant le miroir plan situé derrière le cristal par un miroir convexe de rayon $R = -f$; par contre, les aberrations de la lentille thermiques sont responsables de la dégradation du faisceau et ne sont pas compensables simplement.

En pratique, on améliore un peu la qualité spatiale en utilisant un miroir convexe de rayon de courbure 300 mm^{59} (le M^2 passe de 2,8 à 1,7) comme on peut le voir sur la figure III.15 ; peut-être faut il voir ici l'effet de la taille du faisceau : un faisceau de petite taille et passant au centre de la lentille thermique est moins sensible aux aberrations.

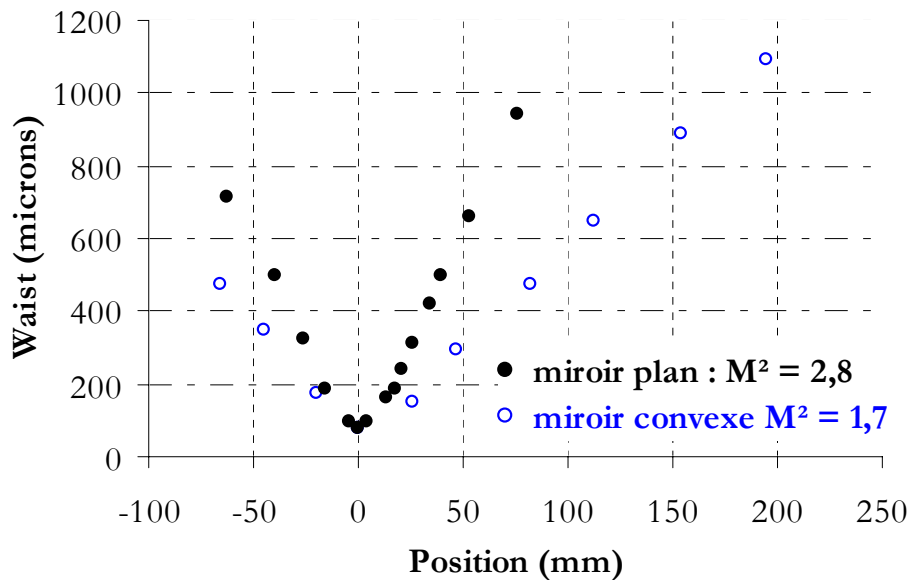


Figure III.15 : amélioration de la qualité spatiale du faisceau en remplaçant le miroir plan par un miroir convexe ($R = -300\text{ mm}$).

L'utilisation de cet artifice ne permet cependant pas d'obtenir un faisceau limité par la diffraction. De plus les performances – en termes de puissance – ne sont pas améliorées par l'utilisation d'un miroir convexe : elles restent complètement similaires.. Enfin, il ne faut pas perdre de vue que l'objectif final est de réaliser un produit industriel : la mise en place d'un miroir convexe derrière le cristal n'est pas compatible avec les impératifs de production, et en particulier est incomparablement complexe et coûteuse par rapport à un miroir plan directement déposé sur le cristal.

Il faut donc trouver un moyen d'atténuer la lentille thermique tout en conservant un miroir plan et en augmentant la puissance extraite de l'amplificateur : la solution est de travailler sur le cristal lui-même.

⁵⁹ En fait les résultats sont quasiment les mêmes (légèrement moins bons cependant) avec un miroir de rayon de courbure de 100 et même de 500 mm... Nous n'avons pas testé de miroirs de rayons de courbure plus importants.

L'absorption du cristal de Nd:YAG que nous avons utilisé jusqu'à maintenant est faible (75%) : nous avons donc mis en place un autre cristal permettant d'absorber plus de 86 % de la puissance de pompe incidente. La qualité optique de ce nouveau cristal semble (à l'œil) également être meilleure. Pour se placer dans les conditions « industrielles », nous avons fait déposer le miroir de haute réflexion à 1064 nm directement sur le cristal. Enfin il importe de faire quelque chose pour réduire les effets thermiques, qui risquent ici d'être encore plus importants en raison de la plus forte absorption du cristal : nous avons donc fait accoler au cristal de Nd:YAG dopé un cristal de YAG « blanc » (c'est-à-dire non dopé) de deux millimètres d'épaisseur permettant d'évacuer la chaleur de façon particulièrement efficace (voir figure III.16) via la face d'entrée du cristal (habituellement en contact avec l'air donc fort mal refroidie).

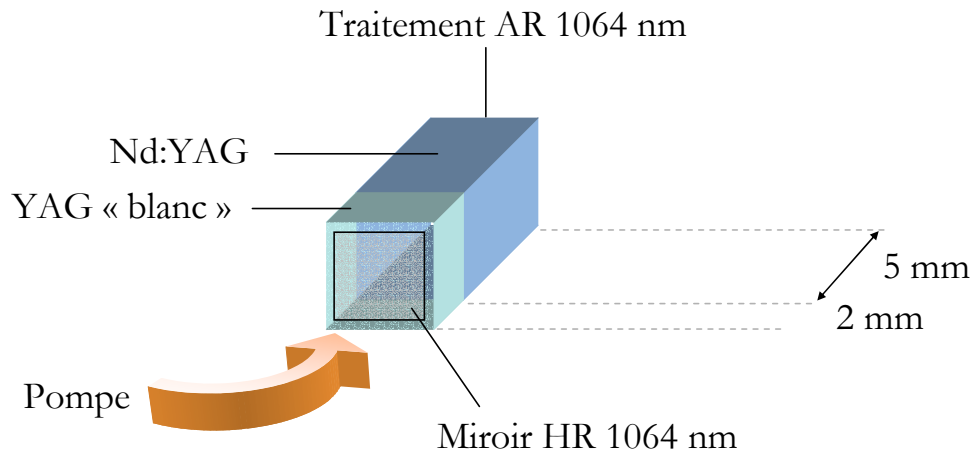


Figure III.16 : cristal « composite » constitué d'une partie Nd:YAG et d'une partie YAG seul.

La présence d'une partie non-dopée entre le cristal amplificateur et le miroir pose *a priori* un problème de recouvrement des faisceaux. En effet, en l'absence de cet élément, il est clair qu'il faut que le point de rencontre (et de focalisation) des 8 faisceaux se situe sur le miroir ; en sa présence, la situation est plus confuse : la focalisation sur le miroir, c'est-à-dire dans une zone non-dopée, n'est peut être pas la meilleure solution. Une focalisation des faisceaux plus avant dans le cristal (dans la zone dopée) conduit à un recouvrement moins bon et absolument pas maîtrisé. Un positionnement optimum doit donc être trouvé de façon purement expérimentale.

Les résultats obtenus avec ce cristal sont représentés sur la courbe suivante (figure III.17). On retrouve bien entendu la saturation du gain déjà observée et les deux régimes de fonctionnement (fort gain et forte extraction d'énergie) décrits qualitativement sur la figure III.1. On note cependant par rapport au cristal précédent une très nette augmentation de la puissance de sortie de l'amplificateur : on atteint maintenant une puissance de 2,7 W en sortie pour une puissance de 130 mW de signal, soit un gain saturé de plus de 20. En régime petit signal, le gain (sur huit passages) est supérieur à 115. Le gain petit signal extrapolé pour un seul passage est supérieur à 1,9.

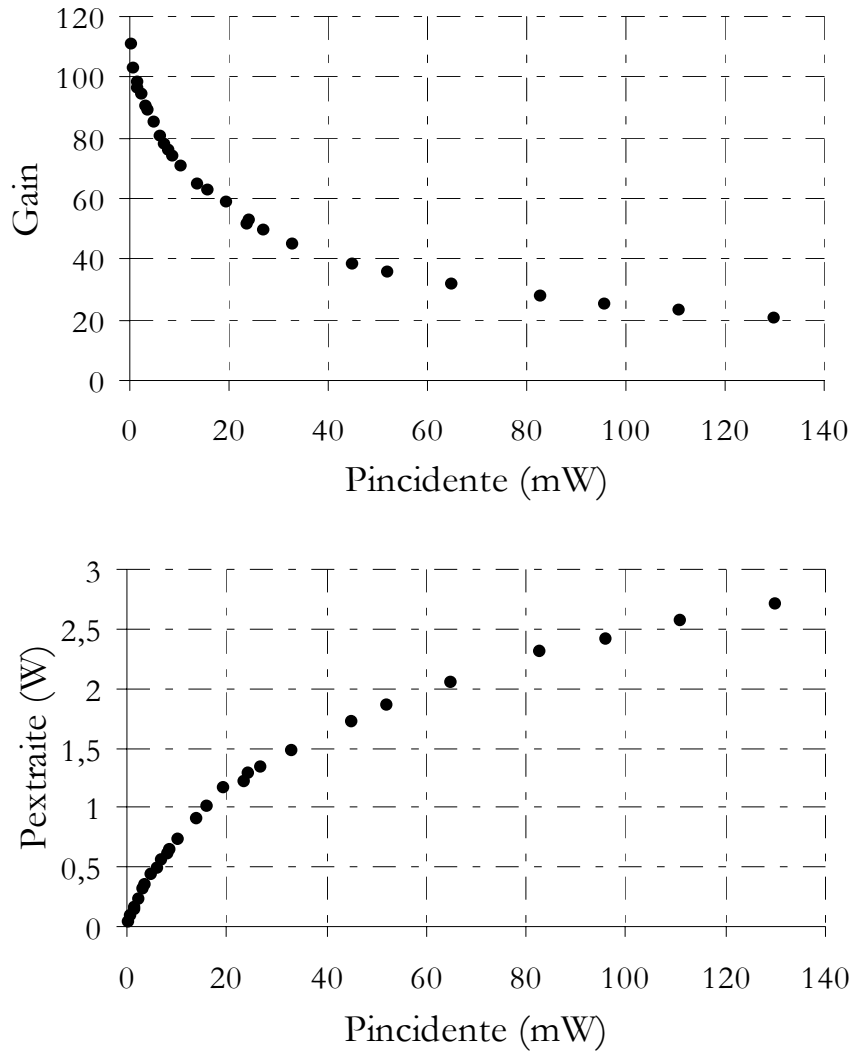


Figure III.17 : Puissance extraite ($=P_{\text{sortie}} - P_{\text{entrée}}$) et gain en fonction de la puissance signal incidente sur l'amplificateur octopassage. La puissance de pompe incidente sur le cristal est de 12 W. On retrouve parfaitement les allures théoriques décrites sur la figure III.1.

Remarques sur l'accord théoretico-expérimental

Il est possible d'ajuster cette courbe de façon très satisfaisante par une courbe théorique basée sur l'équation de Frantz Nodvik (annexe III) ; cependant deux points importants sont à signaler :

- Un certain nombre de paramètres ne sont connus qu'avec une précision médiocre (qu'il s'agisse de données spectroscopiques ou plus encore expérimentales comme la taille du faisceau dans le cristal) : or une variation de 10% du waist conduit à une différence de plusieurs centaines de milliwatts sur la puissance de sortie par exemple...

- Le modèle théorique du multipassage peut être exécuté de deux façons : soit on considère que les huit passages sont effectués au même endroit dans le cristal (il faut alors tenir compte de la diminution du gain disponible pour le passage $n+1$ du fait du passage n), soit on considère que chaque passage se fait dans une zone « neuve » du cristal (on utilise alors le même gain G_0 pour chaque passage dans la formule (AII.8) de l'annexe III). C'est cette dernière approche qui donne les résultats les plus proches de l'expérience : cependant, il semble que cette hypothèse soit un peu forte... On se trouve probablement dans un régime intermédiaire, et une étude théorique plus détaillée est nécessaire pour obtenir des résultats physiquement acceptables.

Pour ces deux raisons, et par souci d'honnêteté intellectuelle, je ne présenterais pas dans ce mémoire d'ajustements théoriques des courbes expérimentales, puisque leur sens physique me paraît douteux.

Il est commode pour évaluer « avec les mains » la qualité d'un amplificateur de représenter ces résultats sous la forme d'un graphique $P_{\text{extraite}} = f(\text{Gain})$ comme illustré figure III.18. On peut délimiter artificiellement et arbitrairement plusieurs zones sur ce graphique : la zone numéro 1 correspond au régime initial, c'est-à-dire à puissance incidente faible (faible puissance extraite et gain important) et la zone 3 au régime final (forte puissance extraite et gain faible). La zone 2 (faible gain et faible puissance extraite) ne présente bien entendu aucun intérêt, tandis que la zone 4 est le Graal des amplificateurs puisqu'elle combine fort gain et forte puissance extraite. Lorsqu'on augmente la puissance incidente on parcourt typiquement le trajet représenté par une flèche continue noire (de la zone 1 vers la zone 3). L'objectif à atteindre si on veut avoir un amplificateur efficace de forte puissance est de se rapprocher de la zone 4, ou à défaut de s'en rapprocher le plus possible, c'est-à-dire d'augmenter la pente de la courbe (flèche pointillée) : on voit alors que pour les puissances extraites importantes (zone 3) – c'est le régime qui nous importe ici – on a un gain plus important pour une puissance donnée, et que pour un gain donné la puissance extraite est plus importante.

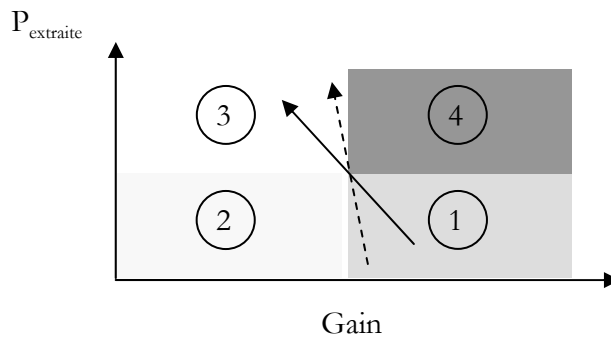


Figure III.18 : qu'est ce qu'un bon amplificateur ?

Voyons maintenant ce que donne notre amplificateur sur un tel graphique. On a représenté sur la figure III.19 en trait plein un comportement d'amplificateur « 2D » performant : il s'agit de la configuration à 14 passages dans un plan décrite par Plaessmann *et al.* [Plaessmann 93]. Cet amplificateur est un des plus efficaces publiés dans la littérature et peut donc servir de référence. Les points représentent nos résultats expérimentaux. On voit nettement que notre structure permet d'atteindre l'objectif susdécrit.

Notre amplificateur démontre donc clairement une meilleure efficacité à forte puissance extraite, malgré un nombre de passage presque deux fois moins important⁶⁰ (ce qui explique en partie le fait que pour des puissances incidentes faibles notre gain soit modeste).

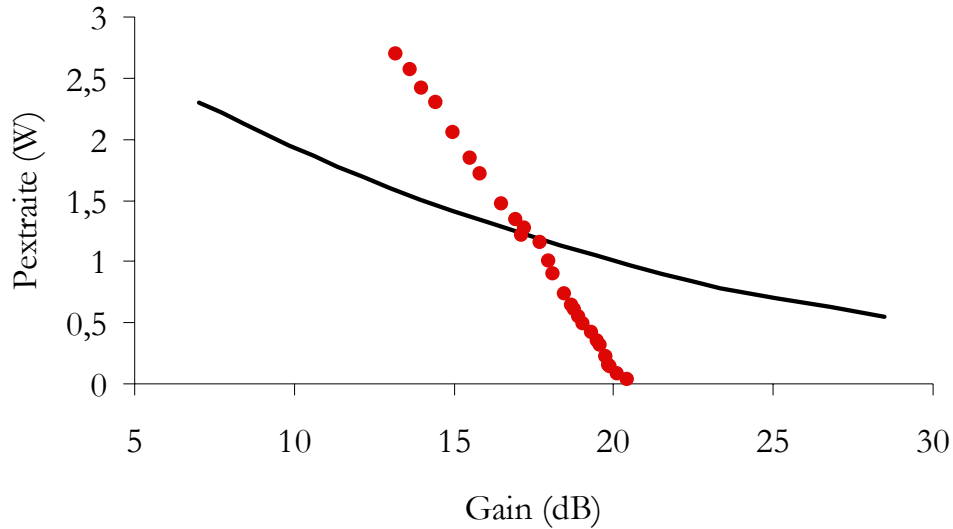


Figure III.19 : comparaison entre nos données expérimentales (points) et [Plaessmann 93] (trait plein).

Ce résultat est extrêmement satisfaisant, cependant la caractérisation de l'amplificateur ne saurait être complète sans dire un mot de la qualité de faisceau. La déception est alors de taille : malgré la présence du YAG blanc le M^2 est de 2,1... Une explication possible se trouve certainement du côté du recouvrement des faisceaux, mal maîtrisé dans le cas du cristal composite comme évoqué plus haut. Enfin signalons que la polarisation du faisceau de sortie est linéaire à plus de 95% (comme le faisceau d'entrée).

II.2.3. Conclusion

Les résultats obtenus avec un cristal de Nd:YAG sont encourageants : la structure tridimensionnelle permet d'obtenir des performances supérieures à celles démontrées avec des architectures classiques. De plus elle nécessite un nombre de passages réduit et permet donc d'améliorer la compacité de l'amplificateur.

Un certain nombre de points noirs subsiste cependant : la qualité du faisceau en sortie d'amplificateur est dégradée, et les réglages d'alignement sont assez délicats. De plus la puissance obtenue (2,7 W) semble trop faible pour atteindre notre objectif (plus de 600 mW à 355 nm) : il faudrait pour cela avoir un rendement de conversion ω vers 3ω de plus de 20%⁶¹.

⁶⁰ Notre système à prismes autorise 8 passages. Cependant on peut facilement envisager de porter ce chiffre à 12 par exemple en utilisant des prismes plus petits et donc plus nombreux : un prototype a été dessiné mais n'a finalement pas été mis en place du fait des évolutions expérimentales (voir la suite de ce chapitre).

⁶¹ L'état de l'art présenté dans le chapitre I permet plutôt d'envisager de 10 à 15% de rendement de conversion.

Nous n'avons pas réalisé l'amplificateur de nos rêves : il faut donc revoir notre copie. Nous nous sommes alors penchés sur l'autre cristal initialement envisagé : le Nd :YVO₄.

II.3. L'amplificateur 3D Nd :YVO₄

II.3.1. Principe

Comme nous l'avons déjà signalé, le Nd :YVO₄ est un cristal présentant un gain bien plus important que le Nd :YAG. On peut donc espérer extraire l'énergie disponible avec un nombre de passages réduit. Par contre la gestion des effets thermiques s'annonce problématique, car sa conductivité thermique est plus faible que celle du Nd :YAG. Nous avons choisi d'utiliser des cristaux peu dopés et assez longs pour répartir au mieux la charge thermique dans le cristal et tenter ainsi de diminuer ses effets néfastes.

Le simple remplacement du cristal de Nd :YAG par un cristal de Nd :YVO₄ dans notre système de huit passages à prismes ne permet pas d'améliorer notablement les performances. En effet le cristal de vanadate est très biréfringent: il existe un facteur trois entre les sections efficaces d'émission suivant les deux axes orthogonaux. Il est donc capital que le faisceau incident soit polarisé linéairement « suivant la bonne direction », et ce à chaque passage. Or les prismes que nous utilisons sont disposés selon une symétrie de révolution (voir encart dans la figure III.10 et photo III.1): ils ne sont donc pas systématiquement attaqués avec une polarisation parallèle ou perpendiculaire à leur arête, mais plus généralement avec une polarisation faisant un angle α (différent à chaque fois) avec l'axe de l'arête. La polarisation en sortie est symétrique de la polarisation en entrée par rapport à cette arête et tourne donc d'un angle 2α à chaque passage dans un prisme. Au final, la polarisation ne peut pas être dans la bonne direction (celle de l'axe du Nd :YVO₄ présentant la plus forte section efficace d'émission) à chaque passage et l'amplification n'est donc pas optimisée.

Il faut donc contrôler la polarisation du faisceau signal tout au long du parcours dans l'amplificateur. Deux solutions peuvent alors être envisagées : rétablir la polarisation après chaque passage dans un prisme ou utiliser un élément réflecteur miracle qui ne fait pas tourner la polarisation, j'ai nommé le *coin de cube*.

A. Utilisation de lames demi-onde

Nous avons fabriqué un système susceptible d'être adapté sur le support contenant les prismes. Ce système (voir photo III.2) est constitué de trois petites lames demi-onde à 1064 nm positionnées sur le trajet des faisceaux 3, 5 et 7, c'est à dire après chaque passage dans un prisme. Ces lames peuvent être orientées individuellement pour rétablir la polarisation ayant tourné dans le prisme et ainsi toujours arriver sur le cristal amplificateur avec la bonne polarisation.



Photo III.2 : système de lames demi-ondes permettant le contrôle de la polarisation.

B. Utilisations de coins de cubes

On remplace ici purement et simplement les prismes par des coins de cubes. Dans notre cas, le principal intérêt des coins de cubes est leur capacité à conserver la polarisation : en effet, un certain nombre d'études ont montré qu'un faisceau de polarisation linéaire conserve globalement cette dernière après réflexion sur un coin de cube [Peck 62][Rabinowitz 62]. Une modélisation rigoureuse montre que cette propriété n'est pas absolue [Liu 97]: dans le cas le plus général la polarisation est elliptique (cette ellipticité dépend en particulier de l'angle d'incidence du faisceau d'entrée, de la direction de polarisation du faisceau incident vis-à-vis des arêtes du coin de cube et bien sûr du type de traitement sur les faces arrières du coin de cube). Cependant pour une incidence normale on peut montrer que la polarisation sortante est très peu changée par rapport à la polarisation entrante [O'Brien 99]. Une rapide consultation des fournisseurs de coins de cubes (Edmund optics, Melles Griot...) nous indique de plus qu'un traitement métallique (en général d'aluminium ou d'argent) sur les faces arrières permet d'améliorer notablement la conservation de la polarisation⁶² : nous avons vérifié expérimentalement ce fait en testant des

⁶² Il semble que ce fait relève d'un savoir empirique probablement transmis depuis la nuit des temps de vendeur de coin de cube à vendeur de coin de cube, lors de grandes veillées au coin du feu, sous le sceau du secret : en effet, tous nous ont affirmé qu'un traitement métallique améliorait la conservation de la polarisation, mais aucun n'a été capable de nous expliquer pourquoi...

coins de cubes non traités et des coins de cube argentés. Il apparaît alors très clairement que les coins de cubes testés (massifs, traités anti-reflets sur la face d'entrée, d'un pouce de diamètre) conservent la polarisation (dans la limite imposée par la précision de nos mesures) lorsqu'ils sont traités avec un revêtement aluminé sur leurs faces postérieures⁶³.

Bien que nous ayons imaginé des montures les plus fines et les moins encombrantes possibles, chaque coin de cube occupe une place plus grande qu'un prisme dans le système précédent (ce dernier utilisait des prismes taillés pour minimiser l'encombrement). Il est par exemple impossible d'utiliser plus de trois coins de cubes (ce qui correspond à 8 passages) si on veut pouvoir injecter et extraire le faisceau signal : on représente une telle configuration sur la figure III.20 qui montre en vue de face (c'est-à-dire vu « depuis le cristal ») le système.

Le grand cercle bleu représente la lentille de focalisation, et les trois cercles noirs les coins de cubes (les montures sont grisées) vus de face. Le faisceau incident est numéroté 1 et ainsi de suite jusqu'au faisceau sortant (8). Chaque passage dans le cristal est symbolisé par un trait rouge et consiste en une symétrie par rapport au centre de la lentille. Chaque passage dans un coin de cube translate le faisceau de façon symétrique par rapport au centre du coin de cube.

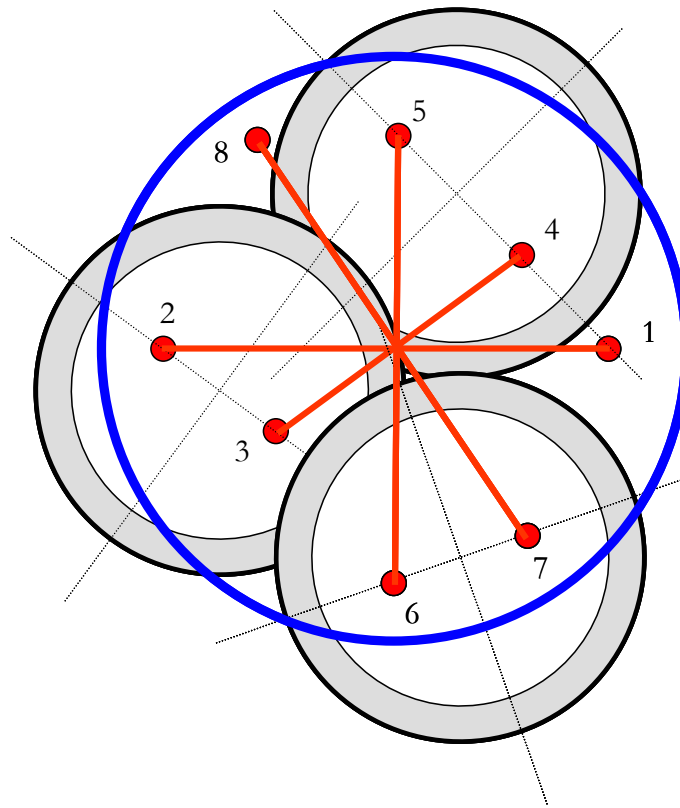


Figure III.20 : exemple de réalisation possible avec trois coins de cube (huit passages).

On voit sur cette représentation que le choix du trajet suivi par le faisceau est limité par l'encombrement effectif des optiques. En pratique les faisceaux sont un peu plus gros et une configuration de ce type (3 coins de cubes – 8 passages) n'est pas viable : elle conduit dans

⁶³ L'explication théorique rigoureuse basée sur le développement des matrices de Jones pour les trois réflexions successives dans un coin de cube traité est un travail conséquent qui n'a pas été réalisé dans le cadre de la présente thèse : les vérifications expérimentales effectuées nous ont semblé suffisamment probantes pour pouvoir nous passer d'une modélisation numérique complexe et gourmande en temps de travail.

presque tous les cas à couper au moins partiellement le faisceau. On se limitera donc dans les faits à des configurations à quatre (un seul coin de cube) ou six (deux coins de cubes) passages.

Il faut noter que les coins de cubes présentent un autre avantage par rapport aux prismes : le faisceau sortant est parallèle (aux incertitudes de fabrication près) au faisceau incident même si ce dernier n'est pas perpendiculaire à la face d'entrée du coin de cube. Il en résulte que le réglage du système à coins de cube est remarquablement simple et rapide comparé au système à prisme. La diode laser de pompe et le laser « signal » à injecter sont les mêmes que ceux utilisés pour la manipulation précédente (avec un cristal de Nd:YAG). Les coins de cubes en BK7 (Edmund Optics) ont un diamètre d'un pouce (25,4 mm) et une tolérance angulaire de 3 secondes d'arc⁶⁴. Ils sont traités antireflet sur les faces d'entrée et argent sur les trois faces « arrières ».

Voici donc la configuration finalement retenue pour nos expériences (figure III.21).

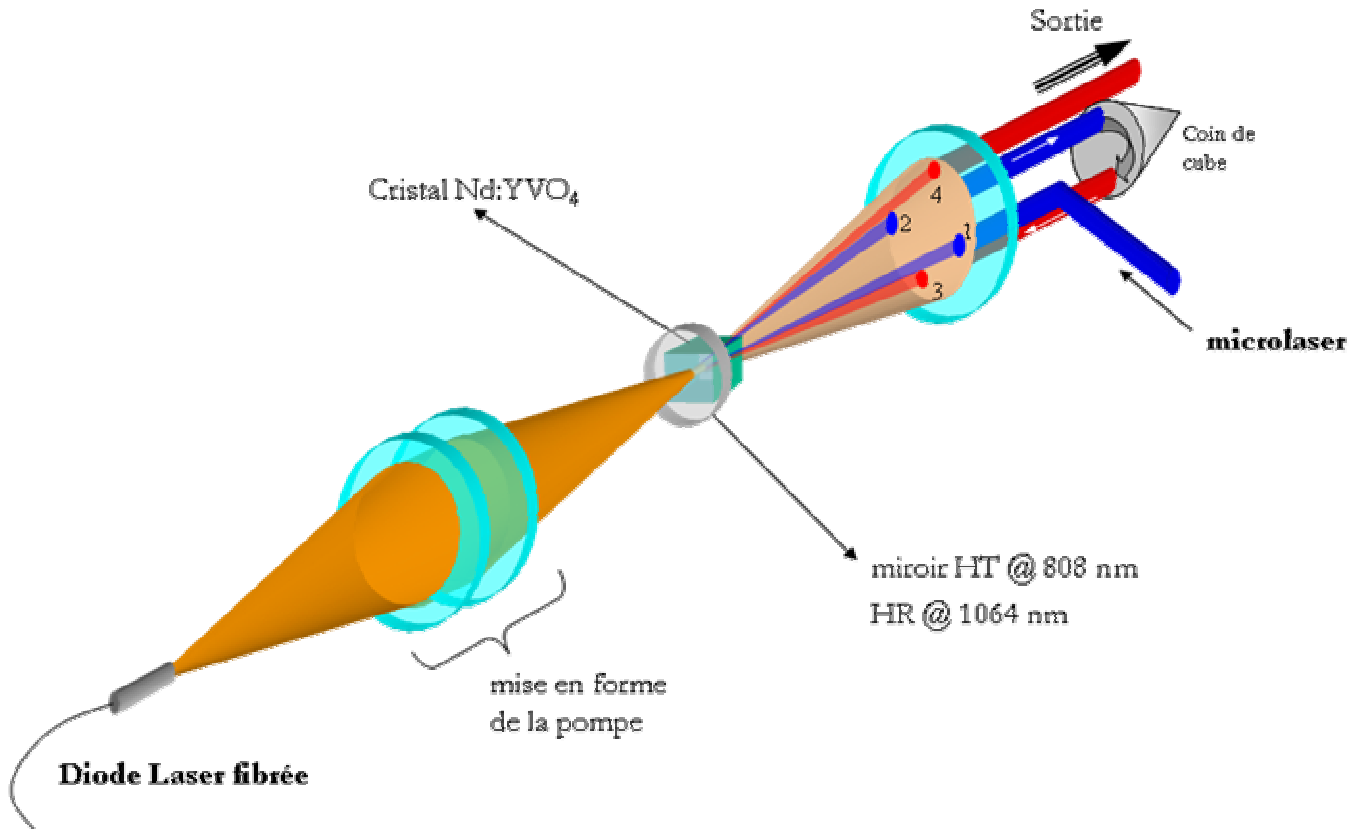


Figure III.21 : configuration de l'amplificateur multipassage à coins de cubes (ici en 4 passages pour simplifier la représentation ; il suffit d'ajouter un coin de cube pour arriver à six passages).

⁶⁴ Ce qui correspond dans notre configuration à un décalage transversal maximum au niveau du cristal d'environ 4 μm , ce qui est largement acceptable.

II.3.2. Résultats

Remarque préliminaire : le cristal de Nd :YVO₄ présente un très fort gain : pour cette raison il a une tendance marquée à utiliser n'importe quelle réflexion parasite comme miroir de fond de cavité pour osciller inopinément. En particulier, on a constamment observé des effets lasers parasites (car dépeuplant le niveau supérieur de la transition amplificatrice) entre le miroir HR déposé sur le cristal et différents éléments du système :

- *La face avant du cristal* (pourtant traitée anti reflet !) : on ne peut que constater cet effet laser, qui n'est pas trop pénalisant car d'intensité modérée (quelques grosses dizaines de milliwatts) et localisé sur l'axe du système donc non-superposé aux trajets des faisceaux. On peut penser à le supprimer en utilisant des cristaux ayant des faces non parallèles (un petit angle de quelques degrés suffit à éliminer cette oscillation parasite) : cette solution n'a cependant pas été retenue car elle brise la symétrie de révolution du système et rend par conséquent le réglage problématique.
- *Les coins de cubes* : cet effet laser produit un faisceau très large qui se promène grosso modo suivant le trajet du faisceau à amplifier. Nous avons cependant pu mesurer que lorsque le signal est injecté l'intensité de cet effet parasite est divisée par 10 (l'essentiel du gain servant alors à amplifier le faisceau) pour devenir égal à quelques milliwatts seulement.
- *Le miroir de sortie du microlaser lui-même* : cet effet laser là est gênant car il perturbe le microlaser (nous reviendrons sur ce point). La seule façon de le faire disparaître est de mettre en place un isolateur optique sur le trajet entre le microlaser et l'amplificateur.

Nous allons désormais détailler les résultats obtenus pour différents dopages et différents nombres de passages dans le cristal.

Remarque : les résultats présentés dans cette partie utiliseront tous la configuration « coins de cubes » au détriment de la solution « prismes + lames demi-onde » également présentée plus haut. En effet, les expériences réalisées avec cette dernière configuration ont systématiquement donné des résultats très proches de ceux obtenus avec les coins de cubes (6 passages) : les deux configurations fonctionnent donc. Cependant la complexité induite par la mise en place des lames demi-onde ne trouve donc pas de réelle justification ici, surtout si on se place dans une perspective « industrielle » où le paramètre coût ne peut être négligé.

A. Choix du dopage

Nous avons choisi d'utiliser des cristaux longs (10 mm) et peu dopés (0,1, 0,2 et 0,3%) pour essayer de limiter les problèmes thermiques en répartissant la charge calorifique sur une grande longueur. Un faible dopage permet également de limiter les effets dû à « l'up-conversion » : en effet, ce phénomène se traduit par l'adjonction d'un terme dans l'équation gouvernant l'inversion de population :

$$\frac{dn}{dt} = R - \frac{n}{\tau} - \gamma n^2$$

où n est la densité de population de l'état excité, R le taux de pompage, τ le temps de vie de fluorescence et γ le coefficient d'up-conversion.

L'up-conversion est un phénomène conduisant à une forte augmentation de la charge thermique dans les lasers et les amplificateurs [Doualan 00][Chen 00a], et est directement proportionnel au carré de la densité de population de l'état excité. On peut de plus montrer [Meilhac 02] que le coefficient γ augmente avec le dopage. Un faible dopage permet donc de limiter ce type d'effet parasite, ainsi que d'autres tels la relaxation croisée (qui est à prendre en compte lorsque le dopage est important, mais que l'on peut négliger à dopage faible).

Après avoir essayé plusieurs fournisseurs (Casix et New Photons) nous nous sommes aperçu que pour un même dopage annoncé les absorptions variaient de façon notable : afin que nos comparaisons aient un sens, nous n'avons finalement travaillé qu'avec des cristaux fabriqués par Casix. Nous avons mesuré les absorptions respectives de ces trois cristaux : elles sont de 78%, 86% et 93%. Nous avons également testé un cristal dopé à 0,5% plus court (6 mm) qui absorbe 94 % de la puissance de pompe.

Les résultats obtenus sont présentés sur la courbe III.22. Il est à noter que la puissance de pompe a été portée de 12 à 15,7 W⁶⁵ pour toutes les expériences présentées ici.

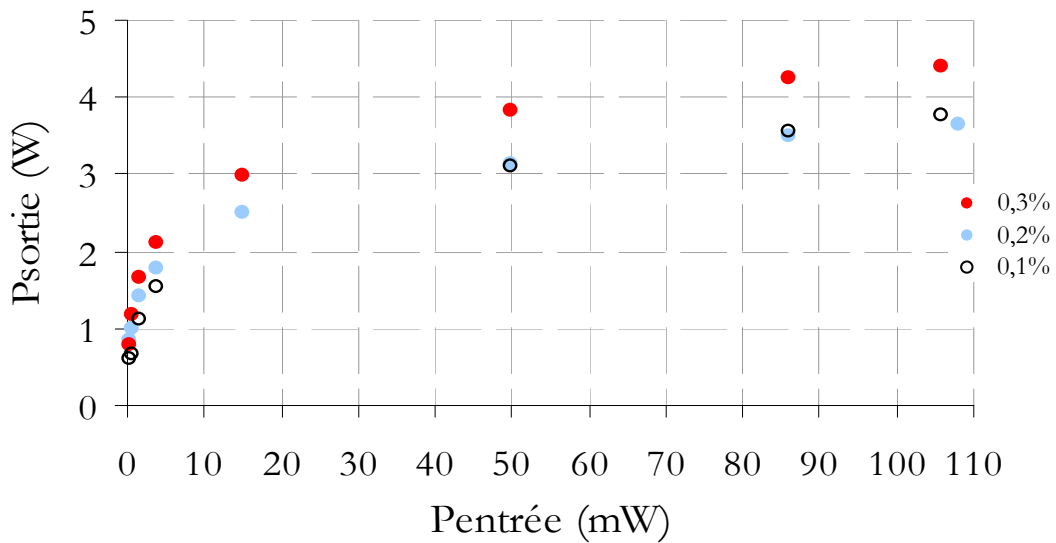


Figure III.22 : Puissance de sortie en fonction de la puissance injectée dans l'amplificateur en 4 passages avec une puissance de pompe de 15,7 W et trois dopages différents.

⁶⁵ La diode laser fibrée est en fait composée de nombreux émetteurs injectés chacun dans une fibre optique. Ces fibres sont réunies en « paquet » (« bundle ») puis passe dans un système optique permettant de transférer le faisceau vers une seule fibre multimode, au prix d'une certaine perte de puissance. C'est en supprimant cet étage qu'on peut gagner en puissance, en faisant le pari que les inhomogénéités induites par ce pompage par « bundle » ne vont pas poser de problème...

On atteint plus de 4W avec le cristal dopé à 0,3% en quadruple passage, ce qui représente 66 % de mieux que les résultats obtenus avec le Nd :YAG pour deux fois moins de passages. Une grande part de ce gain est néanmoins simplement dû à l'augmentation de la puissance de pompe (impossible à réaliser avec le cristal de Nd :YAG : on atteint alors la limite de fracture): à puissance égale (12W) le gain n'est que de 15%. La figure III.23 représente la puissance de sortie obtenue en fonction de la puissance de pompe pour une puissance incidente de 108 mW. Il est à noter que la température et donc la longueur d'onde de la diode de pompe est optimisée pour la puissance maximale (15,7 W), et n'est pas retouchée pour les plus faibles puissances : c'est ce qui explique l'allure « non-linéaire » de la courbe obtenue.

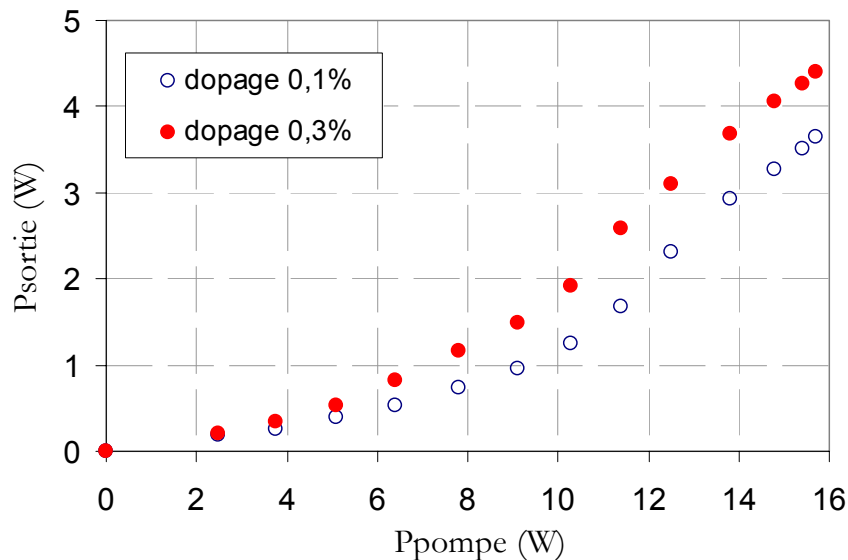


Figure III.23 : Puissance de sortie en fonction de la puissance de pompe pour deux dopages différents en 4 passages avec $P_{\text{signal}} = 108 \text{ mW}$.

On note que le cristal dopé à 0,3% donne des résultats bien meilleurs que les autres dopages. La surprise vient du cristal dopé à 0,2% (figure III.22) qui malgré une absorption plus importante se comporte à peu près comme le cristal dopé à 0,1%. On attribue ceci à la qualité optique du cristal qui s'est globalement avéré toujours moins performant que les autres, notamment en termes de résistance à la fracture. Nous nous sommes donc par la suite concentrés sur les cristaux dopés à 0,1 et 0,3%.

L'étude de la qualité spatiale du faisceau en sortie va nous fournir un second critère permettant de faire la différence entre les deux dopages. L'étude systématique du M^2 pour tous les cristaux nous réserve une (bonne) surprise : le faisceau est *limité par la diffraction dans les deux directions* (pour le cristal à 0,3 % : $M_x^2 = 1,2$ et $M_y^2 = 1,1$ tandis que pour le cristal à 0,1 % : M_x^2 et $M_y^2 = 1,1$). On a représenté sur la figure III.24 les profils des faisceaux avant et après amplification au foyer d'une lentille de 500 mm de distance focale. Les profils sont gaussiens, cependant on note que la taille du faisceau augmente fortement – en raison des effets thermiques encore présents – lors du passage dans l'amplificateur (ce qui se traduit par une tache plus petite dans le plan focale de la lentille).

Le critère « qualité spatiale » n'en est donc plus un et seules les performances en termes de puissance vont désormais entrer en ligne de compte.

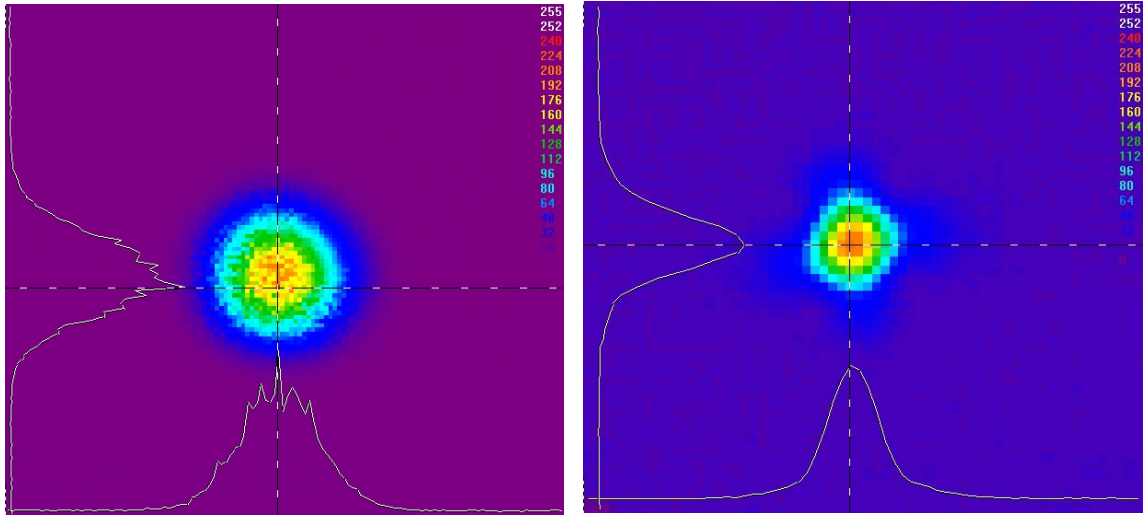


Figure III.24 : profil spatial du faisceau signal avant et après amplification au foyer d'une lentille de 500 mm.

Il est enfin à noter que le cristal de Nd:YVO_4 dopé à 0,5% et long de 6 mm donne des résultats très inférieurs à ceux présentés ci-dessus. Les effets de lentille thermiques sont alors si importants que le faisceau devient trop large pour sortir du système sans être « coupé » par les coins de cubes. Il semble bien que la clé de la bonne gestion des effets thermiques réside dans la combinaison faible dopage - long cristal choisie.

Le bénéfice susceptible d'être tiré des cristaux de Nd:YVO_4 peu dopés a déjà été étudié intensivement pour les oscillateurs lasers [Sennaroglu 00][Chen00a], mais beaucoup moins pour les amplificateurs. Ces cristaux permettent pourtant de diminuer considérablement tous les effets dus à un excès d'atomes dans le niveau supérieur tels que l'absorption par l'état excité, ou « l'upconversion » [Chen 00b]. Comme la population de l'état excité est plus importante dans les amplificateurs que dans les oscillateurs, ils sont bien plus sensibles à ces effets parasites : le fait d'utiliser un faible dopage permet donc, en plus de diminuer les dégradations d'origine thermique, de limiter l'influence de ces phénomènes.

B. Choix du nombre de passage

Nous avons le choix entre effectuer quatre ou six passages dans le cristal. Le passage d'une configuration à l'autre est redoutablement simple puisqu'il s'agit juste d'ajouter un coin de cube d'orientation non-critique dans le trajet du quatrième passage. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure III.25.

La mise en place d'un double passage supplémentaire permet d'augmenter de façon conséquente les performances : le gain petit signal augmente considérablement et la saturation est beaucoup plus marquée. La configuration « cristal dopé à 0,3% et 6 passages » semble donc très séduisante. Sa cuirasse possède néanmoins un défaut de taille : nous avons régulièrement observé avec cette structure un endommagement définitif du cristal. Il semble que la densité de puissance atteinte lors du dernier passage (plus de 2 GW par cm^2 au point focal) soit suffisante pour atteindre le seuil de dommage optique du matériau, comme l'atteste la photo III.3. On y distingue nettement la sombre et létale trace du passage des faisceaux...

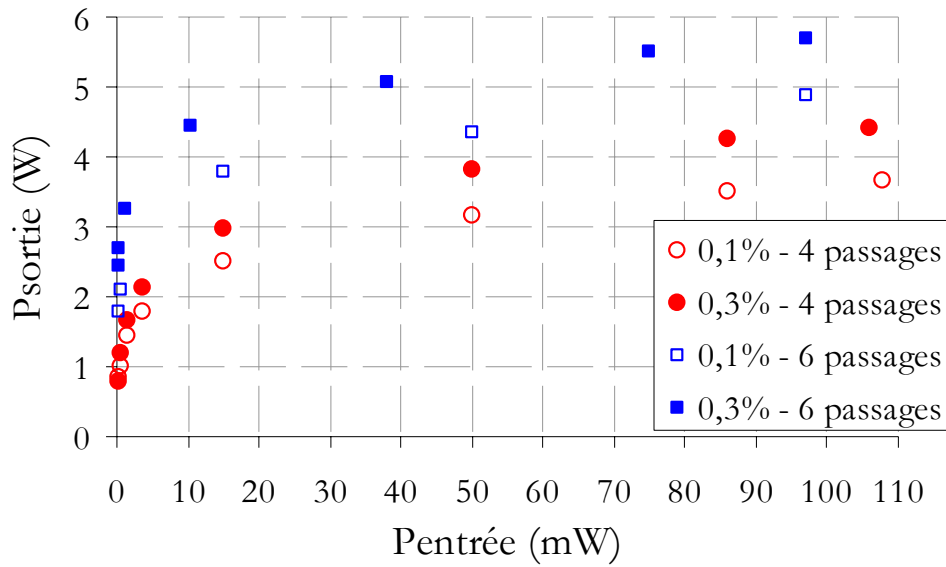


Figure III.25 : comparaison des configuration quadruple (cercles rouges) et sextuple passages (carrés bleus) avec les cristaux $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ dopés à 0,1% (marques vides) et 0,3% (marques pleines).

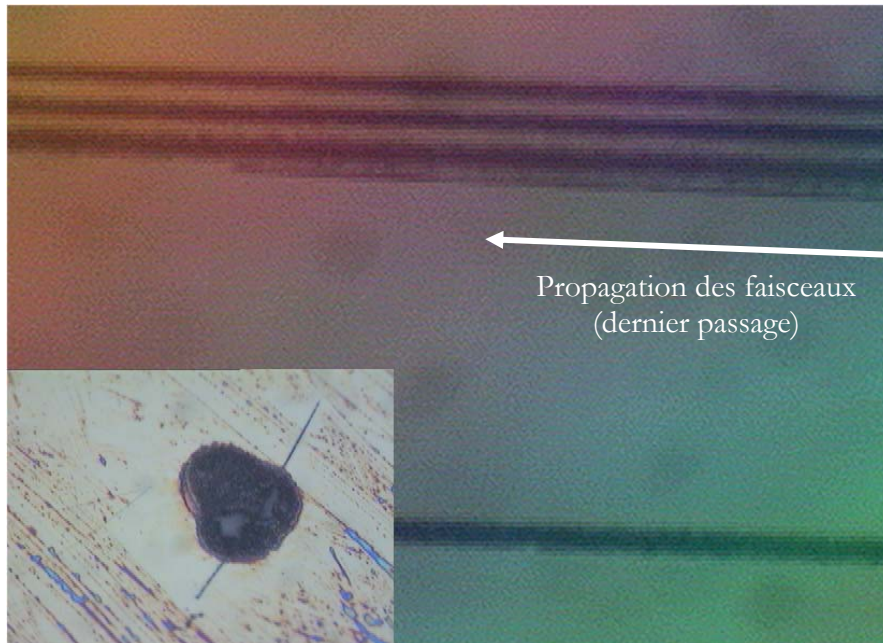


Photo III.3 : dommage optique dans le cristal en vue latérale. En insert : vue de face.

Ces dommages n'ont jamais été observés avec un cristal dopé à 0,1%. Pour prendre une marge de sécurité, et étant donné la puissance de 5W atteinte avec le cristal de 0,1% en six passages (suffisante *a priori* pour réaliser notre objectif de 600 mW dans l'ultraviolet), nous avons choisi de fixer cette configuration pour l'amplificateur. Nous avons alors pour finir mis en place une diode laser de pompe plus puissante (LIMO 20W, diamètre 200 μm , ouverture numérique 0,2 : on utilise cette fois un système imageur de grandissement 1) qui sera la diode de pompe définitive servant également à pomper le microlaser déclenché passivement (voir chapitre II

paragraphe II.3.2). Il en résulte une augmentation linéaire de la puissance de sortie : on passe ainsi de 5W pour une puissance de pompe de 15,7W à 6W pour une puissance de pompe de 19W (on rappelle qu'environ 1W est prélevé pour pomper le microlaser).

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure suivante (III.26) sous la même forme que sur la figure III.19 pour pouvoir effectuer une comparaison.

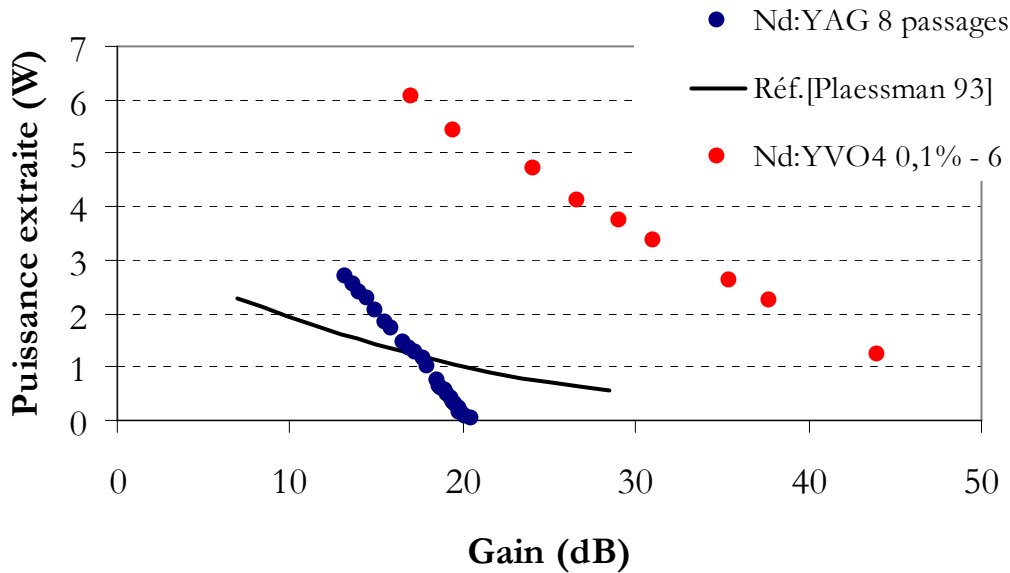


Figure III.26 : représentation des résultats obtenus dans le plan (gain – puissance extraite). Les données relatives à l'amplificateur Nd:YAG et à la référence [Plaessmann 93] sont rappelées.

Ce graphique permet de mettre en valeur les excellentes performances de notre amplificateur : la gain petit signal extrapolé (intersection avec l'axe des abscisses) est d'environ 50 dB (soit $\times 100000$) et la puissance extraite maximale est de 6 W pour 110 mW injectés (soit un gain saturé de $\times 54$). Le rendement $P_{\text{extraite}}/P_{\text{pompe}}$ vaut 31,5%, ce qui constitue une valeur extrêmement respectable pour un amplificateur. On remarque également que la courbe correspondant à notre amplificateur se trouve constamment au dessus et à droite de nos « courbes de référence », c'est-à-dire dans la fameuse « zone 4 » définie arbitrairement plus haut : on a donc un amplificateur combinant de manière très efficace fort gain et forte extraction d'énergie [Forget 02].

Nous ne nous sommes intéressés jusqu'ici qu'aux performances de l'amplificateur en termes de puissance et de qualité de faisceau. Il est cependant capital de vérifier que les caractéristiques temporelles du laser d'injection sont conservées au cours de l'amplification.

Commençons par la durée des impulsions : le microlaser émet des impulsions de durée 730 ps. La mesure de ce paramètre après amplification montre un raccourcissement de la durée d'impulsion jusqu'à 650 ps et une certaine dissymétrie apparaît dans le profil temporel (figure III.27). En effet, le début de l'impulsion (peu intense) voit un gain petit signal extrêmement important à son arrivée dans le cristal, et la fin de l'impulsion voit un gain déjà en partie saturé donc plus faible : on a donc un front avant plus raide que le front arrière et on observe un « rétrécissement temporel » de 10% environ.

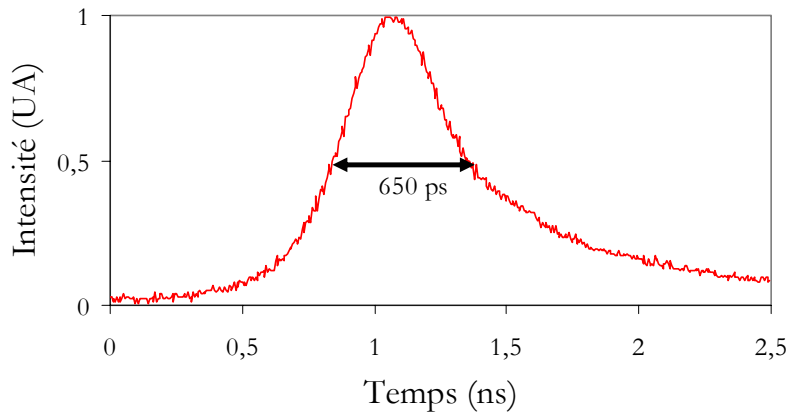


Figure III.27 : mesure de la durée d'impulsion après amplification

Si la cadence du microlaser reste la même avec ou sans amplification, la gigue temporelle peut varier de façon conséquente. On a vu précédemment que la présence d'un effet laser parasite entre le cristal amplificateur et le microlaser était susceptible de perturber ce dernier : cette perturbation se caractérise par une forte augmentation de la gigue temporelle comme le résume la figure III.28. Si l'on ne met pas d'isolateur optique, on observe une gigue de plus de 450 ns sur une période de 37 μ s (27 kHz). La mise en place d'un isolateur optique ramène la gigue à sa valeur sans amplification, à savoir environ 130 ns (0,35 %).

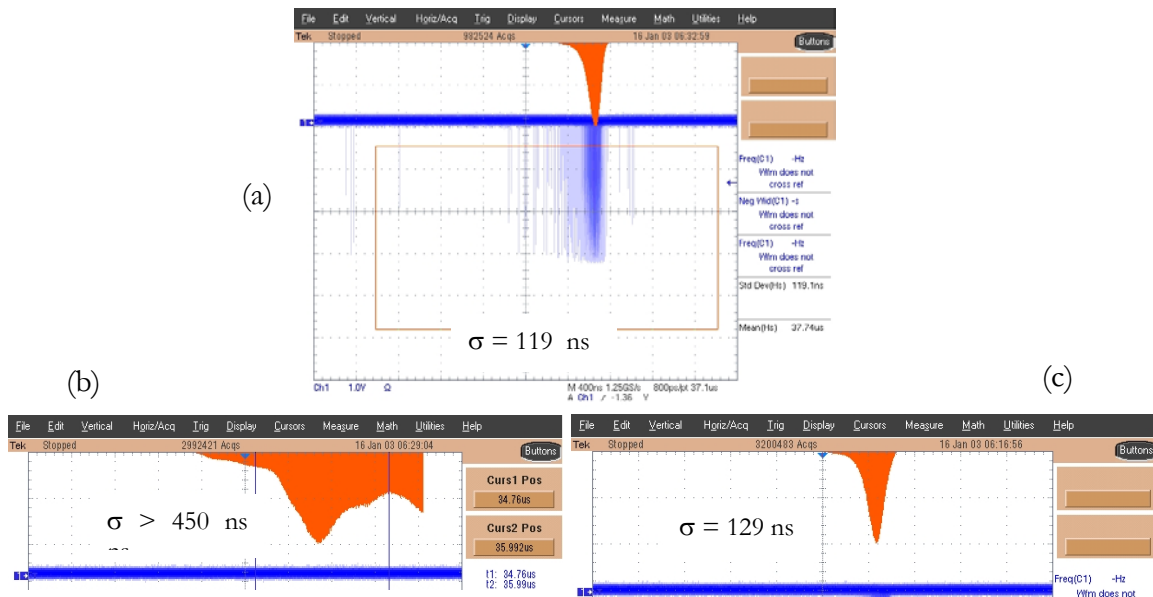


Figure III.28 : gigue temporelle du microlaser non amplifié (a), du signal de sortie avec (c) et sans (b) isolateur optique.

Enfin, un paramètre important pour un produit commercial est la stabilité de fonctionnement. Lorsqu'on atteint des puissances si importantes, cette stabilité ne va pas forcément de soi : nous avons fait fonctionner notre laser pendant plusieurs heures pour mesurer ce facteur (figure III.29) : on remarque que les variations de la puissance de sortie sont inférieures à 3% sur 10 heures (l'écart type est d'environ 40 mW), ce qui est très raisonnable pour une expérience de laboratoire (d'autant plus qu'absolument aucune précaution – mise en place de

capot pour minimiser les turbulences, recherche de stabilité optimale pour les montures – n'a été prise).

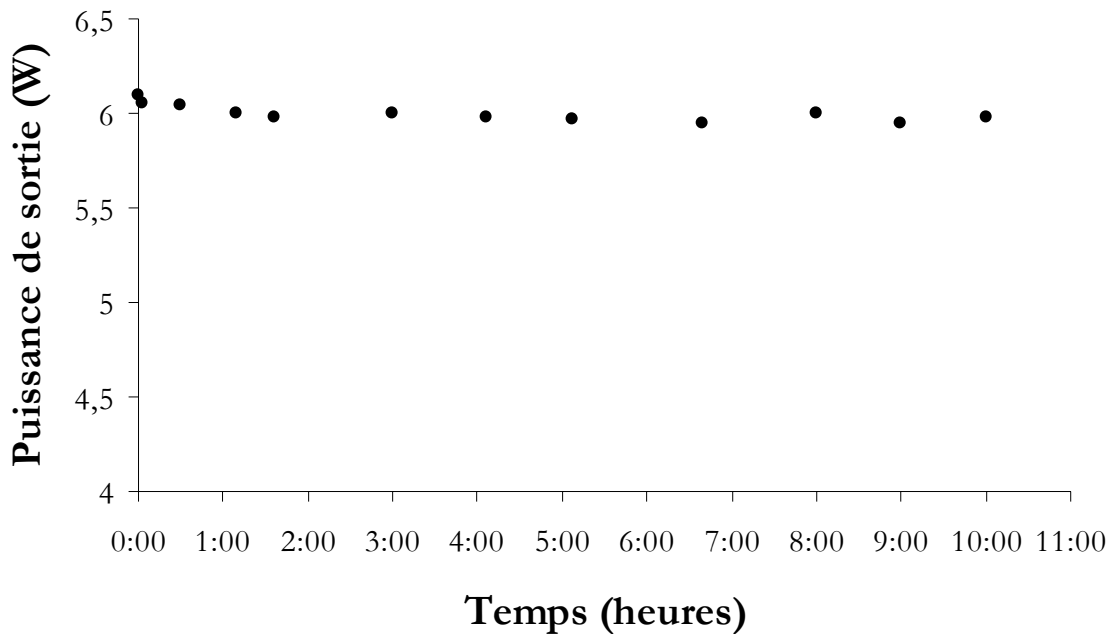


Figure III.29 : stabilité en puissance de l'amplificateur.

II.3.3. Transfert de technologie vers JDS Uniphase

Comme mentionné en introduction, l'un des but de nos expériences est de transférer la technologie de notre amplificateur vers la société JDS Uniphase (ex Nanolase). Un brevet a été déposé en mars 2003 [Forget 03b] et un prototype est actuellement en cours de mise au point : il ne fait aucun doute que notre système sera très bientôt présent sur le marché⁶⁶. Nous allons maintenant décrire très brièvement quelques aspects spécifiquement liés au transfert industriel de notre système.

A. Choix technologiques

Tout transfert vers l'industrie implique un certain nombre de contraintes inexistantes dans le cadre d'une expérience de recherche classique. En particulier, certains impératifs économiques (je pense au coût bien sûr, mais également à la fiabilité, la reproductibilité ou encore la facilité d'approvisionnement...) sont susceptibles de dicter le choix de tel ou tel composant mieux que ne le font les performances pures. Ainsi on a déjà vu que bien que donnant de meilleurs résultats

⁶⁶ Le service marketing de JDS Uniphase a même déjà trouvé le nom du futur produit : ce sera le Twinchip®.

le cristal dopé à 0,3% n'a pas été retenu afin de prendre une « marge de sécurité » sur la résistance à la fracture.

Un autre exemple caractéristique concerne le choix de la diode de pompage. En effet, et bien que toutes nos études aient été conduites avec des diodes fibrées, il est *a priori* plus intéressant pour JDS Uniphase de travailler avec une diode « nue » (non fibrée). La raison en est que de telles diodes sont déjà utilisées sur d'autres produits de la gamme commerciale, et par conséquent l'utilisation de la même diode permettrait de faire de substantielles économies sur le prix de revient du système. A cela il faut ajouter une relative méfiance de la part de Nanolase envers les diodes fibrées : nous avons nous-même fait l'expérience de graves problèmes dus à cette technologie, comme par exemple la propension que peut avoir l'entrée de la fibre à brûler littéralement dès qu'elle n'est pas parfaitement positionnée en face de la diode (ce qui peut facilement arriver si les connecteurs utilisés ont des tolérances de positionnement trop lâches). Cependant de nombreuses applications industrielles, notamment avec des lasers de forte puissance, utilisent aujourd'hui cette technologie sans aucun problème : les progrès en termes de fiabilité des diodes fibrées permettent de les utiliser désormais avec confiance, et nous n'avons depuis l'incident mentionné ci-dessus jamais rencontré de difficulté dans les quelques expériences montées au laboratoire utilisant de telles diodes.

Nous avons cependant testé notre amplificateur avec une diode laser de pompe non fibrée remise en forme par plusieurs lentilles cylindriques afin de voir si on ne pouvait pas faire l'économie de la fibre optique. Les résultats sont finalement assez semblables à ceux présentés précédemment, à deux « détails » près : la qualité de faisceau obtenue est moins bonne et les fractures dans le cristal (du type de ce qui est représenté sur la photo III.3 ou directement des explosions de la surface du cristal située côté pompe) deviennent beaucoup plus fréquentes. En effet, avec une diode non fibrée composée de plusieurs émetteurs on observe que la tache de focalisation dans le cristal est *très inhomogène*. On comprend alors que le profil de gain devient inhomogène, et on note l'apparition de « points chauds » qui sont peut être responsables des explosions de cristaux observées (photo III.4).



Photo III.4 : quelques victimes de l'expérimentation scientifique...

La robustesse du produit devant être optimale, nous avons donc finalement choisi de travailler avec une diode fibrée qui procure un faisceau circulaire et homogène à la fois moins dangereux pour la vie du cristal et plus facile à manipuler (on s'affranchit du réglage parfois délicat des lentilles cylindriques).

B. Vers un transfert industriel...

Le dernier point important en vue du transfert de technologie est la compacité du système. L'objectif à atteindre est d'obtenir un ensemble laser et amplificateur qui tienne dans une grosse boîte à chaussures⁶⁷, au maximum dans une boîte de bottes. La manipulation de laboratoire est disposée sur un marbre d'environ 1m50 par 1m : notre expérience nous a néanmoins montré qu'il était possible de gagner une place considérable en utilisant les bons composants et en réduisant au maximum toutes les propagations « libres » de faisceaux collimatés – très nombreuses dans notre cas. Par exemple le système d'imagerie de la pompe de grandissement 1 :1 peut parfaitement être réduit à une seule lentille, le laser peut être situé juste à côté de la pompe pour bénéficier d'un unique système de refroidissement... Le système amplificateur lui-même, à savoir les coins de cube et la lentille, peuvent également être réduit par un simple facteur d'échelle : la seule contrainte est de conserver une ouverture numérique signal inférieure à celle de la pompe. On peut ainsi envisager d'utiliser une lentille de distance focale deux fois plus courte (130 mm) et des coins de cubes de diamètre moitié afin de limiter l'encombrement total (ligne de pompe + amplificateur) à moins de 40 cm. Si on prend comme référence le DualChip déjà compacté d'une version de laboratoire vers une demi boîte à chaussure en collaboration avec JDS Uniphase [Druon 00], on a ici simplement à ajouter un isolateur optique et surtout à utiliser des diodes laser de pompe plus puissantes donc plus encombrantes. L'objectif semble néanmoins réalisable sans trop de difficultés grâce à la maîtrise que possède JDS de ce type de compactage⁶⁸.

La réalisation d'un prototype par JDS Uniphase est actuellement en cours sous la direction de Laurent Lefort à Grenoble : il semble que les performances soient similaires aux résultats obtenus en laboratoire (en particulier une puissance supérieure à 6W a été obtenue). Quelques modifications sont cependant envisagées en raison des contraintes industrielles : par exemple la tenue au flux à long terme des coins de cubes inquiète JDS Uniphase (bien que nous n'ayons à aucun moment remarqué quelque dégradation que ce soit au cours de nos expériences), qui envisage donc des solutions alternatives (comme l'utilisation d'un prisme positionné de façon à ce que la polarisation soit conservée – il faut pour cela qu'elle soit parallèle à l'arête du prisme - pour un système à quatre passages).

II.3.4. Application de l'amplificateur 3D à une autre source

Nous avons au cours de ce travail de thèse eu l'occasion d'appliquer notre amplificateur à un autre laser que celui fourni par JDS Uniphase. L'ONERA (Office National d'Etudes et de Recherches Aéropatiales) travaille sur le diagnostic des écoulements gazeux dans les turbines de réacteur : sur les réacteurs, la mesure de concentration en gaz résiduel (après combustion) ou la mesure de vitesse d'écoulement gazeux s'effectue avec des sources lasers impulsives

⁶⁷ Il semble que la boîte à chaussure soit devenu l'unité internationale standard de mesure de volume pour les systèmes lasers compacts. Ainsi le DualChip développé en amont de cette thèse par Frédéric Druon occupe environ une demi boîte à chaussure.

⁶⁸ Le prototype réalisé par JDS Uniphase mesure finalement 400x200x160 mm.

émettant dans l'infrarouge (entre 3 et 5 μm). Les sources actuelles fonctionnent à basse cadence (10 Hz) et sont encombrantes et pompées par flash. L'idée, qui s'inscrit dans le cadre de la thèse d'Aude Desormeaux à l'ONERA, est de mettre au point une source laser pompée par diode fonctionnant à cadence beaucoup plus élevée (10 kHz) dont la compacité permettra d'optimiser la place réduite disponible dans les souffleries. L'oscillateur laser est commercial (NPRO (Non Planar Ring Oscillator), Innolight). Il délivre des impulsions de quelques nanosecondes à 1064 nm à une cadence ajustable entre 3 et 15 kHz, d'une grande finesse spectrale (le laser est en anneau) et dont l'énergie (autour de 20 μJ) est malheureusement insuffisante pour l'étage de conversion de fréquence. Les résultats obtenus avec notre amplificateur, bien que légèrement inférieurs à ceux présentés avec le laser JDS Uniphase (essentiellement en raison du fait que la taille du faisceau signal n'a pas été optimisée complètement par manque de temps), sont largement suffisants pour l'application visée (environ 3 W en configuration 4 passages) : la mise en place de l'amplificateur à l'ONERA est en projet à l'heure de la rédaction de ce mémoire.

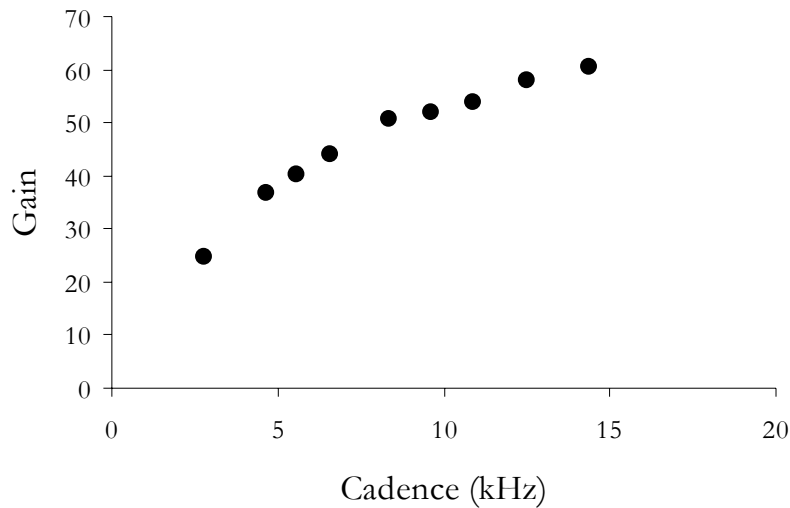


Figure III.30 : influence de la cadence du laser signal sur le gain obtenu via l'amplificateur ($P_{\text{laser signal}} = 37 \text{ mW}$).

Le fait de pouvoir faire varier la cadence du laser signal à énergie incidente constante nous a permis de quantifier l'influence du taux de répétition sur les performances de l'amplificateur : on observe alors que les résultats obtenus sont moins bons lorsque la cadence diminue (figure III.30).

Afin de confirmer cet effet, nous avons poussé cette étude en construisant un laser Nd :YAG déclenché passivement par un acousto-optique dont on peut faire varier la cadence sur une large plage allant de 3 à 100 kHz. Les résultats obtenus avec ce laser sont ajoutés à ceux de la figure III.30 pour obtenir la figure III.31.

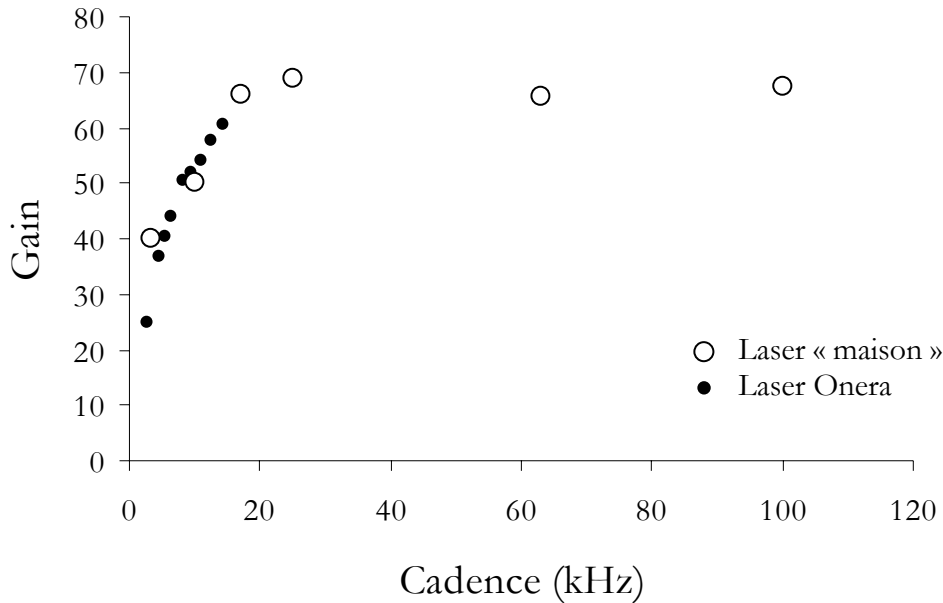


Figure III.31 : influence de la cadence du laser signal sur le gain obtenu via l'amplificateur : superposition des courbes obtenues avec le laser NPRO « Onera » et un laser déclenché Nd:YAG « maison ». La puissance moyenne est fixe (37 mW).

Ce comportement est dû à deux phénomènes affectant l'amplificateur : d'une part l'augmentation de la cadence est liée à une diminution du gain (chaque impulsion dépeuple le niveau excité et le gain disponible pour l'impulsion suivante est alors réduit), d'autre part une cadence plus élevée correspond à une énergie des impulsions incidentes plus faible (la puissance moyenne est maintenue constante) donc à une saturation moindre de l'amplificateur. Cet effet peut être modélisé théoriquement en modifiant l'équation de Frantz et Nodvik afin d'y intégrer l'influence de la cadence : cette modélisation est détaillée dans l'annexe III de ce mémoire.

Je vous propose de laisser à présent ces problèmes de basses cadences pour retrouver notre microlaser et son million d'impulsions par seconde...

II.3.5. Amplification du microlaser haute cadence

On se rappelle que le microlaser déclenché passivement par SESAM décrit dans le chapitre I souffre de deux handicaps majeurs : une puissance de sortie faible et une qualité de faisceau médiocre. L'amplification directe de ce laser dans notre amplificateur tridimensionnel soulève donc deux problèmes : tout d'abord on se souvient (si ce n'est pas le cas on peut jeter un coup d'œil à la figure III.22 par exemple, mais que je ne vous y reprenne plus) qu'avec une puissance d'entrée dans l'amplificateur de moins de 20 mW environ on ne fonctionne pas en régime saturé, c'est-à-dire qu'on extrait pas au mieux la puissance disponible dans l'amplificateur. Or notre microlaser émet une puissance de 50 mW au maximum, réduits rapidement de 30% après transport, passage dans un isolateur optique et dans un système afocal (pour adapter la taille du faisceau à l'amplificateur)... D'un autre côté, il faut parler de la qualité spatiale du faisceau : elle ne va pas jouer un rôle capital dans l'amplification, ce qui signifie que les performances

obtenues en termes de puissance avec un faisceau non limité par la diffraction sont globalement les mêmes qu'avec un faisceau de M^2 égal à l'unité. Par contre, le passage dans l'amplificateur va au mieux conserver la qualité du faisceau (en réalité il la dégrade plutôt un peu) : ce sont les étages non-linéaires qui suivront qui vont en pâtir et verront leur rendement drastiquement diminué. Par égard pour la suite de l'expérience, il est par conséquent indispensable de travailler avec des faisceaux très propres spatialement.

La première solution envisagée est de filtrer spatialement le rayonnement extrait du microlaser, au moyen d'un trou de quelques dizaines de microns placé au foyer intermédiaire d'un afocal formé de deux lentilles convergentes par exemple. Ce filtrage fait cependant payer ses services extrêmement cher : l'addition s'élève à plusieurs dizaines de milliwatts. Après épuration du faisceau, seuls quelques uns des 50 mW de départ sont donc sauvés. On retombe alors au premier point de cette discussion : l'amplificateur multipassages ne sera pas saturé et ne permettra pas d'extraire toute la puissance voulue.

La solution existe pourtant : il faut réaliser un préamplificateur ! Et l'amplificateur idéal pour les faibles énergies, c'est-à-dire présentant un gain petit signal très important, est connu : c'est l'amplificateur à fibre optique dopée ytterbium. L'utilisation d'un tel système permet en plus dans le même temps de filtrer spatialement notre faisceau : on gagne donc sur les deux tableaux, au prix d'une légère augmentation de complexité certes. Légère seulement car nous ne nous sommes pas lancés dans la mise au point d'un tel système : un système commercial donc d'encombrement très réduit et d'usage excessivement simple suffit largement à notre bonheur. Nous allons maintenant décrire succinctement les caractéristiques de cet amplificateur à fibre.

A. L'amplificateur à fibre dopée Ytterbium

Il s'agit donc d'un produit commercial développé par la société Keopsys (modèle KPS-GB-YFA-27-FA) et basé sur une fibre optique « à double gaine » (ou « à double cœur » suivant la façon dont on veut voir les choses) avec injection de la pompe par la technique dite de « V-groove » [Goldberg 99]. Les dimensions des différentes parties (cœur, gaines) du système ainsi que le principe de fonctionnement sont présentés sur la figure III.32. Le signal se propage classiquement dans le cœur monomode (diamètre environ 8 μm) dopé à l'ytterbium. Cet ion possède la particularité de pouvoir amplifier un rayonnement autour de 1060 nm s'il est porté dans le niveau supérieur de la transition $^2F_{5/2}$ par une pompe à environ 976 nm [Paschotta 97]. Cette pompe (environ 1 W) est injectée via une entaille sur le côté de la fibre et se propage dans une gaine non dopée de diamètre bien plus élevé que le cœur : les modes de cette gaine « débordent » sur le cœur dopé, ce qui permet à ce dernier d'absorber la pompe. On peut grâce à ce dispositif utiliser une diode de pompe multimode spatialement assez puissante, avec une efficacité d'injection de la pompe excellent (couramment supérieur à 90 %).

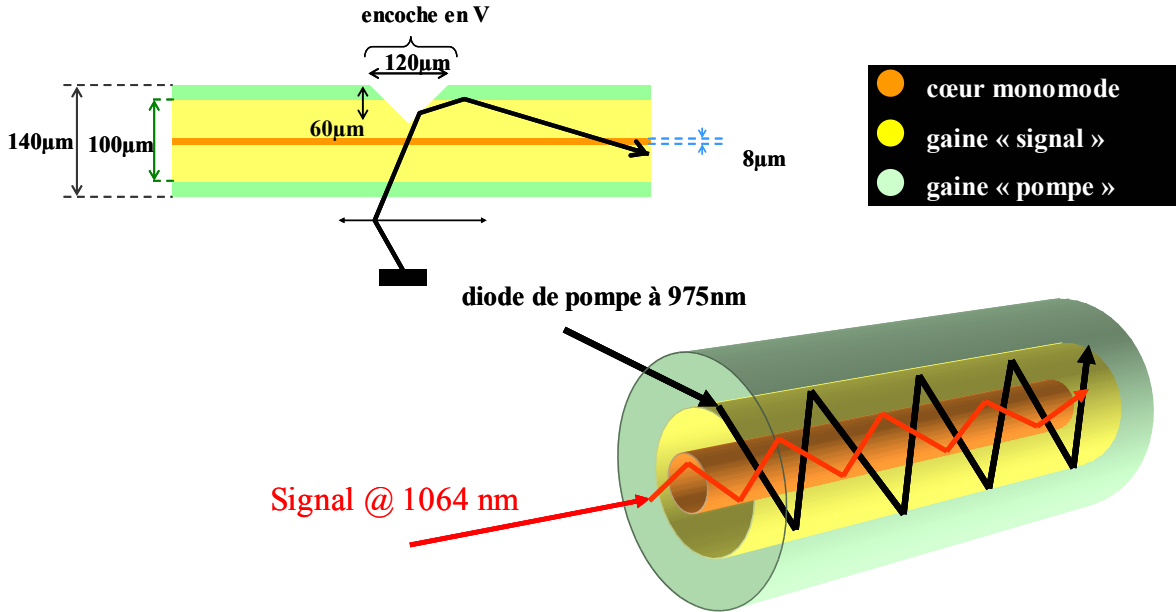


Figure III.32 : principe de l'amplificateur à fibre dopée Ytterbium

Afin de caractériser les performances de cet amplificateur à fibre, nous avons construit un microlaser Nd:YVO₄ continu⁶⁹. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure III.33 (la puissance de pompe est d'environ 1 W): on observe une très forte saturation du gain de l'amplificateur dès quelques fractions de milliwatts injectés. Le gain saturé est de 20 dB pour $P_{in} = 1$ mW, tandis que le gain « petit signal » mesuré est de plus de 30 dB (pour 10 μ W incidents).

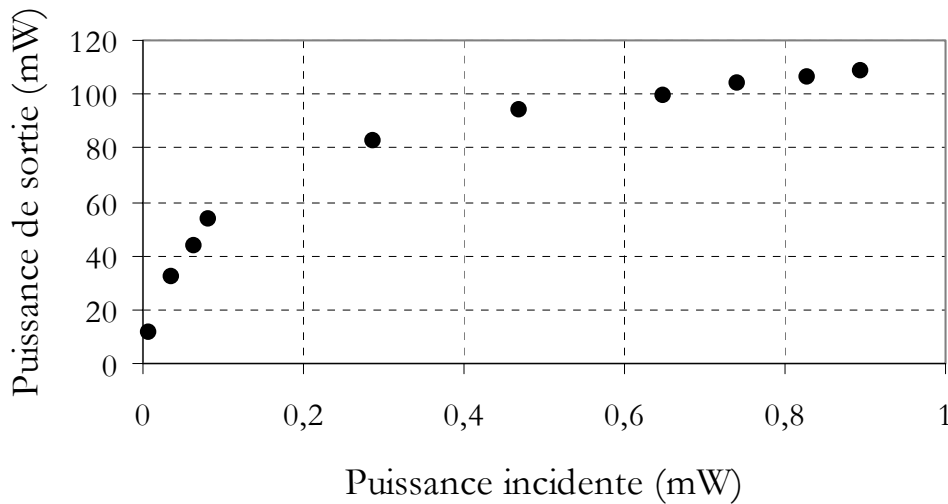


Figure III.33 : saturation de l'amplificateur à fibre dopée ytterbium.

⁶⁹ A une cadence de l'ordre de 1 MHz ($T = 1\mu s$) on a $T \ll \tau$ le temps de vie de l'état excité : on peut alors considérer en première approximation que l'amplificateur verra un rayonnement continu.

La polarisation linéaire du faisceau incident est conservée par le faisceau de sortie et le niveau d'émission spontanée amplifiée est suffisamment faible pour pouvoir être négligé⁷⁰

B. L'amplificateur solide multipassage

Commençons par une remarque concernant le microlaser mégahertz : nous avons observé au bout de plusieurs semaines d'utilisation une certaine dégradation du SESAM utilisé pour déclencher notre microlaser : la cadence et la durée des impulsions demeurent stables, mais la puissance chute d'un facteur 2... Il semble que ce fait soit dû à une dégradation physique du SESAM, sans doute à cause de la puissance de pompe non absorbée traversant le microlaser. On peut imaginer résoudre ce problème en traitant la face arrière du cristal laser HR 808 nm (ce qui permettrait également un double passage du faisceau de pompe dans le cristal et donc une meilleure absorption⁷¹).

Après passage dans un système afocal, dans un isolateur optique puis injection dans la fibre monomode, seuls environ 5 mW de rayonnement laser sont disponibles pour l'amplification. Ce qui pourrait ressembler à un problème n'en est cependant pas vraiment un. En effet, la saturation marquée de l'amplificateur fibré rend la puissance obtenue en sortie à peu près constante : que l'on injecte 5 ou 50 mW en entrée, la puissance du faisceau amplifié sera toujours de l'ordre de 120 à 130 mW – ce qui est suffisant pour saturer l'amplificateur solide. De la même façon, les variations d'énergie induites par un changement de cadence du microlaser sont gommées par l'amplificateur : On dispose ainsi d'une source (microlaser + amplificateur fibré) fournissant des impulsions de 400 ps à une cadence continûment variable entre 200 kHz et 1 MHz, et ce avec une puissance moyenne constante de 130 mW. La qualité spatiale du faisceau préamplifié est de plus excellente ($M^2 \approx 1.1$).

On peut à présent envoyer en toute confiance ce rayonnement dans notre amplificateur solide multipassage : nous obtenons en sortie une puissance moyenne d'environ 4W en configuration 6 passages avec un cristal dopé à 0,1%⁷². La figure III.34 nous confirme la stabilité de la puissance de sortie de l'amplificateur avec la cadence (on pourrait tracer la même courbe en remplaçant en abscisse la cadence par la puissance de sortie du microlaser) : cette robustesse est très intéressante pour palier aux fréquentes sautes d'humeur du microlaser en termes de puissance.

⁷⁰ Le niveau d'ESA mesuré correspond à environ 0,2% de l'énergie totale dans une bande de longueur d'onde de 1 nm autour de 1064 nm (correspondant grossièrement à l'acceptance spectrale de l'amplificateur solide Nd:YVO₄).

⁷¹ Pour l'anecdote, des cristaux traités de la sorte ont été commandés : ils n'ont malheureusement jamais pu être testés sérieusement du fait de problèmes de croissance des SESAM incombants au fabricant...

⁷² Si on se réfère à la figure III.25, on attend plutôt 5W. Cette légère perte de puissance peut être imputée à un changement de cristal amplificateur (le premier ayant rendu l'âme suite à une mauvaise manipulation), bien que nous n'ayons pas de certitude sur ce point.

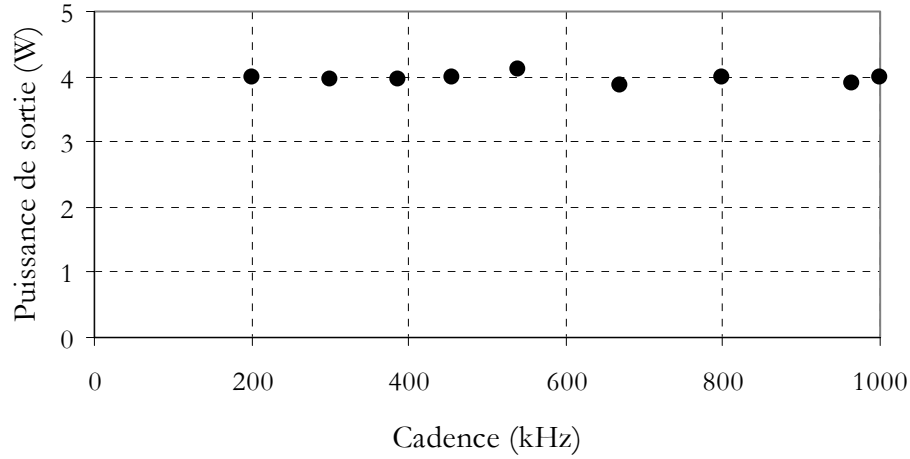


Figure III.34 : puissance de sortie du système (microlaser + préamplificateur fibré + amplificateur solide multipassages) en fonction de la cadence du microlaser.

Nous voilà donc parvenus à la configuration suivante [Forget 03] (on peut voir sur la photo III.5 l'ensemble du montage expérimental):

- Une durée d'impulsion de 400 ps.
- Une cadence variable mais que nous fixerons à 1 MHz.
- Une puissance moyenne de 4W, soit 10 kW de puissance crête.
- Un faisceau limité par la diffraction.

Armés de ces valeurs, nous allons maintenant pouvoir passer à la dernière étape du système, c'est-à-dire transformer nos ternes photons infrarouges en flamboyants photons verts, rouges et pour finir ultraviolets...

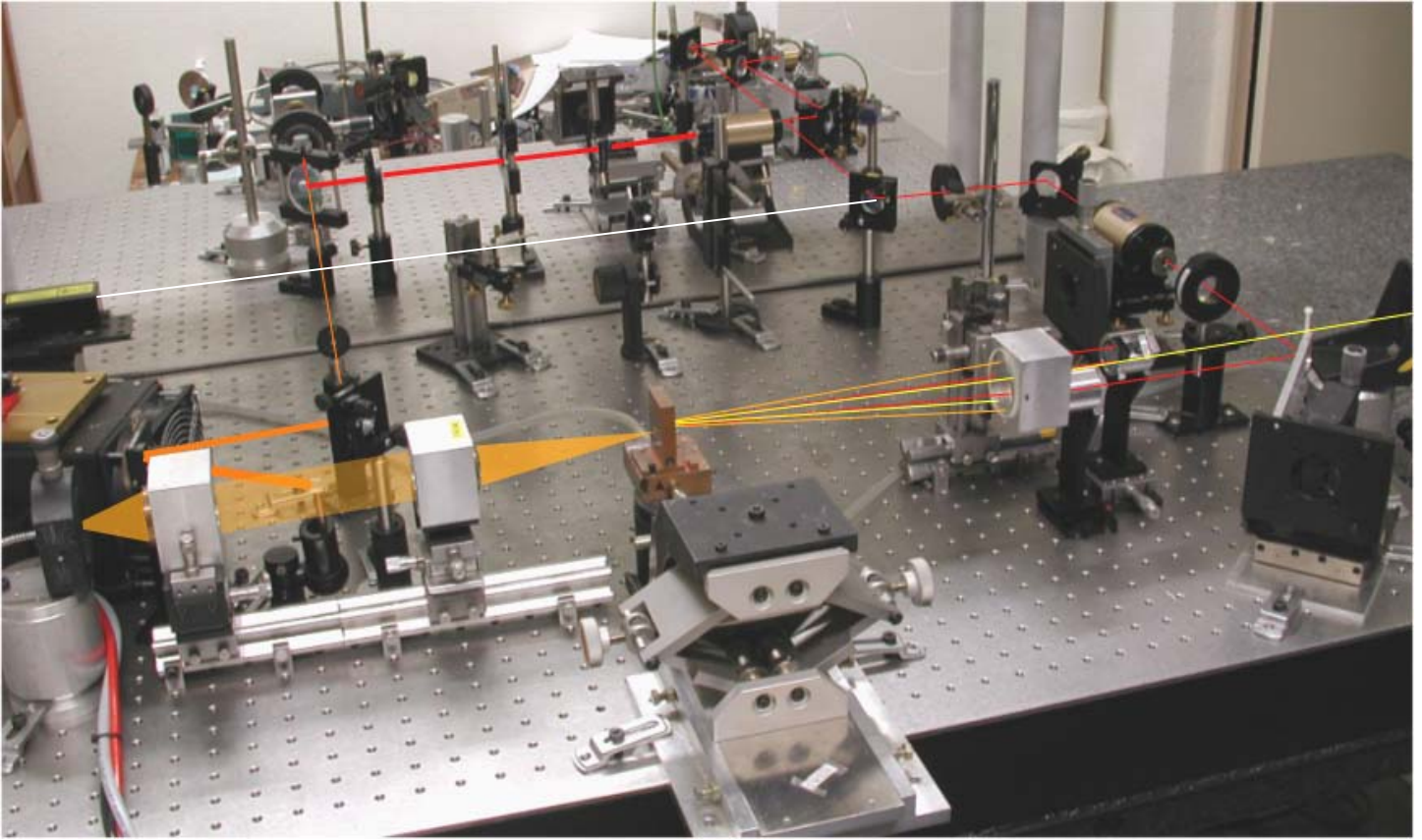


Photo III.5 : vue d'ensemble du dispositif expérimental.

On trouve la diode de pompe fibrée en bas à gauche : une partie de son rayonnement (en orange) est prélevé et envoyé vers le microlaser (en haut à gauche), tandis que le reste sert à pomper l'amplificateur multipassage (on note la monture en cuivre du cristal de Nd:YVO_4 en plein milieu). Le faisceau issu du microlaser (en rouge) est envoyé après passage dans un isolateur optique (cylindre doré) dans l'amplificateur fibré que l'on devine dans le fond (tout en haut au centre, fibre verte). La sortie de cet amplificateur est dirigée vers l'amplificateur multipassage via un autre isolateur optique. Le premier double passage est figuré en rouge, le second (après réflexion sur un premier coin de cube) en orange et le dernier en jaune fournit le faisceau de sortie.

On peut également remarquer la petite boîte noire à l'extrême gauche de la photo : il s'agit du microlaser JDS Uniphase qui peut aussi servir de signal pour l'amplificateur solide multipassages (trait blanc).

Introduction

Nous venons de voir qu'en combinant un oscillateur et un amplificateur on peut réaliser un laser présentant les caractéristiques voulues. Cependant les lasers pompés par diodes en général souffrent d'un grave handicap : leur longueur d'onde d'émission est déterminée par les niveaux d'énergie du milieu à gain; en d'autres termes, nous ne pouvons que très partiellement contrôler la couleur du laser lui-même. La nature a de plus surnoisement fait en sorte que la quasi-totalité des cristaux lasers susceptibles d'être pompés par diodes n'émettent efficacement que dans l'infrarouge. Il faut donc nous rendre à l'évidence : si les impulsions que nous avons obtenues présentent les qualités spatio-temporelles voulues, elles souffrent d'un défaut rédhibitoire : leur couleur. En effet les molécules biologiques visées ont besoin d'être excitées dans le visible ou le plus souvent dans l'ultraviolet (voir l'introduction générale). Les applications industrielles de type prototypage rapide ou marquage nécessitent quant à elles un

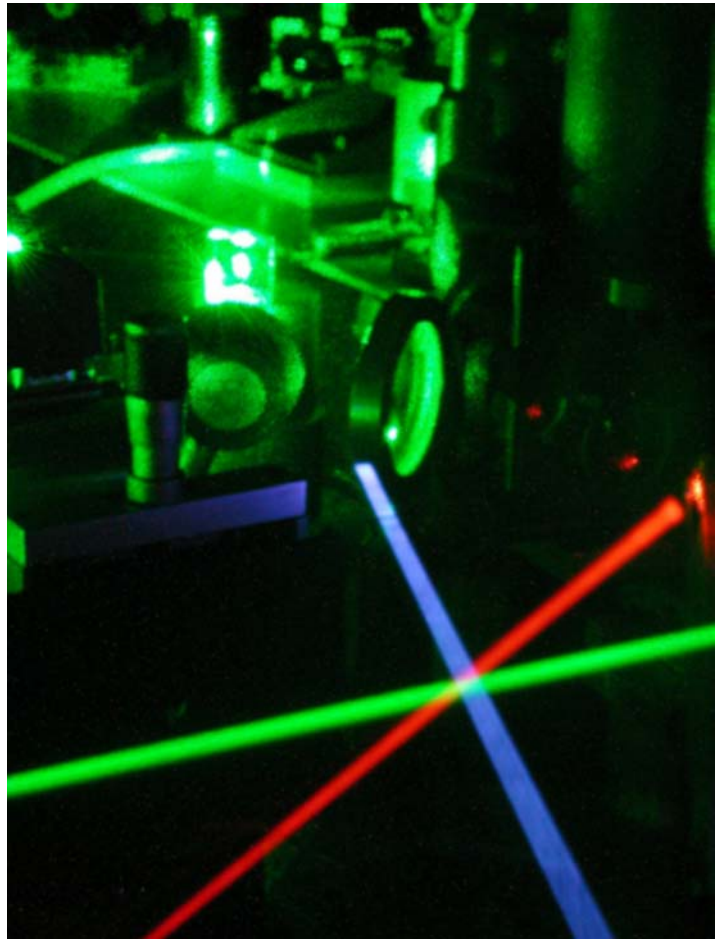


Photo IV.1 : notre laser multicolore...

rayonnement UV puissant. Il est donc nécessaire de bâtir un pont au dessus du visible pour passer de l'infrarouge proche à l'UV proche. Nous allons donc décrire dans ce chapitre la mise en œuvre de plusieurs étages de conversion non-linéaire, dont le but sera soit d'atteindre une longueur d'onde donnée (génération d'harmonique), soit d'obtenir une large accordabilité en longueur d'onde. Mais commençons par planter le décor non-linéaire...

I. Quelques rappels d'optique non-linéaire...

L'optique non-linéaire est à peu de choses près aussi ancienne que le laser puisque le premier effet mesurable a été rapporté par Franken en 1961 [Franken 61]. Comme pour l'invention du laser, ces travaux s'inspiraient de techniques déjà existantes pour des ondes électromagnétiques de basse fréquence : ils ont conduit à la première démonstration du doublement de fréquence dans un cristal de quartz à partir d'un laser à rubis. Les autres effets non-linéaires ont tous été mis en évidence en moins de 5 ans, ce qui témoigne de l'intense bouillonnement scientifique généré par la découverte du laser (somme de fréquence [Miller 62], différence de fréquence [Smith 63], OPO [Akhmanov 62], accord de phase par biréfringence [Maker 62], quasi accord de phase [Armstrong 62]...). On peut ainsi dire qu'au niveau théorique, l'essentiel était déjà fait en 1962.

Tous les résultats expérimentaux de cette thèse s'interprètent avec ces théories ancestrales : il peut donc apparaître superflu de rappeler des bases théoriques maintenant bien assimilées par tous, et qui peuvent de plus être trouvées exprimées avec beaucoup de clarté et de rigueur dans nombre d'ouvrages. Aussi le lecteur familier de l'optique non-linéaire pourra gagner un temps précieux et éviter un ennui pesant en passant directement aux résultats expérimentaux décrits plus loin. J'ai cependant choisi, pour le lecteur novice en la matière, ou peu enclin à aller chercher dans un grimoire quelques formules oubliées, de traiter en quelques pages et en partant « du début » un certain nombre d'aspects théoriques de l'optique non-linéaire ayant un rapport direct avec les expériences qui suivront. Cette partie permet également de fixer les notations choisies, d'explicitier les approximations faites, et de donner une sorte d'auto-cohérence à ce chapitre. Elle permettra en passant de développer plus en détails certains aspects plus récents de la discipline, comme la mise en œuvre pratique du quasi-accord de phase, que nous avons utilisé à plusieurs reprises dans cette thèse.

I.1. La polarisation non-linéaire

La grande majorité des phénomènes optiques observés habituellement sont très bien décrits avec un modèle dit linéaire : si on considère en suivant Lorentz un milieu diélectrique donné comme une assemblée d'ions et d'électrons se comportant comme un oscillateur harmonique, on peut comprendre que l'action d'un champ électromagnétique $\vec{E}$ est d'induire un déplacement relatif de ces charges et donc de créer une polarisation directement proportionnelle à $\vec{E}$. En utilisant une analogie mécanique, on peut considérer que les électrons oscillent autour d'une position d'équilibre à la fréquence du champ excitateur E . Si maintenant le champ E appliqué est suffisamment intense (non négligeable devant le champ inter atomique), la « force de rappel » des électrons n'est plus linéaire : on se voit alors obligé de faire intervenir des termes supplémentaires dans l'expression de la polarisation. On écrit alors :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \epsilon_0 \left(\chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots \right) = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (Eq.IV.1)$$

où P_L est la polarisation linéaire et P_{NL} la polarisation non-linéaire, ϵ_0 la permittivité du vide et $\chi^{(m)}$ représente le tenseur (de rang $m+1$) susceptibilité diélectrique d'ordre m du milieu.

- *Effets non-linéaires*

Les valeurs du tenseur χ décroissent rapidement⁷³ lorsque l'ordre m augmente, aussi seuls des champs électriques excessivement intenses permettent d'accéder à des ordres $m > 3$. La plupart des effets non-linéaires « courants » sont dus aux termes en $\chi^{(2)}$ et en $\chi^{(3)}$ (le terme $\chi^{(1)}$ est lui relié aux effets linéaires tels que l'absorption ou l'indice de réfraction). Le terme $\chi^{(3)}$ est responsable par exemple de l'effet Kerr optique, des processus de mélange à 4 ondes ou des diffusions Raman et Brillouin : nous ne nous y intéresserons pas ici.

La polarisation quadratique ($P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2$ sous forme scalaire) ne peut exister que dans des milieux ne possédant pas de symétrie d'inversion (non-centrosymétriques) : elle y rend compte de nombreux effets non-linéaires (et en particulier les interactions à trois ondes qui nous concerneront ici) que l'on peut diviser en deux groupes. Tout d'abord, si deux ondes électromagnétiques de fréquences ω_1 et ω_2 sont envoyées dans le milieu, on voit apparaître de la somme de fréquence (les énergies des deux photons sont additionnées pour créer un photon d'énergie plus grande) ou de la différence de fréquence (le photon émis possède une énergie égale à la différence des énergies des photons incidents). Chacune des deux ondes peut également interagir avec elle-même pour créer des fréquences harmoniques ($2\omega_1$ et $2\omega_2$) ou un champ électrique statique de fréquence nulle (« rectification optique »)⁷⁴. On verra par la suite qu'au maximum un de ces effets prend une valeur non négligeable en raison de la condition d'accord de

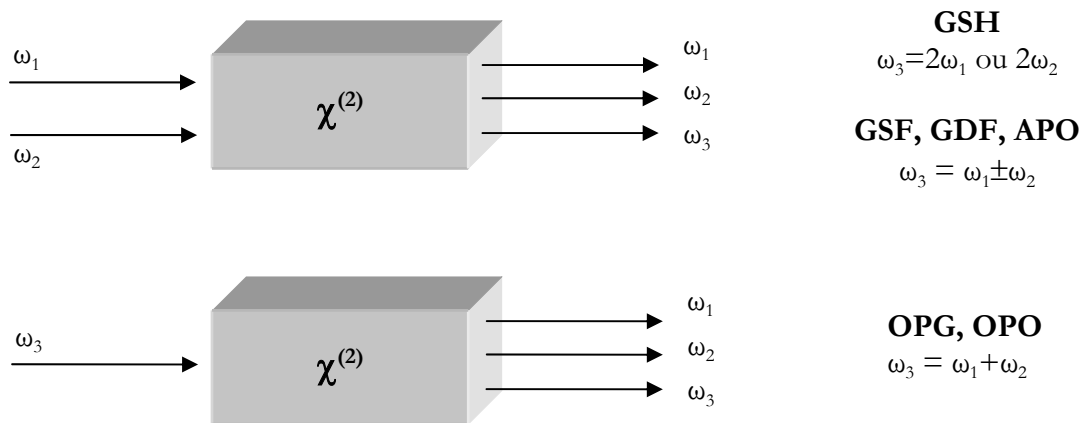


Figure IV.1 : processus de conversions de fréquences du second ordre (GSH pour génération du second harmonique, GSF génération de la somme de fréquence, GDF génération de la différence).

⁷³ $\chi^{(1)}$ est une grandeur sans dimension de l'ordre de l'unité, $\chi^{(2)}$ a la dimension de l'inverse d'un champ électrique et vaut environ 10^{-12} mV^{-1} , et $\chi^{(3)}$ vaut environ $10^{-24} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$.

⁷⁴ Pour voir apparaître « mathématiquement toutes ces nouvelles fréquences, il suffit d'écrire les champs E_i sous la forme $E_i = E_0 \cos(\omega_i t)$ et d'appliquer la relation IV.1 et les formules trigonométriques.

phase. La deuxième catégorie regroupe les processus où un seul champ (appelé en général « pompe ») est incident sur le cristal. Le photon pompe peut alors se « décomposer en deux » pour donner naissance à deux photons, appelés signal et complémentaire en français (« signal » et « idler⁷⁵ » en Albion) avec par convention $\omega_{\text{signal}} > \omega_{\text{complémentaire}}$. On a alors ce qu'on appelle de la génération paramétrique optique (GPO). Si on place le cristal en question dans une cavité pour permettre à l'une des ondes (ou plusieurs) d'osciller en résonance, on réalise un oscillateur paramétrique optique (OPO). Enfin, l'amplification paramétrique optique (APO) consiste à injecter une onde de faible intensité dans un GPO pour étudier son amplification. Ce dernier effet peut aussi être vu comme une différence de fréquence, bien que dans ce dernier cas on s'intéresse plutôt au signal complémentaire créé⁷⁶.

• *Le tenseur susceptibilité*

Il est d'usage dans la littérature [Byer 77][Yariv 88][Butcher 90] de remplacer le tenseur susceptibilité χ par un tenseur appelé simplement tenseur non-linéaire et noté par la lettre d ⁷⁷ :

$$\chi_{ijk}^{(2)} = 2d_{ijk}$$

Le tenseur d comporte 27 éléments, mais il peut dans de nombreux cas être réduit à une matrice de 3 lignes et 6 colonnes. Cette contraction est justifiée par des considérations d'invariance des champs par permutation des indices (pour plus de détails voir par exemple [Boyd 92][Victori 01]). De plus un certain nombre des coefficients de la matrice d sont nuls ou égaux entre eux : c'est la « condition de symétrie de Kleinman », justifiée si le tenseur χ ne dépend pas de la fréquence ([Kleinman 62], valable si toutes les fréquences considérées sont loin de la fréquence de résonance électronique du milieu). En fonction du groupe ponctuel de symétrie du cristal considéré, le nombre d'éléments indépendants de la matrice d peut être réduit à quelques unités. Ces simplifications sont très utiles en pratique : nous y reviendrons lors de l'étude particulière de certains matériaux.

On peut donc écrire la relation entre la polarisation (à la fréquence ω_3) et les champs électriques $E(\omega_1)$ et $E(\omega_2)$ de la façon suivante :

$$\begin{bmatrix} P_{\omega_3}^{(2)} \\ P_{\omega_3}^{(2)} \\ P_{\omega_3}^{(2)} \end{bmatrix} = 2\epsilon_0 \beta \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (E_{\omega_1})_x (E_{\omega_2})_x \\ (E_{\omega_1})_y (E_{\omega_2})_y \\ (E_{\omega_1})_z (E_{\omega_2})_z \\ (E_{\omega_1})_y (E_{\omega_2})_z + (E_{\omega_1})_z (E_{\omega_2})_y \\ (E_{\omega_1})_x (E_{\omega_2})_z + (E_{\omega_1})_z (E_{\omega_2})_x \\ (E_{\omega_1})_x (E_{\omega_2})_y + (E_{\omega_1})_y (E_{\omega_2})_x \end{bmatrix} \quad (Eq. IV.2)$$

le facteur β est un facteur de dégénérescence : il vaut $1/2$ pour la génération de second harmonique et 1 pour les autres processus de conversion.

⁷⁵ Ce qu'on peut traduire poétiquement par « onde oisive », et qui dénote bien l'intérêt qu'on lui accorde dans bien des cas.

⁷⁶ Il est d'usage de parler de différence de fréquence lorsque les énergies de la pompe et du signal sont comparables, et d'amplification paramétrique lorsque l'énergie du signal est très petite devant l'énergie de pompe.

⁷⁷ De nombreux auteurs utilisent une autre définition en insérant le facteur ϵ_0 dans d : $d_{ijk} = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}/2$

I.2. L'équation d'onde

Pour décrire formellement l'évolution des différents champs électromagnétique dans un milieu diélectrique donné, on se base sans aucune originalité sur les équations de Maxwell [Maxwell 1864]. En éliminant le champ magnétique de ces équations on arrive à la classique équation de propagation suivante (nous ne considérerons ici que des ondes monochromatiques) :

$$\Delta \vec{E} = \mu_0 \varsigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial^2 t} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial^2 t} \quad (Eq. IV.3)$$

μ_0 est la perméabilité du vide et ς représente les pertes du milieu (plus précisément ς est la conductivité à la fréquence considérée).

Par souci de commodité, nous allons écrire le champ électromagnétique et la polarisation sous leur forme complexe et se propagent suivant une direction donnée, disons x :

$$\vec{E}(x, t) = \frac{1}{2} \left[\vec{E}(x, \omega) \exp i(kx - \omega t) \right] + c.c$$

$$\vec{P}(x, t) = \frac{1}{2} \left[\vec{P}(x, \omega) \exp i(kx - \omega t) \right] + c.c$$

avec $\vec{E}(x, \omega)$ et $\vec{P}(x, \omega)$ les amplitudes de Fourier complexes et c.c désigne le complexe conjugué.

On suppose que les ondes considérées sont purement monochromatiques, que les polarisations sont rectilignes, et que les vecteurs d'ondes sont colinéaires. Le milieu est supposé homogène, non chargé, non magnétique, et purement quadratique (donc $\chi^{(3,4,5,\dots)} = 0$).

On suppose aussi que les ondes considérées sont des ondes planes, et que la phase et l'amplitude de l'onde enveloppe ne varient pas rapidement (c'est la fameuse « approximation de l'enveloppe lentement variable »). Un calcul classique transforme alors l'équation de propagation IV.3 en la relation suivante :

$$\frac{\partial \vec{E}(\omega)}{\partial x} = -\alpha \vec{E}(\omega) + \frac{i\mu_0 c \omega}{2n} P_{NL}(\omega) \quad (Eq. IV.4)$$

avec $\alpha = \mu_0 \varsigma c / 2n$ le coefficient de pertes du champ électrique.

Si on considère le cas de trois ondes interagissant dans le cristal avec des fréquences telles que $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$, les équations de propagation des trois champs électriques se déduisent de IV.4 et on obtient (ici sous forme scalaire) :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_1}{\partial x} = -\alpha_1 E_1 + \frac{i\omega_1^2}{k_1 c^2} \beta \cdot d_{\text{eff}} E_3 E_2^* \exp(i\Delta k \cdot x) \\ \frac{\partial E_2}{\partial x} = -\alpha_2 E_2 + \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} \beta \cdot d_{\text{eff}} E_3 E_1^* \exp(i\Delta k \cdot x) \\ \frac{\partial E_3}{\partial x} = -\alpha_3 E_3 + \frac{i\omega_3^2}{k_3 c^2} \beta \cdot d_{\text{eff}} E_1 E_2 \exp(-i\Delta k \cdot x) \end{cases} \quad (\text{Eq. IV.5})$$

$k = n\omega/c$ est le vecteur d'onde, tandis que d_{eff} est le coefficient non-linéaire effectif qui lie les polarisations des différents champs électromagnétiques en jeu⁷⁸. Le terme $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ est appelé « désaccord de phase » : il rend compte du fait que les phases des trois ondes ne se propagent pas à la même vitesse dans le milieu.

En toute rigueur, les équations de propagations sont un peu plus compliquées... Nous avons en effet fait – en disant sans le justifier que les ondes considérées sont planes, ce qui n'est pas le cas lorsque l'on travaille avec des lasers ailleurs que dans le plan du waist – un certain nombre d'approximations qu'il est juste d'explicitier. Tout d'abord nous avons négligé la diffraction des ondes lors de leur propagation, ensuite nous n'avons pas tenu compte de l'angle de double réfraction⁷⁹ (dont nous parlerons cependant plus loin car il joue un rôle parfois important dans l'efficacité des processus non-linéaires). Ces approximations ne sont pas grossières : elle permettent d'obtenir des équations manipulables (et possédant une solution analytique) sans induire trop d'écart sur le résultat final. Nous en ferons par la suite d'autres bien plus osées...

I.3. La génération de second harmonique

La génération de second harmonique n'est finalement qu'un cas particulier dégénéré de la somme de fréquence avec $\omega_1 = \omega_2$. Son statut de processus non-linéaire le plus utilisé lui donne cependant droit à un paragraphe particulier. En écrivant donc $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et $\omega_3 = 2\omega$ on peut réécrire le système IV.5 qui devient :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_\omega}{\partial x} = -\alpha_\omega E_\omega + \frac{i\omega}{n_\omega c} \cdot d_{\text{eff}} E_{2\omega} E_\omega^* \exp(i\Delta k \cdot x) \\ \frac{\partial E_{2\omega}}{\partial x} = -\alpha_{2\omega} E_{2\omega} + \frac{i\omega}{n_{2\omega} c} \cdot d_{\text{eff}} E_\omega E_\omega^* \exp(-i\Delta k \cdot x) \end{cases} \quad (\text{Eq. IV.6})$$

avec ici $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega$.

Nous allons maintenant faire une série d'approximations courageuses qui consiste à admettre d'une part que le milieu est non-absorbant ($\alpha=0$) et d'autre part que le rendement de conversion est suffisamment faible pour que l'intensité de la pompe reste constante tout au long

⁷⁸ Pour une géométrie fixée, c'est-à-dire à direction de propagation et de polarisation fixées, il est possible d'exprimer le lien entre la polarisation non-linéaire et le champ électromagnétique au moyen d'une relation scalaire du type (par exemple ici pour la somme de fréquence) : $P^{(2)}(\omega_3) = d_{\text{eff}} E(\omega_1)E(\omega_2)$. Le coefficient d_{eff} dépend bien sûr des valeurs de la matrice d mais aussi des angles entre le vecteur d'onde et les axes cristallins.

⁷⁹ Même dans l'approximation des ondes planes, ce facteur doit apparaître sous la forme d'un terme en $\cos^2\theta$ (où θ est l'angle de double réfraction) au dénominateur du second terme des membres de droite. Nous l'avons omis pour ne pas alourdir l'ensemble et parce que dans nombre de cas pratiques on aura $\theta=0$ (voir plus loin).

de la propagation dans le cristal non-linéaire. Nous verrons par la suite que cette dernière approximation est grossièrement fautive dans bien des cas pratiques, mais elle permet d'obtenir facilement une équation simple donnant l'intensité produite à 2ω . En intégrant directement sur la longueur L du cristal la seconde équation du système ci-dessus, on obtient facilement :

$$I_{2\omega} = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \varepsilon_0 c^3} \sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) I_{\omega}^2 \quad (\text{Eq. IV.7})$$

en se souvenant que $I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n E^2$ et en notant $\text{sinc}(x) = (\sin x)/x$.

On peut réécrire cette équation en faisant intervenir le paramètre puissance (plus « parlant » pour l'expérimentateur) à la place de l'intensité :

$$\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \varepsilon_0 c^3 \pi \omega_0^2} \sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) P_{\omega} \quad (\text{Eq. IV.8})$$

Les paramètres influents apparaissent immédiatement sur cette expression : pour obtenir un rendement important, il importe de choisir un matériau non-linéaire possédant un coefficient d_{eff} élevé, une longueur d'interaction L grande et un faisceau fortement focalisé (ω_0 petit). Il faut noter ici que ces deux dernières assertions sont à prendre avec précautions : l'équation ci-dessus n'est valable que dans la mesure où on peut considérer les ondes se propageant dans le cristal comme planes. Or un faisceau gaussien n'est pas une onde plane : il diverge beaucoup s'il est fortement focalisé, ce qui contredit l'hypothèse d'une section constante, alors que la longueur d'interaction L est quant à elle limitée par plusieurs phénomènes (divergence du faisceau donc, mais aussi « double réfraction » dans les cristaux biréfringents).

Cette équation illustre l'accroissement parabolique du rendement de conversion avec le coefficient non-linéaire d_{eff} et la longueur L du cristal, vrai dans le cas des ondes planes. Si cette approximation n'est pas valable, il faut se reporter au fameux article de Boyd et Kleinman traitant en détails de l'influence de la focalisation [Boyd 68].

La formule précédente (IV.8) est largement utilisée dans la littérature, essentiellement en raison de sa simplicité. En effet elle ne peut décemment pas être appliquée dans les cas où le rendement de conversion dépasse les 30 %, ce qui est courant avec des lasers impulsifs (I_{ω} est alors élevée, et on note en observant l'équation IV.7 que le rendement est directement proportionnel à l'intensité de la pompe). Dans le cas général où on ne peut négliger ce qu'on appelle couramment « la déplétion de la pompe », c'est-à-dire lorsque le taux de conversion devient important, le calcul est plus complexe. Son développement complet pourra être trouvé dans [Byer 77] par exemple. Le rendement ρ défini par le rapport des puissances à 2ω et à ω peut alors s'écrire :

$$\rho = \tanh^2 \left(\frac{\sqrt{2} \pi d_{\text{eff}} L}{\sqrt{\varepsilon_0 c n_p n_s n_c} \lambda \sqrt{\frac{P_p}{\pi \omega_0^2}}} \sin \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \right) \quad (\text{Eq. IV.9})$$

I.4. Amplification et génération paramétrique optique

Nous allons maintenant traiter le cas (plus général que la génération de second harmonique) de l'interaction de trois ondes dans le cristal non-linéaire afin de l'appliquer aux processus que nous mettrons en place expérimentalement, à savoir l'amplification paramétrique optique et la génération paramétrique optique.

Rappelons donc le système d'équations gouvernant la propagation de trois ondes (supposées planes et monochromatiques) dans un cristal non-linéaire donné.

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_1}{\partial x} &= -\alpha_1 E_1 + \frac{i\omega_1^2}{k_1 c^2} \beta d_{eff} E_3 E_2^* \exp(i\Delta k.x) \\ \frac{\partial E_2}{\partial x} &= -\alpha_2 E_2 + \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} \beta d_{eff} E_3 E_1^* \exp(i\Delta k.x) \\ \frac{\partial E_3}{\partial x} &= -\alpha_3 E_3 + \frac{i\omega_3^2}{k_3 c^2} \beta d_{eff} E_1 E_2 \exp(-i\Delta k.x)\end{aligned}\quad (Eq. IV.5)$$

Ce système n'admet pas de solution analytique dans le cas général. Il faut donc effectuer un certain nombre d'hypothèses pour pouvoir le résoudre.

La première est de considérer le milieu comme non-absorbant ($\alpha_i=0$ pour tout i). On peut alors résoudre le système IV.5 analytiquement, mais les équations obtenues sont particulièrement velues, avec tout un tas de termes compliqués comme des fonctions sinus de Jacobi⁸⁰ et une collection de constantes donc chaque expression nécessite au moins deux lignes. Les amateurs trouveront ces résultats dans [Dubois 97][Victori 01][Lebrun 03] par exemple. Nous préférons faire une hypothèse supplémentaire en considérant que la pompe (l'onde 3 dans le système ci-dessus) est faiblement « déplétée ».

On aboutit alors pour le signal (c'est-à-dire par exemple l'onde qu'on a noté « 2 » jusqu'à présent) à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial x^2} + i\Delta k \frac{\partial E_s}{\partial x} - g^2 E_s = 0 \quad (Eq. IV.10)$$

où on a défini :

⁸⁰ Dont je me permets de rappeler ici la définition pour le plaisir ; la fonction sinus de Jacobi f est définie par :

$$f^{-1}(\alpha, \beta) = \int_0^\alpha \frac{dx}{(1-x^2)(1-\beta x^2)}.$$

$$g^2 = \frac{2\omega_s \omega_c d_{\text{eff}}^2 I_p}{\epsilon_0 c^3 n_p n_s n_c} \quad (\text{Eq.IV.11})$$

Les indices s, c, et p se rapportent à l'onde signal, complémentaire et pompe respectivement, Δk est le désaccord de phase effectif total.

La résolution de cette équation différentielle se fait en deux parties, selon que le déterminant Δ de l'équation caractéristique associée ($\Delta = 4g^2 - \Delta k^2$) est positif ou négatif. Les conditions aux limites dans le cas particulier de l'amplification paramétrique sont $E_s(x=0)=E_{s0}$ et $E_c(x=0)=0$.

- Si $\Delta > 0$, la solution de IV.10 est :

$$E_s(x) = E_{s0} e^{\frac{j\Delta k x}{2}} \left[\cosh\left(\frac{\sqrt{\Delta} x}{2}\right) + i \frac{\Delta k}{\sqrt{\Delta}} \sinh\left(\frac{\sqrt{\Delta} x}{2}\right) \right] \quad (\text{Eq.IV.12})$$

On peut souvent se placer dans des conditions de gain fort, ou suffisamment près de l'accord de phase pour pouvoir affirmer $g \gg \Delta k/2$. L'équation IV.12 se simplifie alors et on obtient :

$$G = \frac{I_s(L)}{I_0} = \cosh^2(gL) \quad (\text{Eq.IV.13})$$

On a donc une évolution d'allure parabolique à l'accord de phase.

- Si $\Delta < 0$, la solution de IV.10 est :

$$E_s(x) = E_0 e^{\frac{-j\Delta k x}{2}} \left[\cos\left(\frac{\sqrt{-\Delta} x}{2}\right) + i \frac{\Delta k}{\sqrt{-\Delta}} \sin\left(\frac{\sqrt{-\Delta} x}{2}\right) \right] \quad (\text{Eq.IV.14})$$

Ici l'approximation de faible gain $g \ll \Delta k/2$ est trop brutale et conduit directement à $G=1$ (pas d'amplification). Si on développe le calcul au préalable, on a :

$$G = 1 + \frac{4g^2}{\Delta k^2 - 4g^2} \sin^2\left(\frac{\sqrt{\Delta k^2 - 4g^2}}{2} x\right) \quad (\text{Eq.IV.15})$$

On peut à partir de là faire $g \ll \Delta k/2$ pour finalement obtenir :

$$G = 1 + (gL)^2 \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (\text{Eq.IV.16})$$

Où on retrouve notre dépendance en $L^2 \cdot \text{sinc}(\Delta k L/2)$ déjà rencontrée plus haut pour le doublement de fréquence (Eq IV.7).

L'ensemble de ces résultats peut être résumé par le faisceau de courbes figure IV.2. Le gain exponentiel pour les faibles Δk ne doit pas nous tromper : dans ce cas l'hypothèse de la pompe non-déplétée devient rapidement caduque et on observe une importante saturation du gain.

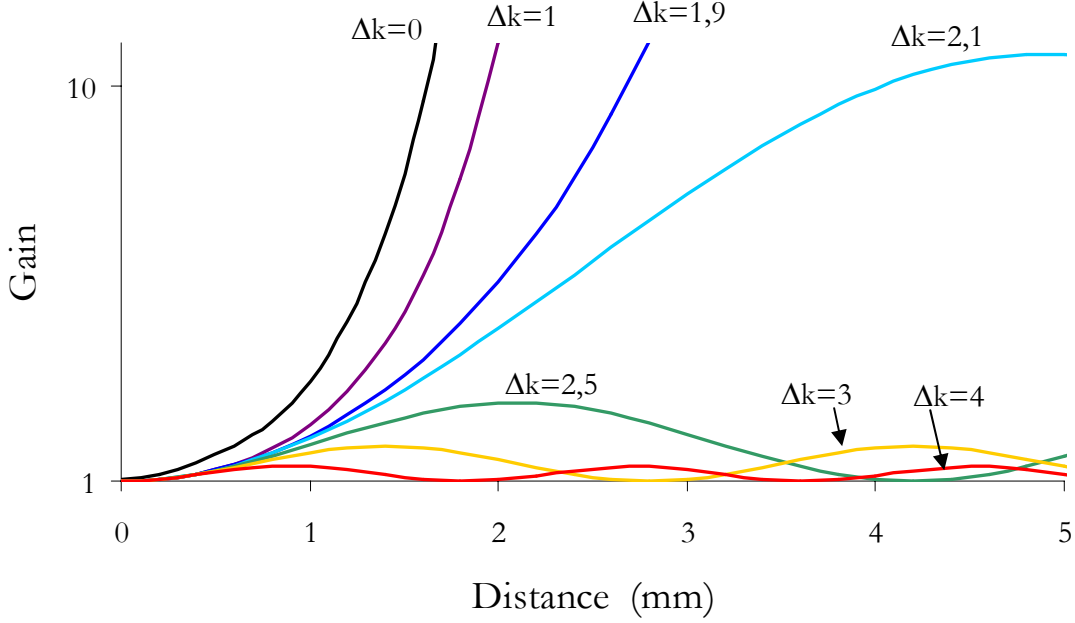


Figure IV.2 : évolution du gain avec la distance L parcourue dans le cristal. On a pris pour cet exemple $g = 2 \text{ mm}^{-1}$ et utilisé les équations IV.12 et IV.14. Les Δk sont exprimés en mm^{-1} .

On décrit ainsi l'amplification d'un faible signal $I_s(0)$ injecté dans un milieu de coefficient non-linéaire d_{eff} pompé avec l'intensité I_p : le gain théorique vaut à l'accord de phase $\cosh^2(gL)$ où L est la longueur du cristal et g est le coefficient de gain défini plus haut. Boyd et Kleinman [Boyd 68] ont montré que ce coefficient g doit être modifié lorsque l'on n'utilise plus des ondes planes mais des faisceaux gaussiens focalisés. Introduisons avec eux le paramètre confocal b défini par :

$$b_j = \frac{2\pi n_j w_{0j}^2}{\lambda_{0j}} \text{ avec } j = s, c \text{ ou } p. \quad (\text{Eq.IV.17})$$

Ce paramètre correspond physiquement à la distance autour du waist w_0 où le rayon w du faisceau ne s'agrandit pas d'un facteur supérieur à $\sqrt{2}$ (autrement dit b vaut deux fois la distance de Rayleigh). Si le faisceau n'est pas limité par la diffraction ($M^2 > 1$), il faut en tenir compte en insérant le facteur M^2 au dénominateur dans la définition de b . En introduisant $\xi = L/b$, on a alors :

$$g^2 = \frac{4\omega_s \omega_c d_{\text{eff}}^2 P_p}{\varepsilon_0 c^3 \lambda_p n_s n_c L} h(B, \xi) \quad (\text{Eq.IV.18})$$

B est un facteur tenant compte de la double réfraction : il dépend de l'angle de double réfraction ρ (on a $B = \rho(Lk_p)^{1/2}/2$, [Boyd 68]) et sera nul dans le processus d'amplification paramétrique mis en œuvre expérimentalement. L'expression littérale de la fonction h est

passablement touffue et ne sera pas donnée ici. Les auteurs en donnent cependant une représentation graphique : on s'aperçoit que $h(0, \xi)$ passe par un maximum (et vaut alors 1,068) pour $\xi \approx 2,8$, soit $L \approx 5,6 \text{ Zr}$ (Zr étant la longueur de Rayleigh). Si la focalisation est faible, on a $\xi < 1$ et $h(0, \xi)$ tend vers ξ : on retrouve alors l'expression IV.11 valable pour une onde plane.

Génération Paramétrique Optique

Bien que le titre de ce paragraphe soit « amplification et génération paramétrique », nous n'avons pour le moment fait qu'amplifier un signal. Comment le générer ? En fait, on peut voir la génération paramétrique optique comme l'amplification d'un très faible signal présent dans le cristal : le bruit... En effet, il existe en tout point du cristal et pour chaque fréquence une certaine énergie correspondant aux fluctuations du champ électrique du vide. On considère en général que cette énergie est d'un demi photon ($E = \hbar\omega/2$) par mode. Une onde pompe intense va amplifier ces champs électromagnétiques et créer ainsi un nombre infini de couples (signal + complémentaire) vérifiant la conservation de l'énergie $\omega_p = \omega_s + \omega_c$. La condition d'accord de phase intervient alors pour « sélectionner » un seul de ces couples qui va pouvoir ainsi être amplifié de façon conséquente. C'est le phénomène de génération paramétrique optique.

L'onde pompe est intense (elle contient un grand nombre de photons), ce qui permet de traiter le champ pompe de façon classique. Le nombre extrêmement réduit de photons signal et complémentaire nous oblige par contre à quantifier les champs correspondants. Les équations ci-dessus ne peuvent par conséquent pas rendre compte de l'apparition *ex nihilo* d'un signal non négligeable (si on fait $I_s(0) = 0$, on obtient $I_s(L) = 0$). Faisons donc appel à la mécanique quantique : l'interaction entre la pompe et le signal est alors caractérisée par un Hamiltonien (faisant intervenir le paramètre $\chi^{(2)}$), et le nombre moyen de photons signal se calcule en appliquant une approche perturbative du premier ordre. Le résultat obtenu [Louisell 63] est le suivant :

$$\langle n_s(z) \rangle = \langle n_s(0) \rangle \cosh^2(Kz) + (1 + \langle n_c(0) \rangle \sinh^2(Kz)) \quad (Eq.IV.19)$$

Avec $\langle n \rangle$ le nombre moyen de photons au temps t (l'indice s désignant le signal et c le complémentaire) et K est le paramètre de gain faisant intervenir le coefficient d_{eff} , les indices, la puissance de pompe et les longueurs d'ondes :

$$K^2 = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 I_p(0)}{\epsilon_0 c \lambda_s \lambda_c n_s n_c n_p} \sin^2\left(\frac{\Delta k z}{2}\right) \quad (Eq.IV.20)$$

On voit immédiatement apparaître le caractère quantique de la chose sous la forme du facteur unité dans le second terme de l'équation IV.19 : on peut grâce à ce facteur avoir $n_s(z)$ non nul même sans photon initial ($n_s(0) = n_c(0) = 0$). C'est le même genre de raisonnement qui décrit le démarrage d'un laser, le facteur unité représentant dans ce cas l'émission spontanée.

Pour simplifier l'expression précédente, nous allons nous placer à l'accord de phase ($\Delta k = 0$) et supposer que le gain K est important : on peut alors réécrire l'équation IV.19 sous la forme suivante :

$$n_s(L) = \sinh^2(KL) = \left(\frac{e^{KL}}{2} \right)^2 \quad (Eq.IV.21)$$

ce qui nous conduit par la suite à :

$$K = \left[\frac{1}{2L} \ln \langle 4n_s \rangle \right]$$

En posant $E_s = \langle n_s \rangle \frac{hc}{\lambda}$ l'énergie du signal, on arrive finalement à :

$$K = \left[\frac{1}{2L} \ln \left(\frac{4\lambda E_s}{hc} \right) \right] \quad (Eq.IV.22)$$

Cette dernière expression est celle généralement utilisée dans la littérature [Byer 75][Zahyowski 97].

La nature même du processus de génération paramétrique optique fait que plusieurs couples de longueurs d'onde sont susceptibles d'être générés en même temps et de satisfaire à l'accord de phase (on peut penser à des accord de phase non colinéaires par exemple). Le spectre du signal produit par GPO sera donc bien plus large que celui émis par APO. De façon générale, l'injection d'un signal de faible puissance est souvent utilisée pour affiner spectralement un générateur paramétrique optique.

Nous avons vu tout au long de ce bref survol de quelques effets non-linéaire qu'un paramètre capital apparaît régulièrement : l'accord de phase. Dans la plupart des rendements il intervient sous la forme d'un sinus cardinal : il est donc impossible d'obtenir une conversion de fréquence efficace sans réaliser cette condition d'accord de phase, dont nous allons maintenant dire quelques mots.

I.5. L'accord de phase

En principe, l'ensemble des phénomènes décrits figure IV.1 sont susceptibles d'apparaître simultanément dans un cristal non-linéaire pompé par un faisceau intense. Or expérimentalement il n'en est rien, et on note que seul un de ces effets a une intensité observable. En effet, une autre condition que la conservation de l'énergie intervient : c'est la conservation de l'impulsion. Comme l'impulsion p vaut $\hbar k$, on l'appelle aussi conservation du vecteur d'onde et on l'écrit $k_3 = k_2 + k_1$ ou encore $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0$ (condition d'accord de phase). On peut observer le comportement du rendement de conversion en fonction de Δk sur l'équation IV.7 : si Δk est non nul, l'intensité à 2ω va osciller tout au long du cristal avec une période $2L_c$, avec un maximum pour $L_c = \pi/\Delta k$ (on appelle L_c la « longueur de cohérence »). En effet les phases des ondes aux fréquences ω et 2ω (toujours dans notre exemple du doublement de fréquence, mais le propos est valable dans le cas général) ne se propagent pas à la même vitesse : l'onde pompe E_ω (et donc $P_{2\omega}$) a une vitesse de phase de c/n_ω , l'onde harmonique $E_{2\omega}$ de $c/n_{2\omega}$. Les deux phases se décalent donc petit à petit jusqu'à ce que leur écart vaille π au bout de la distance L_c (les ondes à 2ω créées en différents point du cristal sont alors en opposition de phase : les interférences sont destructives). Le transfert d'énergie commence alors à se faire « dans l'autre sens », *i.e.* de l'onde harmonique vers l'onde fondamentale, et ainsi de suite. Ce phénomène limite donc de façon

drastique la longueur de cristal utilisable sans précautions : on a alors typiquement $\Delta k = 4\pi(n_{2\omega} - n_{\omega})/\lambda$ et donc $L_c \approx 20 \mu\text{m}$! La seule solution viable pour réaliser une conversion efficace est donc de se placer à l'accord de phase $\Delta k = 0$, ce qui se traduit par $n_{2\omega} = n_{\omega}$.

De façon générale la dispersion implique $n_{2\omega} \neq n_{\omega}$. On peut cependant utiliser un certain nombre de technique pour contourner cet obstacle. La plus utilisée est connue sous le nom « d'accord de phase par biréfringence ».

Le principe de cette technique est d'utiliser la biréfringence des cristaux (pour peu que cette dernière soit plus grande que la dispersion) pour obtenir $n_{2\omega} = n_{\omega}$. En effet, dans un cristal biréfringent la vitesse de propagation diffère avec la polarisation du faisceau considéré⁸¹. Ainsi comme la dispersion indique en général $n_{2\omega} > n_{\omega}$, il faut faire en sorte que les ondes à ω se propagent « plus lentement » que les ondes à 2ω . En choisissant convenablement les axes de polarisation, on peut atteindre l'égalité $n_{2\omega} = n_{\omega}$. Il est par exemple possible de faire en sorte (dans le cas du doublement de fréquence) que l'onde fondamentale et l'onde harmonique se propagent selon deux polarisations orthogonales: on parle alors d'accord de phase de type I (par exemple pour un cristal uniaxe positif, l'onde fondamentale est extraordinaire et l'onde harmonique est ordinaire). On peut également réaliser un accord de phase dit de type II : on combine alors deux ondes de natures différentes (par exemple en notant E pour extraordinaire et O pour ordinaire on peut écrire cet accord de phase $O_{\omega} + E_{\omega} \Rightarrow E_{2\omega}$). Il faut retenir de tout cela que le contrôle des polarisations et le choix des types d'accord de phase (les coefficients non-linéaires en jeu sont différents) sont capitaux, particulièrement dans le cas où plusieurs conversions non-linéaires successives sont nécessaires.

Les cristaux non-linéaires massifs les plus utilisés sont le KTP (KTiOPO_4) le KDP (KH_2PO_4) et plus récemment découverts le BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$) et le LBO (LiB_3O_5). Quelques caractéristiques de ces cristaux sont données en annexe II. Dans le paragraphe qui va suivre, nous ne parlerons pas des deux premiers, à savoir le KTP et le KDP. En effet, le KTP ne possède pas de scénario d'accord de phase de type I pour notre configuration de doublement : or nous avons précisément choisi de travailler avec *un accord de phase de type I* ; en effet, la fraction du rayonnement infrarouge non convertie en rayonnement vert doit être – pour notre expérience – utilisée par la suite pour réaliser le triplement de fréquence : en accord de phase de type II la polarisation de ce rayonnement infrarouge n'est pas maîtrisée (à moins de calculer à l'avance une longueur précise pour le cristal non-linéaire), ce qui complique inutilement notre tâche. Le KTP est cependant très utilisé en configuration « type II » en raison de son très fort coefficient non linéaire ($d_{\text{eff}} = 3,29$). Le KTP est donc souvent choisi lorsque les puissances fondamentales incidentes sont faibles et que l'on ne s'intéresse qu'au faisceau vert et pas à l'infrarouge restant. Quand au KDP, il est très utilisé pour doubler des lasers déclenchés de forte énergie car il est possible de réaliser des cristaux de grande taille : la forte puissance crête utilisée rend alors son faible coefficient non linéaire ($d_{\text{eff}} \approx 0,3 \text{ pm/V}$) acceptable, ce qui n'est pas le cas pour nous.

Prenons donc les deux autres cristaux massifs « classiques » pour le doublement de fréquence (avec $\lambda = 1064 \text{ nm}$), à savoir le LBO (triborate de lithium), le BBO. Nous avons regroupé dans le tableau IV.1 les différentes valeurs des paramètres n et d_{eff} ainsi que l'angle de

⁸¹ La première observation de ce phénomène est due à Erasmé Bartholin, qui écrivit à son roi en 1669 pour lui apporter la nouvelle en ces termes : « à sa Majesté Frédéric II roi de Danemark et de Norvège, roi des Vandales et roi des Goths, est dédiée cette nouvelle étude pour l'instruction des sages : l'expérience sur le cristal biréfringent inondant les terres nordiques, mystère de dioptrique, spectacle entièrement nouveau sur terre. » [Bartholin 1669]. La première étude sérieuse du phénomène est due à Christian Huygens dans son traité de la lumière, tandis que Malus traitera mathématiquement l'affaire et introduira plus tard le concept de polarisation [Malus 1810]. Enfin, la première explication théorique « moderne » (incluant l'hypothèse de la transversalité des ondes lumineuses) est l'œuvre d'Augustin Fresnel [Fresnel 1868].

double réfraction θ^{82} (qui rend compte du fait que si la propagation se fait en dehors des axes principaux de la surface des indices, deux ondes polarisées différemment sont réfractées avec un angle θ l'une par rapport à l'autre du fait de l'anisotropie du cristal : le recouvrement des faisceaux est de moins en moins bon au cours de la propagation, ce qui limite la longueur utile du cristal).

À partir des données du tableau on peut définir une figure de mérite ζ valant d'après l'équation IV.18 :

$$\zeta = d_{\text{eff}}^2 / (n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega}) \quad (\text{Eq. IV.23})$$

	<i>LBO</i>	<i>BBO</i>
$d_{\text{eff}} \text{ (pm/V)}$	0,832	2,01
n_{ω}	1,626	1,674
$n_{2\omega}$	1,639	1,7
$\rho \text{ (mrad)}$	6,88	55,85
<i>Acceptance angulaire (mrad.cm)</i>	9,63	1,15
ζ	0,16	0,85

Tableau IV.1 : comparaison des vertus de différents cristaux non-linéaire en accord de phase de type I ($O_{\omega} + O_{\omega} \rightarrow E_{2\omega}$). Les indices sont pris à 300 K et le waist des faisceaux égal à 50 μm .

Le BBO semble plus efficace : attention cependant car deux paramètres cruciaux n'ont pas été pris en compte ici ! Tout d'abord, il faut tenir compte du « walk-off », ou angle de double réfraction. Son influence sur l'efficacité de doublage ne peut malheureusement pas être exprimée de façon simple dans le cas le plus général. Cependant moyennant quelques approximations raisonnables on peut évaluer [Boyd 68] que le rendement de conversion est proportionnel à la fonction $h(B, \xi)$ dont nous avons parlé plus haut. Avec les valeurs de ρ données dans le tableau, on peut calculer B et par suite $h(B, \xi)$ pour une configuration donnée. En se plaçant dans les conditions de focalisation optimale pour chaque cas, on trouve que $h(B, \xi)^{\text{LBO}} \approx 7 h(B, \xi)^{\text{BBO}}$. On peut donc corriger notre évaluation des mérites respectifs des cristaux de LBO et de BBO en introduisant ce facteur correspondant à la double réfraction en formant le rapport

$$\frac{\zeta^{\text{BBO}} \cdot h(B, \xi)^{\text{BBO}}}{\zeta^{\text{LBO}} \cdot h(B, \xi)^{\text{LBO}}} = \frac{\zeta^{\text{BBO}}}{\zeta^{\text{LBO}} \cdot 7} = 0,76.$$

Notre point de vue est donc maintenant différent : le LBO semble plus performant. Un dernier paramètre très important doit enfin être considéré : l'acceptance angulaire des cristaux.

⁸² Cet angle de double réfraction est la conséquence de la non-colinéarité dans le cas général du vecteur d'onde et du vecteur de Poynting (définissant la direction de propagation de l'énergie).

On observe alors que pour une configuration « standard » ($w_0 = 50 \mu\text{m}$, cristal de 5 mm de long) l'angle du faisceau dans le cristal vaut $\theta = \lambda / (\pi w_0) = 6,7 \text{ mrad}$, soit environ trois fois plus que l'acceptance angulaire du BBO : le rendement sera donc diminué d'autant (en toute rigueur, il faudrait tenir compte de la répartition gaussienne de l'amplitude des faisceaux, mais ce sont les ordres de grandeur qui nous intéressent ici). L'acceptance angulaire du LBO ne pose quant à elle pas de problème : on peut donc affirmer que le LBO est un meilleur candidat que le BBO pour le doublement de fréquence 1064 nm vers 532 nm.

On s'aperçoit tout de même que l'accord de phase par biréfringence souffre d'un certain nombre d'inconvénients. Le premier d'entre eux est donc le phénomène de double réfraction qui limite la longueur d'interaction utile dans le cristal (il faut cependant noter qu'il existe des configurations, dite « d'accord de phase non-critique », où l'angle de double réfraction est nul : cette configuration est atteinte⁸³ pour le LBO par chauffage à environ 150 degrés). Ensuite la gamme de longueur d'onde accessible n'est pas égale à la plage de transparence des matériaux : il existe des zones spectrales où la biréfringence n'est pas suffisamment importante pour permettre d'atteindre l'accord de phase. Enfin, un dernier point important concerne le coefficient non-linéaire d_{eff} : il est fixé pour un processus donné par la géométrie conduisant à l'accord de phase, ce qui ne garantit en aucun cas l'utilisation des coefficients les plus élevés de la matrice d (en général c'est même plutôt l'inverse : les coefficients non-linéaires importants sont inaccessibles par accord de phase par biréfringence).

Nous allons maintenant décrire une technique permettant d'éliminer purement et simplement tous ces inconvénients : le quasi-accord de phase.

I.6. Le quasi accord de phase

I.6.1. Cadre théorique

La technique de quasi accord de phase (QAP) a été proposée dès 1962 [Armstrong 62], soit avant que l'idée d'accord de phase par biréfringence ne germe dans les esprits. Elle n'a cependant pas pu être efficacement mise en œuvre avant la dernière décennie (à l'université de Stanford dans le groupe de Marty Fejer et Bob Byer) pour des raisons essentiellement technologiques.

L'idée est de se placer à désaccord de phase non nul ($\Delta k = \Delta k' \neq 0$), donc d'accepter que les phases respectives des ondes fondamentales et harmoniques dérivent, et de rattraper périodiquement ce déphasage en imposant une structure périodique au cristal non-linéaire⁸⁴. Lorsqu'on ne se trouve pas à l'accord de phase, on peut considérer en première approximation que l'intensité des ondes générées varie comme le sinus carré de la longueur L parcourue dans le cristal (Eq.IV.7). La période de cette modulation est la longueur de cohérence L_c , et au final l'onde harmonique ne peut pas croître suffisamment (voir le trait pointillé sur la figure IV.3). Si on parvient, d'une façon ou d'une autre, à remettre à zéro le désaccord de phase au bout de la longueur L_c , l'énergie continuera à être transférée sans interruption de l'onde fondamentale vers l'onde harmonique. Une façon de faire est de renverser le signe du coefficient non-linéaire à

⁸³ C'est cet accord de phase non critique qui est utilisé dans les lasers commerciaux continu et doublés intracavité tels que le Verdi® (Coherent) ou le Millennia® (Spectra Physics).

⁸⁴ Un peu de nomenclature : on ajoute les initiales pp- devant l'acronyme du cristal pour signifier sa polarisation périodique (« periodically poled » outre-manche).

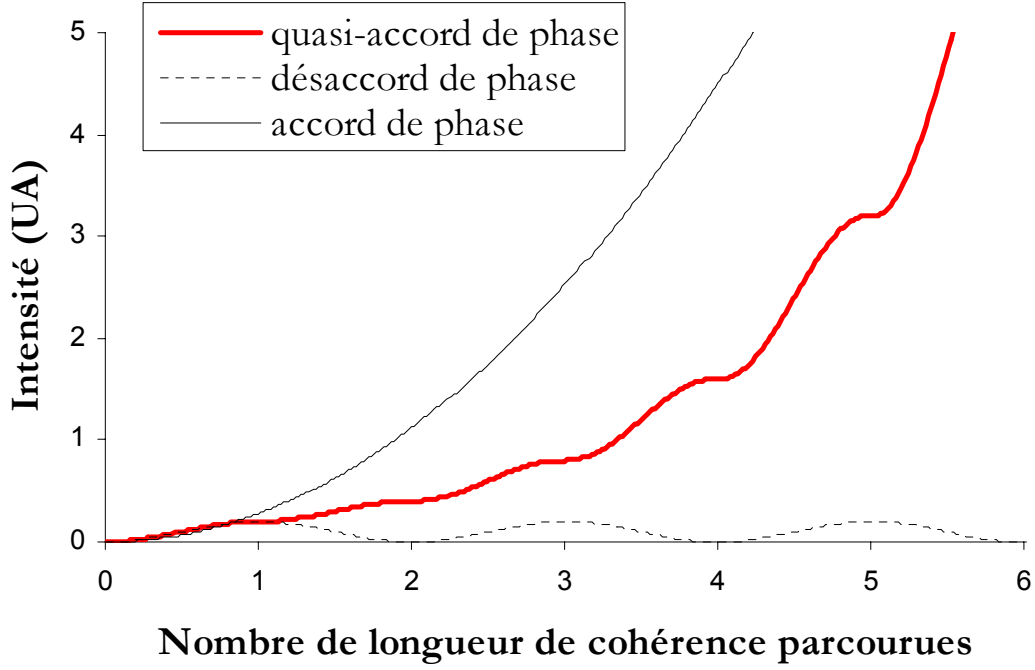


Figure IV.3 : comparaison entre accord de phase parfait, quasi accord de phase et désaccord de phase pour un même coefficient non-linéaire d_{eff} .

chaque longueur de cohérence : on dit qu'on réalise un quasi-accord de phase d'ordre 1. L'énergie de l'onde harmonique augmente alors « en marche d'escalier » comme on peut le voir sur la figure IV.3 (ligne épaisse au centre). La ligne fine correspond à l'accord de phase parfait (et donc à une augmentation parabolique de l'intensité de l'onde harmonique avec L).

Nous reviendrons plus loin sur les moyens technologiques à notre disposition pour inverser ainsi le signe du coefficient non-linéaire. Supposons ici que nous y soyons parvenus (on a alors un cristal du type de celui représenté sur la figure IV.4), et que cette inversion puisse être décrite par une fonction créneau $g(x)$ de période Λ prenant les valeurs ± 1 . Cette fonction périodique peut être développée en série de Fourier :

$$g(x) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} G_m \exp(iK_m x) \quad (Eq.IV.24)$$

avec $K_m = 2\pi m/\Lambda$.

On peut alors insérer cette fonction dans le système d'équation IV.5 afin de comprendre comment l'évolution de l'intensité harmonique est modifiée par la structure périodique que nous venons d'introduire [Fejer 92]. On a alors :

$$E_{2\omega} = \frac{i\omega}{n_{2\omega}c} d_{ijk} E_{\omega}^2 \int_0^L \sum_m G_m \exp(i(K_m - \Delta k)x) dx \quad (Eq.IV.25)$$

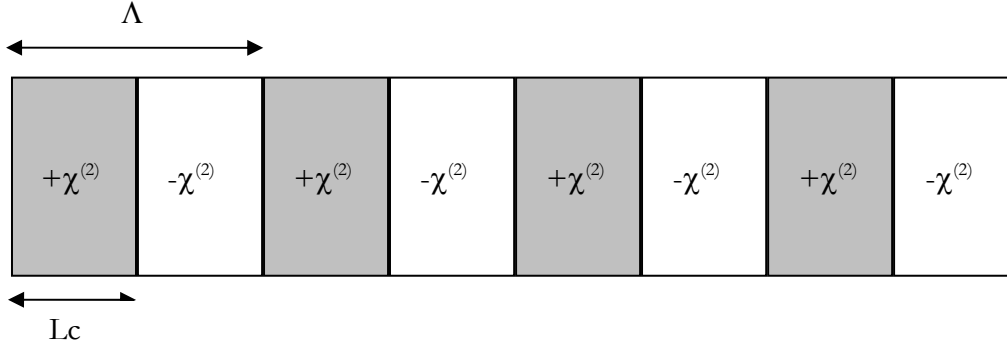


Figure IV.4 : cristal périodiquement polarisé (d'ordre 1) de pas Λ .

La conversion ne peut être efficace que pour un seul des coefficients de la série de Fourier : celui qui mène à $\Delta k_{\text{TOT}} = \Delta k - 2\pi m/\Lambda = 0$ où Δk_{TOT} est une sorte de « désaccord de phase effectif total ». Il faut cependant payer un prix pour en arriver là : le coefficient non-linéaire pour le QAP est réduit $d_{\text{eff}} = G_m d_{ijk}$. Or pour un créneau de rapport cyclique $D = L_p/\Lambda$, où L_p est la longueur sur laquelle d_{ijk} est positif, le coefficient de Fourier G_m prend les valeurs suivantes :

$$G_m = \frac{2}{m\pi} \sin(\pi m D) \quad (\text{Eq. IV.26})$$

Le QAP le plus efficace (dit « du premier ordre ») a un rapport cyclique $1/2$ et $m=1$, ce qui conduit à $d_{\text{eff}} = 2d_{ijk}/\pi$, soit une valeur plus faible que le coefficient d_{ijk} de la matrice d^{85} . Un QAP qui utiliserait la même géométrie (le même coefficient d_{ijk}) qu'un accord de phase par biréfringence serait donc moins efficace. Cependant, et c'est un des principaux avantages du QAP, les polarisations n'interviennent pas ici et on peut donc choisir celles qui nous apportent le plus grand coefficient d . En général il s'agit du coefficient d_{33} (les polarisations des trois ondes sont alors suivant z ($E_\omega + E_\omega \rightarrow E_{2\omega}$)). Le coefficient non-linéaire effectif finalement atteint est bien supérieur (disons 4 à 5 fois) à ceux susceptibles d'être obtenus par accord de phase par biréfringence.

I.6.2. Aspects technologiques du QAP

Quels sont les moyens technologiques à notre disposition pour réaliser l'inversion de signe dont on parle depuis tout à l'heure ?

Différentes techniques ont été mises en place depuis quarante ans pour réaliser le quasi-accord de phase. La première méthode fut proposée par Franken et Ward en 1963 : elle consistait à superposer de fines galettes de matériau non-linéaire (du quartz) tournées les unes par rapport aux autres [Franken 63]. Les pertes induites par les multiples interfaces étant trop importantes, de nombreuses expériences ont été réalisées en utilisant des galettes de GaAs soudées par diffusion [Gordon 93][Becouarn 98]. D'autres réalisations marginales ont été proposées, à base de guides d'ondes remplis de nitrobenzène liquide [Levine 75] ou de réflexions multiples dans un cristal

⁸⁵ Un QAP d'ordre 2 ($m=2$) conduit à un rapport cyclique optimal de $1/4$ et à un coefficient non-linéaire diminué de moitié (donc une efficacité théorique quatre fois plus faible). Il permet cependant de travailler avec un pas Λ deux fois plus grand, ce qui peut présenter un avantage décisif lorsque la technologie ne parvient pas à réaliser un pas Λ suffisamment petit pour obtenir un QAP du premier ordre.

[Armstrong 62]. Récemment, un quasi-accord de phase du premier ordre a été démontré dans de la silice : l'ensemble est polarisé thermiquement, puis la périodicité est obtenue par illumination UV (le coefficient non-linéaire est cependant faible (0,1 pm/V) [Chen 03].

Mais les cristaux rois pour réaliser le quasi-accord de phase sont les matériaux dits ferroélectriques. Dans de tels cristaux le barycentre des charges positives ne coïncide pas avec le barycentre des charges négatives, ce qui conduit à la présence d'une polarisation spontanée P_s même en l'absence de champ électrique externe. Cette ferroélectricité disparaît lorsque le cristal est chauffé au-delà de sa température de Curie (1150° pour le niobate de lithium, 936 °C pour le KTP). Si l'on trace sur une courbe la polarisation spontanée en fonction du champ électrique appliqué, on observe un phénomène d'hystérésis centré sur l'origine : le champ nécessaire pour inverser le signe de P_s est appelé champ coercitif (figure IV.5). Si on applique un champ E supérieur au champ coercitif, on fait basculer le barycentre des charges positives vers une autre position stable, de telle façon à ce que le signe de P_s soit inversé (voir la représentation schématique figure IV.6).

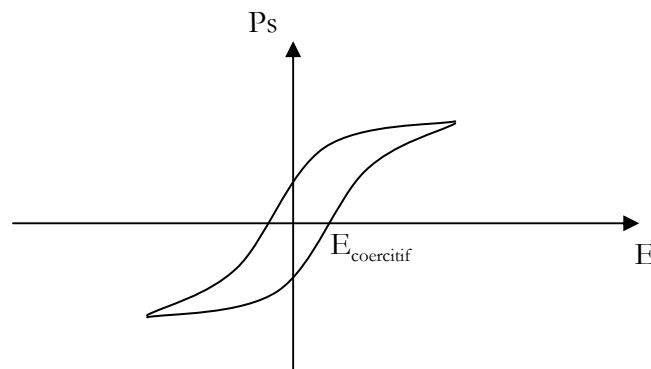


Figure IV.5 : courbe d'hystérésis d'un matériau ferroélectrique.

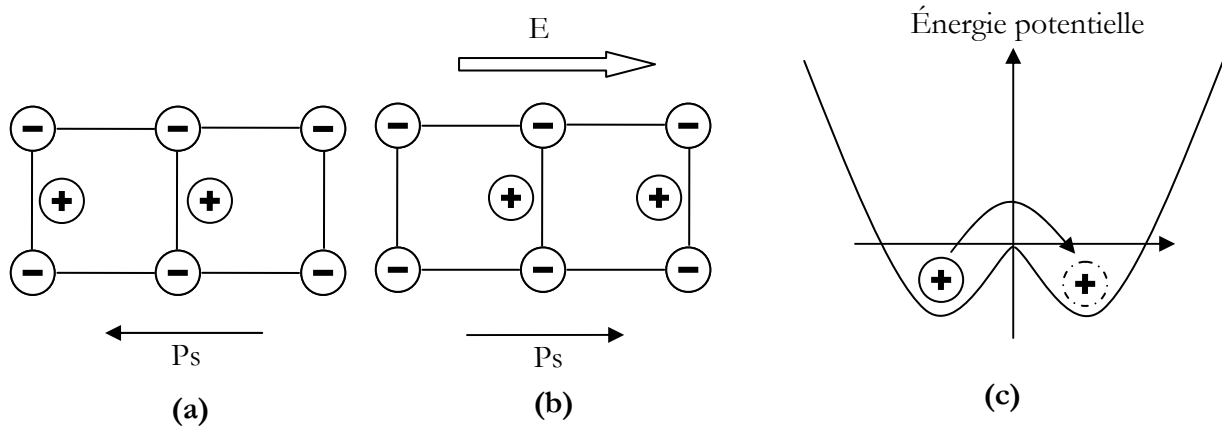


Figure IV.6 : matériaux ferroélectriques : vue qualitative. (a) état naturel (b) état « inversé » suite à l'application d'un champ E (c) passage de la configuration stable (a) à la configuration stable (b).

Voyons maintenant les différentes méthodes permettant d'inverser un cristal ferroélectrique :

La méthode la plus utilisée – et de loin – car la plus efficace est relativement récente [Yamada 93]. Elle consiste à déposer un réseau périodique d'électrodes sur une face latérale du

cristal (ou les deux) par des méthodes lithographiques. On peut alors appliquer un champ électrique intense (supérieur au champ coercitif) afin de renverser la polarisation des domaines sous les électrodes (figure IV.7). Cette technologie est maintenant mature et c'est la seule qui donne lieu à une production commerciale.

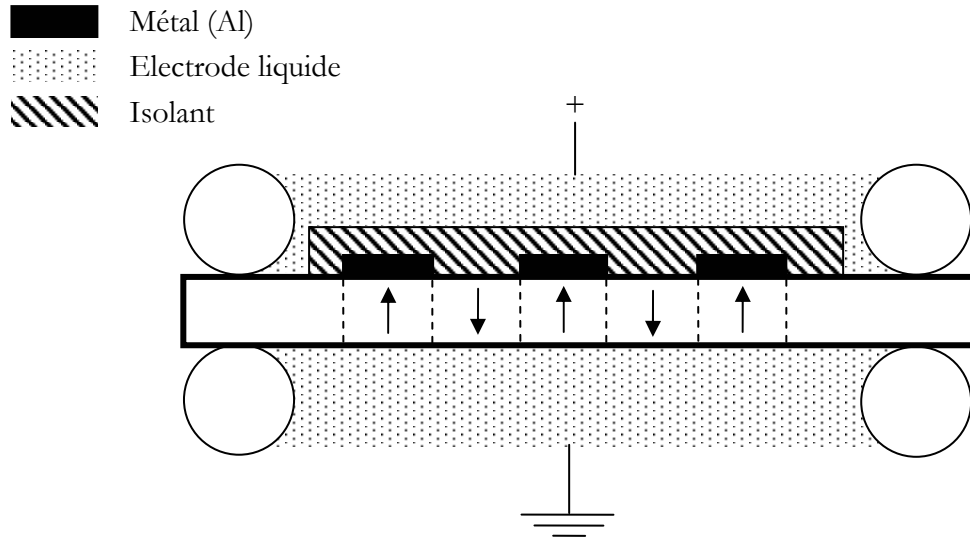


Figure IV.7 : Exemple de méthode d'inversion par application de champ électrique. Le liquide est maintenu en contact avec le cristal par des joints étanches (ronds blancs). Le rapport cyclique est ici de 50%.

Pour être complet, il faut signaler qu'il existe d'autres façons – plus « exotiques » - d'inverser un cristal ferroélectrique. La première est d'agir pendant la croissance du cristal même, en ajoutant des ions d'Yttrium dans une matrice de niobate de lithium au cours de sa croissance par méthode Czochralski par exemple [Lu 96]. Des méthodes basées sur les échanges ioniques (avec du titane dans le niobate de lithium [Wejbörn 89] et un mélange rubidium/barium dans le KTP [Van der Poel 90]) ont aussi été mises au point. Une troisième solution est de créer le champ de charge d'espace nécessaire pour inverser les domaines en injectant des électrons dans le cristal par une des faces [Gupta 93]. Cette méthode donne cependant en général des rapports cycliques médiocres car les électrons ont tendance à s'éparpiller latéralement dans le cristal. Aucune de ces méthodes ne donne cependant de résultats comparables à ceux obtenus avec la méthode « du champ électrique » décrite plus haut.

I.6.3. Avantages et inconvénients

Les avantages du quasi-accord de phase sont nombreux, et nous les avons pour la plupart déjà cités. Le premier d'entre eux est de donner accès à des coefficients non-linéaires très élevés, accessibles uniquement avec une géométrie où les trois polarisations sont colinéaires. De plus, cette configuration permet d'éviter les désagréments dus à l'angle de double réfraction et donc de

pouvoir utiliser efficacement des cristaux de grande longueur (plusieurs centimètres). Le quasi accord de phase peut être réalisé sur toute la plage de transparence du cristal non-linéaire choisi : en effet ce n'est plus Dame Nature qui impose l'accord de phase mais l'ingénieur chargé de la fabrication du cristal. On peut réaliser une sorte d'ingénierie de l'accord de phase permettant de générer n'importe quelle longueur d'onde pourvu que la conservation de l'énergie soit satisfaite. Un autre aspect intéressant de cette maîtrise humaine de l'accord de phase est la possibilité de réaliser des structures complexes dans un but bien précis (voir figure IV.8). Ainsi on peut réaliser plusieurs réseaux de pas différents placés côte à côte [Myers 96], ou encore réaliser des structures « en éventail » [Powers 98] (on fait dans les deux cas varier la période du réseau vue par l'onde en fonction de l'endroit où le faisceau est injecté, ce qui permet d'obtenir une large accordabilité). On peut également accoler longitudinalement des réseaux de pas différents pour réaliser plusieurs fonctions avec un même cristal (par exemple un doubleur de fréquence puis un GPO [Chiang 01]), ou encore faire varier continûment le pas du réseau pour le faire gazouiller (« chirped gratings ») et ainsi pouvoir convertir un spectre large [Arbore 97].

Enfin il est dorénavant possible de réaliser des cristaux périodiquement polarisés sous la forme de guides d'ondes, ce qui permet d'augmenter les rendements de conversion observés grâce au confinement supplémentaire ainsi obtenu.

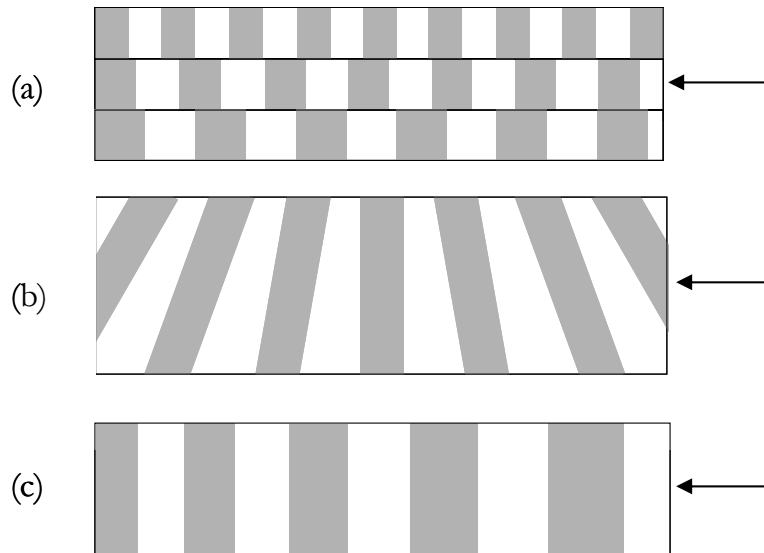


Figure IV.8 : quelques exemple de variations technologiques autour du thème du réseau périodiquement polarisé (a) réseaux accolés de pas différents, (b) réseau en éventail, (c) réseau gazouillant.

Passons maintenant aux inconvénients : autant le dire tout de suite, ils sont peu nombreux. Le premier d'entre eux est le coût : la technologie est récente, les fabricants se comptent sur les doigts d'une main. Certains cristaux comme le niobate de lithium nécessitent de plus d'être chauffés (nous y reviendrons), ce qui entraîne un surcoût dû au four. Toujours en raison de la jeunesse de la technologie, un certain nombre de défauts de fabrication subsistent souvent : domaines manquants, rapport cyclique irréguliers, ou encore erreurs constantes ou aléatoires sur le pas du réseau [Fejer 92]. Enfin, il est pour l'heure encore difficile (bien que des progrès considérables soient fait chaque année) de fabriquer des réseaux de périodes très courtes

(autour de 1 μm), nécessaires pour travailler à basse longueur d'onde⁸⁶. On peut pour contourner ce problème utiliser un quasi-accord de phase d'ordre supérieur, mais on perd ce faisant beaucoup en efficacité.

Voyons maintenant quels sont les cristaux disponibles en version « périodiquement polarisés ».

I.6.4. Les cristaux disponibles

A. Le ppLN

Le niobate de lithium (LiNbO_3 ou LN) est le maître des cristaux périodiquement polarisés. Ce cristal possède en effet une combinaison unique de propriétés électro-, acousto-, piézo, et pyroélectriques couplées avec des coefficients non-linéaires très élevés. Il a donc été utilisé dans moult composants (cellules de Pockels, modulateurs acousto-optiques, substrat pour l'optique intégrée, etc.) depuis de nombreuses années, si bien que sa fabrication est aujourd'hui parfaitement maîtrisée, et ce avec une qualité optique et une homogénéité impeccables.

Le niobate de lithium fut donc tout naturellement le pionnier des cristaux périodiquement polarisés par application d'un champ électrique [Yamada 93], et depuis de nombreux chercheurs travaillent sur ce cristal et ses applications non-linéaires ([Wejbörn 94][Miller 96][Myers 94] pour n'en citer que quelques uns). Une des raisons principale pour laquelle le niobate de lithium est tant utilisé est son coefficient non-linéaire; en effet, on a :

$$d_{22} = 3,07 \text{ pm/V}, d_{31} = d_{15} = 5,95 \text{ pm/V}, d_{33} = 27,2 \text{ pm/V}$$

Quel beau d_{33} !

Même en tenant compte de la réduction d'un facteur $2/\pi$ dû au quasi-accord de phase, on obtient d_{eff} (théorique) = 17,3 pm/V, ce qui le place un étage au dessus de tous les matériaux à accord de phase par biréfringence. Le tenseur d , compte tenu de la symétrie du cristal, s'écrit :

$$[d_{im}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{Eq.IV.27})$$

Par conséquent, la seule façon d'atteindre ce coefficient d_{33} est d'utiliser des ondes toutes polarisées suivant z .

On a déjà souligné l'excellente qualité optique du ppLN (même pour des échantillons assez longs - plus de 50 mm), à laquelle il faut ajouter une plage de transparence s'étendant de 350 nm à 5,4 μm . Mais quels sont donc les défauts du ppLN ?

Le premier est son champ coercitif élevé : là où 2 kV/mm suffisent à inverser la polarisation du KTP, plus de 20 kV/mm sont nécessaires pour le niobate de lithium : en

⁸⁶ Les verrous technologiques tendent cependant à sauter : Mizuuchi *et al.* viennent d'inverser un cristal de ppLN avec une période de 1,8 μm (mais sur une épaisseur de 150 μm seulement), permettant ainsi d'obtenir une longueur d'onde harmonique de 360 nm [Mizuuchi 03].

conséquence, il est très délicat de polariser des échantillons épais (plus de 1 mm), ce qui limite les applications dite « fortes puissances ». Deuxièmement, le seuil de dommage optique du ppLN est environ trois fois plus faible que celui du ppKTP. Enfin, le ppLN est très sensible aux dommages photoréfractifs [Glass 78]. Cet effet induit des variations de l'indice de réfraction dépendantes de la température, ce qui conduit à des distorsions importantes du faisceau. L'origine physique de ce processus est la suivante : la lumière visible dans le matériau génère des porteurs de charges qui diffusent dans le cristal, créant ainsi un champ de charges d'espace, qui par la suite et par effet électro-optique affecte l'indice de réfraction. Cet effet peut être limité voire éliminé en chauffant le cristal à des températures élevées (plus de 100 °C)[Myers 97]. Il a été également démontré que les cristaux de ppLN sont moins sensibles aux dommages photoréfractifs que les cristaux de LN « massifs » [Taya 96]. Enfin il est possible de limiter ce phénomène en dopant le ppLN avec du MgO par exemple.

B. Le ppKTP

Le KTP n'existe pas dans la nature. Il a été synthétisé pour la première fois en 1890 [Ouvrard 1890], puis a été plus ou moins oublié dans un tiroir jusqu'aux années 70. Son utilisation comme cristal non-linéaire remonte aux travaux des chercheurs de la société DuPont en 1976. Comme nous l'avons déjà dit, le KTP possède un coefficient non-linéaire élevé. Il est de plus très résistant aux dommages tant optiques que mécaniques, et sa plage de transparence s'étend de l'ultraviolet (365 nm) à l'infrarouge moyen (4,3 μm). Ce cristal présente comme le niobate de lithium l'avantage d'être à la fois biréfringent (ce qui lui permet d'être utilisé dans des configurations d'accord de phase par biréfringence) et ferroélectrique : il peut donc être périodiquement inversé pour dévoiler son plus beau coefficient non-linéaire, le d_{33} . Les coefficients non linéaires du KTP sont en effet les suivants [Cheng 94] :

$$d_{15} = 1,9 \text{ pm/V}, d_{24} = 3,6 \text{ pm/V}, d_{31} = 2,5 \text{ pm/V}, d_{32} = 4,4 \text{ pm/V}, d_{33} = 16,9 \text{ pm/V}$$

Pour toutes ces raisons, le ppKTP est très largement utilisé pour réaliser des dispositifs non-linéaires, en particulier lorsque la puissance crête est modérée ou faible car c'est dans ce domaine qu'il surpasse le KTP « normal ». Les données optiques relatives au KTP sont bien connues : l'équation de Sellmeier donnant la dispersion peut être trouvée dans [Fan 87], tandis que la dépendance de l'indice de réfraction avec la température et les coefficients d'expansion thermiques sont décrits en détails dans [Chu 92]. Ces derniers paramètres sont très importants puisque la température gouverne à la fois les indices (de façon cependant négligeable pour le KTP) et la période du réseau, et donc l'accord de phase.

Il faut dire un mot des dommages susceptibles d'apparaître dans le KTP sous forte illumination. Le premier dommage à considérer est la fracture optique pure et simple due à une élévation locale de la température : il est difficile de donner un seuil pour cet effet tant il dépend de la puissance moyenne, de la cadence, de la durée des impulsions, de la qualité de faisceau, des longueurs d'onde et même de l'échantillon de ppKTP étudié. En fonction des résultats expérimentaux relevés ça et là, on peut donner comme ordre de grandeur le Gigawatt par cm^2 . Un autre dommage susceptible d'affecter le ppKTP est le dommage photoréfractif. Cependant cet effet est bien moins important ici que pour le niobate de lithium, aussi nous reviendrons sur ce point au paragraphe suivant. Un autre effet plus spécifique au KTP est le dommage photochromique, ou « grey-tracking ». Ce phénomène apparaît pour les fortes intensités et se caractérise par l'apparition de fines stries noires le long du parcours du faisceau, ce qui induit une absorption plus que problématique. Cet effet est attribué à la formation de centres colorés faisant

intervenir les ions Ti^{4+} et Fe^{3+} [Boulanger 94,99]. On peut faire disparaître ou du moins limiter ce dommage en chauffant le cristal. Enfin il faut noter que l'apparition de dommages photochromiques dépend fortement de la conductivité et de la concentration en impuretés dans le cristal, et donc varie d'un échantillon à l'autre.

C. Les pp-autre chose

A côté des deux « grands » de la confrérie des cristaux non-linéaires périodiquement polarisés que sont le ppLN et le ppKTP, d'autres matériaux ont également été étudiés. Je pense en particulier au tantalate de lithium (LiTaO_3 , ou LT) qui présente grosso modo les mêmes caractéristiques que le ppLN avec cependant l'immense intérêt d'être à ce jour le seul cristal périodiquement polarisable ayant une plage de transparence s'étendant loin dans l'ultraviolet (jusqu'à 280 nm). Une recherche importante est actuellement menée afin de fabriquer de façon répétable des échantillons de ppLT de bonne qualité, ce qui n'est pas encore le cas malheureusement.

De nombreux isomorphes du KTP ont été étudiés : on peut citer en particulier l'arsenate de potassium et titanyl (KTA), l'arsenate de calcium et de titanyl (CTA) ou encore l'arsenate de rubidium et de titanyl (RTA). Ils ont tous des propriétés comparables à celles du ppKTP. Le dernier cristal ayant été périodiquement polarisé est le niobate de potassium (KN) [Meyn 99]. Son coefficient non-linéaire est proche du ppKTP, et il semble comme ce dernier peu sensible aux effets photoréfractifs. Enfin il existe des pp-semi-conducteurs (AsGa [Levi 01], ZnSe), dont la polarisation périodique est assurée par collage de plaques successivement retournées ou par croissance sélective, mais ils ne sont destinés qu'à l'infrarouge moyen et ne nous intéressent donc pas ici.

Rappelons pour finir que les cristaux de LBO et BBO dont nous avons parlé plus haut ne sont pas ferroélectriques, et ne peuvent donc pas être périodiquement polarisés.

Mais foin de considérations théoriques : nous allons maintenant mettre en œuvre les concepts développés précédemment (génération de second harmonique dans des cristaux à accord de phase par biréfringence et à quasi-accord de phase, amplification et génération paramétrique optique) pour tenter de réaliser nos objectifs.

II. Résultats expérimentaux

II.1. Génération d'harmoniques

Dans tous les paragraphes qui vont suivre, la première étape nous mènera systématiquement du rayonnement infrarouge au vert : des impulsions courtes à 532 nm et à haute cadence ont bien sûr un intérêt en tant que telles, mais elles constituent surtout la brique de base à partir de laquelle on pourra atteindre les autres couleurs.

II.1.1. À partir du laser JDS Uniphase amplifié

Notre collaboration avec JDS Uniphase vise à réaliser une source ultraviolette de puissance moyenne importante (autour de 600 mW) pour des applications de traitement des matériaux. Rappelons brièvement les caractéristiques de la source amplifiée décrite au chapitre III : la durée des impulsions est de l'ordre de 700 ps, la cadence est de 27 kHz et la puissance moyenne obtenue frôle les 6W. La puissance crête équivalente est donc supérieure à 300 kW : cette valeur très élevée permet d'espérer des rendements de conversion intéressants dans des matériaux classiques tels le LBO ou le BBO (voir pour s'en convaincre l'état de l'art présenté au chapitre I).

A. Génération du second harmonique

La mise en œuvre de la génération de second harmonique est assez directe une fois le cristal choisi (le LBO pour nous, voir paragraphe I.5 dans ce chapitre): il s'agit d'un processus en simple passage. Par conséquent, un ajustement précis des angles d'incidence du faisceau dans le cristal (pour se placer à l'accord de phase $\Delta k = 0$) suffit pour obtenir un rayonnement efficacement doublé. L'optimisation consiste essentiellement en le choix de la taille du faisceau fondamental dans le cristal (c'est-à-dire en pratique de la lentille de focalisation choisie). On a déjà vu que Boyd et Kleinman montrent par des considérations purement théoriques [Boyd 68] que l'efficacité de conversion optimale est obtenue pour une longueur de cristal $L \approx 5,68 Z_r$ où Z_r est la distance de Rayleigh du faisceau laser utilisé. En pratique, il semble en fait que la configuration dite « confocale » [Yariv 85], c'est-à-dire $L \approx 2Z_r$, donne de meilleurs résultats.

Nous avons donc choisi une lentille de distance focale $f = 170$ mm nous permettant de focaliser notre faisceau sur une tache de rayon $w_0 = 40$ μm , correspondant à $Z_r = 4,7$ mm et donc $2Z_r = 9,4$ mm proche de la longueur physique $L = 10$ mm de notre cristal de LBO.

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure IV.8 ci-dessous :

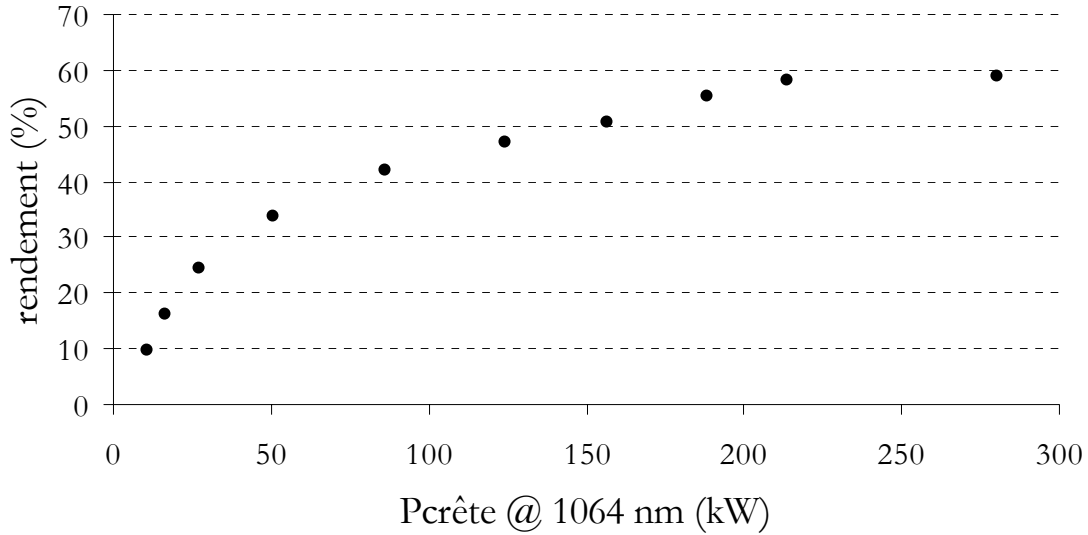


Figure IV.8 : rendement de conversion pour la génération de second harmonique.

On remarque une allure de « saturation » sur cette courbe : en effet, à basse puissance incidente on peut considérer que la conversion est faible (disons pour moins de 30 %) et la formule IV.8 s'applique : le rendement est proportionnel à la puissance incidente. Lorsqu'on ne peut plus faire cette approximation, il faut traiter le cas général comme l'ont fait les premiers Armstrong et ses amis [Armstrong 62] : le résultat est plus complexe mathématiquement et fait apparaître cette saturation due à la déplétion de la pompe. Mais ce qui nous intéresse ici est évidemment le rendement obtenu à pleine puissance : il est de l'ordre de 60%, ce qui correspond en termes de puissance moyenne à 3,42 W de rayonnement vert pour 5,7 W d'infrarouge. Cet excellent rendement de conversion est un indicateur de la qualité spatiale de notre faisceau infrarouge : seul un faisceau parfaitement monomode transverse peut permettre d'atteindre de telles efficacités.

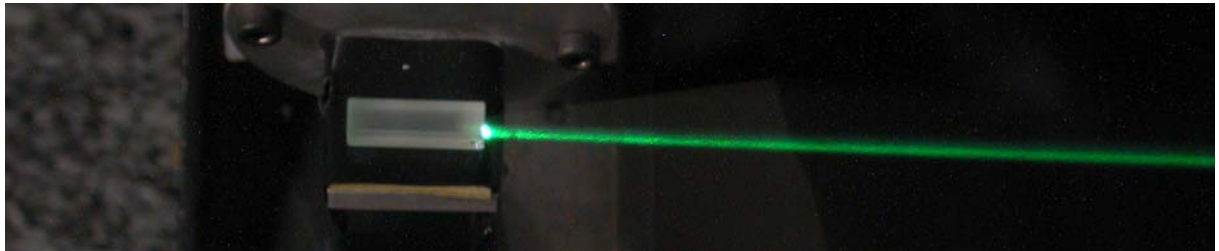


Photo IV.2 : doublement de fréquence dans un cristal de LBO.

La qualité spatiale du faisceau vert ainsi produit est très bonne ($M^2 \approx 1,2$), et la durée des impulsions à 532 nm est mesurée à environ 480 ps.

Nous allons maintenant pouvoir utiliser cette verte puissance pour générer de nouvelles longueurs d'onde, plus basses (355 nm puis 266 nm), et ainsi entrer dans le domaine de l'ultraviolet.

B. Génération du troisième et du quatrième harmonique

Pour générer le troisième harmonique du rayonnement fondamental à 1064 nm, soit 355 nm, il faut mélanger une onde à 1064 nm et une onde à 532 nm pour assurer la conservation de l'énergie. Là encore on a le choix du scénario d'accord de phase : étant donné que les polarisations en sortie du cristal doubleur sont orthogonales (l'onde fondamentale est ordinaire et l'onde doublée est extraordinaire), un cristal tripleur de type II – donc avec les notations introduites précédemment $O_{\omega} + E_{2\omega} \rightarrow O_{3\omega}$ – permettrait d'éviter d'avoir à tourner la polarisation d'une de ces deux ondes et donc de simplifier le montage. Il faut cependant vérifier que cet accord de phase est le plus efficace : en utilisant le même raisonnement qu'au paragraphe I.5 on montre que pour le triplement de fréquence la configuration la plus efficace est d'utiliser un cristal de LBO avec un accord de phase de type II :

La chance nous sourit donc, puisque la configuration la plus efficace est aussi la plus simple à mettre en œuvre.

Le schéma est donc le suivant (figure IV.9) :

Pour obtenir un rendement de conversion optimal de l'infrarouge vers l'ultraviolet, on constate expérimentalement qu'il est nécessaire d'ajuster la proportion de rayonnement à 532 nm et de rayonnement à 1064 nm incidents sur le cristal tripleur : en effet le triplement n'est pas optimal pour un niveau maximal de vert, et il faut « dégrader » le doublement pour optimiser le triplement. On obtient environ 700 mW de rayonnement ultraviolet pour 2 W de vert et 2,5 W d'infrarouge non converti en vert, soit un rendement effectif de ω vers 3ω correct de 15,5%

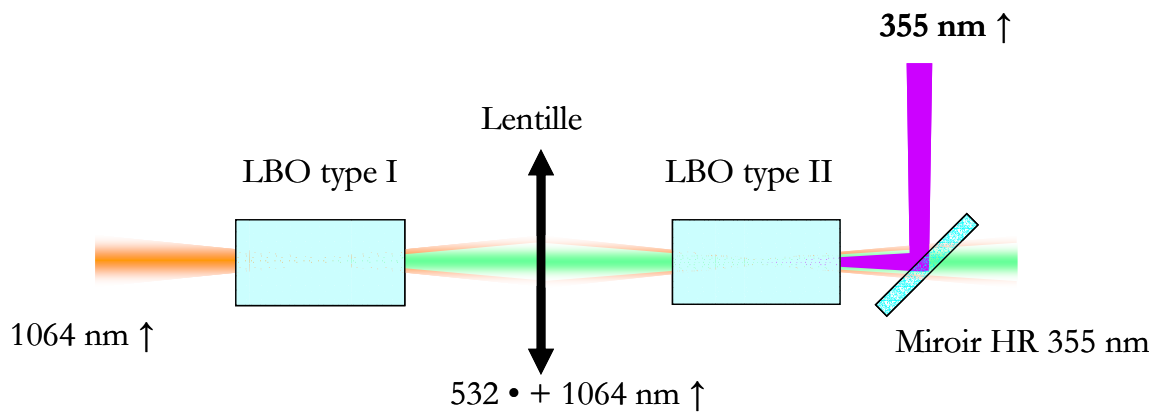


Figure IV.9 : doublement et triplement de fréquence. Les deux LBO mesurent 10 mm de long. Les polarisations sont représentées par les symboles « • » (perpendiculaire au plan de la figure) et « ↑ » (parallèle au plan de la figure).

La durée des impulsions n'a pu être mesurée, mais en se fiant à la théorie et à l'observation de la réduction de durée observée entre l'infrarouge et le vert, on peut annoncer sans trop de risques que les impulsions ultraviolettes obtenues sont plus courtes d'un facteur $\approx \sqrt{3}$ par rapport aux impulsions infrarouges, ce qui nous amène autour de 380 ps. La qualité de faisceau semble bonne, même si nous n'avons pas mesuré le M^2 correspondant (voir figure IV.10 ci-dessous).

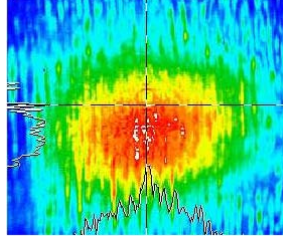


Figure IV.10 : profil spatial du faisceau UV à 355 nm. La mauvaise qualité de l'image est due à la difficulté d'imager proprement l'ultraviolet (le rayonnement est absorbé par toute optique en verre « classique »).

L'obtention de rayonnement à 266 nm est tout aussi directe : cette fois il faut maximiser la puissance de vert puisqu'elle seule intervient dans le processus de doublement. On utilise ici un cristal de BBO taillé pour un accord de phase de type I. L'angle de double réfraction étant important dans le BBO, le cristal doit être plus court (6 mm). L'acceptance angulaire dont on a fait abstraction jusqu'à maintenant est également réduite : il faut trouver un compromis au niveau de la focalisation entre une forte densité de puissance et une divergence inférieure à l'acceptance angulaire. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure suivante (IV.11). On observe bien la croissance parabolique du second harmonique avec la puissance de pompe, sauf pour le dernier point où la puissance incidente importante entraîne une dégradation du rendement.

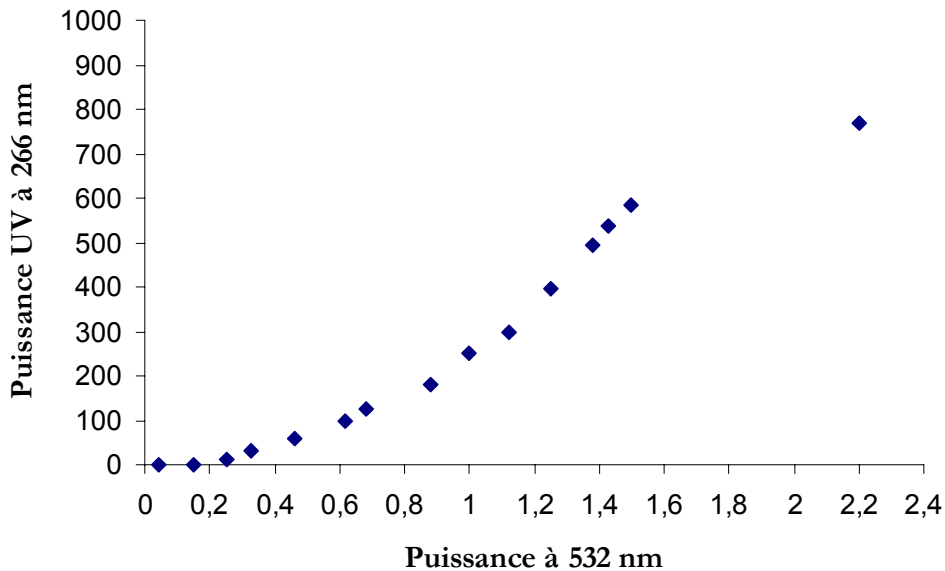


Figure IV.11 : puissance obtenue à 266 nm en fonction de la puissance à 532 nm.

Le rendement maximal (pour 1,6 W de vert) de 2ω vers 4ω est de 37,5%. La puissance de vert disponible est en fait supérieure à ces 1,6 W : on peut obtenir 800 mW d'UV avec 2,2W de vert (rendement 36%). Au-delà, le rayonnement UV n'est pas stable plus de quelques minutes (à

titre d'exemple, on peut obtenir 1,05 W d'UV pour 2,9W de vert, mais uniquement pendant quelques secondes) car le cristal de BBO se dégrade rapidement sous de telles puissances. En ne considérant que la configuration stable, le rendement total de l'infrarouge vers l'UV (ω vers 4ω) est de 20% environ. Là encore, nous n'avons pas mesuré la durée des impulsions : on peut l'estimer à environ 330 ps.

Pour conclure sur cette configuration « industrielle » mise en œuvre en collaboration avec Nanolase, nous avons répondu au cahier des charges présenté : le système laser fournit plus de 600 mW d'UV à 355 nm avec des impulsions de quelques centaines de picosecondes de durée et une cadence de 27 kHz. Le compactage et la « mise en boîte » du système sont en cours à Grenoble : la balle est désormais dans le camp de Nanolase...

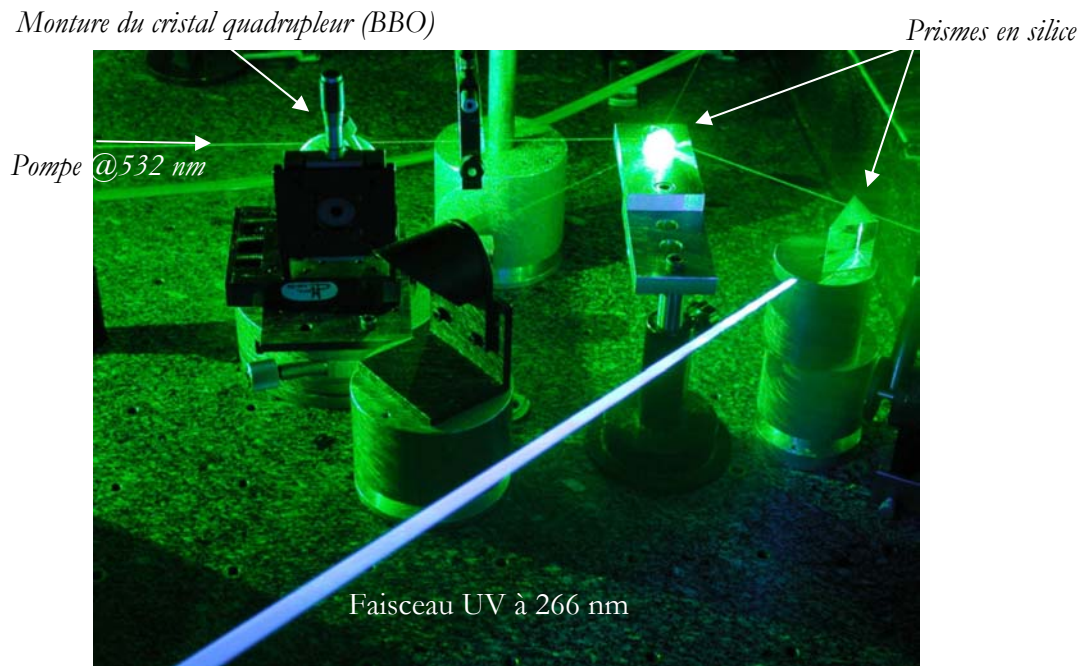


Photo IV.2 : Faisceau ultraviolet à 266 nm. Le faisceau apparaît bleu car on observe en fait sa fluorescence sur un papier blanc.

II.1.2. À partir du microlaser à 1 MHz amplifié

Nous revenons maintenant à l'un de nos objectifs initiaux, qui consiste à générer un rayonnement UV à une cadence de 1 MHz. Nous allons utiliser notre microlaser amplifié pour générer les harmonique 2 et 3 de la même façon que ci-dessus. Enfin, de la même façon... À la notable exception près que la puissance crête est maintenant 30 fois plus faible !

A. Génération du second harmonique

Avec une puissance moyenne incidente de 4 W correspondant à une puissance crête de 10 kW, il est illusoire d'espérer un doublage très efficace avec notre cristal de LBO. Il est par contre très tentant d'utiliser un matériau connu pour son bon rendement de doublage à basse puissance comme le KTP. Et il est encore plus tentant d'utiliser sa version « de luxe », à savoir le KTP périodiquement polarisé ou ppKTP : nous avons donc mis en place un étage de doublage de fréquence basé sur un cristal de ppKTP.

Les rendements de conversion obtenus avec ces cristaux (en particulier les deux plus utilisés, le ppLN et le ppKTP) flirtent régulièrement avec les 50% pour des puissances crêtes modestes de quelques kW [Champert 02][Spiekermann 01].

Nous avons choisi d'utiliser pour le doublage de fréquence un cristal de ppKTP de 10 mm de long. Le pas Λ permettant d'obtenir le quasi-accord de phase est déterminé à partir des indices de réfraction du KTP⁸⁷ : à 25 degrés on trouve un pas de 8,99 μm . Le cristal de ppKTP que nous utilisons⁸⁸ mesure 10 mm de long et on le place dans un four (société EKSMA, modèle KK1) permettant de contrôler sa température. On peut d'ailleurs calculer l'acceptance en température d'un ppKTP doubleur spécifié à 25°C, en prenant en compte les variations d'indices avec la température (figure IV.12) : on s'aperçoit alors que ce paramètre n'est pas réellement

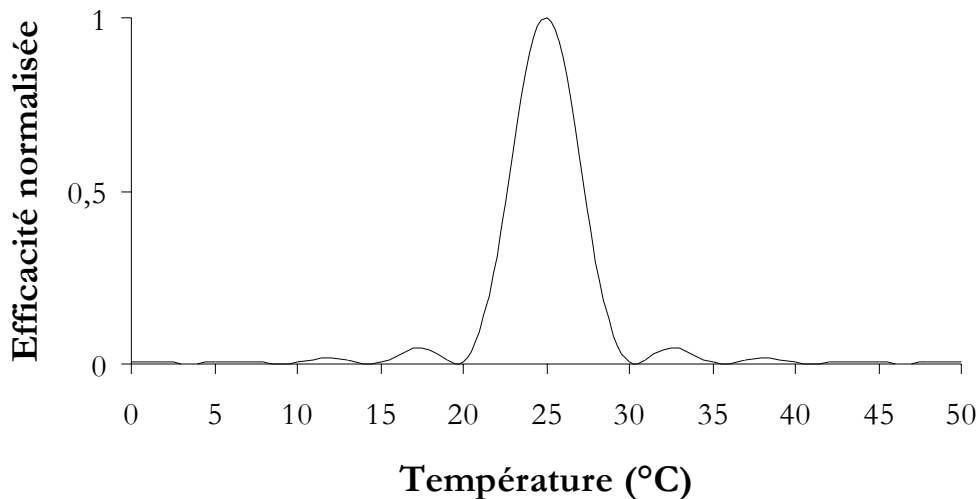


Figure IV.12 : acceptation en température d'un cristal de ppKTP de 10 mm de long.

critique puisque l'acceptance en température est de l'ordre de 5 degrés.

⁸⁷ On peut par exemple trouver les relations de Sellmeier dans [Fradkin 99] et la dépendance en température dans [Wiechman 93]

⁸⁸ Je profite de cette note de bas de page pour remercier Alexios Beveratos du groupe d'Optique Quantique qui a bien voulu me prêter ce cristal en attendant que nous en achetions un.

La puissance infrarouge en sortie de l'amplificateur est de 4W. Nous focalisons ce faisceau avec une lentille non traitée antireflet sur une tache de 50 μm dans le cristal non-linéaire. La puissance verte subséquemment obtenue est de 1,5 W, ce qui correspond à un rendement de conversion acceptable de 40%. La puissance crête correspondante est de 3,75 kW.

B. Génération du troisième harmonique

Le cristal tripleur de LBO dont nous disposons est de type II, ce qui implique que les ondes à 532 nm et à 1064 nm se doivent d'être polarisées orthogonalement ($O_\omega + E_{2\omega} \rightarrow O_{3\omega}$). Or le cristal de ppKTP possède une disposition des polarisations particulière, puisque toutes les ondes sont polarisées de façon extraordinaire ($E_\omega + E_\omega \rightarrow E_{2\omega}$). En conséquence de quoi, il est nécessaire de tourner la polarisation de l'onde fondamentale après passage dans le ppKTP.

Il existe deux écoles pour cela : (1) on peut placer une lame demi-onde à 1064 nm sur le trajet du faisceau, en considérant en première approximation qu'elle se comportera comme une lame onde (donc sans effet) pour le rayonnement à 532 nm (ou mieux en la spécifiant auprès du fabricant de telle façon qu'elle se comporte ainsi) et (2) on peut séparer les deux ondes via une

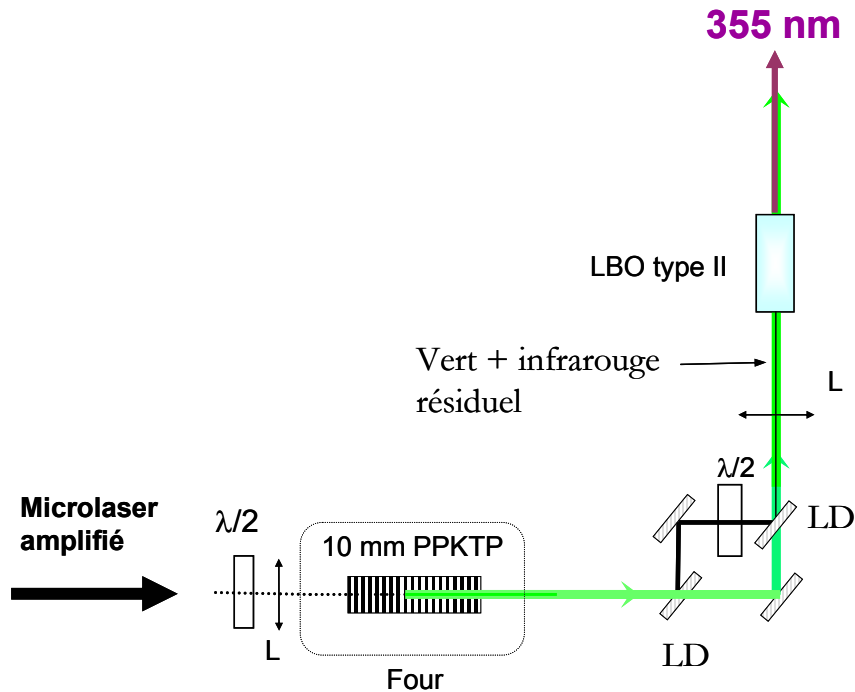


Figure IV.13 : schéma du triplement de fréquence. LD = Lame dichroïque HR 1064 nm HT 532 nm

lame dichroïque, tourner l'une des deux polarisations puis recombinaison les deux faisceaux dans le cristal tripleur. Nous avons choisi d'utiliser cette seconde méthode (figure IV.13).

Nous ne sommes parvenus à générer que 50 mW de rayonnement UV à 355 nm, ce qui correspond à un rendement ω vers 3ω de seulement 1,35%. Le fait de séparer spatialement les deux faisceaux puis de les recombinaison provoque une superposition sans doute non-optimale dans notre cas des deux faisceaux à ω et à 2ω . Il faut cependant noter que dans l'optique de notre

application ce fait est sans importance, puisque nos amis biologistes ne veulent que quelques milliwatts d'ultraviolet : plus de puissance abîmerait de toute façon les échantillons...

Là encore nous n'avons pas mesuré les durées d'impulsions, mais on peut les estimer inférieures à 300 ps. Notre source fonctionne à 1 MHz avec des impulsions de quelques centaines de picosecondes, dans l'ultraviolet, avec une puissance largement suffisante pour les applications visées. Elle réunit donc toutes les caractéristiques souhaitées au départ... Toutes ? Pas tout à fait puisqu'il reste à la rendre accordable... Ce sera donc l'objet du paragraphe suivant de ce chapitre.

II.2. Accordabilité en longueur d'onde

II.2.1. Génération et amplification paramétrique optique

A. Principe

Nous cherchons à obtenir une large accordabilité permettant au système final de pouvoir balayer une plage de fréquences suffisamment importante pour concerner plusieurs « molécules cibles ». Les systèmes classiques basés sur des lasers accordables du type Titane :Saphir ont été rejetés car ils sont trop complexes. Une solution intéressante permettant d'accéder à une très vaste accordabilité avec des rendements importants est l'oscillateur paramétrique optique. Malheureusement nos durées d'impulsion et notre cadence imposent de réaliser un pompage synchrone de l'OPO, ce qui complexifie grandement la source. La solution retenue est de réaliser un générateur paramétrique optique (GPO), c'est-à-dire un « OPO sans miroirs ».

B. Choix de la structure et du matériau

Nous avons vu au paragraphe I.4 qu'un GPO permet de créer deux longueurs d'ondes signal et complémentaire à partir de la longueur d'onde de pompe suivant la relation $\omega_p = \omega_s + \omega_c$, ou encore $\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_c}$. Notre objectif est d'atteindre une accordabilité dans l'ultraviolet à des

longueurs d'ondes différentes des harmoniques du Nd :YAG facilement accessibles par ailleurs : nous avons choisi comme longueur d'onde cible la valeur 330 nm en raison de son intérêt pour la biologie (de nombreux fluorophores sont sensibles à cette longueur d'onde). Les longueurs d'ondes accessibles par génération paramétrique optique sont par définition supérieures à la longueur d'onde de pompe (532 nm dans notre cas) : on cherchera donc à obtenir une accordabilité autour de 660 nm, afin d'atteindre par la suite et par doublement de fréquence notre but. D'après la conservation de l'énergie, la longueur d'onde complémentaire générée sera de 2743,1 nm, ce dont nous nous moquons totalement puisque nous restons dans la bande de transparence du niobate de lithium.

La GPO étant un processus à simple passage démarrant sur du bruit, elle ne possède qu'un rendement modeste. De plus notre cadence de 1 MHz impose une puissance crête relativement faible. Nous avons donc choisi pour optimiser les performances de faire appel à un matériau non-linéaire périodiquement polarisé (et tant qu'à faire au plus efficace d'entre eux, le niobate de lithium), afin qu'il mette à notre disposition son énorme d_{eff} . L'accord de phase pouvant être choisi simplement via la période du réseau, on peut atteindre facilement une longueur d'onde signal de 660 nm : il suffit d'écrire que $\Delta k = k_p - k_s - k_c - 2\pi/\Lambda = 0$ avec une pompe à 532 nm, un signal à 660 nm et un complémentaire à 2743 nm, et d'utiliser les relations de dispersions fournies dans la littérature (les valeurs universellement utilisées sont celles données par [Jundt 97]). On trouve alors $\Lambda = \frac{\lambda_p - \lambda_c - \lambda_s}{n_p - n_s - n_c} = 9,5 \mu\text{m}$ pour une température égale à 90

degrés Celsius. Comme nous l'avons vu, le ppLN est très sensible aux dommages photoréfractifs : un chauffage important (autour de 90-100 degrés) permet d'annuler cet effet malin.

Quid de l'accordabilité ?

La réponse tient en deux points : tout d'abord, le fait de placer le cristal dans un four pour éviter les désagréments photoréfractifs permet également de faire varier sa température, donc à la fois ses indices et sa longueur (par expansion thermique). Il est donc possible de modifier ainsi la relation d'accord de phase afin d'obtenir $\Delta k=0$ pour un autre couple de longueur d'onde que (660 – 2743 nm) : on récupère ainsi en sortie du cristal un rayonnement dont la longueur d'onde varie en fonction de la température appliquée. Il importe cependant de ne point faire montre ici d'un enthousiasme par trop excessif : cette accordabilité est réduite à quelques nanomètres (nous donnerons des données quantitatives plus loin)... C'est là qu'intervient le deuxième point : on utilise la souplesse de fabrication du ppLN pour disposer côte à côte 5 réseaux de pas différents. Ayant calculé l'accordabilité susceptible d'être atteinte via la température pour chaque pas, il est facile de déterminer les pas qu'il est nécessaire de choisir pour finalement obtenir une accordabilité continue sur plusieurs dizaines de nanomètres (voir figure IV.14). Les pas choisis s'étendent de 9 à 10 μm avec un incrément de 0,25 μm .

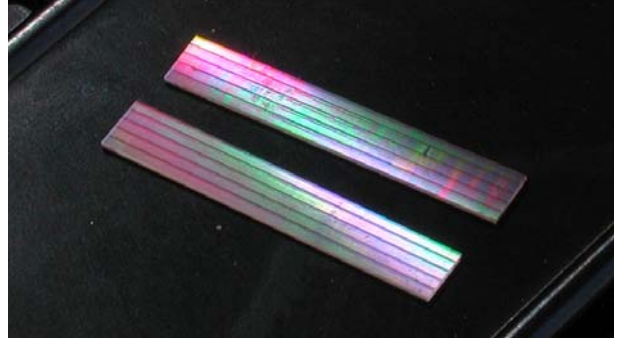


Photo IV.3 : les cristaux de ppLN utilisés. On distingue nettement les 5 bandes de pas différents et les irisations dues à la structure de type « réseau »

De façon pragmatique, l'accordabilité s'obtient en translatant le cristal pour que le faisceau pompe illumine successivement les cinq réseaux, et en faisant varier la température entre 35 et 150 °C au sein de chaque réseau. On peut ainsi balayer un domaine spectral d'environ 8 nm par réseau. L'accordabilité totale s'étend de 640 nm à 685 nm, soit sur 45 nm. Pour chaque réseau, la longueur d'onde correspondant à l'accord de phase à 90 degrés est 679, 669, 660, 652, 644 nm respectivement pour les pas 9, 9,25, 9,5, 9,75, 10 μm . La longueur du cristal est de 30 mm, son épaisseur de 0,5 mm et la largeur de chaque réseau de 1 mm (figure IV.15). Les faces de l'échantillon ne sont pas traitées anti-reflets.

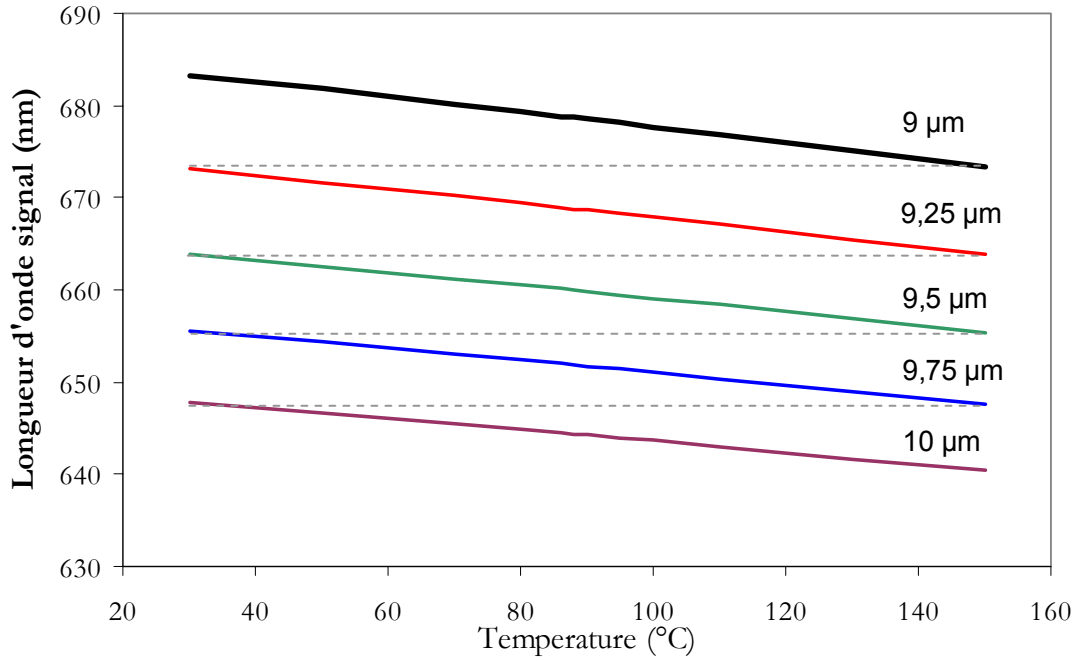


Figure IV.14 : accordabilité théorique du ppLN avec la température et 5 pas différents.

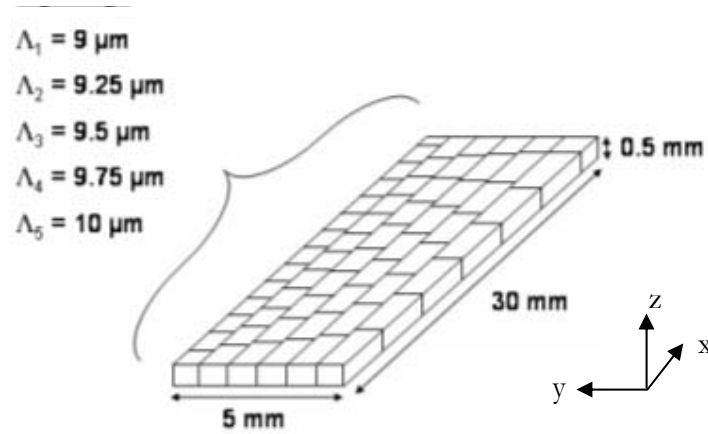


Figure IV.15 : le cristal de ppLN utilisé lors de nos expériences. L'axe optique est l'axe z .

C. Caractérisation du cristal de ppLN

i) Acceptances

Avant de se lancer dans les expériences, il est bon d'avoir en tête un certain nombre d'ordres de grandeur, en particulier concernant les acceptances en angle, en longueur d'onde et en température. Ces valeurs vont permettre de déterminer quels sont les paramètres critiques et par suite quel est le degré de précision nécessaire au niveau des réglages expérimentaux. On utilise

pour les calculer les formules IV.12 et IV.14 dans lesquelles on injecte un désaccord de phase Δk variable en fonction des paramètres considérés.

Commençons par la température : son influence sur les indices et sur la période Λ conduit à redéfinir Δk : $\Delta k(T) = 2\pi \left(\frac{n_p(T)}{\lambda_p} - \frac{n_s(T)}{\lambda_s} - \frac{n_c(T)}{\lambda_c} - \frac{1}{\Lambda(T)} \right)$, ce qui mène à la courbe (a) de la figure IV.16 : en définissant l'acceptance en température ΔT comme la valeur à partir de laquelle l'efficacité est divisée par deux, on trouve $\Delta T = 3$ degrés environ. En utilisant la même définition pour l'acceptance spectrale (on fait varier λ_s à température fixée) on trouve 0,2 nm (courbe (b) de la figure IV.16).

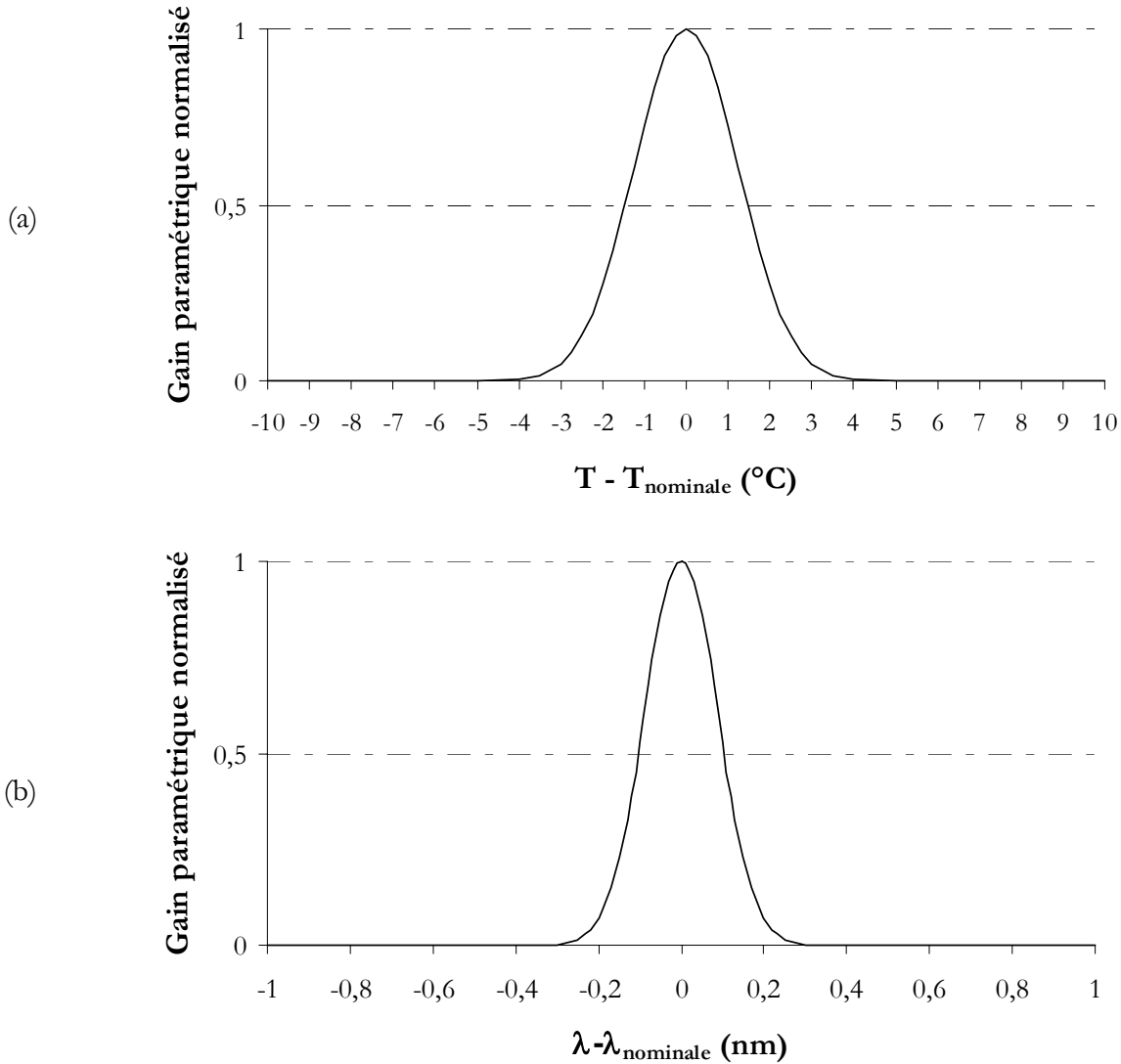


Figure IV.16 : acceptances théoriques en température (température nominale = 90 °C) (a) et en longueur d'onde (λ nominale = 660 nm) (b) du cristal de ppLN

Le calcul de l'acceptance angulaire est un peu plus délicat. On considère que les trois ondes restent colinéaires et que l'on tourne le cristal autour des axes z ou y. Il faut prendre en compte non seulement la variation du pas vu par l'onde mais également la variation d'indice de

réfraction. Si on étudie l'acceptance spectrale autour de l'axe z, l'indice de réfraction reste constant et égal à n_e (e pour extraordinaire) pour une longueur d'onde donnée. Le quasi-accord de phase s'écrit alors :

$$\Delta k'(\theta_z) = 2\pi \cdot \left(-\frac{n_{ep}}{\lambda_p} + \frac{n_{es}}{\lambda_s} + \frac{n_{ec}}{\lambda_c} + \frac{1}{\Lambda \cdot \cos(\theta_z)} \right) \quad (Eq.IV.28)$$

Pour évaluer l'acceptance angulaire du cristal autour de l'axe y, il faut inclure en plus la variation d'indice de réfraction extraordinaire avec θ_y , exprimée ci-dessous :

$$\frac{1}{n_e^2(\theta_y)} = \frac{\cos^2(\theta_y)}{n_e^2} + \frac{\sin^2(\theta_y)}{n_o^2} \quad (Eq.IV.29)$$

Le quasi-accord de phase en fonction de θ_y s'écrit alors :

$$\Delta k'(\theta_y) = 2\pi \cdot \left(-\frac{n_{ep}(\theta_y)}{\lambda_p} + \frac{n_{es}(\theta_y)}{\lambda_s} + \frac{n_{ec}(\theta_y)}{\lambda_c} + \frac{1}{\Lambda \cdot \cos(\theta_y)} \right) \quad (Eq.IV.30)$$

On peut ainsi obtenir les courbes suivantes et déterminer que l'acceptance angulaire théorique est de $1,9^\circ$ autour de l'axe z et de $1,7^\circ$ autour de l'axe y. On est rassuré par l'allure de ces courbes : le gain reste relativement plat sur une plage d'environ 2 degrés, permettant ainsi d'utiliser des rotation « classiques » pour optimiser l'alignement.

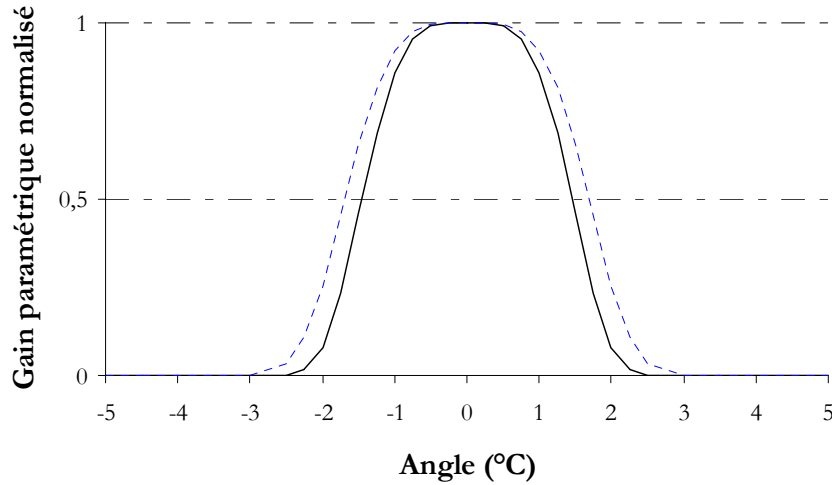


Figure IV.17 : acceptances angulaires théoriques autour des axes z (trait plein) et y (pointillé).

ii) Qualité optique

Il arrive que des défauts apparaissent lors de la fabrication des réseaux. Ces défauts peuvent être de plusieurs types (on pourra se reporter pour une étude très complète des différents défauts possibles et de leur influence sur l'efficacité du quasi-accord de phase à [Fejer 92]):

- Domaines manquants (c'est-à-dire n'ayant pas été périodiquement polarisés). Ce défaut est courant mais peu gênant : il conduit juste à une réduction de la longueur d'interaction.
- Erreur aléatoire sur la période : ce défaut nuit peu au rendement global mais peut entraîner un élargissement spectral du rayonnement généré.
- Erreur régulière sur la période : le rayonnement de sortie est alors décalé en longueur d'onde par rapport à ce qui est initialement prévu. Ce défaut peut être corrigé en ajustant la température en conséquence.
- Rapport cyclique éloigné de la valeur idéale de 50% (pour un quasi-accord de phase d'ordre 1). On a vu que le rapport cyclique intervient dans la valeur du coefficient non-linéaire d_{eff} sous la forme de l'argument d'un sinus⁸⁹. Un rapport cyclique différent de 50% est courant car il est délicat d'inverser les domaines avec des « fronts abrupts » (voir figure IV.18). Pour des valeurs typiques d'erreurs (autour de 10%), on peut montrer [Myers 97] que le gain n'est plus que de 86% de sa valeur nominale.

Afin d'observer « à l'œil » si des défauts majeurs n'entachent pas notre cristal, nous l'avons soumis à la sagacité d'un microscope. Deux photos sont présentées sur la figure suivante à titre d'exemple.

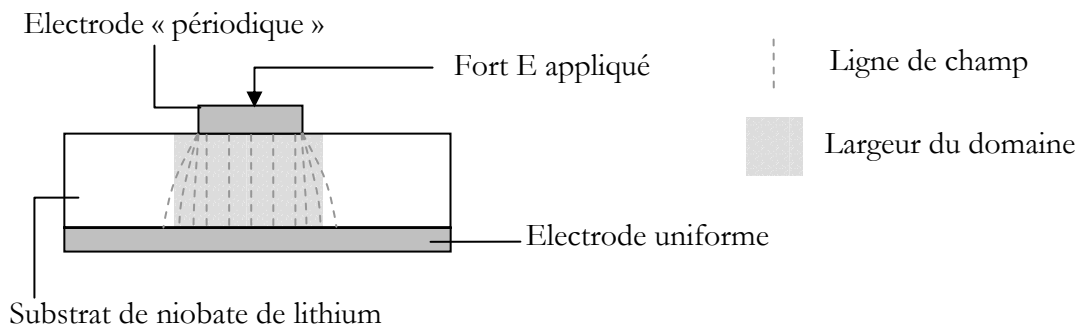


Figure IV.18 : erreur sur le rapport cyclique : la région inversée est plus large que la zone définie par l'électrode en raison des effets de bord.

⁸⁹On peut en fait montrer [Fejer 92] que l'erreur se répartit en une déviation moyenne par rapport à la valeur centrale de 50% et une variation aléatoire autour de la moyenne.

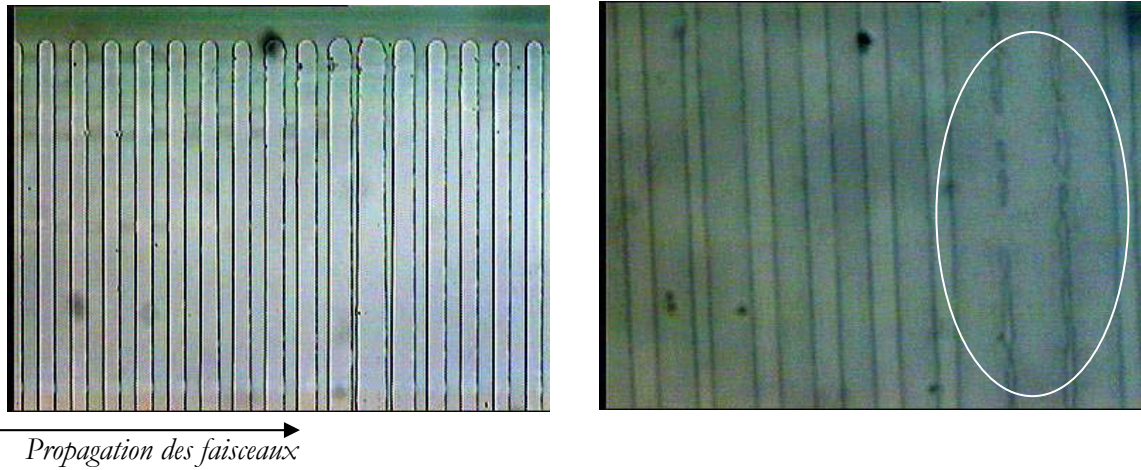


Figure IV.19 : détails de notre cristal de ppLN. On remarque sur la photo de gauche de grosses erreurs de période et de rapport cyclique. Sur la photo de droite, on a grossi un endroit où trois domaines sont quasiment confondus.

On ne peut tirer que des conclusions qualitatives de ces photos, à savoir que notre cristal est loin d'être parfait (attention, pas de désinformation cependant: la majorité du cristal semble parfaitement inversé, de façon régulière. Mais on ne parle jamais des trains qui arrivent à l'heure...).

II.2.2. Etude préliminaire

Avant de construire un GPO pour nos lasers à haute cadence, nous avons choisi de tester le principe⁹⁰ sur une autre source laser de puissance crête équivalente et disponible au laboratoire. Cette dernière est un DualChip[®], modèle dont j'ai déjà parlé plus avant : c'est un microlaser amplifié (et ici doublé en fréquence) qui a été développé au laboratoire⁹¹ et est maintenant commercialisé par JDS Uniphase.

Le récent développement de toute une gamme de microlasers Nd :YAG ou Nd : YVO₄ pompés par diode, déclenchés passivement et éventuellement amplifiés a permis de disposer de sources compactes, économiques et peu coûteuses pour produire des impulsions courtes à des cadences de quelques dizaines de kHz [Zayhowski 91,92,94,96,99]. Il n'a pas fallu longtemps aux chercheurs pour se rendre compte que les puissances crêtes fournies par de tels systèmes permettent de convertir efficacement le rayonnement du microlaser vers les harmoniques du Nd :YAG [Druon 99], et bientôt certains étendirent même le domaine spectral couvert en accolant un générateur ou un amplificateur paramétrique optique à ces microlasers. En partant de 1064 nm la gamme du proche infrarouge peut ainsi être couverte [Zayhowski 97][Aniolek 00], alors que si le microlaser est tout d'abord doublé, on peut adresser la partie rouge du spectre visible [Bäder 99][Chiang 01]. Toutes ses expériences mettent en jeu des cristaux de niobate de lithium périodiquement polarisé : en effet, seul un coefficient non-linéaire très élevé permet d'atteindre le seuil de la GPO.

⁹⁰ Je remercie ici chaleureusement Émilie Hérault, qui a effectué son stage de fin d'études (ESPEO) sur ce sujet : la plupart des courbes présentées dans cette partie sont les fruits de son excellent travail.

⁹¹ La construction de ce laser a fait l'objet de la thèse de Frédéric Druon [Druon 00].

Nous disposons donc d'un microlaser amplifié et doublé de type commercial qui nous a été prêté par JDS Uniphase et d'un cristal de ppLN. Nous allons mettre en œuvre un ensemble microlaser + GPO qui va nous permettre de « simuler » le système final afin de révéler les éventuels problèmes ou points durs.

Les caractéristiques du DualChip sont résumées ci-dessous :

Longueur d'onde (nm)	Durée des impulsions (ps)	Cadence (kHz)	Puissance moyenne (mW)	Energie par impulsion (μ J)	Puissance crête (kW)	Qualité spatiale M^2
532	≈ 900 ps	40	120	3	3,33	1,3

On peut noter que la puissance crête à 532 nm est très proche de celle fournie par notre système à 1 MHz (3,75 kW).

Nous allons maintenant voir les résultats expérimentaux obtenus en *génération paramétrique optique*. Nous avons également étudié une architecture d'*amplification paramétrique* optique, permettant en théorie d'améliorer la qualité spatiale et spectrale du faisceau de sortie.

A. Génération paramétrique optique

Le schéma expérimental est présenté sur la figure IV.20.

La mise en forme du faisceau est en fait légèrement plus compliquée que ce qui est indiqué sur ce schéma : en effet le faisceau issu du laser de pompe est astigmatique, aussi plusieurs lentilles cylindriques sont nécessaires pour s'assurer du fait que la focalisation se fait au même endroit dans le cristal pour les deux axes. Le four contenant le cristal est monté sur une platine autorisant les trois rotations (on a vu que l'acceptance angulaire est assez faible) et bien sûr une

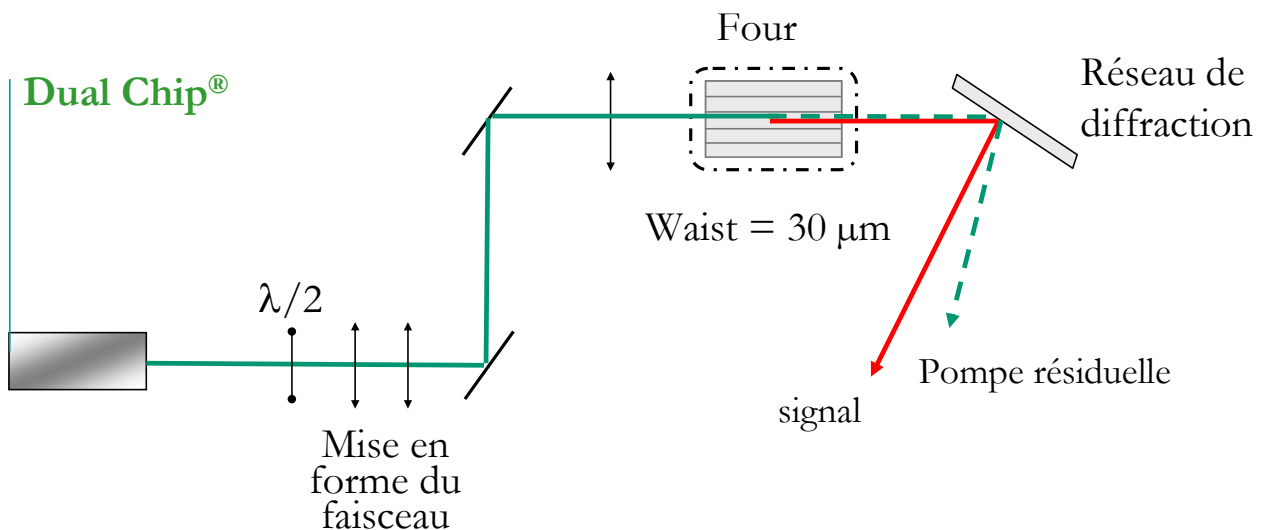


Figure IV.20 : schéma de l'expérience de génération paramétrique optique.

translation latérale pour pouvoir choisir le pas du réseau à notre guise.

La lentille de focalisation permettant d'obtenir les meilleurs résultats est de 80 mm, ce qui conduit à un waist de 30 μm dans le cristal et par suite à une longueur de Rayleigh $Z_r = 11,7 \text{ mm}$. Notre cristal mesure 30 mm, on a donc $L=2,56 Z_r$, assez proche de la configuration confocale. On représente sur la figure IV.21 la puissance moyenne générée à 660 nm en fonction de la puissance de pompe.

Le rendement est de 18,4 % et le seuil se situe à 45 mW (ce qui correspond à une énergie de 1,12 μJ). La pente à partir du seuil de détection est supérieure à 35%. Le cristal de ppLN n'est pas traité anti-reflet, et son indice est élevé (supérieur à 2) : on a donc affaire à des pertes de Fresnel non négligeables de 14% environ à chaque interface. Ces pertes ont été prises en compte pour calculer la puissance de pompe dans le cristal mais pas pour le signal (seule la puissance disponible est intéressante). Si on veut connaître l'efficacité du cristal en tant que tel, il faut considérer les puissances à l'intérieur du ppLN : la pente atteint alors 42% et le rendement 21%.

Ce résultat a été obtenu avec le réseau central (pas $\Lambda=9,5 \mu\text{m}$) à 90 °C, c'est-à-dire avec $\lambda_{\text{signal}} = 660 \text{ nm}$. Nous avons vérifié que les valeurs sont semblables pour tous les réseaux, ce qui est normal tant que la longueur d'onde de l'onde complémentaire ne sort pas du domaine de transparence du cristal (c'est la cas ici : λ_c parcourt l'intervalle 2380-3152 nm, donc reste en

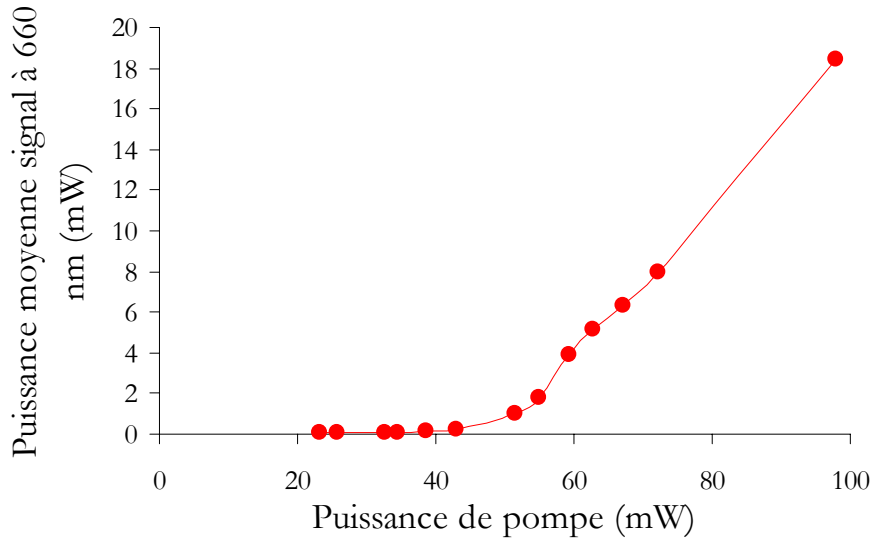


Figure IV.21 : efficacité de la génération paramétrique optique avec le laser DualChip® (40 kHz) comme pompe.

dessous des 5,5 μm).

Ces résultats peuvent être observés à l'aune de l'expression théorique donné au paragraphe I.4 et rappelée ci-dessous pour l'accord de phase :

$$K = \left[\frac{1}{2L} \ln \left(\frac{4\lambda_s E_{s,t}}{hc} \right) \right], \text{ avec } K^2 = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 I_p(0)}{\varepsilon_0 c \lambda_s \lambda_c n_s n_c n_p}$$

De la mesure de l'intensité au seuil (indice t) on peut donc déduire le coefficient d_{eff} expérimental :

On a ici $P_{p,t}=45$ mW et $w_0\approx 30$ μm , d'où on déduit $I_{p,t} = 44$ MW.cm⁻². En posant que l'énergie de signal au seuil vaut 1 mW [Zayhowski 97], on obtient alors $d_{\text{eff}} = 16,7$ pm/V, en excellent accord avec la valeur théorique de 17,3 pm/V. On peut en déduire que notre cristal est globalement bien polarisé.⁹²

Afin de caractériser de façon plus complète le signal obtenu, nous avons observé son comportement spectral, temporel et spatial. Pour ce qui est de son aspect spectral, un analyseur de spectre optique (de résolution 0,07 nm) est utilisé. Il donne la courbe IV.22 sur laquelle on peut lire une largeur à mi-hauteur de 0,1 nm environ.

D'un point de vue temporel, la durée des impulsions a été mesurée avec une photodiode rapide : on trouve $\Delta t = 500$ ps, ce qui correspond au fort raccourcissement attendu du fait du gain non-linéaire très important. Enfin d'un point de vue spatial, le faisceau n'est pas limité par la diffraction mais présente un M^2 correct de 1,4 environ dans les deux directions x et y.

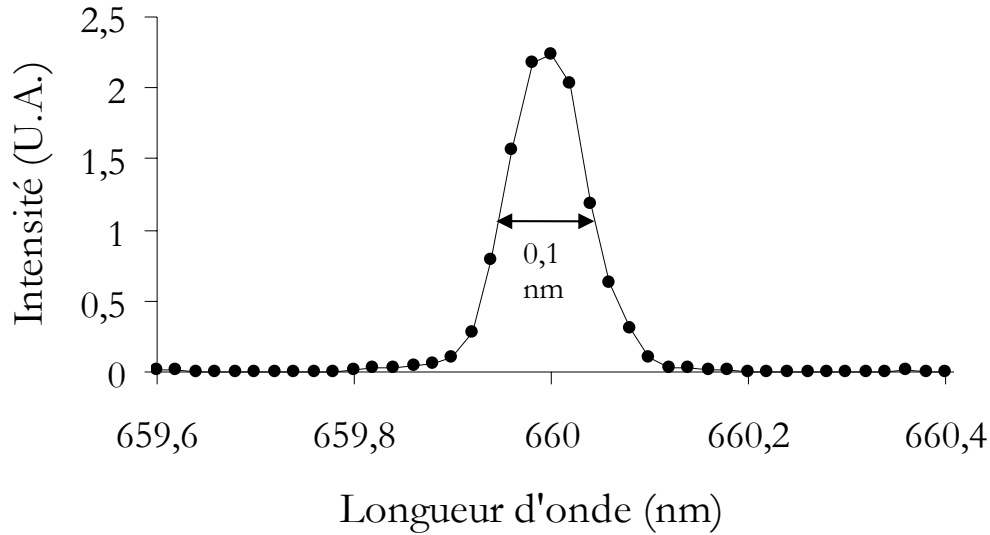


Figure IV.22 : spectre du signal obtenu par GPO (pas du réseau 9,5 μm , $T= 90^\circ\text{C}$)

⁹² Ceci est la version « politiquement correcte ». Maintenant soyons rigoureux. En réalité et en étant optimiste, on ne connaît le waist au mieux qu'à 20% (la taille de chaque pixel de notre caméra est de 10 μm !) : hors si nous prenons $w_0 = 30$ μm - 20% = 24 μm , on obtient alors $d_{\text{eff}} = 13,4$ pm/V, d'où on peut déduire que notre cristal est moyennement bien polarisé... Où comment on peut souvent faire dire à la théorie ce que l'on veut qu'elle nous dise.

Reste enfin à déterminer l'accordabilité et à vérifier qu'on peut continûment faire varier la longueur d'onde entre 640 et 685 nm comme le prévoit la théorie. Nous avons superposé sur la figure IV.23 les points expérimentaux obtenus avec les courbes théoriques. Nous avons ajouté à ces dernière des « barres d'erreurs » (en grisé) correspondant aux incertitudes sur les indices de réfraction, sur la précision de la température du four et sur les périodes du réseau.

On a bien comme prévu par la théorie une accordabilité continue de 640 nm (réseau de période 10 μm chauffé à 150 degrés) à 685 nm (réseau de pas 9 μm chauffé à 40 degrés).

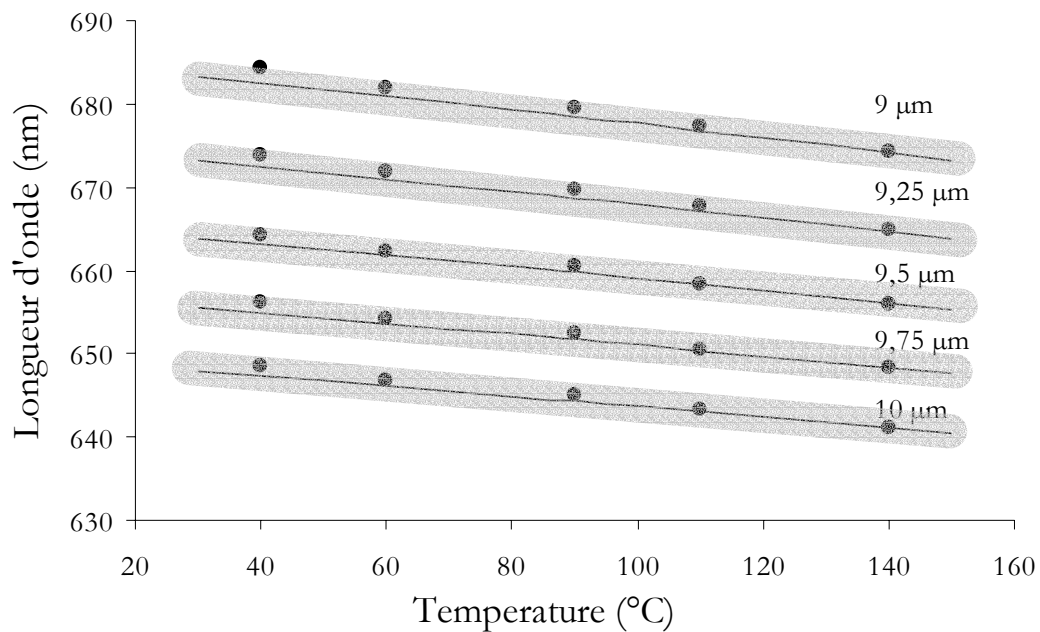


Figure IV.23 : accordabilité en longueur d'onde via la température et les cinq réseaux. Les barres d'erreur sont représentées par les zones grisées.

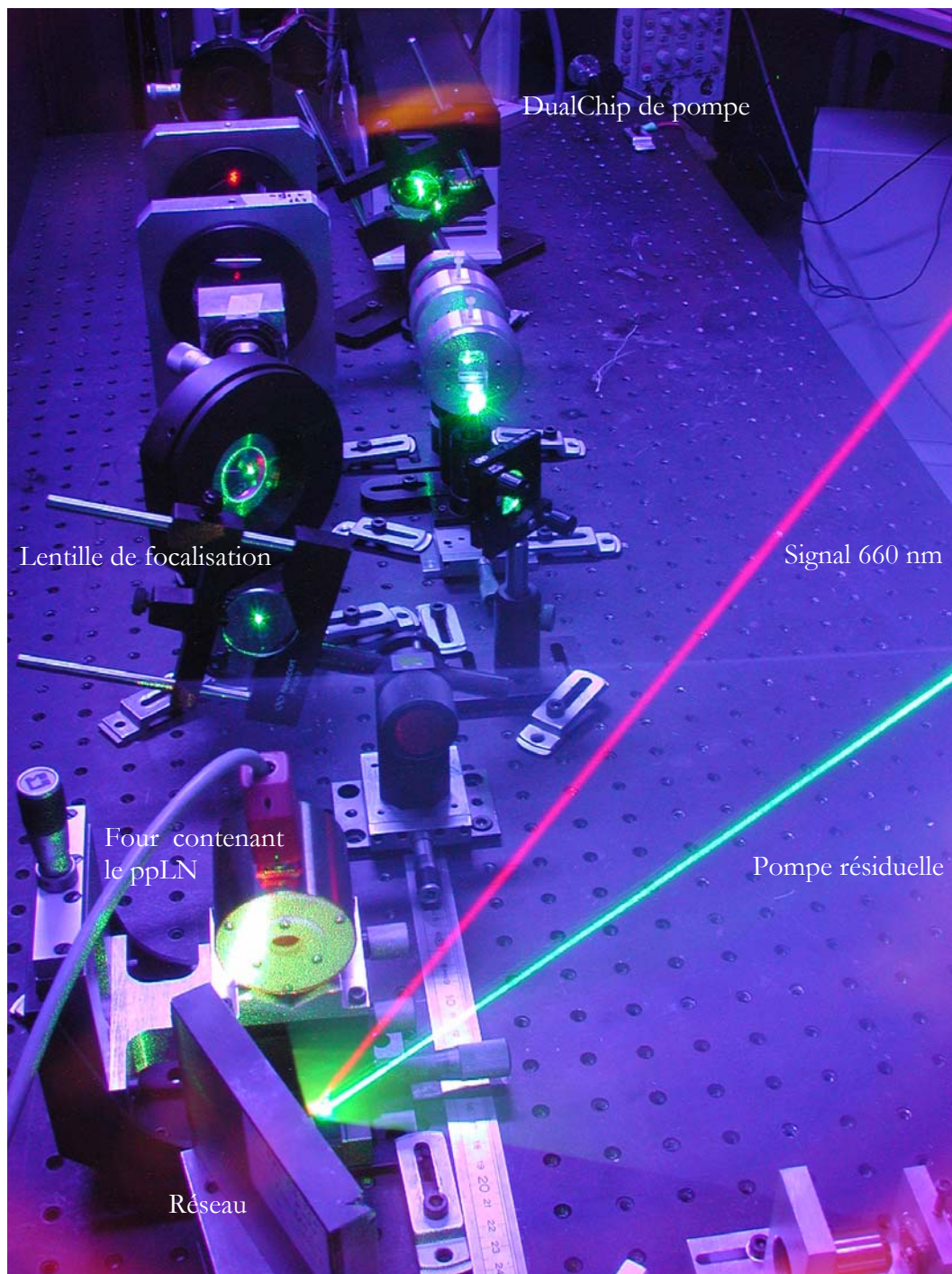


Photo IV.4 : photo du banc expérimental de génération paramétrique optique.

B. Amplification paramétrique optique

Les résultats obtenus par génération paramétrique optique sont excellents : en particulier la qualité spatiale est très correcte. L'accordabilité est complète et continue et le rendement important. Il s'avère donc que la GPO peut en tant que telle servir d'étage « d'accordabilité » dans notre chaîne laser. Cependant ce n'était pas un fait acquis au départ, aussi avons nous envisagé d'injecter ce générateur paramétrique afin de réaliser ce qu'il est convenu d'appeler un amplificateur paramétrique optique (APO). En effet, la structure d'APO permet en théorie d'améliorer de façon très sensible la qualité spatiale et la qualité spectrale du faisceau obtenu, ainsi que de diminuer le seuil de l'effet non-linéaire. Nous allons ici présenter les résultats relatifs à l'APO afin de quantifier le gain apporté par cette technique.

L'injection est simplement réalisée en focalisant en même temps que la pompe dans le ppLN une diode laser rouge continue (de longueur d'onde 660 nm) de faible puissance moyenne.

La diode laser dont nous disposons (Mitsubishi ML101J8) est une diode monomode de longueur d'onde accordable par la température entre 656,8 et 660 nm (0,2 nm/°C). Si on veut obtenir la même plage d'accordabilité avec l'APO qu'avec la GPO, on voit immédiatement qu'il faudra mettre en place plusieurs diodes laser d'injection, ce qui limite l'utilité du système. Comme toute diode laser, le faisceau émis diverge fortement et différemment dans les deux directions x et y , ce qui nous oblige à avoir recours à un système afocal cylindrique pour pouvoir focaliser sur la surface voulue dans le ppLN les deux directions x et y . Enfin la diode laser est extrêmement sensible aux retours optiques qui ne manquent pas de subvenir puisque le cristal de ppLN n'est pas traité anti-reflet. Nous avons donc été obligés pour ne pas perturber la diode de mettre en place un isolateur optique. Comme nous ne disposons pas d'isolateur à 660 nm, nous avons utilisé un composant spécifié pour 800 nm, qui s'est avéré insuffisant. Il a donc fallu rajouter une densité optique de 0,9 pour isoler suffisamment la diode d'éventuels retours, avec pour résultat une puissance de la diode mesurée à l'entrée du cristal de ppLN inférieure à 1 mW.

L'énergie signal n'est amplifiée que pendant la fenêtre temporelle où la pompe est présente (il n'y a pas de phénomène de stockage d'énergie comme dans un laser), soit environ 900 ps toutes les 25 μ s (correspondant à une cadence de 40 kHz). En découpant de la sorte le signal continu, on s'aperçoit que l'énergie « à amplifier » est de seulement quelques centaines de femtoJoules : il s'agit alors seulement de forcer l'amplification à une longueur d'onde donnée, ce qui a pour effet en théorie d'affiner le spectre et d'abaisser le seuil : on ne s'attend pas à gagner beaucoup en termes de puissance de sortie. Le schéma expérimental utilisé est directement dérivé de celui mis en place pour la GPO (figure IV.24). La superposition des deux faisceaux (pompe et signal) se fait en utilisant une caméra CCD. On vérifie ainsi également les tailles des deux waists.

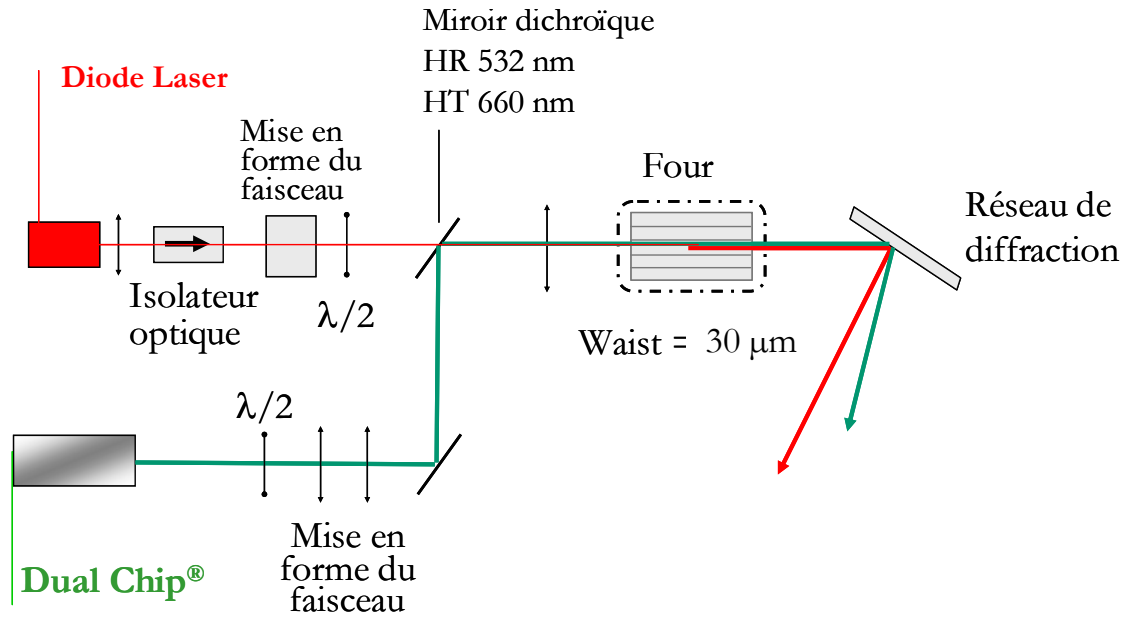


Figure IV.24 : schéma de l'expérience d'amplification paramétrique optique.

La mesure des spectres respectifs du signal issu de la GPO et de l'APO ne nous apporte que peu d'information : notre analyseur de spectre a une résolution limitée à 0,07 nm, ce qui le rend incapable de voir la finesse spectrale probablement bien plus importante de l'APO (figure IV.25), calquée en théorie sur celle de la diode laser d'injection⁹³. Des études similaires dans la littérature [Batchko 99] relève un rétrécissement de 0,15 nm à moins de 1,3 pm (soit environ 1 GHz). Cependant on sait que cette finesse est inférieure à 0,1 nm dans tous les cas, ce qui suffit

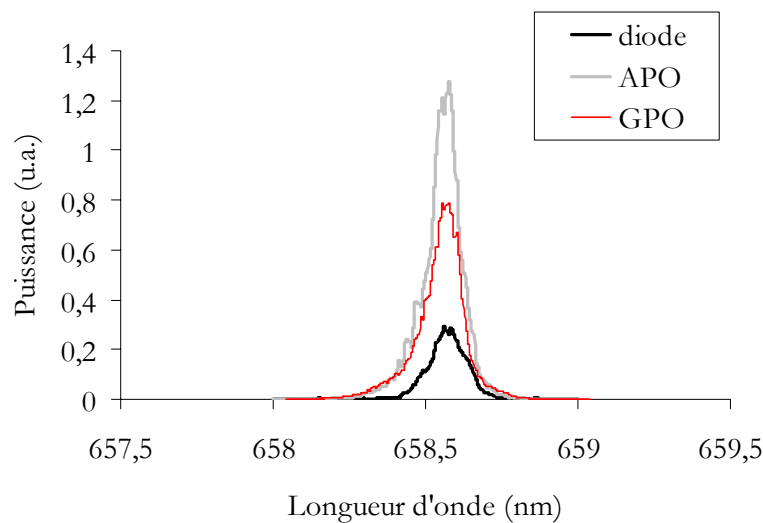


Figure IV.25 : mesure des différents spectres (diode, APO, GPO) avec un analyseur de spectre optique

⁹³ Pour pouvoir déterminer correctement la largeur spectrale de l'APO, il faudrait mettre en place un interféromètre de Fabry-Perot assez fin, ce dont nous ne disposons pas.

amplement à notre bonheur : les tolérances sur la finesse spectrale de notre source finale sont très larges.

Les puissances obtenues sont présentées sur la courbe suivante (figure IV.26), où on a également rappelé les résultats de la GPO. On note comme prévu une diminution du seuil, tandis que la pente reste globalement la même. La puissance moyenne obtenue en sortie est de 25 mW, soit 25% de plus que pour la GPO (le rendement est alors de 25%) et la pente d'efficacité est de 34%.

Au niveau spatial, le faisceau issu de la GPO n'était pas laid : celui issu de l'APO ne l'améliore que peu et le M^2 reste stationné autour de 1,3.

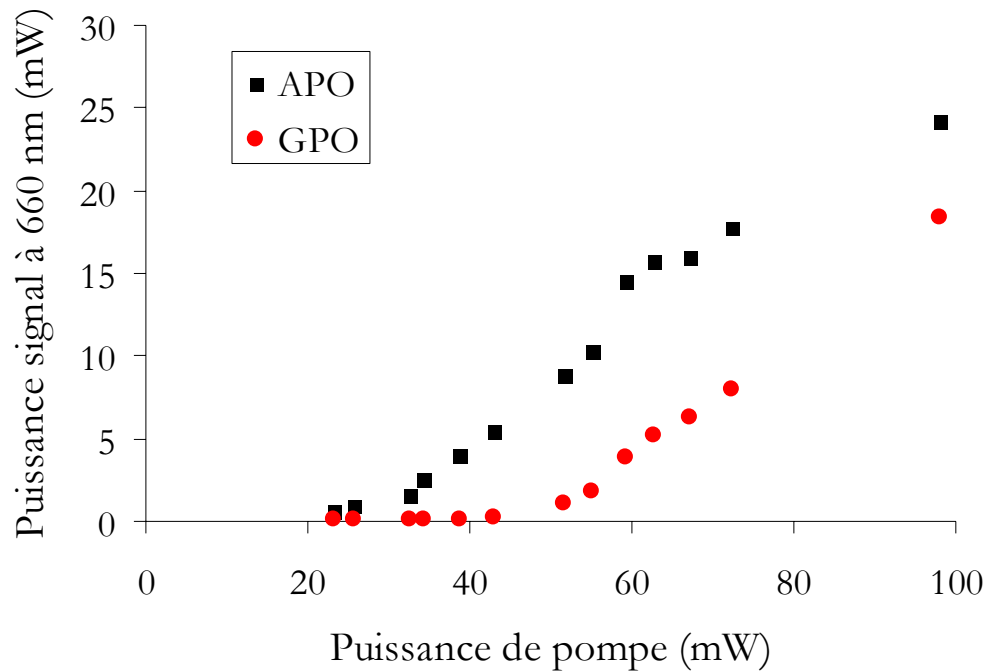


Figure IV.26 : puissance de sortie à 660 nm en fonction de la puissance de pompe pour l'APO et la GPO.

La morale de cette petite étude est que l'amplification paramétrique apporte un gain en puissance certain mais que l'on peut considérer comme négligeable par rapport à la perte de l'accordabilité que l'utilisation de cette technique engendre : nous avons donc choisi de nous passer de l'injection pour travailler avec le système final sur de la génération paramétrique pure.

II.2.3. Application à la source à haute cadence

Après avoir caractérisé avec soin le générateur paramétrique optique avec une source de pompe auxiliaire, nous l'avons tout naturellement mis en place à la sortie de nos lasers à haute cadence.

A. Microlaser déclenché amplifié

Nous disposons en sortie de notre laser déclenché, amplifié puis doublé d'environ 1,5 W (en puissance moyenne) de rayonnement à 532 nm (voir § II.1.2.1). Après collimation puis focalisation du faisceau par des lentilles non traitées anti-reflet, et prise en compte des pertes de Fresnel à l'entrée du ppLN, on obtient environ 1,2 W de puissance de pompe avec une cadence de 1 MHz et des impulsions d'environ 400 ps. Afin de savoir si on se trouve à proximité du seuil, il faut raisonner en énergie : chaque impulsion de pompe a ici une énergie de 1,2 μJ ; le seuil mesuré dans la configuration précédente est à $E_{p,t}=1,12 \mu\text{J}$... On voit donc que l'on se trouve juste au dessus du seuil, ce qui ne laisse pas présager d'un rendement de conversion exceptionnel : si on extrapole à partir de la courbe IV.21, on s'attend à obtenir ici environ 25 mW de puissance moyenne dans le rouge...

Effectuons la manipulation : on obtient en fait seulement 15 mW de rayonnement à 660 nm, avec une accordabilité rigoureusement égale à celle démontrée précédemment (courbe IV.23), mais un faisceau rouge spatialement dégradé (nous n'avons pas mesuré le M^2 car la structure ne semble même pas être gaussienne). Essayons d'expliquer ce phénomène : toutes les études ou presque utilisant une pompe visible de puissance moyenne importante et un cristal de ppLN font état d'effets parasites assez mal compris [Tidwell 97][Batchko 98]. Ces effets peuvent aller de simples distorsions des faisceaux à des dommages physiques dans le matériau. L'absorption importante du ppLN à 532 nm conduit à la formation d'une lentille thermique, et éventuellement à un phénomène d'autofocalisation susceptible d'endommager le matériau par filamentation [Miller 97].

Nous avons également mesuré les durées des impulsions produites (figure IV.27) : pour une durée infrarouge de 400 ps, on mesure Δt (660 nm) $\approx$ 240 ps, soit la réponse impulsionnelle de notre système de mesure. Ceci nous empêche d'accorder un quelconque crédit à cette valeur : on peut seulement dire que les impulsions sont plus courtes que 240 ps. Si on se réfère au raccourcissement observé lors de l'expérience préliminaire, on peut considérer (avec beaucoup de précautions) que Δt (660 nm) $\approx$ 200 ps⁹⁴.

⁹⁴ Nous avons tenté pour obtenir une mesure précise de la durée des impulsions rouge de mettre en place un autocorrélateur. Nous verrons par la suite pourquoi cet essai s'est avéré infructueux.

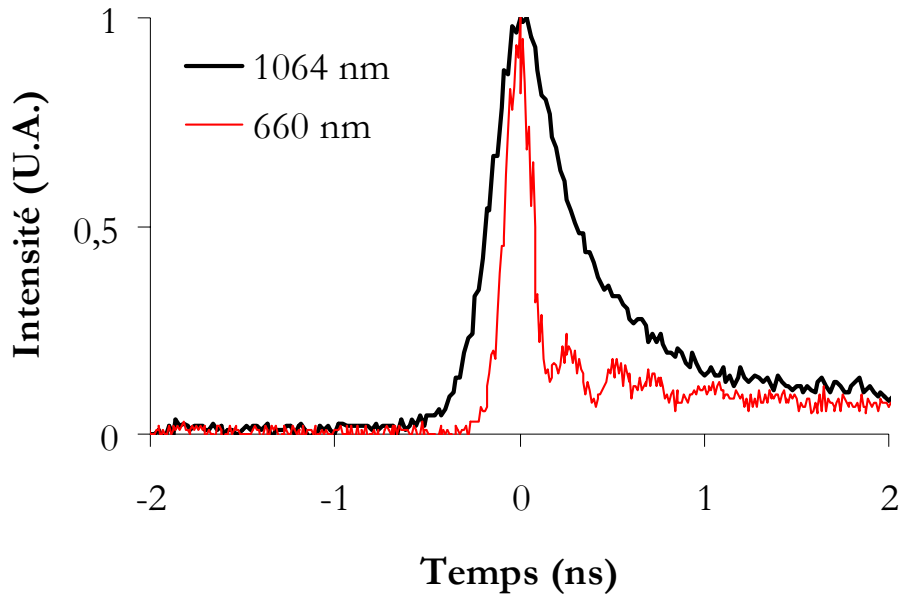


Figure IV.27 : mesure des durées d'impulsions rouges et infrarouges. Les rebonds sur la courbe rouge sont imputables à la photodiode.

Nous obtenons donc des impulsions accordables en longueur d'onde sur une large plage spectrale, à une cadence de 1 MHz, ayant une durée de quelques centaines de picosecondes au plus. Le spectre de chaque impulsion est large d'environ 0,1 nm et le profil spatial est assez laid. Reste une dernière étape pour pouvoir affirmer fièrement avoir rempli notre objectif : le doublement de ce rayonnement rouge vers l'ultraviolet.

Pour ce faire, nous utilisons un cristal de BBO (plus efficace que le LBO pour atteindre l'UV) de 4 mm de long taillé à l'accord de phase (660 nm/330 nm) de type I ($O_\omega + O_\omega \rightarrow E_{2\omega}$). La puissance crête du faisceau rouge incident est de l'ordre de 75W, le waist dans le cristal de BBO vaut 25 μm , le coefficient d_{eff} est de 1,94 pm/V, et les indices de réfraction valent 1,665 à 300K. Comme le rendement risque d'être faible à cette puissance crête, on peut appliquer la formule IV.8 (hypothèse de la pompe non déplétée). En étant optimiste (on ne tient pas compte de l'angle de double réfraction et on se place en condition d'accord de phase parfait), le calcul prédit un rendement d'environ 5%, soit une puissance moyenne ultraviolette en sortie de 0,7 mW⁹⁵.

Hélas il nous a été impossible, à notre grand dam, d'observer un quelconque rayonnement ultraviolet⁹⁶. Il est inutile de chercher bien loin la raison de cet échec : le suspect numéro un est évidemment la qualité spatiale médiocre du faisceau rouge qui interdit de fait tout rendement de conversion important.

⁹⁵ Je rappelle que notre objectif est d'obtenir au moins 1 mW à 330 nm et autour. On en est donc pas si loin – en théorie.

⁹⁶ Cela s'est à plus forte raison avéré également impossible dans l'autocorrélateur, ce qui explique en partie pourquoi nous n'avons pas pu mesurer la durée des impulsions rouges.

B. Laser à verrouillage de modes ultra-long

Nous pouvons effectuer les mêmes expériences en partant non pas du microlaser amplifié mais du laser à verrouillage de modes à cavité géante. Le cristal de ppKTP utilisé pour le doublement est du même type (10 mm de long) que précédemment. On prend soin de vérifier que son acceptation spectrale est supérieure à la largeur spectrale du laser : c'est n'est pas le cas puisque la théorie donne (pour le doublement de fréquence, avec un cristal de 10 mm de long) $\Delta\lambda_{\text{ppKTP}} = 0,28 \text{ nm}$ tandis que la largeur spectrale du laser mesurée expérimentalement vaut $\Delta\lambda_{\text{laser}} = 0,5 \text{ nm} \dots$

On obtient malgré cela un rendement de doublement très acceptable (autour de 50 %), conduisant à une puissance moyenne de plus de 200 mW à 532 nm. La cadence utilisée est alors de 2,2 MHz et la durée des impulsions est de 16,3 ps. En termes de puissance crête, nous arrivons à environ 5 kW, ce qui est normalement suffisant pour atteindre le seuil de la GPO. Nous avons donc mis en place le cristal de ppLN. À notre grande déception, nous ne sommes pas parvenu à observer le moindre rayonnement rouge dans cette configuration. Deux raisons peuvent être avancées : tout d'abord et très simplement, le réglage de la focalisation dans le cristal de ppLN (taille et position du faisceau) est extrêmement critique, et nous n'avons ici pas eu le temps nécessaire pour l'effectuer avec la même rigueur et la même précision que dans le paragraphe II.2.2. Ensuite, il est possible que le cristal de ppLN ait subi des dommages lors d'expériences à haute puissance crête (on observe des trace sombres à l'intérieur du cristal).

Afin de ne pas rester sur ce cuisant échec, nous avons mis en place un petit amplificateur (du même type que celui décrit au chapitre III, mais en bien moins puissant) juste à la sortie du laser, afin de porter la puissance crête du faisceau de pompe (à 532 nm) à plus de 12 kW. On se retrouva alors suffisamment loin au dessus du seuil pour observer un faisceau à 660 nm issu de la génération paramétrique optique, avec un rendement diminué par rapport à l'étude préliminaire cependant (autour de 10 %, conduisant à une puissance moyenne d'environ 40 mW à 660 nm). Là encore, il ne nous a pas été possible de doubler ce rayonnement avec un cristal massif de BBO.

Application à des expériences de biologie

Le but de notre source laser est d'être appliquée à des expériences de biologie. À cet effet nous avons démonté notre laser pour le reconstruire au Laboratoire de Photophysique Moléculaire (LPPM) à Orsay. Il existe dans ce laboratoire tout un système permettant d'effectuer des mesures de fluorescence résolues en temps (voir annexe I): nous avons donc mis en place notre source (réglée pour fonctionner avec un taux de répétition de 3,8 MHz, le système électronique de détection étant optimisé pour cette cadence), et l'avons doublée ou triplée en fréquence par le biais de deux cristaux de LBO. Nous avons obtenu une puissance de 1,2 W à 1064 nm, 200 mW à 532 nm et 80 mW à 355 nm. Il faut noter que les étages de conversion de fréquence n'ont été que poliment optimisés : en effet, une puissance de seulement quelques milliwatts de rayonnement ultraviolet est nécessaire. Le schéma de l'expérience est représenté sur

la figure IV.28. Des expériences de mesure de temps de fluorescence sont actuellement en cours au LPPM (Août 2003), sous la direction de Sandrine Lévêque-Fort : elles permettent d'obtenir pour un échantillon biologique donné (une cellule par exemple) une cartographie des temps de fluorescence, et ainsi de détecter la présence et/ou la localisation d'une espèce chimique donnée. Le système actuel permettra en particulier d'étudier des molécules présentant un temps de fluorescence très long (autour de 50 ns), ce qui est impossible avec la source laser Ti :Sa classique utilisée jusqu'à présent : la cadence est alors de 76 MHz, soit un espacement entre deux impulsions successives de 13 ns n'autorisant l'étude que d'espèces dont le temps de fluorescence est de l'ordre de la nanoseconde.

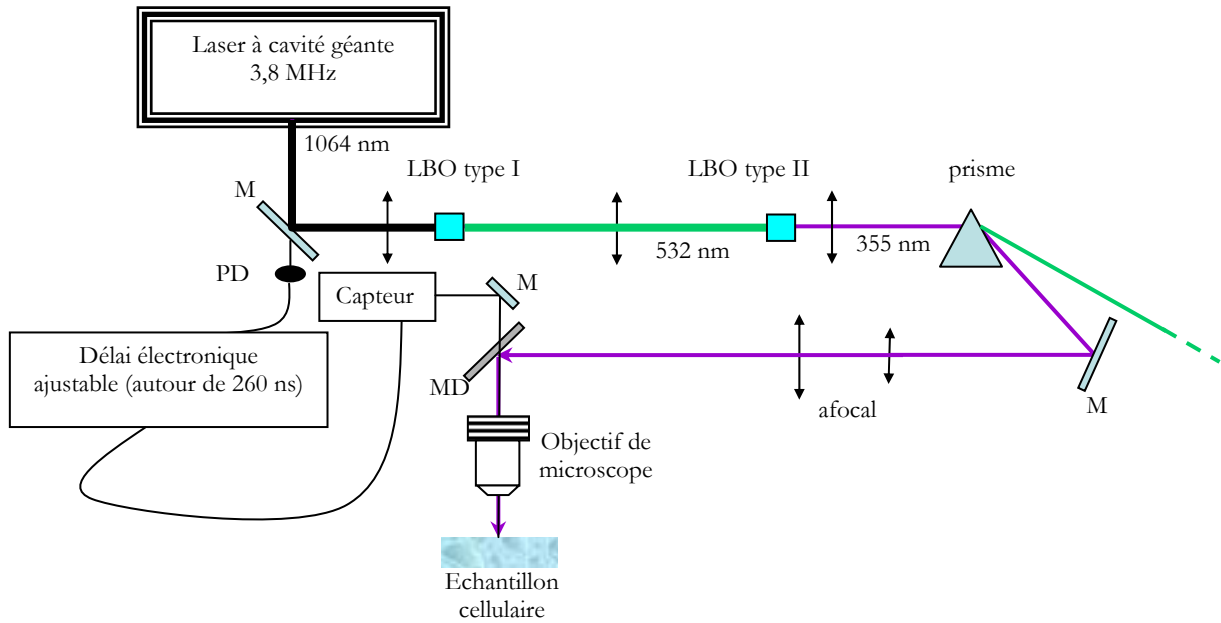


Figure IV.28 : schéma expérimental utilisé pour l'étude du temps de fluorescence d'échantillons biologiques. M = miroirs, MD = miroir dichroïque, PD = photodiode. Le délai électronique ajustable permet de synchroniser le capteur avec une impulsion donnée (260 ns est le temps séparant deux impulsions successives).

Premières images...

Voici les premières images réalisées par Sandrine Lévêque-Fort au LPPM : il s'agit d'images d'une coupe de prostate, sur lesquelles on peut noter un très bon contraste au niveau de la cartographie des temps de vie de fluorescence.

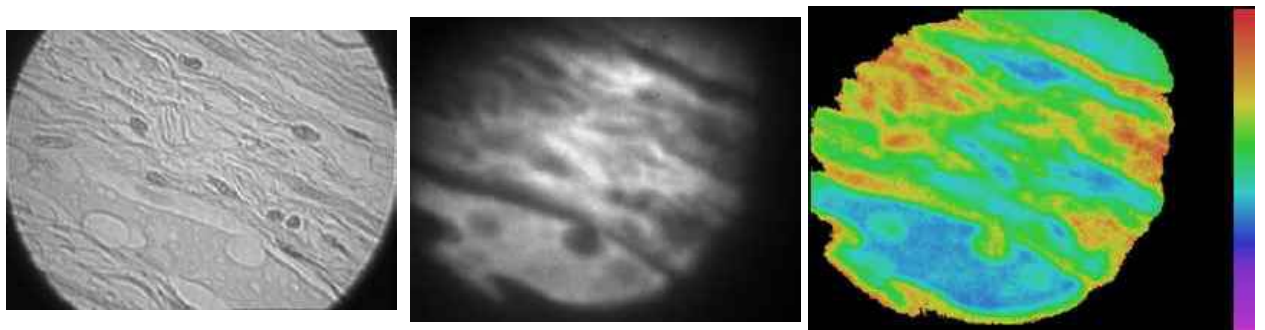


Figure IV.29 : image d'une coupe de prostate. À gauche, image en transmission, au centre, image d'intensité de fluorescence, à droite image des temps de vie de fluorescence avec notre source laser.

Des mesures sur des cellules à long temps de fluorescence (environ 16 ns, voir figure IV.31) ont également été réalisées, et permettent de mettre en évidence l'intérêt potentiel de notre source laser :

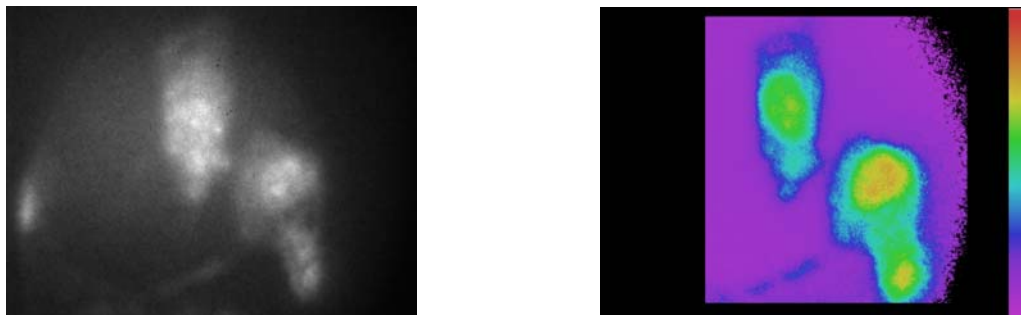


Figure IV.30 : intensité de fluorescence (à gauche) et cartographie de temps de fluorescence (à droite, échelle de couleur de 0 à 20 ns) pour des cellules hela incubées avec du bromure d'ethidium (excitation à 532 nm).

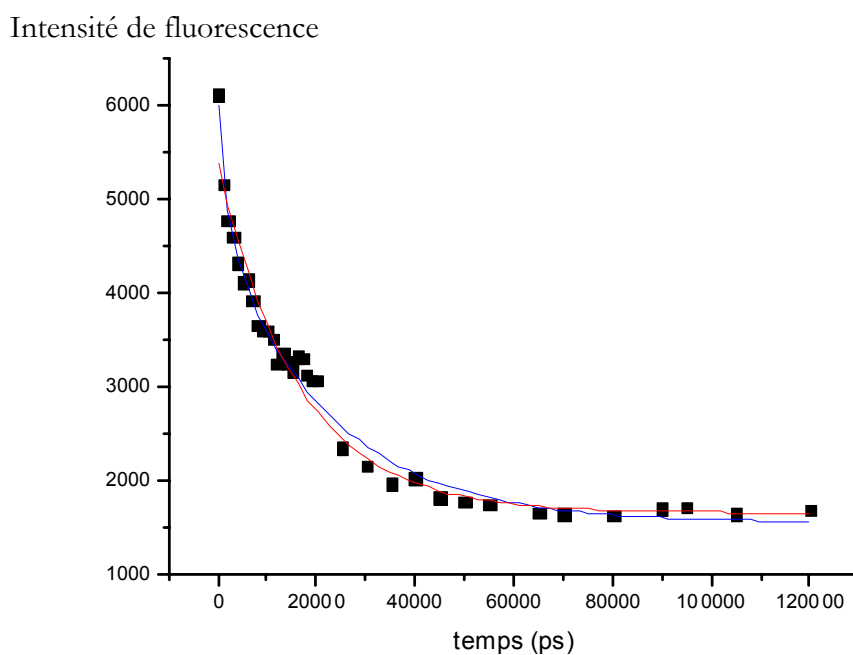


Figure IV.31 : mesure de temps de déclin de fluorescence pour des cellules hela incubées avec du bromure d'ethidium : la valeur trouvée grâce à l'ajustement d'une exponentielle sur les point expérimentaux est de $\tau \approx 16,3$ ns.

II.3. Conclusions et perspectives : vers l'ultraviolet accordable

Dressons le bilan de notre système : l'ensemble source laser (microlaser + amplificateur ou laser à verrouillage de modes) + doubleur + tripleur ou générateur paramétrique optique donne globalement satisfaction, à la fois en termes de cadence, de durée, d'accordabilité et de puissance. Il est utilisable tel quel (et c'est le cas actuellement au Laboratoire de Photophysique Moléculaire) avec profit pour étudier des molécules possédant un pic d'absorption dans le rouge (entre 640 et 685 nm) ou l'ultraviolet (à 355 nm).

Par contre, nous ne sommes pas parvenu à franchir la dernière marche, à savoir l'obtention de rayonnement ultraviolet accordable. Plusieurs solutions peuvent être envisagées pour aboutir à nos fins simplement (c'est-à-dire sans redimensionner l'ensemble du système afin d'augmenter les puissances, ce qui est une autre solution) : on peut imaginer d'utiliser un dernier étage de doublement plus efficace en substituant le cristal de BBO par un cristal de tantalate de lithium (ppLT) ou de niobate de lithium stoechiométrique périodiquement polarisé (ppSLN), les seuls pp-matériaux à être transparents dans l'UV. Malheureusement ce cristal très prometteur [Mizuuchi 96, 03][Champert 01] n'est pas encore disponible commercialement avec des pas suffisamment petits... Une autre idée est d'améliorer le rendement de l'étage de GPO : on peut par exemple imaginer un système GPO+APO en plaçant deux ppLN en série, ou en réinjectant le signal et la pompe restante après un passage dans le cristal de ppLN (figure IV.29).

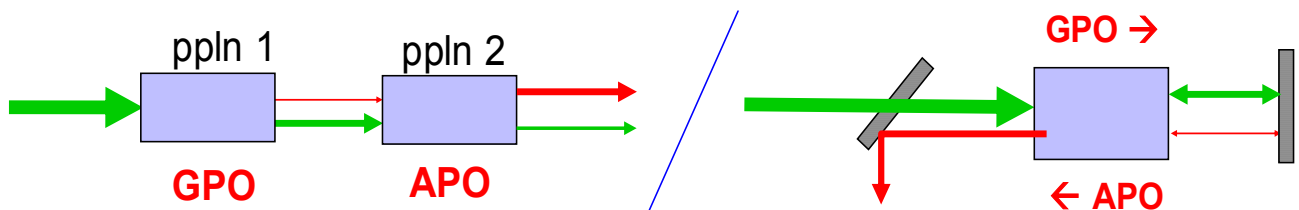


Figure IV.32 : transformation du système de GPO en tandem GPO/APO. À gauche, mise en série de deux ppLN, à droite réinjection du signal et de la pompe résiduelle dans le même ppLN, et éjection du signal via un miroir dichroïque HR 660 nm/HT 532 nm.

Conclusion générale

otre objectif lors de ce travail de thèse était au départ clair : il s'agissait de répondre à un besoin, exprimé par les chercheurs en photobiologie. On peut résumer ce besoin de la façon suivante :

« Bonjour. Nous aimerions avoir une source laser ultraviolette (si possible à une longueur d'onde différente de celles accessibles par simple génération des harmoniques d'un laser Nd:YAG, et mieux encore accordable) qui émet des impulsions courtes de quelques centaines de picosecondes au maximum, à une cadence de quelques mégahertz tout au plus. Ah j'oubliais, si cette source pouvait être compacte et très simple d'emploi (sans composant actif ce serait l'idéal)...C'est possible ? »

Nous nous sommes donc attelés à cette tâche, en développant notamment deux types de sources laser originales permettant d'atteindre ce domaine de cadence « MHz » si peu couvert par les sources existantes. Tout d'abord, nous avons mis au point un système de microlaser déclenché permettant grâce à la longueur extrêmement réduite de sa cavité (environ 200 μm) de générer des impulsions courtes (environ 300 ps). L'utilisation d'un absorbant saturable à semi-conducteur (SESAM) et d'un cristal de Nd:YVO₄ nous a permis d'obtenir une cadence de 1 MHz et de répondre ainsi au cahier des charges fixé. L'autre solution possible est de réaliser un laser à verrouillage de modes : nous avons également étudié cette configuration, ce qui nous a conduit à mettre au point le laser à verrouillage de modes totalement passif exhibant la plus basse longueur d'onde jamais reportée. Pour obtenir ce résultat, nous avons bâti une cavité géante de plus de 150 m de long, repliée sur elle-même pour tenir sur un marbre classique.

Nous voilà à présent nantis de sources présentant des propriétés temporelles pleinement compatibles avec nos exigences. Mais quid de la puissance et des propriétés spectrales ? En effet les lasers que nous avons réalisés émettent dans l'infrarouge proche. Or l'on sait très bien convertir ces longueurs d'ondes en rayonnement visible ou ultraviolet ; cependant le rendement de cette conversion dépend de la puissance crête du rayonnement fondamental : il est par conséquent nécessaire de mettre en place un amplificateur afin d'obtenir suffisamment de photons harmoniques. La réalisation de cet amplificateur constitue un des points clé de ce travail de thèse : en effet, nous avons mis au point en collaboration avec la société JDS Uniphase une structure multipassage tridimensionnelle innovante permettant d'atteindre des gains particulièrement impressionnants (plus de 40 dB de gain petit signal par exemple). Le succès de cet amplificateur s'est donc étendu au delà de son objectif initial, puisqu'en plus d'être utilisé pour augmenter l'énergie du microlaser haute cadence il a fait l'objet d'un transfert de technologie vers JDS Uniphase où un prototype est en cours de réalisation : notre amplificateur servira bientôt à porter la puissance de la gamme des lasers JDS à un niveau supérieur, où les applications d'usinage et de marquage l'attendent.

Pour finir, et afin de pleinement satisfaire l'ensemble des exigences énoncées plus haut, il reste à atteindre l'ultraviolet. Lorsqu'il s'agit d'obtenir un rayonnement à 355 nm ou 266 nm par simple triplement ou quadruplement de fréquence, cette conversion se fait de façon simple et efficace grâce à un passage unique dans un cristal non-linéaire adéquat. Par contre, la tâche est un peu plus rude lorsqu'on en vient à vouloir obtenir l'accordabilité. Pour ce faire, on met en place un générateur paramétrique optique basé sur un cristal de niobate de lithium périodiquement

polarisé pompé par le rayonnement vert issu du doublement en fréquence de notre source laser. Ce cristal comprend plusieurs pas différents, ce qui permet d'obtenir en jouant sur ces pas et sur la température un rayonnement continûment accordable sur plus de 45 nm dans le rouge (de 640 à 685 nm). La dernière étape consiste naturellement à doubler ce rayonnement rouge pour obtenir une large accordabilité dans l'ultraviolet : et c'est là où le bât blesse... En effet nous ne sommes pas parvenus à réaliser cette dernière étape, à la fois par manque de temps et de cristaux non-linéaires efficaces.



Notre source telle qu'elle existe actuellement est opérationnelle pour réaliser des expériences de fluorescence résolue en temps : elle fournit à la cadence souhaitée des impulsions de quelques picosecondes de durée à 1064, 532 ou 355 nm, et elle est relativement compacte, stable et simple d'utilisation.

La route est droite, mais la pente est forte...

Il existe plusieurs pistes à notre disposition pour finaliser ce laser afin d'obtenir la fameuse accordabilité dans l'ultraviolet : la première consiste à modifier la source actuelle (qui est composée du laser à verrouillage de modes et d'étages de doublement et de triplement en fréquence) en lui adjoignant par exemple notre amplificateur multipassage tridimensionnel. La puissance crête ainsi générée dépassera sans aucun doute les 100 kW, laissant espérer une puissance suffisamment importante dans le rouge (sous réserve que la qualité du faisceau soit maintenue) pour pouvoir réaliser le doublement de fréquence dans un cristal classique. Cette solution présente l'avantage de la simplicité de mise en œuvre ; cependant elle rend la source

finale moins compacte et bien plus onéreuse... Une autre voie possible est de travailler plus en profondeur sur les deux derniers étages de conversion : le rendement de la génération paramétrique optique peut sans doute être amélioré et le doublement vers l'ultraviolet pourrait bénéficier à terme du développement de nouveaux cristaux non-linéaires. Enfin on pourrait également imaginer un changement radical d'architecture, par exemple en réalisant un oscillateur paramétrique optique pompé de façon synchrone, ou encore en générant de multiples ordres Raman dans une fibre optique (photonique ?) à partir d'une pompe à 266 ou 355 nm...

Je conclurais donc par quelques mots sur l'avenir de notre source : son développement dans notre couveuse sera à présent limité, puisque elle va désormais, sous le regard bienveillant et attendri de ses concepteurs, quitter le nid pour voler de ses propres ailes. Nous espérons que ses nouveaux patrons seront satisfaits de son travail, et nous n'hésiterons pas à descendre jusqu'à elle pour s'assurer qu'ils ne la maltraite pas trop, pour la réparer si nécessaire, voire la modifier afin qu'elle fasse la joie de son entourage. Allez, vole petite...

Annexe I: Le temps de fluorescence - techniques de mesures et applications biomédicales

La première mesure quantitative de fluorescence date de 1852 par George Stokes, qui nota alors le décalage entre la longueur d'onde du rayonnement absorbé et celle du rayonnement émis par fluorescence, phénomène dorénavant connu sous le nom de « décalage Stokes » [Stokes 1852]. Depuis lors, les techniques basées sur la mesure de la fluorescence [Cole 00] n'ont cessé de prendre de l'importance dans des domaines variés comme le stockage optique [Wang 00], la détection de polluants, la biologie [Das 97] ou la médecine [Richards-Kortum 96].

Dans la plupart des cas, le principe de la mesure est basé sur la détermination précise du temps de déclin de fluorescence des espèces étudiées : il s'agit d'exciter une molécule par illumination, puis de détecter sa fluorescence de façon résolue en temps. Plus précisément, cette technique présente l'avantage de pouvoir étudier un échantillon biologique composé de plusieurs molécules dont les spectres de fluorescence sont très proches (ce qui est délicat avec une simple mesure des longueurs d'onde de fluorescence, du fait des nombreux recouvrements spectraux rendant l'exploitation des données délicate). De plus, le temps de fluorescence τ est une fonction du temps de vie radiatif, intrinsèque à la molécule étudiée, et du temps de vie non-radiatif (dû à des phénomènes de type « quenching », relaxation croisée, transfert d'énergie par fluorescence...) qui lui est fortement dépendant de phénomènes extérieurs à la molécule comme le pH de la solution ou sa viscosité. Une mesure précise de τ permet donc à la fois d'identifier le fluorophore lui-même et son environnement.

Voyons maintenant quels sont les moyens disponibles pour mesurer ce temps de fluorescence.

Tout d'abord, une définition : le temps de fluorescence τ est défini comme le temps nécessaire pour que l'intensité de fluorescence décroisse jusqu'à 1/e de sa valeur initiale, soit

$$I(t) = ae^{-\frac{t}{\tau}}$$

Il faut noter que cette définition n'est exacte que pour une impulsion d'excitation infiniment brève (mathématiquement, une fonction de Dirac) ou du moins pouvant être considérée comme telle ($\Delta t_{\text{impulsion}} \ll \tau$). Si ce n'est pas le cas, il faut effectuer une convolution entre le signal d'excitation et la réponse percussionnelle (réponse à une excitation de type fonction de Dirac) pour obtenir $I(t)$.

On peut définir deux classes de méthodes pour mesurer τ : les méthodes fréquentielles et les méthodes temporelles.

- ⊙ Les méthodes fréquentielles sont basées sur le principe suivant : une excitation sinusoïdale (ou plus généralement périodique) est envoyée sur l'échantillon à étudier, puis la mesure du déphasage et du taux de démodulation entre le rayonnement d'excitation et le rayonnement de fluorescence permet de remonter à τ . Des techniques de détection homodyne ou hétérodynes doivent alors être mises en place afin d'obtenir ces résultats. La mesure de τ par méthode fréquentielle présente l'avantage d'être relativement simple et peu coûteuse. On utilise généralement comme source excitatrice des lasers continus émettant dans le visible ou le proche ultraviolet (par exemple les lasers à argon ionisé) ; la modulation en amplitude est obtenue grâce à un modulateur acousto- ou electro-optique.

Cependant, le procédé devient plus compliqué dès lors qu'il s'agit d'étudier des combinaisons complexes de plusieurs molécules.

- ⊙ Les méthodes temporelles consistent à mesurer *directement* le profil de déclin de fluorescence. Elles utilisent des lasers impulsionnels : une excitation brève induit une décroissance exponentielle de l'intensité de fluorescence émise par la molécule considérée, le but du jeu étant alors de mesurer directement ce déclin de fluorescence. Nous allons maintenant décrire quelques unes des méthodes temporelles les plus couramment utilisées.

1. Echantillonnage optique

Cette méthode a été portée sous le feu des projecteurs suite à l'attribution du prix Nobel de Chimie à Ahmed Zewail en 1999 « pour ses études des états de transition lors de réactions chimiques par spectroscopie femtoseconde » [Zewail 99]. Le principe est de type « pompe-sonde » : on excite un échantillon avec une impulsion de pompe, puis on envoie avec un retard variable et contrôlé une impulsion de sonde. Le signal de fluorescence dépendant de l'écart temporel entre les deux impulsions, on obtient τ en traçant le signal de fluorescence en fonction du délai entre la pompe et la sonde. Cette méthode permet d'obtenir des résolutions temporelles excellentes, limitée par la durée des impulsions utilisées : on peut ainsi atteindre des résolutions de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Cependant, étant donné l'énergie élevée des impulsions utilisées et l'excitation répétée des fluorophores, des phénomènes dommageables tels que le photo-blanchiment sont à redouter (on peut même aller jusqu'à la destruction des molécules). De plus, le processus d'acquisition basé sur la variation mécanique (via une ligne à retard) de l'espacement temporel des impulsions pompe et sonde est intrinsèquement relativement lent : en pratique, cette technique est donc bien adaptée à l'étude de temps de fluorescence courts (picosecondes et moins).

2. Mesure par caméra à balayage de fente (« streak camera »)

Les caméras à balayage de fente sont des détecteurs permettant d'obtenir une résolution temporelle également excellente (jusqu'à 300 fs). Le principe de tels détecteurs est résumé succinctement par la figure suivante :

Le signal à mesurer est introduit dans la caméra via la fente d'entrée : sa rencontre avec

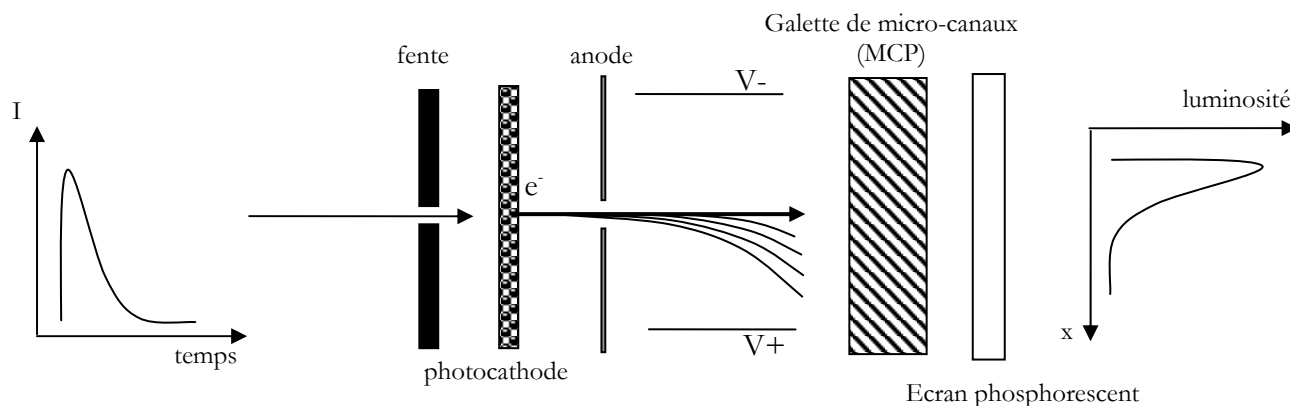


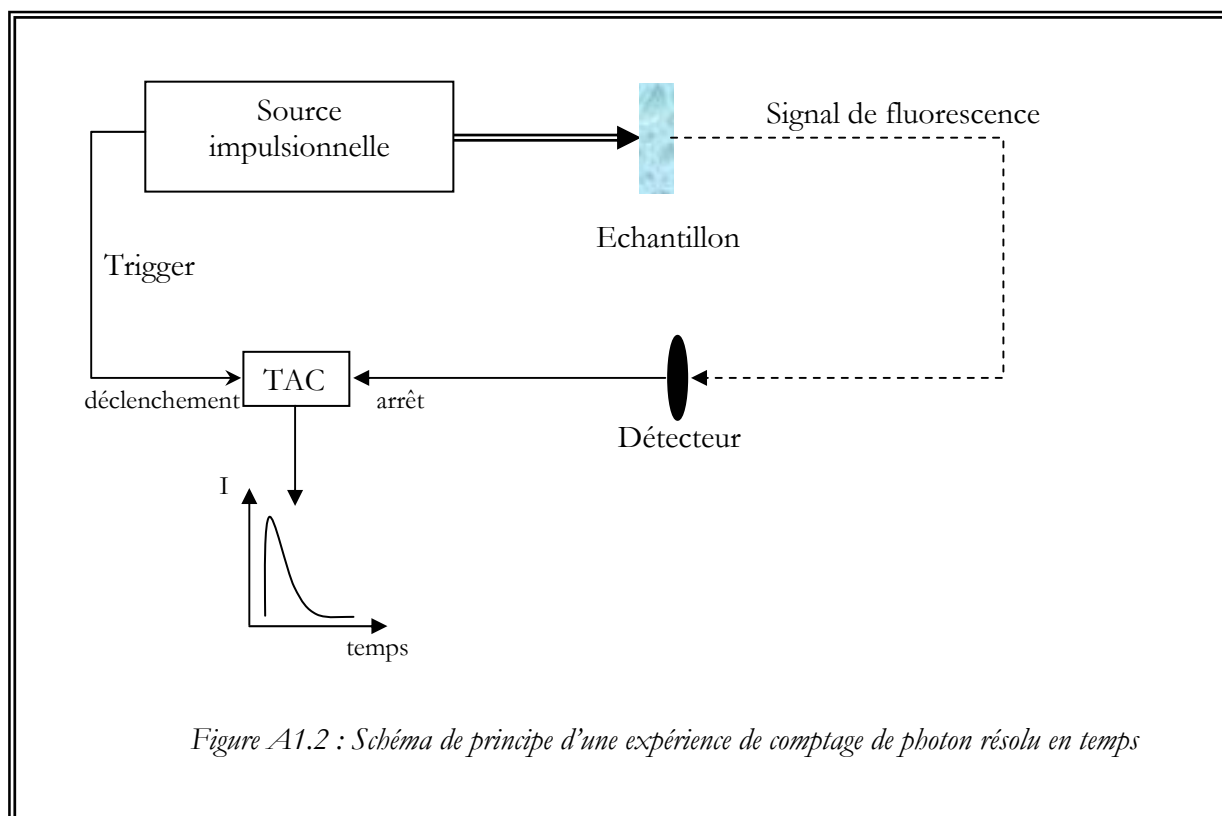
Figure A1.1 : Principe schématique d'une caméra à balayage de fente

une photocathode permet de générer un faisceau d'électrons qui est accéléré vers l'anode. Le nombre de photoélectrons générés à un temps t donné est proportionnel à l'intensité instantanée incidente sur la photocathode. Une rampe de tension est ensuite appliquée afin d'infléchir la trajectoire des photoélectrons, de façon à ce que les électrons les plus précoces (donc provenant « du début » de l'impulsion) soient peu déviés (V faible), contrairement aux électrons correspondant à la fin de l'impulsion (V fort). On obtient finalement après amplification via une galette de micro-canaux (multi-channel plate, ou MCP, est le terme anglais généralement utilisé) et imagerie sur un écran phosphorescent (puis éventuellement une caméra CCD) une répartition spatiale du faisceau électronique proportionnelle à la distribution temporelle de l'intensité lumineuse de l'impulsion incidente.

Cette méthode de mesure est très sensible (on peut mesurer des photons uniques) et possède une résolution temporelle intéressante. Elle n'est cependant pas adaptée à la mesure de temps de fluorescence longs (plusieurs nanosecondes), puisque alors la résolution temporelle devient limitée par la résolution spatiale du détecteur. Enfin il faut signaler que le coût d'un tel appareillage est pour nombre de laboratoires assez prohibitif.

3. Comptage de photon résolu en temps

Cette méthode (plus connue sous l'appellation anglophone usuelle de time-correlated single-photon counting, ou TCSPC) est clairement la plus populaire pour mesurer des temps de fluorescence par méthode temporelle.



Une source impulsionnelle est utilisée pour exciter un échantillon donné. L'intensité de la source est réduite, de façon à ce qu'un seul photon de fluorescence soit détecté pour chaque impulsion d'excitation. La source génère en parallèle un signal de déclenchement (« trigger ») qui provoque le chargement d'un condensateur dans un module que l'on appellera TAC (Time-to-Amplitude Converter, ou convertisseur temps-amplitude). Dans le même temps, l'excitation de l'échantillon produit un signal de fluorescence qui est détecté par un appareil pouvant être une photodiode à avalanche, un photomultiplicateur, ou un détecteur multi-canaux (MCP). La détection d'un photon de fluorescence induit la fin du processus de charge du condensateur, et par suite l'émission d'une impulsion électrique dont l'amplitude est proportionnelle à la charge accumulée dans le condensateur, c'est-à-dire au délai entre le « trigger » et le signal de fluorescence. En répétant cette mesure un grand nombre de fois on peut tracer un histogramme en portant en abscisse le temps d'arrivée de chaque photon : on obtient ainsi la courbe $I(t)$ permettant de mesurer le temps de fluorescence τ .

La méthode de TCSPC est largement utilisée : elle a prouvé sa robustesse et sa fiabilité, et est de plus assez simple à mettre en œuvre et peu onéreuse. Son inconvénient majeur est sa lenteur, puisque la construction de la courbe de déclin de fluorescence photon par photon implique un temps d'acquisition assez conséquent (parfois plusieurs minutes).

4. détection par porte temporelle

Il s'agit d'une méthode basée sur le principe suivant : l'échantillon est excité par une source d'impulsions courtes, puis le déclin de fluorescence est échantillonné en plusieurs points par le biais d'un détecteur à porte temporelle (« time-gated detector »), qui sera le plus souvent une galette de micro-canaux ou un tube photomultiplicateur. Le temps de vie de fluorescence τ est ensuite mesuré grâce à l'ajustement des points obtenus par une courbe exponentielle (ou

plusieurs dans le cas où de multiples espèces sont présentes dans l'échantillon). La résolution temporelle obtenue est celle du détecteur utilisé (de l'ordre de 10 picosecondes pour les meilleurs MCP).

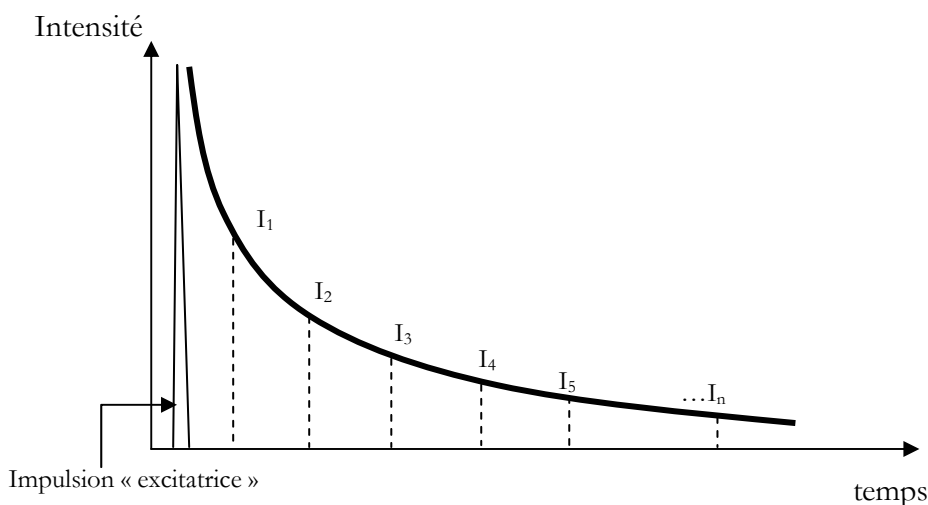


Figure A1.3 : Mesure de temps de fluorescence par porte temporelle

5. Imagerie de temps de fluorescence

Chacune des techniques présentées précédemment permet de mesurer le temps de fluorescence en un point de l'échantillon. Afin d'obtenir une « cartographie de τ » sur tout l'échantillon, on peut bien entendu balayer l'échantillon point par point et appliqué l'une des méthode ci-dessus à chaque point. Il est également possible de réaliser une illumination de l'ensemble de l'échantillon et de récupérer directement une image permettant de visualiser la valeur du temps de fluorescence en chacun de ses points. Pour cela, on utilise généralement une matrice de micro-canaux (MCP), dont le principe est globalement le même que celui utilisés dans les tubes photomultiplicateurs. La différence est qu'ici chaque « photomultiplicateur » est constitué d'un très fin capillaire de verre, ce qui permet d'avoir accès à une résolution spatiale intéressante (chaque capillaire correspond environ à un pixel sur l'image finale).

Les applications

La mesure du temps de fluorescence d'un certain nombre de molécules trouve des applications directes dans le domaine biomédical, la plupart du temps en complément d'autres techniques d'imagerie de type IRM par exemple. Ces molécules fluorescentes sont soit des marqueurs ajoutés « de l'extérieur » pour suivre une évolution donnée, soit les molécules à étudier elles mêmes.

⊙ ***Médecine***

La mesure des temps de fluorescence peut par exemple permettre de distinguer un tissu malade d'un tissu sain de façon rapide, sûre, et non invasive. En effet un certain nombre de maladies ont pour conséquence une variation du temps de fluorescence mesurable (on peut citer par exemple la dégénérescence rétinienne [Eldred 88] ou l'athérosclérose [Baraga 91][Andersson 90]. L'imagerie par mesure de temps de vie de fluorescence peut également permettre de mesurer directement des paramètres aussi vitaux que le taux d'oxygénation du sang ou des tissus, et ce de façon transcutanée [Bambot 95], ou encore que la concentration en glucose dans le sang [Tolosa 97].

⊙ ***Biologie cellulaire***

La microscopie de fluorescence est utilisée extensivement pour étudier le mouvement et la position de certaines espèces (par exemple le Calcium, le Sodium ou encore le Magnésium) à l'intérieur même de la cellule. Cependant, lorsque le besoin de mesure quantitatives se fait sentir, il apparaît que la mesure des temps de fluorescence fournit des résultats plus probants : il s'agit de placer des marqueurs sur les ions à étudier, ce qui entraîne une modification de leur temps de vie de fluorescence et permet ainsi de les localiser.

⊙ ***Pharmacologie***

Les techniques de fluorescence résolue en temps permettent d'étudier les interactions entre une molécule médicament et sa cible biologique (acide aminé, ADN...) afin de mieux comprendre le mode d'action des médicaments en question.

BIBLIOGRAPHIE de l' Annexe 1

- [Andersson 90] S. Andersson-Engels, J. Johansson, U. Stenram, K. Svanberg, S. Svanberg, "Malignant tumour ant atherosclerotic plaque diagnosis using laser induced fluorescence", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 26, pp. 2207-2217 (1990).
- [Bambot 95] S.B. Bambot, G. Rao, M.M. Romauld, G.M. carter, J.Sipior, E. Terpetching, J.R. Lakowicz, "Sensing oxygen through skin using a red diode laser and fluorescence lifetimes", in *biosensors and bioelectronics* 10, pp. 643-652 (1995).
- [Baraga 91] J.J. Baraga, R.P. Rava, M. Fitzmaurice, L.T. Tong, P.Taroni, C.Kittrell, M.S. Field, "Characterisation of the fluorescent morphological structures in human arterial wall using ultra-violet excited multispectrofluorometry", in *Atherosclerosis* 88, pp.1-14 (1991).
- [Cole 00] M.J. Cole, "Fluorescence lifetime imaging for biomedical applications", *thèse de doctorat*, Imperial college, University of London (2000).
- [Das 97] B.B. Das, F.Liu, R.R. Alfano, "Time resolved fluorescence and photon migration studies in biomedical and model random media", in *reports of progress in physics*, 60, pp. 227-292 (1997).
- [Eldred 88] G.E. Eldred, M.L. Katz, "Fluorophores of the human retinal-pigment epithelium – separation and spectral characteristics", in *Experimental eye research* 47, pp.71-86, (1988).
- [Richards-Kortum 96] R. Richards-Kortum, E.Sevick-Muraca, "Quantitative optical spectroscopy for tissue diagnosis", in *annual review of physical chemistry*, 47, pp. 555-606 (1996).
- [Stokes 1852] G.G. Stokes, "On the changes of refrangibility of light", *Philosophical transactions of the royal society of London*, vol.142, pp. 463-562 (1852).
- [Tolosa 97] L. Tolosa, H. Szmazinski, G. Rao, J.R. Lakowicz, « Lifetime-based sensing of glucose using energy transfer with a long lifetime donor", in *Analytical biochemistry* 250, pp. 102-108 (1997).
- [Wang 00] M.M. Wang, S.C. Esner, "Three dimensional optical data storage in a fluorescent dye-doped photopolymer", in *Appl. Opt.* 39, pp. 1826-1834 (2000).
- [Zewail 99] A.H. Zewail, "Laser femtochemistry", in *Science* 242, pp.1645-1653 (1988).

Annexe II : Revue des propriétés optiques de quelques cristaux non-linéaires

Nous décrivons dans le tableau ci-dessous quelques un des cristaux non-linéaires les plus utilisés pour le doublement de fréquence d'une onde fondamentale à 1064 nm selon le processus :

$$\text{Pompe (1064 nm)} + \text{Pompe (1064 nm)} = \text{signal (532 nm)}$$

Cristal	Type	d_{eff} (pm/V)	Transparence (nm)	Acceptance angulaire (mrad.cm)	Double réfraction (mrad)	Réf. indices
BBO (β - BaB ₂ O ₄)	I II	2 1,41	185-2600	1,15 0,92	55,85 69,6	[Kato 86]
CBO (CsB ₃ O ₅)	I	1,01	170-3000	2,19	31,17	[Kato 95]
CLBO (CsLiB ₆ O ₁₀)	I II	0,382 0,675	180-2750	2,28 1,99	31,4 36,1	[Umemura 99]
KDP (KH ₂ PO ₄)	I II	0,264 0,335	177-1700	2,54 2,9	28 24,5	[Ghosh 82]
KTP (KTiOPO ₄)	II	3,29	360-4500	14	4,9	[Vannerzeele 88]
LBO (LiB ₃ O ₅)	I II	0,83 0,62	160-2600	9,63 10,70	6,9 6,24	[Kato 94]
LiIO₃	I	2,48	300-6000	0,77	74,3	[Kato 85]
LiNbO₃ ⁹⁷	-	16 ¹	330-5500	-	0	[Edwards 84]

Tableau A2.1 : Caractéristiques de quelques cristaux non-linéaires (doublement de fréquence de 1064 nm vers 532 nm).

On désigne par « I » la configuration d'accord de phase pour laquelle les deux ondes à la longueur d'onde fondamentale sont polarisées identiquement, et par « II » la configuration pour laquelle elles sont polarisées orthogonalement.

d_{eff} est le coefficient non linéaire effectif, exprimé en pm par Volt et tenant compte des coefficients du tenseur susceptibilité non linéaire propre au matériau étudié et de la configuration d'accord de phase [Yariv 85]. On donne également l'acceptance angulaire pour chaque cristal. Enfin l'angle de double réfraction (« walk-off » en anglais) décrit la séparation angulaire des deux faisceaux (pompe et signal) polarisés orthogonalement. La dernière colonne donne les articles pris comme références pour calculer les indices de réfraction.

Le choix d'un matériau non-linéaire se fait donc en fonction bien sûr de son coefficient non-linéaire, le plus élevé possible, mais aussi de sa plage de transparence (en particulier quand

⁹⁷ Le niobate de lithium ne présente pas d'accord de phase possible pour le doublement de fréquence 1064nm / 532 nm. Par contre, cette conversion peut être obtenue en configuration dite de « quasi-accord de phase » (voir chapitre IV) avec un coefficient non linéaire d_{eff} élevé (17 pm/V).

on veut obtenir un rayonnement UV), sa disponibilité sur le marché avec une bonne qualité optique, son hygroscopie, son seuil de dommage, son angle de double réfraction (ce phénomène conduit à un mauvais recouvrement des faisceaux et donc à une diminution de l'efficacité de conversion lorsqu'on utilise des cristaux relativement longs), ses acceptances angulaires, spectrales, en température...

Le cristal de KDP (KH_2PO_4) a été parmi les premiers cristaux utilisés pour produire des niveaux importants de rayonnement visible et UV. Il a été assez rapidement supplanté par son isomorphe le KTP (KTiOPO_4), bien plus efficace mais dont la plage de transparence est limitée au spectre visible et infrarouge.

Deux cristaux de propriétés particulièrement bien adaptées à l'ultraviolet sont découverts à la fin des années 80 par le Fujian Institute (Chine) et ont permis de franchir un pas important vers l'augmentation de l'efficacité des systèmes de conversion de fréquence dans ce domaine spectral : il s'agit du BBO (β - BaB_2O_4 , découvert en 1985) et du LBO (LiB_3O_5 , en 1989). Ces deux borates sont très majoritairement utilisés lors des processus de conversion de fréquence dans l'UV [Whiters 93][Wyon 92][Zhang 93] en raison de leur plage de transparence étendue. Le BBO présente un coefficient non-linéaire plus élevé, alors que le LBO [Kato 90] possède un seuil de dommage très grand et un angle de double réfraction faible qui permet de l'utiliser sur des longueurs relativement importantes. La recherche tournée vers la mise au point de nouveaux cristaux transparents dans l'ultraviolet – plus efficaces et surtout présentant une meilleure tenue au flux – est en plein essor en Asie : on note l'apparition du CLBO ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$) par exemple [Mori 95] maintenant disponible commercialement avec une bonne qualité optique et qui permet d'obtenir des puissances importantes (plusieurs dizaines de Watts) dans l'UV [Bhar 00] [Sasaki 03].

Enfin une autre classe de cristaux non linéaires est extrêmement intéressante : il s'agit des cristaux dits « à quasi accord de phase ». Nous reviendrons plus en détails dans le chapitre IV sur cette technique qui permet de réaliser quasiment à la demande un accord de phase donné avec un coefficient non linéaire très important. Le niobate de lithium et le KTP sont très utilisés dans cette configuration (on parle alors de ppLN ou de ppKTP, pour « Periodically Poled Lithium Niobate ou Periodically Poled KTP ». Le développement récent de tels matériaux transparents dans l'ultraviolet (au contraire du ppLN ou du ppKTP) comme le ppLT (Periodically Poled Lithium Tantalate) ou le MgO :ppLN (ou ppSLN), ouvre encore de nouvelles perspectives à la réalisation de sources efficaces dans cette région du spectre [Meyn 01] [Brunner 03].

Annexe III : Influence de la cadence sur l'équation de Frantz et Nodvik

Frantz et Nodvik ont décrit pour la première fois en 1963 le comportement d'une impulsion traversant un milieu amplificateur donné [Frantz 63]. Cette étude aboutit à une célèbre équation qui porte désormais leur nom et que l'on rappelle ci-dessous :

$$E_f = E_{sat} \ln \left[1 + G \left(e^{\frac{E_i}{E_{sat}}} - 1 \right) \right] \quad (\text{AIII.0})$$

où E_i et E_f sont les énergies de l'impulsion avant et après amplification, $E_{sat} = \frac{hcS}{\lambda\sigma}$ (avec S la section du faisceau considéré, c la vitesse de la lumière, h la constante de Planck, λ la longueur d'onde et σ la section efficace d'émission du matériau amplificateur considéré) et G est le gain.

Cependant ce calcul de Frantz et Nodvik n'est valable que dans le cas où l'impulsion considérée est unique, c'est-à-dire isolée dans le temps et l'espace. Le gain G (noté G_0 dans ce cas) s'écrit alors $G = G_0 = e^{\sigma N_0 d}$ où N_0 est la densité de population de l'état excité en régime stationnaire et d la longueur du milieu amplificateur.

Nous allons décrire ici comment la cadence des impulsions amplifiées intervient et donner une expression plus générale de l'équation de Frantz et Nodvik.

Considérons une impulsion d'énergie E_i incidente sur un milieu amplificateur caractérisé par son temps de fluorescence τ . On notera :

N_{avant} la densité de population de l'état excité avant le passage d'une impulsion.

$N_{après}$ la densité de population de l'état excité après le passage d'une impulsion.

T est la période séparant deux impulsions consécutives.

Soit $N(t)$ la population de l'état excité du milieu amplificateur. On a en l'absence d'impulsion :

$$\frac{dN(t)}{dt} = \frac{N_0 - N(t)}{\tau} \quad (\text{AIII.1})$$

Choisissons le temps $t = 0$ juste après le passage d'une impulsion, soit $N(t=0) = N_{après}$.

La résolution de l'équation différentielle ci-dessus conduit alors à :

$$N(t) = N_{après} e^{-\frac{t}{\tau}} + N_0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right) \quad (\text{AIII.2})$$

Pour simplifier le propos, considérons que la durée de l'impulsion est négligeable devant la période T . On peut alors écrire $N(T) = N_{avant}$, soit :

$$N_{avant} = N_{après} e^{-\frac{T}{\tau}} + N_0 \left(1 - e^{-\frac{T}{\tau}} \right) \quad (\text{AIII.3})$$

D'autre part, on peut considérer en première approche que le nombre de photons « fournis » par le cristal à l'impulsion est égal au nombre d'ions qui se sont désexcités au passage de l'impulsion : Avec E_f l'énergie de l'impulsion amplifiée, d la longueur du cristal, S la section du faisceau, λ la longueur d'onde du signal à amplifier et h la constante de Planck il vient alors :

$$(N_{avant} - N_{après})Sd = \frac{\lambda}{hc}(E_f - E_i) \quad (\text{AIII.4})$$

d'où :

$$N_{avant} = N_{après} + \frac{\lambda(E_f - E_i)}{hcSd} \quad (\text{AIII.5})$$

On obtient finalement à partir de (AIII.3) et (AIII.5) une expression de la densité de population avant le passage d'une impulsion :

$$N_{avant} = \frac{\lambda(E_f - E_i)}{hcSd} \frac{e^{\frac{T}{\tau}}}{e^{\frac{T}{\tau}} - 1} + N_0 \quad (\text{AIII.6})$$

Le gain G réellement disponible est donc $G = e^{\sigma N_{avant}d} < G_0 = e^{\sigma N_0d}$

Bien sûr si les impulsions sont très espacées dans le temps, c'est-à-dire si la cadence est faible ($T \gg \tau$), alors le premier terme du membre de droite de (AIII.6) tend vers 0 et on retrouve $G = G_0$ comme dans la formule de Frantz et Nodvik.

Dans le cas où on ne peut pas faire cette approximation (typiquement à partir d'une cadence supérieure à quelques kHz pour un cristal de Nd :YAG de temps de fluorescence 230 μ s), il faut réécrire (AIII.0) avec $G = e^{\sigma N_{avant}d}$ et N_{avant} donné par (AIII.6) :

$$E_f = E_{sat} \ln \left[1 + e^{\sigma N_0d} e^{\frac{\sigma \lambda}{hcS} \frac{e^{\frac{T}{\tau}}}{e^{\frac{T}{\tau}} - 1} (E_f - E_i)} \left(e^{\frac{E_i}{E_{sat}}} - 1 \right) \right] \quad (\text{AIII.7})$$

En posant comme précédemment $G_0 = e^{\sigma N_0d}$ et en introduisant $\wp = \frac{\sigma \lambda}{hcS} \frac{e^{\frac{T}{\tau}}}{e^{\frac{T}{\tau}} - 1}$ on obtient :

$$E_f = E_{sat} \ln \left[1 + G_0 e^{\wp(E_f - E_i)} \left(e^{\frac{E_i}{E_{sat}}} - 1 \right) \right] \quad (\text{AII.8})$$

On a là une expression de l'équation de Frantz-Nodvik tenant compte du taux de répétition des impulsions à amplifier.

Attardons nous quelques instants sur les conséquences de cette formule :

On peut commencer par appliquer la formule AIII.8 en figeant l'énergie des impulsions incidentes. Pour fixer les idées, nous allons raisonner sur un exemple : on choisit de travailler avec un amplificateur Nd :YAG double passage de gain petit signal G_0 fixé à 3,5 et on prend $E_{\text{incidente}} = 1\mu\text{J}$.

Si on trace le gain en fonction de la cadence, on obtient la courbe suivante :

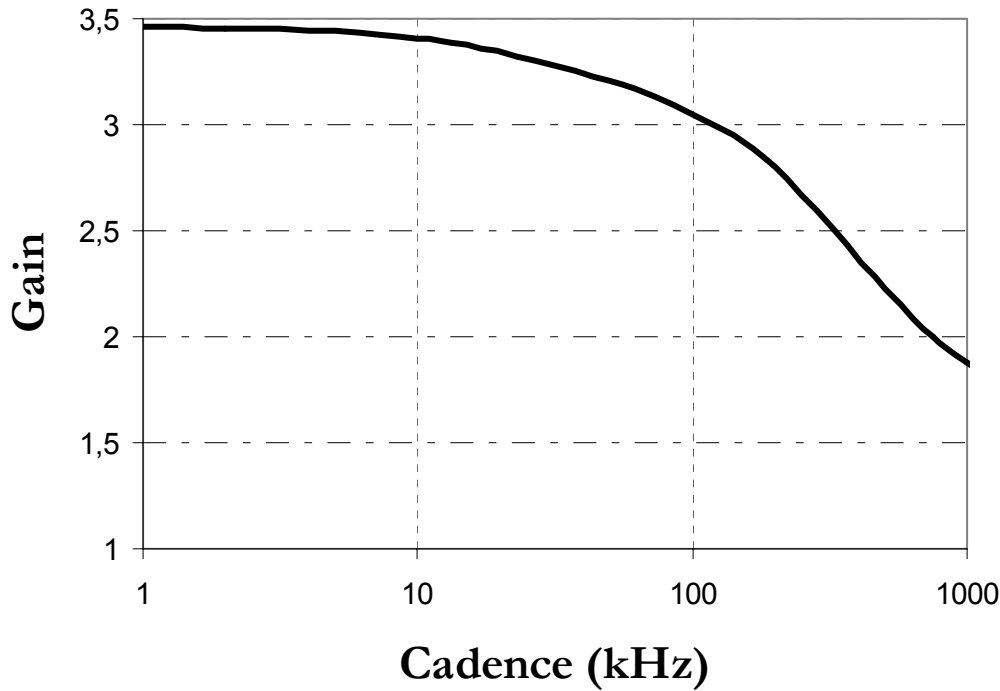


Figure A3.1 : évolution du gain avec la cadence pour un amplificateur Nd:YAG double passage (gain petit signal = 3,5, temps de fluorescence = $230\mu\text{s}$, rayon du faisceau = $125\mu\text{m}$, $\sigma = 2,8 \cdot 10^{-23}\text{ m}^2$. L'énergie des impulsions en entrée est fixée à $1\mu\text{J}$).

Lorsque la cadence est faible, l'amplificateur travaille en régime « monocoup », c'est-à-dire qu'il amplifie chaque impulsion indépendamment des autres. Puisque l'énergie des impulsions en entrée est faible devant l'énergie de saturation, le gain effectif est proche du gain petit signal et les impulsions en sortie ont une énergie environ égale à $E_{\text{entrée}} \times G_0$.

Lorsque le taux de répétition augmente, le gain diminue : en effet, on peut dire de façon imagée que chaque impulsion ne bénéficie que du gain laissé disponible par la précédente ; si l'écart temporel Δt entre l'impulsion n et l'impulsion $n+1$ est tel que le milieu à gain n'ait pas eu le temps de se recharger complètement, le gain réel est plus faible.

Au cours des diverses expériences décrites dans ce mémoire, on a souvent fait varier la cadence mais sans changer la puissance moyenne en entrée (toujours autour de 100 mW). Comme la puissance moyenne est égale au produit de la cadence par l'énergie de chaque impulsion, cela signifie que l'on a travaillé avec des impulsions d'énergies très variées. Il faut alors tenir compte de deux effets : la diminution du gain liée à la cadence (décrit ci-dessus) et la saturation du gain lorsque l'énergie des impulsions incidentes est proche de l'énergie de saturation. On peut comprendre ce qui advient en observant la figure A3.2.

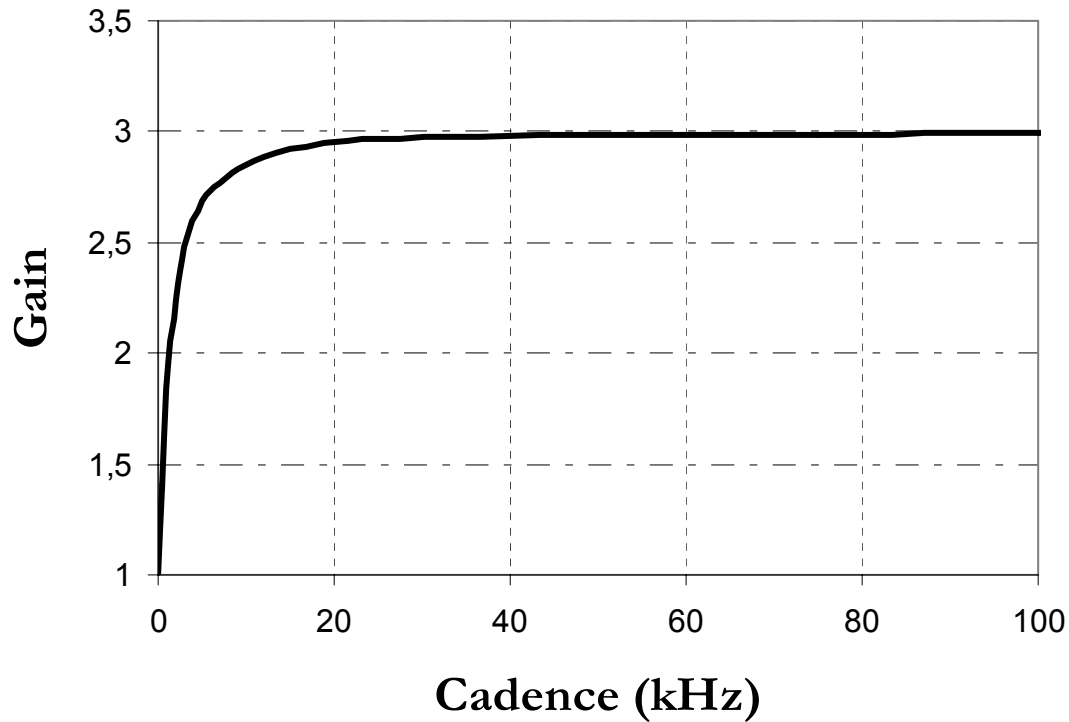


Figure A3.2 : évolution du gain avec la cadence pour un amplificateur Nd :YAG double passage (gain petit signal = 3,5, temps de fluorescence = 230 μ s, rayon du faisceau = 125 μ m, $\sigma=2,8.10^{-23}$ m². La puissance moyenne en entrée est fixée à 100 mW).

Que se passe t'il plus précisément ? C'est lorsque la cadence est faible que l'énergie des impulsions en entrée est la plus élevée puisque la puissance moyenne est constante : l'amplificateur est alors saturé, et le gain vaut 1. Augmentons la cadence : l'énergie des impulsions en entrée décroît donc la saturation diminue, et par conséquent le gain augmente. Pour l'instant la cadence est suffisamment faible pour qu'on ne se préoccupe pas de son influence. Arrive le moment où l'écart entre deux impulsions devient comparable au temps de fluorescence du milieu à gain (230 μ s pour le Nd :YAG, soit une cadence d'environ 4,3 kHz) : comme on l'a vu précédemment, le gain a alors tendance à diminuer. Les deux effets s'opposent alors : on tend vers un régime stationnaire.

On remarque qu'il s'agit exactement du comportement observé expérimentalement (voir paragraphe II.3.4 du chapitre III).

Bibliographie

- [Adams 92] C.S. Adams, A.I. Ferguson, "Tunable narrow linewidth UV light generation by frequency doubling of a ring Ti:sapphire laser using lithium tri-borate in an external enhancement cavity", in *Opt. Comm.* 90, pp. 89-94 (1992).
- [Agnesi 98] A. Agnesi, S. Dell'Acqua, E. Piccinini, G. Reali, G. Piccinno, « Efficient wavelength conversion with high power passively Q-switched Diode-pumped neodymium lasers », in *IEEE J. of Quant. Elect.* 34, pp. 1480-1484 (1998).
- [Agrawal 93] G.P. Agrawal, N.K. Dutta, "Semiconductor Lasers", second edition Kluwer academic publishers (1993).
- [Akhmanov 62] Akhmanov, Khokhlov, "Concerning one possibility of amplification of light waves", *J. Exptl. Theoret. Phys.*, Vol. 16, No. 1, 252-254 (1963) [traduit de *J. Exptl. Theoret. Phys. (U.S.S.R.)*, Vol. 43, 351-353 (1962)].
- [Altschul 53] R. Altschul and I. H. Herman "Ultraviolet Irradiation and Cholesterol Metabolism", *Seventh Annual Meeting of The American Society for the Study of Atherosclerosis*, Circulation 8 pp. 438 (1953).
- [Aniolek 00] K.W Aniolek, R.L Schmitt, T.J. Kulp, B.A Richman, S.E Bisson and P.E Powers, "Microlaser-pumped periodically poled lithium niobate optical parametric generator-optical parametric amplifier" in *Opt. Lett.* 25, pp. 557-559 (2000).
- [Arbore 97] M.A. Arbore, O.Marco, M.M.Fejer, "Pulse compression during second-harmonic generation in aperiodic quasi-phase-matching gratings", in *Opt.Lett.* 22 pp. 865 (1997).
- [Armstrong 62] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, N. Ducuing, P.S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric", in *Phys.Rev.* 27, pp. 1918-1939 (1962).
- [Ashkin 66] A. Ashkin, G.D. Boyd, J.M. Dziedzic, "Resonant optical second harmonic generation and mixing", in *IEEE J. of Quant. Elec.* QE-2, 6, pp. 109-124 (1966).
- [Bäder 99] U.Bäder, J.P Meyn, J.Bartschke, T.Weber, A. Borsutzky, R. Wallenstein, R.G Batchko, M.M Fejer and R.L Byer, "Nanosecond periodically poled lithium niobate optical parametric generator pumped at 532 nm by a single-frequency passively Q-switched Nd:YAG laser", in *Opt. Lett.* 24, pp. 1608-1610 (1999).
- [Baer 92] T.M. Baer, D.F. Head, P. Gooding, G.J. Kintz, S. Hutchinson, "Performances of diode-pumped Nd:YAG and Nd:YLF lasers in a tightly folded resonator configuration", in *IEEE J. of Quant.Elec.*, 28, pp. 1131-1138, (1992).

- [Balembois 97a] F. Balembois, M. Gagniet, F. Lauradour, V. Couderc, A. Barthélemy, P. Georges, A. Brun, "Tunable picosecond UV source at 10 kHz based on an all-solid state diode pumped laser system", in *Appl. Phys. B* 65, pp. 255-258 (1997).
- [Balembois 97b] F. Balembois, F. Falcoz, F. Druon, F. Kerboull, P. Georges, A. Brun, "Theoretical and experimental investigations of small signal gain for a diode pumped Q-switched Cr:LiSAF laser", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 33, pp. 269 (1997).
- [Balembois 98] F. Balembois, M. Gagniet, P. Georges, A. Brun, N. Stelmakh, J-M. Lourtioz, "Tunable picosecond blue and ultraviolet pulses from a diode pumped laser system seeded by a gain switched laser diode", in *Appl. Opt.* 37, pp. 4876-4880 (1998).
- [Barnes 99] N.P. Barnes, D.J. Reichle, B.M. Walsh, "Solid state laser ultraviolet source", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol XXVI, Advanced Solid-State Lasers*, M.M. Fejer, H. Injeyan and U. Keller, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1999), pp. 118-122 (1999).
- [Bartholin 1669] E.Bartholin, "Experimenta crystalii Islandici disdiaclastici ", Copenhagen 1669. Citation extraite de la traduction de P.Cuvelier (*Rev. Hist. Sci.*, XXX/3, pp. 193-224 (1977)).
- [Basov 70] N.G. Basov, V. A. Danilychev, Y. Popov and D. D. Khodkevich, in *Zh. Eksp. Fiz. i Tekh. Pis'ma. Red.* 12, 473 (1970).
- [Batchko 97] R.G Batchko, G.D Miller, A Alexandrovski, M.M Fejer and R.L Byer, Paper CTuD6 in *Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO '98)*, OSA Technical Digest Series (1998).
- [Baxter 00] G.W. Baxter, M.A. Payne, B.D.W. Austin, C.A. Halloway, J.G. Haub, Y. He, A.P. Milce, J.F. Nibler, B.J. Orr, "Spectroscopic diagnostics of chemical processes: applications of tunable optical parametric oscillators", in *Appl. Phys. B* 71, pp. 651-663 (2000).
- [Becouarn 98] L.Becouarn, E.Lallier, M.Brevignon, J.Lehoux, "Cascaded second-harmonic and sum-frequency generation of a CO₂ laser by use of a single quasi-phase-matched GaAs crystal", in *Opt.Lett.* 23, pp.1508 (1998).
- [Bergquist 82] J.C. Bergquist, H. Hemmati, W.M. Itano, "High power second harmonic generation of 257 nm radiation in an external ring cavity", in *Opt. Comm.* 43, pp. 437-442 (1982).
- [Bernard 94] J.F. Bernard, E. Mc Cullough, A.J. Alcock, "High gain, diode-pumped Nd:NO₄ slab amplifier", in *Opt. Comm.*, Vol. 109, pp. 109-114, (1994).
- [Bhar 00] G.C. Bhar, P. Kumbhakar, U. Chatterjee, A.M. Rudra, A. Nagahori, "Widely tunable deep ultraviolet generation in CLBO", in *Opt. Comm.* 176, pp. 199-205 (2000).
- [Bosenberg 95] W. R.Bosenberg and R. C. Eckardt, eds., feature on optical parametric devices, *J. Opt. Soc. Am. B* 12, 2087-2322 (1995).
- [Botez 96] D. Botez, L.J. Mawst, A. Bhattacharya, J. Lopez, J. Li, T.F. Kuech, V.P. Iakovelev, G.I. Suruceanu, A. Caliman, A.V. Syrbu, "66% cw wallplug efficiency from Al-free 0.98 μ m emitting diode lasers", in *Elect. Lett.* 32, pp. 2012-2014 (1996).
- [Boulanger 94] B.Boulanger, M.M.Fejer, R.Blachman, P.F.Bordui, "Study of KTiOPO₄ gray-tracking at 1064, 532, and 355 nm" , in *Appl. Phys. Lett.* 65, pp.2401 (1994).
- [Boulanger 99] B.Boulanger, I.Rousseau, J.P.Fève, M.Magliione, B.Ménaert, G.Marnier, "Optical studies of laser-induced gray-tracking in KTP", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 35, pp.281-286 (1999).

- [Bourzeix 93] S. Bourzeix, M.D. Plimmer, F.Nez, L. Julien and F.Biraben, “Efficient frequency doubling of a cw titanium:sapphire laser in an external enhancement cavity”, in *Opt. Comm.* 99, pp. 89-94 (1993).
- [Bourzeix 96] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F.Nez, L. de Tomasi L. Julien and F.Biraben, “Ultraviolet light generation at 205 nm by two frequency doubling steps of a cw titanium-sapphire laser”, in *Opt.Comm.* 133, pp. 239-244 (1996).
- [Boyd 68] G.D. Boyd, D.A. Kleinman, “Parametric interaction of focused gaussian light beams”, in *J. of Appl. Phys* 39, pp. 3597-3639 (1968).
- [Boyd 92] Boyd, “Nonlinear Optics”, Academic Press Inc., San Diego (1992).
- [Braun 96a] B. Braun, F.X. Kärtner, U. Keller, J.P. Meyn, G. Huber. “Passively Q-switched 180-ps Nd:LaSc₃(BO₃)₄ microchip laser ” in *Opt. Lett.* 21, pp. 405-407 (1996).
- [Braun 96b] B. Braun, C. Honninger, G. Zhang, U. Keller, F. Heine, T. Kellner, G. Huber, “Efficient intracavity frequency doubling of a passively mode-locked diode-pumped neodymium lanthanum scandium borate laser”, in *Opt. Lett.* 21, pp. 1567-1569 (1996).
- [Braun 97] B. Braun, F.X. Kärtner, G. Zhang, M. Moser, U. Keller “56-ps passively Q-switched diode-pumped microchip laser ” in *Opt. Lett.* 22, pp. 381-383 (1997).
- [Brenier 00] A.Brenier, G. Boulon, “Self-frequency summing NYAB laser for tunable UV generation”, in *J. of Luminescence* 86, pp. 125-128 (2000).
- [Brenier 02] A. Brenier, C. Tu, J. Li, Z. Zhu, B. Wu, “Self-sum- and -difference-frequency mixing in NGAB for generation of tunable ultraviolet and infrared radiation”, in *Opt. Lett.* 27, pp. 240-242 (2002).
- [Brieger 81] M. Brieger, H. Bûsener, A. Hese, F. Von Moers, A. Renn, “Enhancement of single frequency SHG in a passive ring resonator“, in *Opt.Comm.* 38, pp. 423-426 (1981).
- [Brown 01] D.J. Brown , M.J. Withford, “High average power (15W) 255 nm source based on second-harmonic generation of a copper laser master oscillator power amplifier system in cesium lithium borate”, in *Opt. Lett.* 26, pp. 1885-1887 (2001).
- [Brunner 03] A. Brunner, D. Eger, M.B. Oron, P. Blau, M. Katz, S. Rushin, “Temperature dependant Sellmeier equation for refractive index of stoichiometric lithium tantalite”, in *Opt. Lett.* 28, pp. 194-196 (2003).
- [Bufetov 97] I.A. Bufetov, M.V. Grekov, K.M. Golant, E.M. Dianov, R.R. Khrapko, “Ultraviolet light generation in nitrogen-doped silica fiber”, in *Opt. Lett.* 22, pp. 1394-1396 (1997).
- [Butcher 90] P.N. Butcher, D. Cotter, « The elements of nonlinear optics », Eds : P.L. Knight, W.J. Firth, Cambridge studies in modern optics 9, Cambridge university Press (1990).
- [Byer 75] R.L. Byer, “Quantum electronics: a treatise”, Eds H.Rabin and C.L Tang, nonlinear optics vol.1, part B, Academic Press, new York pp. 588-703 (1975).
- [Byer 77] R.L.Byer, “Nonlinear Optics”, Eds: P.G. Harper, B.S.Wherett, Academic Press, New York, pp.47-161 (1977).
- [Byer 93] R. L. Byer and A. Piskarkas, eds., “Feature on optical parametric oscillation and amplification”, *J. Opt. Soc. Am. B* 10, 1659–2239 (1993).
- [Champert 00] P.A. Champert, S.V. Popov, J.R. Taylor, J.P. Meyn, “Efficient second-harmonic generation at 384 nm in periodically poled lithium tantalate by use of a visible Yb-Er seeded fiber source”, in *Opt. Lett.* 25, pp. 1252-1254 (2000).

- [Champert 02] P.A. Champert, S.V. Popov, M.A. Solodyankin, J.R. Taylor, "Deep UV, tandem harmonic generation using kW peak power Yb fibre source", in *Elect. Lett.* 38, pp. 627-628 (2002).
- [Chandra 97] S. Chandra, T.H. Allik, J.A. Hutchinson, J. Fox, C. Swim, "Tunable ultraviolet laser source based on solid-state dye laser technologie and CLBO harmonic generation", in *Opt. Lett.* 22, pp. 209-211 (1997).
- [Chang 02] L.B. Chang, S.C. Wang, A.H. Kung, "Efficient compact watt-level deep-ultraviolet laser generated from a multi-kHz Q-switched diode pumped solid-state laser system", in *Opt. Comm.* 209, pp. 397-401 (2002).
- [Chen 00a] Y.F.Chen, C.C.Liao, Y.P.Lan, S.C.Wang, "Determination of the Auger upconversion rate in fiber-coupled diode end-pumped Nd:YAG and Nd:YVO₄ crystals", in *Appl. Phys. B* 70, 487-490 (2000).
- [Chen 00b] J Y.F. Chen, Y.P. Lan, S.C. Wang, "High power diode-end-pumped Nd:YVO₄ : thermally induced fracture versus pump-wavelength sensitivity", in *Appl. Phys. B* 71, 827-830 (2000).
- [Chen 02] C. Chen, J. Lu, T. Togashi, T. Suganuma, T. Sekikawa, S. Watanabe, Z. Xu, J. Wang, "Second-harmonic generation from a Kbe2BO3F2 crystal in the deep ultraviolet", in *Opt. Lett.* 27, pp. 637-639 (2002).
- [Chen 03] H-Y Chen, J-S Sue, Y-H Lin, S. Chao, "Quasi-phase-matched second-harmonic generation in ultraviolet-assisted periodically poled planar fused silica", in *Opt. Lett.* 28 pp.917 (2003).
- [Chénais 02] S. Chénais, "De l'ytterbium, de la thermique", thèse de doctorat de l'université Paris XI, 2002.
- [Cheng 94] L.K. Cheng, L.T. Cheng, J. Galperin, P.A. Morris Hotsenpiller, J.D. Bierlein, "Crystal growth and characterization of KTiOPO₄ isomorphs from the self-fluxes" in *J.of Crystal Growth* 137, pp.107 (1994).
- [Chiang 01] A.C Chiang, Y.C Huang, Y.W Fang and Y.H Chen, "Compact, 220-ps visible laser employing singlepass, cascaded frequency conversion in monolithic periodically poled lithium niobate" in *Opt. Lett.* 26, pp. 66-68 (2001).
- [Chu 92] DKT. Chu, J.D. Bierlein, R.L. Hunsperger, "Piezoelectric and Acoustic Properties of Potassium Titanyl Phosphate (KTP) and Its Isomorphs", in *IEEE Trans. Ultrasonics Ferroelectrics frequency control*, 39, pp. 683 (1992).
- [Colson 01] W.C. Colson, "Short wavelength free electron lasers in 2000", in *Nucl. Inst. And Meth. in Phys. Research A* 475, pp. 397-400 (2001).
- [Couillaud 84] B. Couillaud, T.W. Hänsch, S.G. MacLean, « High power CW sum-frequency generation near 243 nm using two intersecting enhancement cavities", in *Opt. Comm.* 50, pp. 127-129 (1984).
- [Couprie 93] M.E. Couprie, D. Garzella, M. Billardon, "Operation of the super-ACO free electron laser in the UV range at 800 MeV", in *Europhysics Letters* 21, p.909 (1993).
- [Couprie 94] M.E. Couprie, F. Merola, P. Tauc, D. Garzella, A. Delboulbé, T. Hara, M. Billardon, in *Rev. Sci. Instrum.* Vol 65 pp. 1485 (1994).
- [Couprie 02] <http://www.u-bordeaux1.fr/uvx2002/PDF/conference/CouprieUVX02p1.pdf>
- [Coyle 91] D. B. Coyle, "Design of a high gain laser diode array pumped Nd:YAG alternating precessive slab amplifier (APS amplifier)", in *IEEE J. of Quant. Elec.* 27, pp. 2327-2331 (1991).
- [Curley 91] P.F. Curley, A.I. Ferguson, "Resonant frequency doubling of a self starting, coupled cavity, mode locked Ti:Al₂O₃ laser", in *Opt. Lett.* 16, pp. 321-323 (1991).

- [Das Gupta 67] T. K Das Gupta and J. Terz, "Influence of Pineal Gland on the Growth and Spread of Melanoma in the Hamster," *Cancer Research* 27 p. 1306 (1967).
- [Degnan 96] J.J.Degnan, "Optimal design of passively Q-switched microlaser transmitters for satellite laser ranging", *Tenth International Workshop on Laser Ranging Instrumentation*, Shanghai, China, Nov.11-15, (1996).
- [Den Hartog 02] P. Den Hartog, E. Moog, C. Benson, M. Erdmann, A. Lumpkin, O. Makarov, M. Petra, B. Tieman, E. Trakhtenberg, G. Wiemerslage, "UV-VUV diagnostics for the advanced photon source SASE FEL", in *Phys. Research A* 483, pp. 407-411 (2002).
- [Dergachev 98] A.Y. Dergachev., S.B. Mirov, "Efficient room temperature LiF:F2+** color center laser tunable in 820–1210 nm range", in *Opt. Comm.* 147 pp. 107-112 (1998).
- [Dinev 72] S. G. Dinev, K. V. Stamenov, I. V. Tomov," Generation of tunable UV radiation in the range 216–234 nm", in *Opt. Comm.* 5, pp. 419-421 (1972).
- [Doualan 00] J.L. Doualan, C. Mannier, D. Descamps, J. Landais, R. Moncorgé, « Excited state absorption and upconversion losses in Nd :doped glasses for high power lasers », in *Phys. Rev. B* 62, pp. 4459-4463 (2000).
- [Drever 83] R.W.P. Drever, J.L. Hall, F.V. Kowalski, J. Hough, G.M. Ford, A.J. Munley, H. Ward, "Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator", in *Appl. Phys. B* 31, pp. 97-105 (1983).
- [Druon 99] F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, "High repetition rate 300-ps pulsed ultraviolet source with a passively Q switched microchip laser and a multipass amplifier", in *Opt. Lett.* 24, pp. 499-501 (1999).
- [Druon 00] F. Druon, "Nouvelles sources laser d'impulsions brèves pompées par diodes", Thèse de doctorat, université Paris-Sud (2000).
- [Dubinskii 92] M.A. Dubinskii, R.Y. Abdulsabirov, S.L. Korableva, A.K. Naumov, V.V. Semaschko, "New solid state active medium for tunable ultraviolet laser", in *18th international quantum electronics conference*, OSA technical digest. Washington DC Optical Society of America, pp. 548-550 (1992).
- [Dubinskii 93] M.A. Dubinskii, R.Y. Abdulsabirov, S.L. Korableva, A.K. Naumov, V.V. Semaschko, "Active medium for all solid state tunable ultraviolet laser", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol XV, Advanced Solid-State Lasers*, A.A. Pinto, T.Y. Fan, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1993), pp. 195-198 (1993).
- [Dunning 73] F. B. Dunning, F.K. Tittel, R. F. Stebbings, "The generation of tunable coherent radiation in the wavelength range 2300–3000 Å using lithium formate monohydride", in *Opt. Comm.* 7, pp. 181-183 (1974).
- [Dunning 74] F. B. Dunning, R. F. Stebbings, "The efficient generation of tunable near UV radiation using a N2 pumped dye laser", in *Opt. Comm.* 11, pp. 112-114 (1974).
- [Edwards 84] J. Edwards, in *J. Opt. Quant. Elect.* Vol. 16, pp. 373 (1984).
- [Ehrlich 80] D. J. Ehrlich, P. F. Moulton, R. M. Osgood, Jr., "Optically pumped Ce:LaF3 laser at 286 nm" in *Opt. Lett.* 5, pp. 339-341 (1980).
- [Eimerl 87] D. Eimerl, "High average power harmonic generation", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 23, pp. 575-591 (1987).
- [Erhard 00] S. Erhard, M. Karszewski, C. Stewen, K. Contag, A. Voss, A. Giesen, "Pumping schemes for multi-kW thin disk lasers", in *OSA Trend in Optics and Photonics, Advanced Solid-State Laser 2000*, H. Injeyan, U. Keller and C.Marshall eds., vol. 34 pp 78-84 (2000).
- [Ermeneux 00] R.S. Ermeneux, C. Goutaudin, R. Moncorgé, Y. Sun, R.L. Cone, E. Zannoni, E. Cavalli, M. Bettinelli, "Multiphonon relaxation in Nd:YVO₄ single crystals", in *Phys. Rev. B* 61, pp. 3915-3921 (2000).

- [Fan 87] T.Y. Fan, C.E. Huang, B.Q. Hu, R.C. Eckardt, Y.X. Fan, R.L. Byer, R.S. Feigelson, "Second harmonic generation and accurate index of refraction measurement in flux-grown KTiOPO_4 ", in *Appl. Opt.* 26, pp.2390 (1987).
- [Fejer 92] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, R.L. Byer, "Quasi-phase matched second harmonic generation : tuning and tolerance", in *IEEE J. of Quant.Elect.* 28, pp. 2631 (1992).
- [Ferguson 76] A. I. Ferguson, M. H. Dunn, A. Maitland " tunable, continuous-wave, ultra-violet radiation around 300 nm by frequency-doubling a rhodamine 6G dye laser ", in *Opt. Comm.* 19 pp. 10-13 (1976).
- [Ferguson 77] A. I. Ferguson, M. H. Dunn, "A tunable, frequency-doubled, continuous-wave dye laser using ADA", in *Opt. Comm.* 23 pp. 177-182 (1977).
- [Finch 99] A. Finch, J. Sakuma, Y. Ohsako, K. Deki, M. Horiguchi, T. Yokota, "All solid state, tunable, high power UV generation by sum-frequency mixing in CLBO", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol XXVI, Advanced Solid-State Lasers*, M.M. Fejer, H. Injeyan and U. Keller, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1999), pp. 70-73
- [Fix 02] A. Fix, M. Wirth, A. Meister, G. Ehret, M. Pesch, D. Weidauer "Tunable ultraviolet optical parametric oscillator for differential absorption lidar measurements of tropospheric ozone", in *Appl. Phys. B* 75, pp. 153-163 (2002).
- [Fix 98] A. Fix, G. Ehret, "Intracavity frequency mixing in pulsed optical parametric oscillators for the efficient generation of continuously tunable ultraviolet radiation", in *Appl. Phys. B* 67, pp. 331-338 (1998).
- [Forget 02] S. Forget, F. Balembois, P. Georges, P-J Devilder, "New 3D multipass amplifier based on Nd:YAG or Nd:YVO₄ crystals", in *Appl. Phys.B* 75, pp.481-485 (2002).
- [Forget 03] S. Forget, F. Balembois, G. Lucas-Leclin, F. Druon, P. Georges, "Continuously tunable picosecond visible laser source at 1 MHz", in *Opt. Comm.* 220, pp.187-192 (2003).
- [Forget 03b] S. Forget, F. Balembois, P-J. Devilder, P. Georges, "Three-dimensionnal optical amplifier structure", *Brevet européen* N° 03250198.3, Déposant : JDS Uniphase Corporation
- [Forget 04] S.Forget, S.Chenais, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, "Heat transfer measurements and high resolution absolute temperature mapping in diode-end-pumped Yb:YAG", à paraître in *Advanced Solid State Photonics* 2004
- [Fradkin 99] K. Fradkin, A. Arie, A. Skliar, G. Rosenman, "Tunable midinfrared source by difference frequency generation in bulk periodically poled KTiOPO_4 ", in *Appl.Phys.Lett.* 74, pp.914-916 (1999).
- [Franken 61] P.A.Franken, A.E. Hill, C.W.Peters, G.Weinreich, "Generation of Optical Harmonics", in *Phys. Rev. Lett.* 7 pp.118 (1961).
- [Franken 63] P.A. Franken, J.F. Ward, "Optical Harmonics and Nonlinear Phenomena", in *Rev.Mod.Phys.* 35, pp. 23 (1963).
- [Frantz 63] J.L.M.Frantz, J.S.Nodvik, "Theory of pulse propagation in a laser amplifier", in *J. of Appl. Phys.* 34 , 2346-2349 (1963).
- [Fresnel 1868] A. Fresnel, « Premier mémoire sur la double réfraction de la lumière », in *Oeuvres complètes*, tome II, pp. 276 (1868).
- [Friel 96] G.J. Friel, W.A. Clarkson, D.C. Hanna, "High gain Nd:YLF amplifier end-pumped by a beam shaped bread-stripe diode laser", *Conference on Laser and Electro-Optics CLEO 96, paper CTUL* 28, pp. 144 (1996).

- [Fulbert 98] L. Fulbert, J. Marty, B. Ferrand, E. Molva, "Passively Q-switched monolithic microchip laser", in *Conference on Laser and Electro-Optics 1998, paper CWC5*, pp 176, *Technical Digest* (1998).
- [Gaignet 97] M. Gaignet, F. Balembois, F. Louradour, V. Couderc, P. Laporte, S. Mottin, R. Cespuglio, M. Jouvét, A. Barthelemy, P. Georges, A. Brun, "Time-resolved spectroscopy of brain tissue with an all solid state tunable picosecond UV laser", in *Conference on Lasers and Electro-Optics, Technical Digest serie, Optical Society of America* vol 11, pp. 149 (1997).
- [Garcia 00] J.C. Garcia, A.K. Newman, J.M. Liu, M.C. Lee, "CW mode-locked deep UV pulses at an average power of 1.8 W", in *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.* 2, pp. L41-L43 (2000).
- [Georges 89] P. Georges, F. Salin, A. Brun, "Generation of 36-fsec pulses near 775 nm from a colliding-pulse passively mode-locked dye laser", in *Opt. Lett.* 14 pp. 940-942 (1989).
- [Ghosh 82] G. Ghosh, G. Bhar, "Temperature dispersion in ADP, KDP, and KD*P for nonlinear devices", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 18, pp. 143-145 (1982).
- [Giesen 94] A. Giesen, H. Hügel, A. Voss, K. Wittig, U. Brauch, H. Opower, "Scalable concept for diode-pumped high power solid-state lasers", in *Appl. Phys. B* 58, pp. 365-372 (1994).
- [Giordmaine 65] J.A. Giordmaine, R.C. Miller, "Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO₃ at optical frequencies", in *Phys. Rev.* 14, pp. 973-976 (1965).
- [Glass 78] A.M. Glass, "The photorefractive effect", in *Opt. Eng.* 17, pp. 470 (1978).
- [Goldberg 93] L. Goldberg, D. Mehuys, M.R. Surette, D.C. Hall, "High-power, near-diffraction-limited large-area traveling-wave semiconductor amplifiers", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 29, pp. 2028-2043 (1993).
- [Goldberg 99] L. Goldberg, R. Koplow, D. Kliner, "Highly efficient 4-W Yb-doped fiber amplifier pumped by a broad-stripe laser diode", in *Opt. Lett.* 24, pp. 673-675 (1999).
- [Gordon 93] L.A. Gordon, G.L. Woods, R.C. Eckardt, R.K. Route, R.S. Feigelson, M.M. Fejer, R.L. Byer, "Diffusion Bonded Gallium Arsenide Stack of Plates for Quasi Phase Matched Second Harmonic Generation of a Carbon Dioxide Laser", in *Elect. Lett.* 29, pp. 1942 (1993).
- [Govorkov 98] S.V. Govorkov, A.O. Wiessner, "Efficient high average power and narrow spectral linewidth operation of Ce:LiCAF laser at 1 kHz repetition rate", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol XIX, Advanced Solid-State Lasers, M.M. Fejer, W.R. Bosenberg, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1998)*, pp. 2-5 (1998).
- [Gupta 93] M.C. Gupta, W.P. Risk, A.C.G. Nutt, S.D. Lau, "Domain inversion in KTiOPO₄ using electron beam scanning", in *Appl. Phys. Lett.* 63, pp. 1167 (1993).
- [Gustafsson 88] T. L. Gustafson, "The generation of quasi-continuous, tunable 200 nm excitation using the MHz amplified synchronously pumped dye laser: Application to UV resonance raman spectroscopy", in *Opt. Comm.* 67 pp. 53-57 (1988).
- [Hamadani 71] S. M. Hamadani, G. Magyar, "Tunable, spectrally bright near UV emission by the second harmonic of a dye laser", in *Opt. Comm.* 4, pp. 310-312 (1971).
- [Hänsch 80] T.W. Hänsch, B. Couillaud, "Laser frequency stabilization by polarisation spectroscopy of a reflecting reference cavity", in *Opt. Comm.* 35, pp. 441-444 (1980).
- [Haub 93] J. G. Haub, M. J. Johnson, B. J. Orr, "Spectroscopic and nonlinear-optical applications of a tunable Beta-barium borate optical parametric oscillator", in *J. Opt. Soc. Am. B* 10, pp. 1765 (1993).

- [Haus 75] H.A. Haus, "Theory of mode locking with fast saturable absorbers", in *J. of Appl. Phys.* 46, pp. 3049-3058 (1975).
- [Haus 76] H.A. Haus, "Parameter ranges for CW passive mode locking", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 12, pp. 169-176 (1976).
- [He 97] C. He, T.H. Chyba, "Solid state barium nitrate laser in the visible region", in *Opt. Comm.* 135, pp. 273-278 (1997).
- [Hérault 03] E. Hérault, S. Forget, G. Lucas-Leclin and P. Georges, "Continuously tunable visible compact laser source using optical parametric generation in microlaser-pumped periodically poled lithium niobate" *Advanced Solid-State Photonics 2003* San Antonio (USA).
- [Herriott 64] D. Herriott, H. Kogelnik and R. Kompfner, "Off axis paths in spherical mirror interferometers" in *Appl. Opt.* 3, 523 (1964).
- [Hirano 99] Y. Hirano, N. Pavel, S. Yamamoto, Y. Koyata, T. Tajime, "100 W class diode-pumped Nd:YAG MOPA system with a double stage relay-optics scheme" in *Opt. Comm.* 170, pp 275-280, (1999).
- [Hirth 77] A. Hirth, K. Vollrath, J. Y. Allain, "Production of high power tunable UV laser emission by second-harmonic generation from a rhodamine 6G dye laser", in *Opt. Comm.* 20, pp. 347-349 (1977).
- [Ho 78] P.T. Ho, L.A. Glasser, E.P. Ippen, H.A. Haus, "Picosecond pulse generation with a cw GaAlAs laser diode", in *Appl. Phys. Lett.* 33, pp. 241-242 (1978).
- [Huang 01] F. Huang, Q. Lou, T. Yu, J. Dong, B. Lei, Y. Wei, "Tunable solid state UV laser", in *Opt. and Laser Tech.* 33, pp. 111-115 (2001).
- [Huot 02] N. Huot, C. Jonnin, N. Sanner, E. Baubeau, E. Audouard, P. Laporte, « High UV average power at 15 kHz by frequency doubling of a copper HyBrID vapor laser in β -barium borate », in *Opt. Comm.* 211, pp. 277-282 (2002).
- [Ilev 02] I.K. Ilev, R.W. Waynant, "Tunable Solid-State Ultraviolet and Vacuum Ultraviolet Lasers", in *Ultraviolet spectroscopy and UV lasers*, chap 7, P. Misra, M.A. Dubinskii eds, Dekker 2002.
- [Isyanova 01] Y. Isyanova, J.G. Manni, D. Weldford, "High power, passively Q-switched microlaser-power amplifier system", in *OSA Trends in Optics and Photonics, Advanced Solid-State Lasers (Optical Society of America, Washington, DC 2001)*, pp. 107-109 (2001).
- [Ito 79] H. Ito, H. Yokoyama, S. Murata, H. Inaba, "Picosecond optical pulse generation from an r.f. modulated AlGaAs double heterostructure diode laser", in *Elect. Lett.* 15, pp. 738-740 (1979).
- [Johnston 88] T. Johnston, "High power single frequency operation of dyes over the spectrum from 364 nm to 524 nm pumped by an ultraviolet argon ion laser », in *Opt. Comm.* 69, pp. 147-152 (1988).
- [Joubert 03] M.F. Joubert, R. Moncorgé, "Rare-earth doped crystals for UV tunable solid state lasers", in *Opt. Mat.* 22, pp. 95-98 (2003).
- [Jundt 97] D.H. Jundt, "Temperature dependant Sellmeier equation for the index of refraction n_e in congruent lithium niobate", in *Opt. Lett.* 22, pp. 1553-1555 (1997).
- [Kachynski 03] A.V. Kachynski, V.A. Orlovich, A.A. Bui, V.D. Kopachevsky, A.V. Kudryakov, W. Kiefer, "All solid state pulsed ultraviolet laser widely tunable down to 188.5 nm", in *Opt. Comm.* 218, pp. 351-357 (2003).
- [Kaneda 96] Y. Kaneda, S. Kubota, "CW 355 nm generation by doubly-resonant sum-frequency mixing in an external resonator", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol 1, Advanced Solid-State Lasers, S.A. Payne, C.R. Pollock, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1996)*, pp. 352-355 (1996).

- [Kato 85] K. Kato, "High-power difference-frequency generation at 4.4-5.7 μm in LiIO_3 ", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 21, pp.119-121 (1985).
- [Kato 86] K. Kato, "Second-harmonic generation to 2048 $\text{\AA}$ in $\text{B-B}_2\text{O}_4$ ", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 22, pp. 1013-1014 (1986).
- [Kato 90] K. Kato, "Tunable UV generation to 0.2325 μm in LBO", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 26, pp. 1173-1175 (1990).
- [Kato 94] K. Kato, "Temperature-tuned 90° phase-matching properties of LiB_3O_5 ", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 30, pp. 2950-2952 (1994).
- [Kato 95] K. Kato, "Tunable UV generation to 0.185 μm in CsB_3O_5 ", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 31, pp. 169-171 (1995).
- [Kondo 98] K. Kondo, M. Oka, H. Wada, T. Fukui, N. Umez, K. Tatsuki, S. Kubota, "Demonstration of long-term reliability of a 266-nm, continuous-wave, frequency-quadrupled solid-state laser using b-BaB₂O₄", in *Opt. Lett.* 23, pp.195-198 (1998).
- [Keller 94] U. Keller, "Ultrafast All-Solid-State laser technology", in *Appl. Phys B* 58, pp. 347-363 (1994).
- [Keller 96] U. Keller, K.J. Weingarten, F.X. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I.D. Jung, R. Fluck, C. Hönniger, N. Matuschek, J. Aus der Au, "Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM's) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 2, pp. 435-453 (1996).
- [Klein 98] M. E. Klein, D.-H. Lee, J.-P. Meyn, B. Beier, K.-J. Boller, R. Wallenstein, "Diode pumped cw widely tunable optical parametric oscillator based on periodically poled lithium tantalite", in *Opt. Lett.* 23, pp. 831-833 (1998).
- [Kleinman 62] D.A. Kleinman, "Non-linear dielectric polarization in optical media", in *Phys.Rev.* 126, pp. 1977-1979 (1962).
- [Kleinman 72] D.A. Kleinman, "Optical harmoni generation in nonlinear media", in *Laser Handbook 2*, Amsterdam, 1972, ch. E4, pp. 1229-1258.
- [Kliner 02] D.A.V. Kliner, F. Di Teodoro, J.P. Koplow, S.W. Moore, A.V. Smith, "Efficient second, third, fourth and fifth harmonic generation of a Yb-doped fiber amplifier", in *Opt. Comm.* 210, pp. 393-398 (2002).
- [Kliner 97] D.A.V. Kliner, J.P. Koplow and L. Goldberg, "Narrow-band, tunable, semiconductor laser based source for deep UV absorption spectroscopy", in *Opt. Lett.* 22, pp. 1418-1420 (1997).
- [Knittel 97] J. Knittel, A.H. Kung, "39.5% conversion of low-power Q-switched Nd:YAG laser radiation to 266 nm by use of a resonant ring cavity", in *Opt. Lett.* 22, pp. 366-368 (1997).
- [Koechner 76] W. Koechner, *Solid state laser engineering*, New York, Springer Verlag (1976).
- [Kojima 00] T. Kojima, S. Konno, S. Fujikawa, K. Yasui, K. Yoshizawa, Y. Mori, T. Sasaki, M. Tanaka, Y. Okada, "20-W ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser", in *Opt. Lett.* 25, pp. 58-60 (2000).
- [Koplow 98] J.P. Koplow, D.A.V. Kliner and L. Goldberg, "Developpement of a narrow band, tunable, frequency quadrupled diode laser for UV absorption spectroscopy", in *Appl. Opt.* 37, pp. 3954-3960 (1998).
- [Koprinkov 94] I. G. Koprinkov, G. A. Naylor, J. P. Pique, "Generation of 10 mW tunable narrowband radiation around 210 nm using a 6.5 kHz repetition rate copper vapour laser pumped dye laser", in *Opt. Comm.* 104, pp. 363-368 (1994).
- [Krausz 91] F. Krausz, T. Brabec, C. Spielmann, "Self starting passive mode locking", in *Opt. Lett.* 16, pp. 235-237 (1991).

- [Krausz 93] F. Krausz, T. Brabec, "Passive mode locking in standing wave laser resonator", in *Opt. Lett.* 18, pp 888-890 (1993).
- [Larat 95] C. Larat, M. Schwarz, J.P. Pocholle, G. Feugnet, M. Papuchon, "High repetition rate solid-state laser for space communication", in *SPIE* Vol. 2381, pp. 256-263 (1995).
- [LASIK] <http://www.lasikinstitute.org>
- [Levi 01] Levi, T. J. Pinguet, T. Skauli, L. A. Eyres, L. Scaccabarozzi, M. M. Fejer, J. S. Harris Jr, T. J. Kulp, S. Bisson, B. Gerard, L. Becouarn, E. Lallier "Mid-infrared generation by difference-frequency mixing in orientation patterned GaAs" in *Conference on Laser and Electro-Optics 2001, postdeadline paper CPD21* (2001).
- [Levine 75] B.F. Levine, C.G. Bethea, R.A. Logan, "Phase-matched second harmonic generation in a liquid-filled waveguide", in *Appl. Phys. Lett.* 26, pp. 375 (1975).
- [Lieberman 91] Jacob Liberman, "Light: Medicine of the Future" (Santa Fe: Bear, 1991): pp. 141-44.
- [Liu 97] J. Liu, R.M.A. Azzam, "Polarization properties of corner-cube retroreflectors: theory and experiment", in *Appl. Opt.* 36, pp. 1553-1559 (1997).
- [Liu 97] Z. Liu, N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, Y. Segawa, M.A. Dubinskii, V. Semashko, A.K. Naumov, S.L. Korableva, R.Y. Abdulsabirov, "14 mJ, 1 nsec, 289 nm pulses from an all solid state Ce:LiCAF master oscillator and power amplifier system", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol X, Advanced Solid-State Lasers*, C.R. Pollock, W.R. Bosenberg, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1997), pp. 24-26 (1997).
- [Lohmeier 96] L. Lohmeier, "Let the Sun Shine In", East West (July 1996): pp. 36-39.
- [Lu 96] Y.L. Lu, Y.Q. Lu, J.J. Zheng, C.C. Xue, X.F. Cheng, G.P. Luo, "Efficient continuous wave blue light generation in optical superlattice LiNbO₃ by direct frequency doubling a 978 nm InGaAs diode laser", in *Appl. Phys. Lett.* 69, pp. 1660 (1996).
- [Lucas-Leclin 00] G. Lucas-Leclin, F. Augé, S.C. Auzanneau, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, F. Mougel, G. Aka, D. Vivien. « Diode-pumped self-frequency-doubling Nd:GdCa₄O(BO₃)₃ lasers : towards green microchip lasers" in *J. Opt. Soc. Am. B* 17, pp. 1526-1530, (2000).
- [Madsen 02] D.N. Madsen, P. Yu, S. Bahlsev and J.W. Thomsen, "Generation of 99 mW cw 285 nm radiation for magneto optical trapping of Mg atoms", in *Appl. Phys. B* 75, pp. 835-839 (2002).
- [Maiman 60] T.H. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby lasers", in *Nature* 187, pp 493 (1960).
- [Maker 62] Maker, Terhune, Nisenoff, Savage, "Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics", in *Phys. Rev. Letters*, Vol. 8, No. 1, 21-22 (1962).
- [Malus 1810] E.L. Malus, "Théorie de la double réfraction de la lumière", mémoire couronné par l'Institut, pp. 221 (1810).
- [Mans 03] T. Mans, P. Rußbüldt, D. Hoffmann, R. Poprave, "Direct diode pumped, regenerative 100 µJ sub 100 fs amplifier on the basis of colquiriite crystals", in *Conference on Laser and Electro-Optics 2003 (Munich, Allemagne), paper CH4-4-WED* (2003).
- [Marshall 93] L.R. Marshall, A. Kaz, O. Aytur, "Continuously tunable diode-pumped UV-blue laser source", in *Opt. Lett.* 18 pp. 817-819 (1993).
- [Masuda 97] H. Masuda, H. Kikuchi, H. Mori, K. Kaneko, M. Oka, S. Kubota, "Single frequency 0.5W generation at 213 nm from an injection-seeded, diode pumped, high repetition rate, Q-switched ND:YAG laser", in *OSA Trends*

- in Optics and Photonics vol X, Advanced Solid-State Lasers, C.R. Pollock, W.R. Bosenberg , eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1997), pp. 2-6 (1997).*
- [Maxwell 1864] J.C. Maxwell, "A dynamical theory of the electromagnetic field", in *Scientific papers* vol.1, pp. 526 (1864).
- [McGonigle 99a] A.J.S. McGonigle, S.W. Coutts, C.E. Webb, "530 mW 7 kHz cerium LiCAF laser pumped by the sum frequency mixed output of a copper vapour laser", in *Opt. Lett.* 24, pp. 232-234 (1999).
- [McGonigle 99b] A.J.S. McGonigle, S.Girard, S.W. Coutts, R. Moncorgé, "10 kHz continuously tunable Ce:LuLiF laser", in *Elect. Lett.* 35 pp. 1640-1641 (1999).
- [McGonigle 01] A.J.S. McGonigle, S.W. Coutts, S. Girard, R. Moncorgé, "A 10 kHz cerium LiSAF laser pmped by the sum frequency mixed output of a copper vapour laser", in *Opt. Comm.* 193, pp. 233-236 (2001).
- [McKinnon 94] N. MacKinnon, B.D. Sinclair, "A laser diode array pumped, Nd: YVO₄/KTP, composite material microchip laser" in *Opt. Comm.* 105, pp. 183 (1994).
- [Mehuys 93] D. Mehuys, D. Welch, D. Scifres, "1W CW, diffraction limited, tunable external cavity semiconductor laser", in *Elect. Lett.* 29 pp. 1254 (1993).
- [Meilhac 02] L. Meilhac, G. Pauliat, G. Roosen, « determination of the energy diffusion and of the Auger upconversion constants in a Nd :YVO₄ standing-wave laser", in *Opt. Comm.* 203, pp. 341-347 (2002).
- [Meyn 01] J.P. Meyn, C. Laue, R. Knappe, R. Wallenstein, M.M. Fejer, "Fabrication of periodically poled lithium tantalate for UV generation with diode lasers", in *Appl. Phys. B.* 73, pp. 111-114 (2001).
- [Meyn 99] J.P. Meyn, M.E. Klein, D.Woll, R.Wallenstein, D.Rytz, "Periodically poledpotassium niobate for second-harmonic generation at 463nm", in *Opt. Lett.* 24 pp.1154 (1999).
- [Miller 96] G.D.Miller, R.G.Batchko, M.M.Fejer, R.L.Byer, "Visible Quasi-Phasematched Harmonic Generation by Electric-Field-Poled Lithium Niobate," in *SPIE Proceedings on Nonlinear Frequency Generation and Conversion* 2700, pp. 34 (1996).
- [Miller 97] G.D Miller, R.G Batchko, W.M Tulloch, D.R Weist, M.M Fejer and R.L Byer, "42%-efficientsingle-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate" in *Opt. Lett.* 22 pp.1834-1836 (1997).
- [Miller 62] Miller, Savage, "Harmonic generation and mixing of CaWO₄:Nd³⁺ and ruby pulsed laser beams in piezoelectric crystals", in *Phys. Rev.*, Vol. 128, No. 5, 2175-2179 (1962).
- [Mirov 01] S. B. Mirov, V. V. Fedorov, B. Boczar, R. Frost and B. Pryor, "All-solid-state laser system tunable in deep ultraviolet based on sum-frequency generation in CLBO" in *Opt. Comm.* 198, pp. 403-406 (2001).
- [Mizuuchi 96] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, "Generation of 340-nm light by frequency doubling of a laser diode in bulk periodically poled LiTaO₃" in *Opt. Lett.* 21, pp. 107-109 (1996).
- [Mizuuchi 03] K.Mizuuchi, A.Morikawa, T.Sugita, K.Yamamoto, "Generation of 360 nm ultraviolet light in first order periodically poled bulk MgO:LiNbO₃", in *Opt. Lett.* 28, pp. 935-937 (2003).
- [Mohamed 02] A.K. Mohamed, A. Mustelier, J.P. Faleni, E. Rosencher, "Tunable ultraviolet intracavity tripled Ti:Sapphire laser", in *Opt. Lett.* 27, pp. 1457-1459 (2002).
- [Mondelain 01] D. Mondelain, "Lidar linéaire et non-linéaire dans l'infrarouge moyen", *thèse de doctorat de l'université de Lyon I* (2001).

- [Mori 95] Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, "New nonlinear optical crystal: Cesium lithium borate", in *Appl. Phys. Lett.*, 67, p. 1818 (1995).
- [Moulton 86] P.F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ", in *J. Opt. Soc. Am. B* 3, pp. 125 (1986).
- [Myers 95] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, J.W. Pierce, "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO_3 ", in *J. Opt. Soc. Am. B* 12, pp. 2102 (1995).
- [Myers 97] L.E. Myers, W.R. Bosenberg, "Periodically poled lithium niobate and quasi-phases-matched optical parametric oscillators", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 33 pp. 1663 (1997).
- [Nebel 91] A. Nebel, R. Beigang, "External frequency conversion of cw mode locked $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ laser radiation", in *Opt. Lett.* 16, pp. 1729-1731 (1991).
- [O'Brien 99] D.C. O'Brien, G.E. Faulkner, D.J. Edwards, "Optical properties of a retroreflecting sheet", in *Appl. Opt.* 38, pp. 4137-4144 (1999).
- [Oron 99] R. Oron, A. Hardy, "Rayleigh backscattering and amplified spontaneous emission in high power ytterbium doped fiber amplifiers", in *J. Opt. Soc. Am. B* 16, pp. 695-701 (1999).
- [Ortega 96] J.M. Ortega, "Le laser à électrons libres" in *Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales*, eds C. Fabre et J.P. Pocholle, Les éditions de physique, p. 233 (1996).
- [Ouvrard 1890] L. Ouvrard, M. Troost, in *Compt. Rend.* 111, pp. 1977 (1890).
- [Papadopoulos 03] D. Papadopoulos, S. Forget, F. Balembois, F. Druon and P. Georges, "Passively mode-locked diode-pumped Nd:YVO_4 oscillator operating at ultra-low repetition rate", *Optics Letters* 28, pp. 1838-1840 (2003).
- [Papadopoulos 04] D. Papadopoulos, S. Forget, F. Balembois, S. Lévêque-Fort, M-P Fontaine-Aupart and P. Georges, "Ultra-long cavity passively mode-locked diode-pumped Nd:YVO_4 laser", à paraître dans *Advanced Solid State Photonics* 2004.
- [Papayannis 98] A.D. Papayannis, G.N. Tsikrikas, A.A. Serafetinides, "Generation of UV and VIS laser light by stimulated Raman scattering in H_2 , D_2 and H_2/He using a pulsed Nd:YAG laser at 355 nm", in *Appl. Phys. B* 67, pp. 563-568 (1998).
- [Pashotta 97] R. Pashotta, J. Nilsson, A.C. Tropper, D.C. Hanna, "Ytterbium doped fiber amplifiers", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 33, pp. 1049-1056 (1997).
- [Payne 89] S.A. Payne, L.L. Chase, L.K. Smith, W.L. Kway, H.W. Newkirk, "Laser performance of $\text{LiSrAlF}_6:\text{Cr}^{3+}$ " in *J. Appl. Phys.* 66 pp. 1051 (1989).
- [Peck 62] E.R. Peck, "Polarization properties of corner reflectors and cavities", in *J. Opt. Soc. Am.* 52, pp. 253-257 (1962).
- [Petersen 97] A.B. Petersen, "All solid state 228-240 nm source based on Ce:LiCAF ", in *Advanced Solid State Laser 1997 technical digest*, C.R. Pollock, W.R. Bosenberg Eds, OSA, paper PD-2, (1997).
- [Pinto 94] J.F. Pinto, G.H. Rosenblatt, L. Esterowitz, G.J. Quarles, "Tunable solid state laser action in $\text{Ce}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$ ", in *Elect. Lett.* 30, pp. 240-241 (1994).
- [Pinto 97] J.F. Pinto, L. Esterowitz, T.J. Carrig, "solid state UV radiation from 223 – 243 nm", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol X, Advanced Solid-State Lasers*, C.R. Pollock, W.R. Bosenberg, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1997), pp. 14-15 (1997).
- [Plaessam 93] H. Plaessam, S.A. Ré, J.J. Alonis, D.L. Vecht, W.M. Grossmann, "Multipass diode-pumped solid-state optical amplifier", in *Opt. Lett.*, 18, pp. 1420-1422 (1993).
- [Poirier 93] P. Poirier, F. Hanson, "Intracavity frequency doubling of a 2.5 kHz pulsed $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ laser", in *Opt. Lett.* 18, pp. 1925-1927 (1993).

- [Powers 98] P.E. Powers, T.J. Kulp, S.E. Bisson, "Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design", in *Opt.Lett.* 23, pp. 159 (1998).
- [Rabinowitz 62] P.Rabinowitz, S.F. Jacobs, T.Shultz, G.Gould, "Cubs-corner Fabry-Perot interferometer", in *J. Opt. Soc. Am.* 52, pp. 452-453 (1962).
- [Rambaldi 98] P. Rambaldi, R. Moncorgé, J.P. Wolf, C. Pédrini, J.Y. Gesland, "Efficient and stable pulsed laser operation of Ce:LiLuF₄ around 308 nm", in *Opt. Comm.* 146, pp. 163-166 (1998).
- [Rehse 02] S.J. Rehse, S.A. Lee, "Generation of 125 mW frequency stabilized cw tunable light at 295 nm by frequency doubling in a BBO crystal", in *Opt.Comm.* 213, pp. 347-350 (2002).
- [Rockat 99] E. Rockat, K. Haroud, R. Dandliker, "High power Nd-doped fiber amplifier for coherent intersatellite links", in *IEEE J. of Quant. Elect.*, 35, pp. 1419-1423 (1999).
- [Roissé 95] E.Roissé, A. Barthélémy, "Amplificateur laser multipassage pompé par diode", *Colloque sur les lasers et l'optique quantique COLOQ 4*, pp 117, Palaiseau (1995).
- [Roissé 99] E. Roissé, V. Couderc, A. Barthélémy, F. Lauradour, "Intracavity frequency-tripling of actively mode-locked diode-pumped Nd :YAG laser", in *Appl. Phys. B* 69, pp. 89-91 (1999).
- [Rosencher 98] E. Rosencher, B. Vinter, Optoélectronique, Masson Eds, (1998).
- [Roth 98] U. Roth, T. Graf, E. Rochat, K. Haroud, J. Balmer, H.P Weber, "Saturation, gain and noise properties of a multipass diode-laser-pumped Nd:YAG cw amplifier", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 34, pp.1987-1991 (1998).
- [Rustagi 82] K.C. Rustagi, S.C. Mehendale, S. Rakshi, "Optical frequency conversion in quasi phase matched stacks of non-linear crystals", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 18, pp.1029-1041.
- [Sakuma 00] J. Sakuma, K. Deki, A. Finch, Y. Ohsako, T. Yokota, "All solid state high power deep UV laser system based on cascaded sum-frequency mixing in CLBO crystals", in *Appl. Opt.* 39, pp. 5505-5511 (2000).
- [Sasaki 03] T. Sasaki, Y. Mori, M. Yoshimura, "Progress in the growth of a CLBO crystal and its application to UV light generation", à paraître in *Optical Materials* (2003).
- [Sayama 97] S. Sayama, M. Ohtsu, "Tunable UV CW generation by frequency tripling of a Ti:sapphire laser", in *Opt. Comm.* 137, pp. 295-298 (1997).
- [Sayama 98] S. Sayama, M. Ohtsu, "Tunable UV CW generation at 276 nm wavelength by frequency conversion of laser diodes", in *Opt. Comm.* 145, pp. 98-97 (1998).
- [Schnitzler 02] H. Schnitzler, U. Fröhlich, T.K.W. Boley, A.E.M. Clemen, J. Mlynek, A. Peters, S. Schiller, "All solid state tunable continuous -wave ultraviolet source with high spectral purity and frequency stability", in *Appl. Opt.* 41, pp. 7000-7005 (2002).
- [Schwedes 03] C. Schwedes, E. Peik, J. Von Zanthier, A.Y. Nevsky, H. Walther, "Narrow-bandwidth diode-laser-based blue and ultraviolet light source", to be published in *Appl. Phys. B* (2003).
- [Seifert 94] F. Seifert, J. Ringling, F. Noack, V. Petrov, O. Kittelmann, "Generation of tunable femtosecond pulses to as low as 172.7 nm by sum-frequency mixing in lithium niobate", in *Opt. Lett.* 19, pp. 1538-1540 (1994).
- [Sennaroglu 00] A. Sennaroglu "Influence of neodymium concentration on the strength of thermal effects in continuous-wave diode-pumped Nd:YVO₄ lasers at 1064 nm", in *Optical and Quantum Electronics* 32, 1307-1317 (2000).

- [Shen 76] Y.R. Shen, "Recent advances in nonlinear optics", in *Rev. Mod. Phys.*, vol. 48, pp. 1-32 (1976).
- [Shen 84] Y.R. Shen, "The principles of non-linear optics", John Wiley and sons eds, USA (1984).
- [Shopard 97] D.P. Shopard, C.T.A. Brown, T.J. Warburton, D.C. Hannor and A.C. Tropper, "A diode-pumped, high gain, planar waveguide Nd:Y3Al5O12 amplifier", in *Appl. Phys. Lett.*, 71, pp. 876-878, (1997).
- [Shripko 91] G.A. Shripko, S.G. Bartoshevich, I.V. Mikhnyuk, I.G. Tarazevich, "LiB3O5 : a highly efficient frequency converter for Ti:sapphire lasers"; in *Opt. Lett.* 16, pp. 1726-1728 (1991).
- [Smith 63] Smith, Braslau, "Observation of an optical difference frequency", *J. Appl. Phys.* 34, No. 2, 2105-2106 (1963).
- [Snell 00] K.J. Snell, D.Lee, K.F.Wall, P.F. Moulton, "Diode-pumped, high-power CW and modelocked Nd:YLF lasers", in *OSA Trends in Optics and Photonics, Advanced Solid-State Lasers (Optical Society of America, Washington, DC 2000)*, pp. 55-59 (2000)
- [Spiekermann 01] S. Spiekermann, M. Bode, I. Freitag, F. Laurell, "Ultraviolet single-frequency pulses with high average power using frequency converted passively Q-switched quasimonolithic Nd:YAG ring laser", in *Appl. Phys. Lett.* 79, pp. 458-460 (2001).
- [Spühler 99] G.J. Spühler, R. Paschotta, R. Fluck, B. Braun, M. Moser, G. Zhang, E. Gini, U. Keller, "Experimentally confirmed design guidelines for passively Q-switched microchip lasers using semiconductor saturable absorbers", in *J. Opt. Soc. Am* 16, pp. 376-388 (1999).
- [Stamm 97] U. Stamm, W. Zschocke, T. Schröder, N. Deutsch, D. Basting, "High efficiency UV-conversion of a 1 kHz diode-pumped Nd:YAG laser system", in *OSA Trends in Optics and Photonics vol X, Advanced Solid-State Lasers, C.R. Pollock, W.R. Bosenberg , eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1997)*, pp. 7-9 (1997).
- [Steele 91] T. R. Steele, D. C. Gerstenberger, A. Drobshoff, R. W. Wallace, "Broadly tunable high-power operation of an all-solid-state titanium-doped sapphire laser system", in *Opt. Lett.* 16, pp.399-401 (1991).
- [Stevens 37] F. A. Stevens, "The Bacteriocidal Properties of UV-Irradiated Lipids of the Skin," *Journal of Experimental Medicine* 65 (1937) pp. 121 (1937).
- [Streifer 88] W. Streifer, D.Scifres, G. Harnagel, D. Welch, J? Berger, M. Sakamoto, "Advances in laser diode pumps" in *IEEE J. of Quant. Elec.* QE 24, pp. 883-894 (1988).
- [Szabo 65] A. Szabo, R.A. Stein, "Theory of giant pulsing by saturable absorber", in *J. Appl. Phys. B* 36, pp. 1562-1570 (1965).
- [Taira 92] Y. Taira, in *Jpn. J. Appl. Phys.* 31, L682 (1992).
- [Taya 96] M.Taya, M.C. Bashaw, M.M. Fejer, "Photorefractive effects in periodically poled ferroelectrics", in *Opt. Lett.* 21, pp. 857-859 (1996).
- [Tidwell 93] S.C. Tidwell, J.F. Seamans, D.D Lowenthal, G. Matone, G. Giordano, "Efficient high-power UV generation by use of a resonant ring driven by a cw mode-locked IR laser", in *Opt. Lett.* 18, pp. 1517-1519 (1993).
- [Tidwell 97] S.C. Tidwell, J.Seamans and P.Roper, *paper CPD25 in Conf. on Lasers and Electro-Optics (CLEO'97), 1997 OSA Technical Digest Series, Washington DC: Optical Society of America* (1997).
- [Trickett 98] R.I. Trickett, M.J. Withford, D.J. Brown, "4.7 W, 255 nm source based on second-harmonic generation of a copper-vapor laser in cesium lithium borate", in *Opt. Lett.* 23, pp 189-191 (1998).
- [Uchiyama 97] Y. Uchiyama, M. Tsuchiya, H-F. Liu, T. Kamiya, "Efficient ultraviolet light (345 nm) generation in a bulk LiO3 crystal by frequency doubling of

- a self-seeded gain-switched AlGaInP Fabry-Perot semiconductor laser”, in *Opt. Lett.* 22, pp. 78-80 (1997).
- [Umemura 99] N. Umemura, K. Yoshida, T. Kamimura, Y. Mori, T. Sasaki, K. Kato, in *OSA Trends in Optics and Photonics vol 26, Advanced Solid-State Lasers*, M.M. Fejer, H. Injeyan and U. Keller, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1999), pp. 715-718 (1999).
- [Van der Poel 90] C.J. Van der Poel, J.D. Bierlein, J.B. Brown, S. Colak, “Efficient type I blue second-harmonic generation in periodically segmented KTiOPO₄ waveguides”, in *Appl. Phys. B* 57 pp.2074 (1990).
- [Vanherzeele 88] H. Vanherzeele, J.D. Bierlein, F.C. Zumsteg, “Index of refraction measurement and parametric generation in hydrothermally grown KTiOPO₄”, in *Appl. Opt.* 27, pp. 3314 (1988).
- [Victori 98] S. Victori, « Étude de l’affinement spectral d’un oscillateur paramétrique optique en régime nanoseconde par insertion d’un cristal photoréfractifs. Modélisation des OPO monomodes », *Thèse de doctorat de l’université Paris XI* (septembre 2001).
- [Wall 02] K.F. Wall, J.S. Smucz, Y. Isyanova, B. Pati, J. Manni, P.F. Moulton, “A 200 mW 205 nm quasi CW deep ultraviolet laser source”, in *OSA Trends in Optics and Photonics vol 66, Advanced Solid-State Lasers*, M.E. Fermann, L.R. Marshall, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 2002), pp. 461-463 (2002).
- [Wang 98] S. Wang, V. Pasiskevicius, F. Laurell, H. Karlsson, “Ultraviolet generation by first-order frequency doubling in PPKTP”, in *Opt. Lett.* 23, pp. 1883-1885 (1998).
- [Wang 99] S. Wang, V. Pasiskevicius, J. Hellström, F. Laurell, H. Karlsson, “First-order type II quasi-phase matched UV generation in PPKTP”, in *Opt. Lett.* 24, pp. 978-980 (1999).
- [Wejbörn 89] J. Wejbörn, F. Laurell, G. Arvidsson, in *J. Lightwave. Technol.* 7, pp. 1597 (1989).
- [Wejbörn 94] J. Wejbörn, V. Pruneri, P.S.J. Russel, J.R.M. Barr, D.C. Hanna, “Quasi-phase-matched blue light generation in bulk lithium niobate, electrically poled via periodic liquid electrodes”, in *Elect. Lett.* 30 pp. 894 (1994).
- [Whiters 93] D.E. Withers, G. Robertson, A.J. Henderson, Y. Tang, Y. Cui, W. Sibbett, B.D. Sinclair, M.H. Dunn, “Comparison of LBO and BBO as nonlinear media for optical parametric oscillators”, in *J. Opt. Soc. Am. B*, 10, pp. 1737-1743 (1993).
- [Wiechman 93] W. Wiechmann, S. Kubota, T. Fukui, H. Masuda, “Refractive-index temperature derivatives of potassium titanyl phosphate”, in *Opt. Lett.* 18, pp.1208-1210 (1993).
- [Wyon 92] C. Wyon, “Nouveaux matériaux non linéaires pour la conversion de fréquence”, in *Annales de Physique*, colloque 1 vol 17 pp. 151-158 (1992).
- [Yamada 93] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe, “First order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation”, in *Appl. Phys. Lett.* 62, pp.435 (1993).
- [Yariv 84] A. Yariv, “Optical waves in crystals”, Wiley eds. New York p. 530 (1984).
- [Yariv 85] Introduction to optical electronics, chap 8, Holt, Rinehart, Winston 1985.
- [Yariv 88] A. Yariv, “Quantum electronics”, troisième édition, John Wiley and sons, Singapour (1988).
- [Zanger 99] E. Zanger, R. Müller, B. Liu, M. Kötteritzsch, W. Gries, “Diode-pumped solid-state laser at 266 nm”, in *OSA Trends in Optics and Photonics vol 26, Advanced Solid-State Lasers*, M.M. Fejer, H. Injeyan and U. Keller, eds. (Optical Society of America, Washington, DC 1999), pp. 104-111 (1999).

- [Zawisha 99] I. Zawischa, K. Plaman, C. Fallnich, H. Welling, H. Zellner, A. Tunnermann, "All solid-state neodymium band single frequency master oscillator fiber power amplifier system emitting 5,5 W of radiation at 1064 nm", in *Opt. Lett.*, 24, pp. 469-471 (1999).
- [Zayhowski 91a] J.J. Zayhowski, "Q-switched operation of microchip lasers", in *Opt. Lett.* 16, pp. 575-577 (1991).
- [Zayhowski 91b] J.J. Zayhowski, P.L. Kelley, "Optimization of Q-switched lasers", in *IEEE J. of Quant. Elect.* 27, pp. 2220-2225 (1991).
- [Zayhowski 92] J.J. Zayhowski, C. Dill III, "Diode-pumped microchip lasers electro-optically Q-switched at high pulse repetition rates", in *Opt. Lett.* 17, pp. 1201-1203 (1992).
- [Zayhowski 94] J.J. Zayhowski, C. Dill III, "Diode-pumped passively Q-switched picosecond microchip lasers", in *Opt. Lett.* 19, pp. 1427-1429 (1994).
- [Zayhowski 96] J.J. Zayhowski, "Ultraviolet generation with passively Q-switched microchip lasers", in *Opt. Lett.* 15, pp. 588-590 (1996).
- [Zayhowski 97] J.J. Zayhowski, "Periodically poled lithium niobate optical parametric amplifiers pumped by high-power passively Q-switched microchip lasers", in *Opt. Lett.* 22, pp. 169-171 (1997).
- [Zayhowski 99] J.J. Zayhowski, "Passively Q-switched microchip lasers find real-world applications", in *Laser Focus World*. Tulsa, Penwell publishing, vol 35 pp. 129-136 (1999).
- [Zayhowski 99] J.J. Zayhowski, "Miniature, high power 355-nm laser system", in *OSA Trends in Optics and Photonics, Advanced Solid-State Photonics*, M.M. Fejer, H. Injeyan and U. Keller, eds. Optical Society of America, Washington, DC 1999 (1999).
- [Zhang 93] J.Y. Zhang, J.Y. Huang, Y.R. Shen, C. Chen, "Optical parametric generation and amplification in BBO and LBO", in *J. Opt. Soc. Am. B* 10, pp. 1758-1764 (1993).
- [Zhou 96] W.L. Zhou, Y. Mori, T. Sasaki, S. Nakai, "High efficiency intracavity cw uv generation using crystals CLBO, BBO and LBO", in *Opt. Comm.* 123, pp. 583-586 (1996).
- [Zimmermann 95] C. Zimmermann, V. Vuletic, A. Hemmerich, T.W. Hänsch, "All solid state laser source for tunable blue and ultraviolet radiation", in *Appl. Phys. Lett.* 66, pp. 2318-2320 (1995).

SEBASTIEN FORGET

Petit résumé

Les sources laser font désormais partie intégrante des outils permettant d'étudier finement la matière ou le vivant. En particulier, la spectroscopie de fluorescence résolue en temps est une technique d'importance pour les biologistes. Elle nécessite de disposer de sources laser impulsives (de durée typiquement picoseconde) fonctionnant dans le visible ou l'ultraviolet. De plus, un taux de répétition de quelques MHz au plus est nécessaire si l'on cherche à étudier des temps de vie « longs » (plusieurs dizaines de nanosecondes).

Pour atteindre ce régime « picoseconde-MHz » tout en conservant simplicité et compacité à la source, il faut bâtir des cavités laser de dimension inhabituelles. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons donc mis au point deux types de laser : un microlaser déclenché ou « Q-switched » à cavité ultra courte (200 μm) et un hectolaser à verrouillage de mode ou « modelock » à cavité ultra longue (150 m). Le fonctionnement impulsif est obtenu dans les deux cas via un absorbant saturable à semiconducteur (« SESAM »). Les cristaux laser utilisés (Nd:YVO₄) permettent une émission dans l'infrarouge proche à 1064 nm : si la durée des impulsions produites ainsi que leur cadence satisfont au cahier des charges, leur longueur d'onde doit être convertie vers le visible et l'UV. Pour ce faire, nous avons développé une structure amplificatrice originale basée sur l'utilisation tridimensionnelle de la zone de gain dans un amplificateur solide multipassage. Grâce à cet amplificateur original (qui a donné lieu au dépôt d'un brevet avec JDS Uniphase), l'énergie de nos lasers est suffisante pour pouvoir utiliser un certain nombre d'effets non-linéaires. Nous avons mis au point des étages de doublement, triplement et quadruplement de fréquence pour atteindre l'UV ainsi qu'un étage de génération paramétrique optique dans un cristal de niobate de lithium périodiquement polarisé (ppLN) pour avoir accès à une large accordabilité dans la gamme visible du spectre.

Mots-clés : Microlaser, Hectolaser, Nd:YVO₄, déclenchement passif, verrouillage de mode passif, cavité géante, absorbant saturable à semi-conducteur (SESAM), MOPA, amplificateur solide multipassage, amplificateur tridimensionnel, optique non-linéaire, génération d'harmoniques, génération paramétrique optique, fluorescence résolue en temps.

Short Abstract

Laser sources are now extensively used by the biologists in their studies. In particular, the time resolved fluorescence lifetime imaging is a powerful way to obtain quantitative information on active molecules and their neighbourhood. To efficiently use this technique, a pulsed laser source operating in the visible or ultraviolet part of the spectrum is needed : the pulse duration should stand in the picosecond range – to be able to study short lifetimes - whereas the repetition rate has to be around some MHz - to study long lifetimes (some tens of nanoseconds). The classical pulsed lasers work in the Q-switched (the repetition rate is then typically around 50 kHz, and the pulse duration is some nanoseconds) or in the modelocked regime (around 100 MHz and some picoseconds) : in both case, it is not straightforward to obtain short pulses at this “medium” repetition rate in a simple and compact structure : one has to built very short cavities to shorten the pulse duration of the Q-switched laser or very long cavities to decrease the repetition rate of the modelocked laser. In this work we demonstrate a 200- μm long Q-switched microlaser as well as a 150 m long modelocked one (hectolaser), each of them producing picosecond pulses around 1 MHz of repetition rate in the infrared (1064 nm). The saturable absorber was a semiconductor (SESAM) and the laser crystal is Nd:YVO₄. We then develop a tridimensionnal multipass amplifier to increase the energy of the pulses. The original geometry of this amplifier allows optimized overlap between the pump and signal beam and leads to very efficient amplification (this structure was patented with JDS Uniphase). Finally, several non-linear stages are used to reach the UV (harmonic generation) and to obtain some tunability via optical parametric generation in a periodically poled lithium niobate crystal.

Keywords : Microlaser, Hectolaser, Nd:YVO, passive Q-switching, passive mode-locking, giant cavity, semiconductor saturable absorber (SESAM), MOPA, multipass amplification, 3D amplifier, non-linear optics, harmonic generation, optical parametric generation, time-resolved fluorescence.

Remerciements

Une âme délicate est gênée de savoir qu'on lui doit des remerciements, une âme grossière, de savoir qu'elle en doit.

F. Nietzsche

Depuis l'invention des thèses de doctorat, il est d'usage de commencer par remercier de façon plus ou moins approfondie et plus ou moins sincère un certain nombre de personnes : cet exercice est communément appelé « remerciements », et constitue l'ouverture indispensable de toute thèse digne de ce nom. Il faut également noter que pour bon nombre de gens la lecture attentive des remerciements constitue un préambule agréable et ludique au déchiffrement ardu du mémoire proprement dit, quand ladite lecture ne se limite pas à ces remerciements... ces derniers font par ailleurs d'excellents supports pour les bavardages et commérages en tout genre : tiens, il (elle) n'a pas remercié truc... Tiens, il (elle) a dédié sa thèse à un(e) certain(e) bidule... Tiens il (ou elle, bon on a compris) a fait une remarque discrètement vacharde envers machin... bien sûr, les remerciements étant en général des recueils de « *private jokes* », ils sont d'autant plus goûteux que l'on connaît les personnes concernées... L'importance de cette partie de la thèse dans l'inconscient collectif me conduit donc à y consacrer ce chapitre, astucieusement baptisé « remerciements ».

Ce chapitre s'articulera comme suit : dans une première partie, je réaliserai un rapide état de l'art, ne visant aucunement à l'exhaustivité, afin de cerner les différents types de remerciements que l'on peut trouver dans la littérature scientifique française, et en particulier dans ce haut lieu de l'optique qu'est le Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique. La seconde partie sera consacrée aux classiques mais néanmoins indispensables remerciements adressés aux membres du jury ayant accepté de juger mon travail de thèse. La dernière partie me permettra de remercier plus particulièrement les personnes m'ayant accompagné de façon directe ou indirecte lors de ces trois années. Enfin, je ne conclurai absolument pas ce travail par une conclusion tournée vers l'avenir...

Première Partie : Etat de l'Art

Malgré le nombre colossal de remerciements ayant été effectué depuis leur invention, il est frappant de noter combien leur forme est restée classique. Tout d'abord, la longueur des remerciements est en général calibrée à 2 voire 3 pages. Certains auteurs font cependant montre de courage en dépassant allégrement cette limite [Chanteloup 98][Chenais 02]. On peut dans ce cas s'interroger sur le pourquoi d'une telle débauche de « mercis » : volonté de ne froisser

personne ? Trop d'amis ? Manque de confiance en soi ? Incapacité à se limiter à une quantité raisonnable en toute chose ? D'autre part, la structure même des remerciements n'offre finalement que peu de variété : il est en effet délicat de trouver mémoire se départissant de la classique structure bipolaire consistant à commencer par remercier de façon brève et protocolaire les membres de son jury, avant de passer de façon beaucoup plus personnelle aux collègues et amis proches de l'auteur, et donc de par leur statut sujets à moult anecdotes plaisantes voire cocasses et remerciements passionnés. C'est dans la formulation même de ces remerciements qu'on peut heureusement trouver des perles regorgeant d'originalité et faisant le bonheur du remerciementophile.

Les grands classiques

Certaines formules sont utilisées de façon si constantes et répétées qu'on ne peut s'empêcher de soupçonner les auteurs de recopiage intempestif des remerciements des autres, ce qui est pour le moins pas beau. Néanmoins, afin de faciliter la rédaction des remerciements au thésard pressé ou peu inspiré, je me permettrais de conseiller les libellés suivants, classiques certes mais ayant fait leurs preuves : *Je tiens à exprimer toute ma gratitude (variante : toute ma reconnaissance) à X, je suis très sensible à l'honneur que me fait X, je tiens également à remercier X, mes remerciements vont à X*

Ces formules sont d'ordinaire à réserver à la partie officielle des remerciements, celle qui concerne les membres du jury. Elles ne sont à employer envers vos collègues de travail que si la thèse s'est réellement passée dans une ambiance déplorable : par exemple, *je tiens à exprimer toute ma gratitude à Patrick Georges pour avoir dirigé cette thèse*, mais ce n'est pas un bon exemple.

Certains auteurs n'hésitent pas à utiliser des expressions assez sobres pour remercier leurs proches collaborateurs, parfois sans les individualiser : ainsi Frédéric Druon achève t'il ses remerciements par un sobre « *je tiens à exprimer ma gratitude et ma sympathie envers tous les membres du groupe d'optique non-linéaire du LCFIO* » [Druon 00]. On notera l'utilisation du vocable « sympathie » qui permet de rendre ce remerciement un tantinet plus chaleureux et d'atténuer ainsi l'aridité d'une formulation si convenue qu'elle semble laisser transpirer une réelle animosité de l'auteur envers ses collègues. Cette économie de parole peut s'expliquer de différentes façons : le plus souvent, le thésard est pressé par le temps : les remerciements, rédigés en dernier (et souvent après la soutenance, donc en pleine décompression) et en quelques minutes, ne peuvent qu'être dénués de style. Il y'a aussi pour certains le cas mentionné plus haut de la thèse dite « toute pourrie » au niveau de l'ambiance : ils n'ont alors envie de remercier personne, ce qui transparait naturellement dans leur prose. Enfin il y'a les thésards par nature discrets et peu expansifs, qui préfèrent se retrancher derrière des formules sans âme pour dissimuler leur sensibilité à fleur de peau.

On trouve souvent au détour des remerciements une phrase un peu plus chaleureuse qui relate une rencontre spéciale, transformée en amitié pour la vie, par exemple : « *Je remercie tout particulièrement le professeur A.B, (...) qu'il trouve ici le témoignage sincère d'une profonde amitié* » [Georges 89]. Il est également courant de tenter d'en égayer le contenu en plaçant ça ou là une petite anecdote, souvent expérimentale, permettant de rompre la litanie monocorde des mercis : « *Merci à J.W. (...). J'ai grandement apprécié le travail en sa compagnie... Qui n'a jamais manqué de farces fracassantes !* » [Balembois 94] ou encore « *J'ai eu le plaisir de travailler avec E.A, et (...) de partager avec elle gâteaux, fous-rires et discussions sans fin* » [Lucas-Leclin 98].

Ces remerciements néanmoins convenus paraissent souvent ennuyeux : heureusement certains brisent parfois les chaînes des conventions établies...

Les originaux

Certains thésards font heureusement montre d'originalité dans leur façon de remercier : par exemple en jouant sur la forme en ajoutant des photographies pour illustrer leurs propos [Victori 01] ou en formant leurs remerciement sur des thématiques comme le théâtre [Aucouturier 97] par exemple. Certains autres, tout en restant dans le carcan classique que leur éducation bourgeoise leur interdit de transgresser, n'hésitent pas à étaler sur plusieurs pages et avec talent leurs mercis, faisant de ce petit préambule à la thèse un morceau de bravoure délectable⁹⁸. Le style utilisé est souvent chatoyant : un subtil mélange de liberté de ton et d'humour décalé, obtenus après maintes réécritures et reprises du texte, est un plaisir pour les sens [Chenais 02].

Il arrive cependant que certains auteurs, portés par une faconde et une verve peu commune, se laissent aller à remercier tout et (parfois) n'importe quoi⁹⁹. Il faut également noter qu'un tel travail, qui vaut à son auteur un succès assuré auprès d'un cercle réduit d'initiés, demande un temps bien plus conséquent que les remerciements dit « classiques » : on rapporte dans les milieux autorisés que quelques fanatiques ont passé plusieurs mois (!) à rédiger leurs remerciements.

Seconde Partie : Les membres du Jury et les collaborateurs

Je tiens avant tout à exprimer toute ma gratitude à Pierre Chavel pour m'avoir accueilli au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, ainsi qu'à Alain Brun qui dirige le groupe d'optique non-linéaire.

Je vais maintenant comme il se doit, et à juste titre, remercier les membres de mon jury. En particulier, je tiens à dire combien je suis conscient de l'honneur que m'ont fait Messieurs Alain Barthélemy et Richard Moncorgé en acceptant la charge ingrate mais indispensable de rapporteurs de ce travail. Je les remercie donc vivement ici, pour avoir lu et corrigé mon manuscrit avec soin et ainsi participé à son amélioration. Je remercie également Jean-Jacques Clair, président du jury, et Jean-Philippe Fève, pour avoir pris sur leur emploi du temps pourtant chargé afin de participer à ma soutenance. Enfin je remercie aussi Messieurs Georges et Balembois, même si leurs questions n'étaient pas terribles.

Comme le remarqueront les quelques courageux qui liront cette thèse, le travail effectué l'a été avec un objectif bien précis : réaliser un beau laser pour nos amis biologistes. Je profite

⁹⁸ Dans cette catégorie, il est fort à parier que l'œuvre de Sébastien Chenais [Chenais 02] restera longtemps comme une référence insurpassable.

⁹⁹ Ainsi peut on trouver dans [Chenais 02] un étonnant remerciement à un poisson, sur pas moins de 6 lignes. Dans le même esprit, certains n'hésitent pas à remercier leur chat [Lebrun 02]...

donc de l'occasion qui m'est donnée ici pour remercier les gens qui, en donnant un but à cette thèse, lui ont permis d'exister : il s'agit des gens du Laboratoire de Photophysique Moléculaire de l'Université Paris XI, et en particulier de Sandrine Lévêque-Fort. Sandrine, je te remercie également pour avoir bien voulu accepter la garde de mon hectolaser, c'était devenu une charge pour nous. Si tu n'avais pas été là, il aurait sans doute fini tristement sur une aire d'autoroute, et j'aurais eu de la peine en voyant ses grands yeux réfléchissant s'embuer de larmes en me voyant partir... Tandis que là je peux aller le voir quand je veux (et surtout le soigner quand il est malade).

Parmi les chemins de traverse qui ne manquent pas d'égayer une thèse, il en est un qui nous a conduit de manière inattendue jusqu'à l'orée du bois de la Recherche, là où vivent les Industriels. Grâce à eux, mon amplificateur va pouvoir connaître la joie de participer au retour de la croissance mondiale et va redresser le cours de l'action JDS Uniphase, et c'est bien. Je remercie donc Daniel Guillot, Jean-Michel Maillart, Pierre-Jean Devilder et Laurent Lefort qui, à Nanolase, ont cru dans notre système et l'ont transformé d'un coup de baguette magique d'une massive manip de laboratoire en un tout mignon composant industrialisable.

Troisième Partie : Les collègues et Amis

Voici maintenant venu le temps de remercier toutes les personnes qui, de près, de loin ou d'ailleurs, ont participé à la réalisation de cette thèse.

A tout seigneur tout honneur, je commencerais par mon directeur de thèse, **Patrick Georges**, et par écrire : merci Patrick. Bon c'est sûr ça paraît sobre comme ça, mais il y'a tant de chose dans ce merci... D'abord merci de m'avoir pris en thèse et de m'avoir offert un sujet aussi riche et passionnant. Ca a l'air bateau comme phrase mais je le pense vraiment, et pis je vais aller m'amuser à chaque fois à aller chercher des tournures tarabiscotées quand quelques simples adjectifs suffisent. Merci surtout d'avoir été présent durant ces trois ans malgré ton emploi du temps de ministre, d'avoir suivi les avancées (ou les reculs...) des travaux presque au jour le jour, enfin bref de ne pas avoir été un chef dans un bureau, qui ne descend plus en manip voire qui ne sait plus ce qui se passe dans son propre labo... En même temps merci d'avoir été un chef dans un bureau, un vrai : c'est toi (avec le Professeur bien sur) qui a donné les impulsions décisives à ce projet, tracé les grandes lignes, négocié les contrats, géré les collaborations etc. C'est ça Patrick : capable du plus grand recul sur les choses permettant de gagner un mois de travail ou plein de kiloeuros comme du petit conseil expérimental qui fait gagner 2 jours et ça fait bien plaisir. Merci aussi d'être une encyclopédie vivante des lasers, toujours au courant avant tout le monde (que c'est à se demander comment il fait) de la dernière diode de 30 W sur 100 microns qui vient de sortir (et chez qui et à quel prix) ou de comment est fait l'intérieur du Laser Bidule de chez Cohérent Physics. Enfin merci d'être Patrick, avec ta grande gueule (ah si si !), tes emportements et tes sautes d'humeur, tes blagues et tout le reste... Et bon courage pour ton futur poste de directeur du LOA.

J'en viens maintenant à l'autre figure marquante de cette thèse, j'ai nommé **le Professeur**. Selon certaines légendes ancestrales, colportées par des témoins de peu de foi, il paraîtrait que le Professeur avait dans le passé un nom comme vous et moi, banal, du genre François quelque chose (le patronyme exact s'est sans doute perdu dans les couloirs labyrinthiques de l'Institut

d'Optique...). J'en ris encore ! Tout le monde sait bien que le Professeur s'appelle le Professeur : d'ailleurs il suffit de le regarder pour s'en convaincre : seul un vrai Professeur peut avoir dans le regard cette droiture, cette assurance, ce calme caractéristique de celui qui Sait. Car le Professeur sait beaucoup de choses : il connaît par exemple toutes les raies d'émission de tous les cristaux lasers de notre monde, et comment les combiner pour avoir accès à toutes les longueurs d'ondes possibles et imaginables. D'aucun disent que cette omniscience lui a été donnée par une mutation génétique, provoquée par impact laser extrêmement puissant qui a laissé sur sa chevelure une indélébile et mystérieuse Marque Blanche... D'autres affirment qu'il tient ce savoir magique d'un grimoire secret dissimulé dans les profondeurs de son fameux « Tiroir enchanté ». Je ne sais où est la vérité : ce qui est sûr, c'est que le Professeur est capable de faire sortir de ce merveilleux tiroir tout ce que votre esprit de lasériste est capable de matérialiser : vous rêvez d'un cristal de LBO doubleur à 1064 nm traité AR sur ces deux faces ? Hop il sort du Tiroir. Vous préférez une pièce en cuivre capable d'accueillir un cristal de section 2x2 ? Une monture de doublet ? Une publi sur le walk-off ? Sur la valeur des sections efficaces du Nd :truc ? Hop hop hop sortis du Tiroir¹⁰⁰ ! Le Professeur est un sorcier : il n'y a maintenant plus aucun doute là-dessus. Quel être humain normalement constitué est capable d'encadrer 3 thèses, 2 stagiaires, 8 projets, de faire des rapports d'expertise, de donner des cours, des TDs et des TP, tout en maintenant sa bibliographie rigoureusement à jour et en assurant les fonctions de directeur des études adjoint et de responsable de la troisième année à SupOp, et ce en arrivant tous les jours à 9h30 et en repartant à 18 h ? Un surhomme ? Un super héros ? Un extraterrestre ? Le Professeur en est capable... Mais pour un sorcier, le Professeur est quand même super sympa : toujours de bonne humeur, toujours prêt à rigoler à toutes les blagues, toujours du temps à vous accorder alors que du temps, il en a pas des masses (voir plus haut) Il a toujours sous la main une idée de manip nouvelle, de sujet de projet, d'amélioration de manip qui lui est venu pendant qu'il plantait des carottes dans son jardin¹⁰¹, ou une idée d'idée : je n'en ai jamais vu autant dans une même tête (il doit avoir de sacrées migraines des fois, le Professeur... C'est peut être ça la Marque Blanche.) Voilà François, pour tout ça et pour le reste, pour savoir maîtriser comme personne le subtil dosage permettant de faire avancer un thésard tout en lui donnant l'impression que c'est grâce à lui, et aussi pour m'avoir permis de participer à l'encadrement de projets à l'ESO, je t'adresse un MERCI majuscule. Et bon courage pour ton futur poste de directeur de l'IOTA.

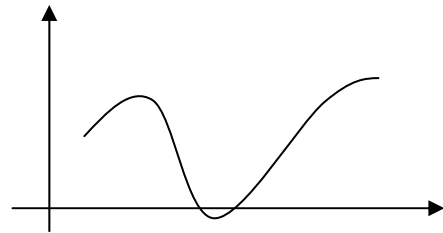
Gaëlle Lucas-Leclin. Ah Gaëlle... Que serait ce labo sans toi ? Un repaire de machistes obtus et bornés, incapables de discerner le beau, l'esthétique, l'indispensable détail qui fait que si science est un mot féminin, ben c'est pas un hasard. En effet, une diode laser c'est bien pour pomper un cristal, mais qu'y perd t'on si c'est une jolie diode laser, répertoriée dans un somptueux classeur, issue d'un magnifique tiroir, et que le cristal est dans une mignonne monture ? Rien. Et qu'y gagne t'on ? Le plaisir des yeux. De plus, les montures mécaniques de Gaëlle ne sont pas seulement belles : elles sont aussi solides. Et ça c'est pas rien. Car quand une diode laser (par exemple) sait qu'elle va être manipulée par Gaëlle, elle tremble, elle gémit, elle se réfugie toute penaude au fond de sa boîte, essayant de se cacher derrière sa fibre pour échapper à son triste destin. Rien n'y fera : il est plus que probable qu'elle finira par « un peu » tomber, rejoignant sur la liste les illustres cristaux, cafetières, tasses (la dernière en date s'est suicidée avant hier... Paix à son âme) et lentilles qui ont fait l'expérience de la légendaire adresse de Gaëlle. Mais ce qui caractérise le mieux Gaëlle, ce n'est pas d'avoir laissé tomber tant de matériel innocent (que celui qui n'a jamais rien cassé lui jette la première diode), c'est sa façon de travailler. En effet, comme le décrit si bien Chenais dans son étude remarquablement documentée des liens sociaux dans l'équipe ELSA [Chenais 02], Gaëlle est la porte-drapeau, l'inventeur (-euse ?), la figure de proue du travail dans l'urgence. Elle est l'égérie de ce courant surnois et dangereux qui veut qu'il est

¹⁰⁰ Les publi semblent cependant être extraites préférentiellement de l'Armoire magique, qui fonctionne comme le Tiroir mais seulement avec du papier...

¹⁰¹ Car le manoir secret du Professeur, situé à l'écart de la civilisation, dispose d'un jardin où poussent toutes sortes d'espèces curieuses, directement dans la terre et sans emballage sous vide !

bien plus efficace d'envoyer son résumé pour CLEO à 11h58 si la deadline est à 12 h00 que de le faire bêtement à l'avance pour assurer le coup. D'aucuns y reconnaîtrons là une marque de romantisme nonchalant, d'autres un inextinguible besoin de se faire peur ou encore une manifestation de panique devant le temps qui passe (ce qui serait un comble quand même pour une jeune femme de 28 ans). Pour ma part, je pense que c'est de la flemme de le faire avant. Enfin je dis ça je dis rien. Voilà avec tout ça j'ai beaucoup parlé de Gaëlle mais je ne l'ai pas remerciée ! Donc merci Gaëlle pour avoir participé activement à cette thèse, à la fois en guidant mes premiers mois au labo et en encadrant Aude et Emilie. Merci de rester tard au labo, ce qui permet à ceux qui en éprouvent le besoin de venir discuter un peu autour d'un café quand la motivation s'étirole. Merci pour toutes ses discussions sur tout et sur rien, sur les sujets sérieux et académiques (comme l'enseignement, la place des femmes dans la société ou comment que c'est qu'on fait pour être maîtresse de conférence) comme sur les mérites comparés de Pierce Brosnan et de Georges Clooney. Enfin pour boucler ce paragraphe comme il a commencé, merci d'être une femme (ça, ça le fait comme remerciement !) et d'apporter un peu de finesse dans ce monde de Freds.

Fred justement, **Frédéric Druon** de son patronyme complet. Ceux qui ne connaissent pas Fred ont du rester perplexes devant la dernière phrase du paragraphe précédent (ceci dit ceux qui ne connaissent pas Fred ne connaissent sûrement pas Gaëlle non plus, et il y'a fort à parier qu'ils ont abandonné depuis longtemps la lecture de ces remerciement pleins de *private jokes*. Non, vous êtes encore là ? Bravo.) Le problème que je rencontre lorsqu'il s'agit de parler de Fred est que tout a déjà été dit sur lui par Chenais (*ibid*)... Pour ne pas lasser les cinq lecteurs qui ont déjà lu cette référence et qui sont arrivé jusque là, je résumerais en trois mots forcément réducteurs Fred : 1) il portes des couleurs de vêtement que le bon goût réprouve¹⁰². 2) Il a un humour bien à lui (et à moi aussi des fois, j'avoue), que les spécialistes qualifient parfois de « lourd » dans leur jargon imagé, et qui est souvent tourné contre Gaëlle qui partage son bureau et lui fait office de souffre douleur¹⁰³. 3) Fred est un Chercheur. Un pur. Un vrai. Que se cache t'il derrière se qualificatif mystérieux au delà d'une appartenance au CNRS qui ne signifie pas forcément grand-chose ? Car Fred n'a pas de chercheur que le titre, il en a aussi l'esprit. Cet esprit est d'abord défini par un savoir, qui se caractérise en général pour les autres (enfin je parle surtout pour moi là) par un sentiment d'ignorance abyssale. Car Fred a réponse à tout ou presque. Il sait vous expliquer, avec ses mots à lui, tout ce que vous voulez savoir en optique, en électronique (et ça c'est pratique), ou sur la vie sexuelle du poisson clown des récifs coralliens. Voilà : aller voir Fred, c'est s'assurer d'obtenir une réponse. Mais pas de la comprendre... C'est là que réside toute la subtilité de l'esprit du Chercheur : comme il réfléchit plus vite que vous, il vous explique avec les éléments qui lui suffisent pour comprendre, ce qui n'est en général pas votre cas. Par exemple, l'outil de base du Chercheur pour expliquer un phénomène comme l'automodulation de phase est la courbe ci-contre (dite « courbe du Chercheur »). En effet, on y distingue nettement que bon, ben là ça s'annule donc comme après ça monte mais que avant non, en que si on regarde la phase c'est pareil mais dans l'autre sens (à droite en tout cas), bon ben le spectre il s'élargit. Ce qui est fort c'est que cette courbe - sans axe, vous l'aurez noté - permet également d'expliquer l'apparition du régime solitonique dans les fibres, de décrire le fonctionnement d'un filtre compliqué avec plein



¹⁰² Vous me direz : c'est pas beau d'affirmer sans preuve... Qu'à cela ne tienne, jugez vous-même : <http://www.iota.u-psud.fr/~brun/elsa/galerie/galerica/DSCN2950.JPG>.

¹⁰³ Il faut dire que Gaëlle appelle la vanne comme le camembert appelle le bordeaux : ses réactions au quart de tour à la moindre remarque machiste, même ouvertement second degré, sont autant de tentations auxquelles il est impossible de résister...

de trucs électroniques dedans, ou de mettre en perspective les projections relatives à la surnatalité préoccupante du Swaziland. Voilà comment on reconnaît un Chercheur (à part en constatant avec effroi qu'il lit – et comprend – les écrits de savants théoriciens russes comme Lyapounov ou Kirilenko) : il lui arrive après une explication *qu'il ne comprenne pas pourquoi vous ne comprenez pas*. Ceci dit Fred n'est pas vraiment comme ça : je ne compte pas les fois où il m'a retiré une fière chandelle du pied en éclairant de sa brillante lanterne l'obscurité théorique dans laquelle je me débattais. Une autre particularité de Fred par rapport au chercheur théoricien ordinaire est qu'il ajoute l'éclat à la blancheur ; en d'autres termes, en plus d'être un théoricien compétent, Fred est un manipulateur hors pair, et ça c'est quand même pas donné à tout le monde. Voilà, Fred c'est ça : tout un tas de compétences réunies dans un tout petit corps. Alors merci Fred d'avoir répondu patiemment à toutes mes questions même les plus naïves, merci d'avoir fait avancer mes manips avec des suggestions toujours constructives, merci pour tes talents de photographe qui ont permis de réaliser les si belles images qui illustrent ce manuscrit. Enfin merci pour l'ambiance au labo qui te doit beaucoup, et enfin pour tous les moments passés au labo ou ailleurs (dans le RER, sur les routes d'Alsace, sur les pentes des grand huit Gaulois ou chez toi autour de ta petite merveille)...

Sébastien Chenais n'est pas permanent à ELSA. Il n'y est même plus thésard, ni ATER. En fait il n'y est plus du tout, puisqu'il a émigré là-haut dans le brouillard, vers le grand Nord de Paris où les hurlements des loups et les bruit des voitures qui brûlent accompagnent désormais son quotidien. En plus, Seb (sans accent, c'est important) est nul. Il a fait une thèse nulle (sur les effets thermiques dans l'Ytterbium, non mais sincèrement qui ça intéresse ?), avec des manips super faciles que n'importe quel stagiaire de BTS aurait pu faire pourvu qu'on lui donne trois miroirs. Et si par hasard il a commis quelques articles (à peine une dizaine), c'est bien par hasard parce qu'il passait par là alors bon. La meilleure preuve de son incompétence notoire c'est qu'il est maintenant Maître de conférence à 25 ans et à Paris (ce qui est pour lui une condition *sine qua non* au bonheur). Pfff la honte. En plus, à l'instar de Gaëlle, Seb travaille n'importe comment, c'est-à-dire lentement et au dernier moment. Alors pourquoi remercier un mauvais qui n'est plus au labo ? D'abord parce que Seb m'a remercié dans sa thèse, et que je suis bien élevé ... Mais surtout parce que ma thèse ne se serait pas déroulée comme elle l'a fait sans Seb. Des discussions sans fin à refaire le monde ou l'enseignement autour d'un café permettant de différer élégamment le moment de retourner bosser aux séances de ciné partagées (et/ou commentées), Seb représente surtout pour moi la partie « non-travaillée » de ces 3 années... Merci donc pour tout ça, et aussi pour m'avoir accompagné (à moins que ce ne soit l'inverse) dans nombre d'idées plus ou moins farfelues comme ces articles sur « le laser dans le rétro » que tu rédiges avec brio et moi-même, ou comme la conférence Casserole dont tu organises avec talent le Piniouf de clôture (comprenez qui pourra...). Merci enfin de m'avoir permis de me frotter aux cours magistraux à l'EPF : j'ai suivi tes traces à partir de là, et j'espère que ça continuera encore longtemps...

Je remercie également **Gérard Roger**, grand artisan de la mécanique d'ELSA. Même si je suis conscient des sueurs froides que tu dois réprouver à la vue de certaines manips (comme la miennes par exemple...) à l'architecture improbable, je suis fier de t'annoncer n'avoir jamais cédé à la tentation de coller plutôt que de visser. Enfin presque. Merci pour avoir réalisé tant de pièces mécaniques compactes, juste adaptées, avec les réglages qu'il faut au bon endroit, là où s'élevait une superposition immonde de cales dépareillées... Si tout le monde travaillait comme toi, le monde serait plus stable.

Merci à tous les thésards qui ont traversé cette thèse et rendue la vie au labo si agréable, des « anciens » Elvire, Claude, et Stéphane aux « nouveaux » Aude, Emilie, Andrea et Mathieu, en passant par Pierre, Laurent, Yann et Reuno et avec une spéciale dédicace à Sylvie avec qui j'ai eu la joie de partager trois ans complets et un bureau, et à qui je souhaite bonne chance pour « la suite »...

Un grand merci également à tous les stagiaires qui ont participé à ce travail : merci à **Stéphanie Le Moal** qui a œuvré au « transfert technologique » de l'amplificateur 3D vers Nanolase en partageant son stage entre Orsay et Grenoble. Un grand *evkaristó* à **Διμήτρις Παπαδοπούλος (Dimitris Papadopoulos)** qui est venu de la lointaine Athènes pour apporter son concours à l'hectolaser. Enfin merci à **Emilie Hérault** qui a au cours de son stage généré les premiers photons rouges accordables de cette thèse et qui commence la sienne (pour faire des photons bleus cette fois...).

Merci à l'ensemble du personnel de l'Institut d'Optique, notamment **l'atelier d'optique** qui a toujours réalisé avec la compétence et la gentillesse qui les caractérise tous nos désirs, et avec une mention spéciale pour le **service des TPs** et en particulier Thierry Avignon et Lionel Jacubowicz, à qui nous avons emprunté maintes et maintes fois du matériel...

Enfin, et pour conclure ce chapitre, je souhaite remercier de tout mon coeur toutes les personnes qui m'ont soutenu, directement ou indirectement, durant ces 3 ans, et plus particulièrement mes parents, qui eux me soutiennent depuis bien plus longtemps...

LISTE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS DE L'AUTEUR

Articles dans des revues internationales avec comité de lecture

- **A1 :** Sébastien Forget, François Balembois, Pierre-Jean Devilder and Patrick Georges, “New 3D multipass amplifier based on Nd:YAG or Nd:YVO₄ crystals”, *Applied Physics B* **75**, pp. 481-485 (2002).
- **A2 :** Sébastien Forget, François Balembois, Gaëlle Lucas-Leclin and Patrick Georges, “Picosecond laser source at 1 MHz with continuous tunability in the visible red band”, *Optics Communications* **220**, pp 187 – 192 (2003).
- **A3 :** Dimitris Papadopoulos, Sébastien Forget, François Balembois, Frédéric Druon and Patrick Georges, “Passively mode-locked diode-pumped Nd:YVO₄ oscillator operating at ultra-low repetition rate”, *Optics Letters* Volume **28**, pp.1838-1840 (2003).

Brevet

- **B :** “Three-dimensionnal optical amplifier structure”, *Brevet européen* N° 03250198.3
Déposant : JDS Uniphase Corporation
Inventeurs : **S. Forget**, F. Balembois, P-J. Devilder, P. Georges

Conférences internationales avec publication d'actes

- **C1 :** **S. Forget**, F. Balembois and P. Georges, “New 3 D multipass diode-pumped amplification scheme” in OSA Trends in Optics and Photonics vol.68, *Advanced Solid-State Lasers 2002*, Québec (Canada), pp. 321-323 (**Oral**).
- **C2 :** **S. Forget**, F.Balembois, F. Druon and P. Georges, “Diode-pumped sub-ns ultraviolet laser system operating at 1 MHz” *Advanced Solid-State Photonics 2003*, San Antonio (USA) (**Oral**).
- **C3 :** E. Hérault, **S. Forget**, G. Lucas-Leclin and P. Georges, “Continuously tunable visible compact laser source using optical parametric generation in microlaser-pumped periodically poled lithium niobate” *Advanced Solid-State Photonics 2003* San Antonio (USA) (**Poster**).
- **C4 :** D.Papadopoulos, **S.Forget**, M.Delaigue, F. Balembois and P.Georges, “Ultra-long cavity passively mode-locked diode-pumped Nd:YVO₄ laser” à paraître *Advanced Solid-State Photonics 2004* Santa Fe (USA) (**Oral**).

Conférences internationales sans publications d'actes

- **C'1 :** S. Forget, F. Balembois, P. Georges, "New 3 D multipass amplification scheme based on diode-pumped Nd:YAG or Nd:YVO₄ crystals", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2002*, Long Beach (USA) **(Oral)**.
- **C'2 :** S. Forget, F. Balembois, F. Druon, G. Lucas-Leclin, P. Georges, "Compact sub-ns tunable laser system with a 1 MHz repetition rate", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2003*, Baltimore (USA) **(Oral)**..
- **C'3 :** S. Forget, F. Balembois, F. Druon, P. Georges, "Diode-pumped sub-ns ultraviolet laser system operating at high repetition rate", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-europe) 2003*, Munich (Allemagne) **(Oral)**..
- **C'4 :** D. Papadopoulos, S. Forget, F. Balembois, S. Lévêque-Fort, M-P Fontaine-Aupart and P. Georges, "1 MHz high energy passively mode-locked diode-pumped Nd:YVO₄ laser", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2004*, San Fransisco (USA) **(Oral)**.

Conférences nationales avec publications d'actes

- **N1 :** D.Papadopoulos, S.Forget, M.Delaigue, F.Balembois, and P.Georges, "laser mode-lock à cavité géante", *Coloq 8* (2003), Toulouse (France).